

DEPARTAMENTO DE FÍSICA APLICADA Y
ELECTROMAGNETISMO

ESPECTROSCOPIA ÓPTICA CONFOCAL APLICADA AL
ESTUDIO DE CAJAS CUÁNTICAS AISLADAS DE
ARSENIURO DE INDIO (InAs)

JOSÉ BENITO ALÉN MILLÁN

UNIVERSITAT DE VALENCIA
Servei de Publicacions
2004

Aquesta Tesi Doctoral va ser presentada a València el dia 8 de Juny de 2004 davant un tribunal format per:

- D. Alfredo Segura García Del Río
- D. Alberto García Cristóbal
- D. Jorge M. García Martínez
- D. Luis Viña Liste
- D. Khaled Karraj

Va ser dirigida per:

Dr. D. Juan Martínez Pastor

©Copyright: Servei de Publicacions
José Benito Alén Millán

Depòsit legal:

I.S.B.N.:84-370-1456-5

Edita: Universitat de València
Servei de Publicacions
C/ Artes Gráficas, 13 bajo
46010 València
Spain
Telèfon: 963864115

UNIVERSIDAD DE VALENCIA
Departamento de Física Aplicada y Electromagnetismo



VNIVERSITATIS VALENTINAE

**Espectroscopía óptica confocal aplicada al
estudio de cajas cuánticas aisladas de
Arseniuro de Indio (InAs)**

por

J. Benito Alén Millán

para optar al Grado de Doctor en Física

VALENCIA
Abril de 2004

Prof. Juan Martínez Pastor

e-mail: martinep@uv.es

Tfno. +34963544793

Fax. +34963543633

Apdo. Oficial 2085

46071 VALENCIA

D. JUAN MARTINEZ PASTOR, Profesor Titular de Física Aplicada
de la Universitat de València Estudi General,

CERTIFICA

Que la presente memoria, titulada “*Espectroscopía óptica confocal aplicada al estudio de cajas cuánticas aisladas de Arseniuro de Indio (InAs)*” ha sido realizada bajo mi dirección en el *Institut de Ciència dels Materials de l’Universitat de València* por el licenciado D. JOSÉ BENITO ALÉN MILLÁN, y constituye su Tesis para optar al grado de Doctor en Física

Y para que así conste, en cumplimiento de la legislación vigente, doy mi visto bueno y autorización para que se presente la referida Tesis Doctoral a la Universitat de València, firmando el presente certificado en

Paterna, a 23 de Abril de 2004

Fdo.: Juan Martínez Pastor

*A M^a Carmen, porque sin ella todo sería más difícil,
A mi madre y a mi padre, por su sacrificio inmenso,*

”There is a theory which states that if ever anyone discovers exactly what the universe is for and why it is here, it will instantly disappear and be replaced by something even more bizarre and inexplicable. There is another that states that this has already happened.”

”Humans think they are smarter than dolphins because we build cars and buildings and start wars etc... and all that dolphins do is swim in the water, eat fish and play around. Dolphins believe that they are smarter for exactly the same reasons.”

Quoted from *”The Hitchhiker’s Guide to the Galaxy”* by
Douglas Adams

Índice general

1. Introducción General	5
2. Nanoespectroscopía de cajas cuánticas aisladas	9
2.1. Obtención y caracterización de cajas cuánticas aisladas	9
2.1.1. Métodos litográficos	10
2.1.2. Métodos de crecimiento autoensamblado	14
2.1.3. Métodos de caracterización de alta resolución espacial	17
3. Microscopía confocal aplicada a la espectroscopía de semiconduc- tores	25
3.1. Resolución lateral y axial de un microscopio confocal	27
3.2. Algunas consideraciones de tipo instrumental	32
3.2.1. Fuente de luz	33
3.2.2. Elementos ópticos	42
3.2.3. Detectores	44
3.3. Microscopio confocal de fibra óptica	52
4. Estudio macroscópico de nanoestructuras cuánticas autoensambla- das de InAs	57
4.1. Nanoestructuras cuánticas autoensambladas de InAs	58
4.2. Efecto de un campo eléctrico en cajas cuánticas InAs/GaAs.	66
5. Interacción de Coulomb intra-banda en un semiconductor	79
5.1. La ecuación de Hartree	79

5.2.	El método $k \cdot p$ y la aproximación de la masa efectiva	81
5.3.	La ecuación de Hartree-Fock: partículas indistinguibles	84
5.4.	Interacción coulombiana en cajas cuánticas de InAs	87
5.5.	Confinamiento fuerte <i>vs</i> confinamiento débil: validez del modelo perturbativo	91
6.	Dispositivo experimental	97
6.1.	Sistema criogénico y de vacío	97
6.2.	Montaje de caracterización eléctrica: PC, y C-V	99
6.3.	Montaje de caracterización óptica macroscópica: PL	102
6.4.	Montaje de micro-espectroscopía óptica de emisión: μ PL, y μ PLE . .	104
6.5.	Montaje de micro-espectroscopía óptica de modulación: $\mu\Delta T$, y $\mu\Delta R$	107
6.6.	Control y automatización	109
7.	Muestras	113
7.1.	Epitaxia	116
7.2.	Procesado	120
7.3.	Caracterización electroóptica macroscópica I: C-V y P-C	122
7.4.	Caracterización electroóptica macroscópica II: PL	135
8.	Espectroscopía óptica de emisión de nanoestructuras cuánticas aisladas: μPL y μPLE	147
8.1.	μ PL de cajas cuánticas aisladas de InAs	148
8.1.1.	Resolución espacial y propiedades individuales de cajas cuánticas de InAs	148
8.1.2.	Resolución espectral y propiedades individuales de cajas cuánticas de InAs	152
8.1.3.	Estudio general de la μ PL en función del campo eléctrico . . .	154
8.1.4.	Estudio detallado de la μ PL en función del campo eléctrico . .	160
8.1.5.	Contribución de (A^0, X) a la μ PL de cajas cuánticas aisladas .	174
8.2.	μ PLE de cajas cuánticas aisladas de InAs	183

8.2.1. Estudio general de la μ PLE	186
8.2.2. Estudio detallado de la μ PLE	192
8.2.3. μ PLE en función del campo eléctrico aplicado	208
9. Espectroscopía óptica de modulación de nanoestructuras cuánticas aisladas: $\mu\Delta T$ y $\mu\Delta R$	213
9.1. Espectroscopía de absorción de cajas cuánticas aisladas de InAs . . .	215
9.1.1. Consecuencias del <i>principio de exclusión de Pauli</i> en la absor- ción de cajas cuánticas de InAs	216
9.1.2. Conceptos básicos	218
9.1.3. Resultados experimentales	226
9.1.4. Espectroscopía de saturación de cajas cuánticas aisladas . . .	239
9.2. Espectroscopía de dispersión de cajas cuánticas aisladas de InAs . . .	255
10. Conclusiones	269

Apéndices

A. Difracción de la luz por una lente delgada. Disco de Airy	273
B. Descripción del sistema de detección y colección	279
C. Amplitud de modulación y espectro de absorción	291
D. Constantes fundamentales y magnitudes relevantes	297

Anexo

I Hilos cuánticos autoensamblados $Ga_xIn_{1-x}As/InP$	299
--	-----

Bibliografía	311
Lista de publicaciones	329
Agradecimientos	331

Capítulo 1

Introducción General

En 1970, Leo Esaki propuso la primera estructura cuántica semiconductor en un trabajo que hoy en día es clásico de la Física de Semiconductores [1]. No en vano, la profunda visión de futuro de las predicciones hechas por él, han proporcionado múltiples y sorprendentes resultados, no sólo en la investigación básica de los semiconductores, sino también en las numerosas aplicaciones que de ella se han derivado. Nadie en aquellos momentos podía imaginar que hoy en día sería posible controlar la forma y tamaño de los materiales semiconductores a escalas nanométricas. Sin embargo, en el transcurso de los años, el incipiente desarrollo de las técnicas de crecimiento epitaxial ha propiciado la creación de diversas estructuras en las que el confinamiento espacial de los portadores es cada vez más elevado. El término nanoestructura tal y como lo conocemos hoy en día, no ha sido acuñado hasta que dicho confinamiento se ha demostrado en las tres direcciones del espacio, pero lo verdaderamente relevante es que muchas de sus propiedades ya fueron predichas en el caso de la superred imaginada por L. Esaki. Cuando el confinamiento es tridimensional, en múltiples aspectos, estos sistemas constituyen un sistema modelo de fenómenos hasta hace poco reservados a la Física Atómica y Molecular. En otras ocasiones, sus propiedades no tienen análogo ni siquiera en aquella. El efecto combinado del alto confinamiento espacial de los portadores de carga, y de la interacción coherente entre estos portadores y el resto de excitaciones propias del semiconductor, dan lugar a propiedades nuevas que son exclusivas de estos sistemas.

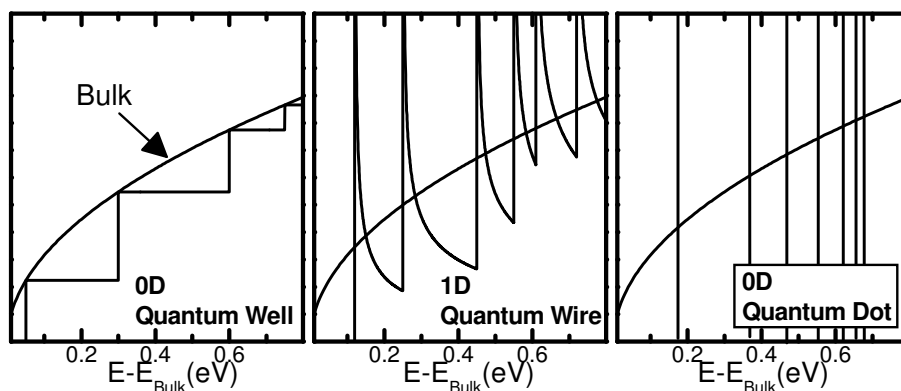


Figura 1.1: Densidad de estados en nanoestructuras cuánticas semiconductoras ideales. Reduciendo de tres a cero el número de grados de libertad, los estados electrónicos disponibles para los portadores evolucionan desde un espectro continuo en energía en el material en volumen, a un conjunto discreto de energías en las cajas cuánticas cero-dimensionales.

El requisito esencial para que todas estas nuevas características puedan ser estudiadas es que el confinamiento sea efectivo en longitudes del orden del recorrido libre medio del portador en el semiconductor considerado. Con ello, las propiedades electrónicas del mismo pasan paulatinamente, del carácter continuo típico de los materiales en volumen, al carácter discreto de las cajas cuánticas semiconductoras [fig. 1.1].

En este trabajo de tesis presentaremos resultados experimentales y teóricos basados en el estudio de las propiedades ópticas y electrónicas de cajas cuánticas autoensambladas y aisladas de Arseniuro de Indio. Para ello, en los siguientes cuatro capítulos introduciremos el estado actual de la investigación en este campo y las técnicas experimentales y modelos teóricos que permiten dicho estudio. Esta introducción se basa en una recopilación de los conceptos más importantes necesarios para describir las propiedades individuales de estos sistemas que son el objeto principal de esta tesis. En el capítulo 6 veremos las técnicas experimentales utilizadas para caracterizar las diversas muestras investigadas. Las propiedades morfológicas y macroscópicas de dichas muestras serán analizadas en el capítulo 7 poniéndose de manifiesto su importancia para una correcta interpretación de los resultados mi-

croscópicos. El estudio de las propiedades individuales de cajas cuánticas aisladas de InAs se llevará a cabo en los capítulos 8 y 9. En los mismos, los resultados obtenidos en experimentos de micro-espectroscopía de emisión y modulación serán analizados a la luz de diversos modelos teóricos y, cuando sea posible, comparados con resultados ya publicados por otros autores. Tras las conclusiones generales del capítulo 10 se han incluido diversos apéndices que recogen algunos aspectos más específicos que se han separado de la discusión principal. Finalmente, se ha considerado oportuno incluir un anexo con los resultados obtenidos en hilos cuánticos autoensamblados de InAs/InP por su afinidad con las cajas cuánticas InAs/GaAs investigadas en esta tesis. De esta manera, completamos una visión de conjunto de las propiedades ópticas y electrónicas de nanoestructuras cuánticas autoensambladas de InAs investigadas a través de varios métodos experimentales con diferentes grados de resolución espacial y espectral.

Capítulo 2

Nanoespectroscopía de cajas cuánticas aisladas

En la introducción general el concepto de caja cuántica ha sido presentado haciendo especial hincapie a que son sus dimensiones nanométricas lo que hace que este sistema posea propiedades inéditas en los sistemas macro o microscópicos. Por supuesto, esto impone importantes restricciones y requerimientos durante la fabricación y caracterización de tales sistemas físicos, que aumentan considerablemente cuando el interés se centra en el estudio de las propiedades individuales de una de dichas cajas cuánticas.

2.1. Obtención y caracterización de cajas cuánticas aisladas

En la presente sección presentaremos los factores fundamentales a tener en cuenta para la obtención y estudio de cajas cuánticas aisladas. Para ello, revisaremos los métodos empleados en este campo de la nanotecnología que son relevantes para los objetivos propuestos en esta tesis. Como es habitual en estos casos, ningún método es superior o inferior a los demás y cada aproximación al problema tendrá sus propias ventajas e inconvenientes cuya idoneidad dependerá de la naturaleza del estudio que

se ha de llevar a cabo.

2.1.1. Métodos litográficos

De manera general, el propio concepto de caja cuántica aislada es poco aclaratorio atendiendo a su uso en la literatura. Multitud de sistemas basados en diferentes materiales han sido bautizados con ese nombre en la literatura científica de los últimos quince años. Así por ejemplo, partiendo de gases de electrones bidimensionales (2DEG¹) generados en la intercara de capas epitaxiales Al(Ga)As/GaAs, es posible definir por litografía de haces de electrones contactos superficiales lo bastante pequeños como para depletar la carga en áreas minúsculas de la superficie de la muestra [fig. 2.1]. Para un área de la carga depletada lo bastante pequeña y a 4 K de temperatura, las características de intensidad-voltaje y/o capacidad-voltaje pueden ser analizadas atendiendo a las propiedades de un número finito y pequeño de electrones contenidos en el área definida por la litografía. Esta espectroscopía de uno o pocos electrones ha permitido bautizar tales dispositivos como cajas cuánticas dado que los electrones en su interior se hayan confinados cuánticamente como demuestra la estructura de niveles discretos que presentan y las propiedades coherentes de transporte a través de los mismos [2, 3].

Además, en el caso recién descrito y esquematizado en la figura 2.1, dichas cajas cuánticas se encuentran realmente aisladas en tanto que se hayan separadas distancias macroscópicas de otras cajas cuánticas presentes, hipotéticamente, en el mismo sustrato. Esto permite estudiar las propiedades individuales de las mismas basándonos sólo en su interacción mutua y con el medio que las rodea. Dicho acoplamiento al medio es inevitable tratándose de nanoestructuras semiconductoras que surgen de una modificación de las propiedades locales del material semiconductor huésped que las alberga y rodea. El conocimiento y control de dicha interacción es indispensable por dos motivos. En primer lugar, la propia caja cuántica, como sistema físico, ha de estar acoplada con el mundo macroscópico a fin de que sus propiedades sean accesibles experimentalmente. Por otro lado, esa interacción ha de ocurrir sin

¹De las siglas en inglés de Two Dimensional Electron Gas

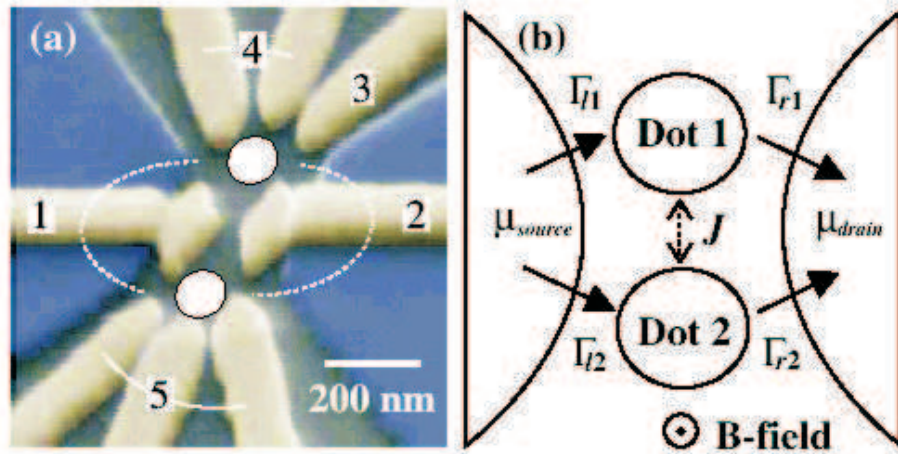


Figura 2.1: Imagen de microscopía electrónica de un dispositivo que contiene dos cajas cuánticas aisladas definidas en un 2DEG (a). Variando los voltajes aplicados a los diferentes contactos Schottky en presencia de un campo magnético perpendicular a la estructura, las propiedades de transporte coherente de electrones viajando a través de una u otra caja cuántica son investigadas. Las interacciones presentes en dicho sistema se muestran esquemáticamente en (b). Reproducido de Holleitner *et al* [3].

que el carácter cuasi-atómico de dichas propiedades se pierda. Supongamos una caja cuántica en la que un electrón confinado sólo puede ocupar ciertos niveles discretos separados entre sí una energía dada. La anchura de línea homogénea de uno cualquiera de esos niveles dependerá de la coherencia del electrón en dicho estado y de su tiempo de vida. Para una caja cuántica totalmente aislada, *i. e.* en ausencia de toda interacción, dicho electrón se mantendría coherente hasta decaer a otro nivel de menor energía en un tiempo dado por su probabilidad de emisión espontánea. En tal situación su anchura de línea homogénea sería:

$$\Gamma = \Gamma^{sp} \quad (2.1)$$

Cuando dicho electrón interactúa con el medio semiconductor que rodea la caja cuántica, por ejemplo a través de la interacción electrón-fonón, la anchura homogénea del nivel asociado aumenta y viene dada por:

$$\Gamma = \Gamma^{sp} + \Gamma^{nr} + 2\gamma_{xd} \quad (2.2)$$

donde γ_{xd} da cuenta de aquellos procesos que afectan a la coherencia del estado, pero no a su tiempo de vida [4]. En caso de que la anchura superase cierto valor, la posible superposición de los diferentes niveles destruiría al carácter discreto y cuasi-atómico de la estructura electrónica de la caja cuántica, y por tanto éste es el primer factor a tener en cuenta en el diseño y estudio de tales sistemas. A fin de minimizar la interacción electrón-fonón en un sólido, es corriente disminuir la temperatura de la muestra hasta unos pocos kelvin o incluso milikelvin. Esto se debe a que el número de estados fonónicos ocupados a una energía dada disminuye exponencialmente con la temperatura según la ley de Bose-Einstein [5]:

$$N_{ph}(\omega) = \frac{1}{\exp\frac{\hbar\omega}{kT} - 1} \quad (2.3)$$

Pero ésta no es la única estrategia a seguir, y tampoco la más deseable, si pretendemos utilizar las ventajas de estos sistemas para obtener dispositivos que funcionen a temperatura ambiente. Recientemente, se han estudiado las propiedades de cajas cuánticas aisladas y parcialmente desacopladas del medio semiconductor huésped que las alberga [6]. Para conseguirlo, la epitaxia de AlGaAs/GaAs se realiza de la manera habitual para obtener un gas de electrones bidimensional en una intercara cercana a la superficie de la muestra. Además, una capa sacrificable se incluye en la estructura entre el sustrato y el 2DEG. Por procedimientos químicos llevados a cabo tras la epitaxia, dicha capa sacrificable se elimina (de ahí su nombre) dejando una caja cuántica suspendida en el centro de una membrana de semiconductor que la conecta al sustrato [fig. 2.2(a)]. En tal sistema, las propiedades de transporte de electrones de uno a otro extremo de la caja están determinadas por el acoplamiento coherente entre cada electrón y los modos de vibración de la estructura que la sustenta. Las reducidas dimensiones y la alta simetría de dicha estructura provoca que sólo unos pocos modos sean posibles, inhibiéndose de manera dramática el acoplamiento entre la caja cuántica y su entorno, tal y como se pretendía mostrar.

Como vemos, obtener cajas cuánticas aisladas como las descritas arriba es un proceso delicado que requiere del uso de tecnologías litográficas complejas. Su ventaja es evidente desde el punto de vista de que una o pocas cajas son definidas en un dispositivo que nos permite estudiar sus propiedades individuales. Sin embargo,

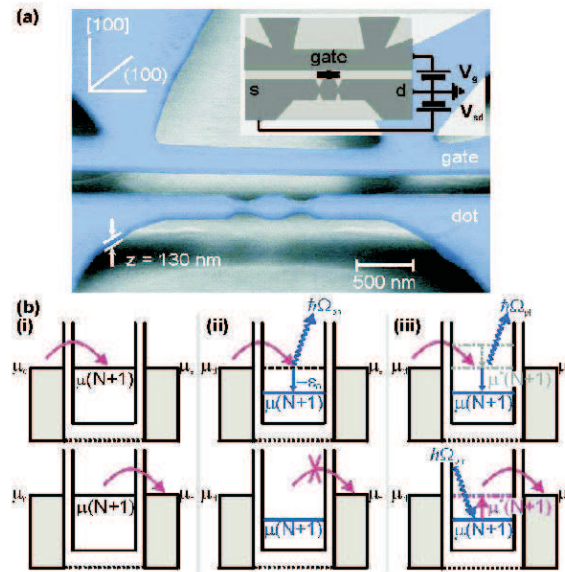


Figura 2.2: Micrografía electrónica de un dispositivo que contiene una caja cuántica contenida en una membrana libremente suspendida sobre el sustrato (a). El transporte coherente de electrones a través de la caja cuántica depende de manera crucial de la estructura de niveles vibracionales de la membrana y su interacción con los estados electrónicos (b). Reproducido de Weig *et al* [6].

este método también presenta desventajas derivadas de la tecnología empleada. Para volúmenes de material tan pequeños como los necesarios para que el confinamiento cuántico de los portadores tenga lugar, las técnicas de litografía y procesamiento químico post-epitaxia introducen un elevado número de defectos superficiales debido tanto a los enlaces no saturados del propio material como a la implantación de impurezas provenientes de los reactivos. Esto provoca una reducción importante de la movilidad y densidad de portadores libres² que aunque no compromete de manera drástica el transporte coherente de electrones a través de la nanoestructura (sus dimensiones son aún menores que el recorrido libre medio), si que disminuye de manera decisiva la eficiencia radiativa de la misma $q = \Gamma^{sp}/\Gamma^{nr}$, haciéndolos ópticamente inactivos .

Este hecho nos obliga a abandonar las técnicas litográficas de alta resolución

²En el ejemplo anterior $n_S = 9.1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ y $\mu = 234000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ para el gas bidimensional original antes del procesamiento, y $n_S = 6.25 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ y $\mu = 5500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ en la estructura final [7].

cuando lo que pretendemos es estudiar las propiedades ópticas de cajas cuánticas aisladas.

2.1.2. Métodos de crecimiento autoensamblado

Las cajas cuánticas autoensambladas y en general las nanoestructuras cuánticas autoensambladas constituyen los candidatos ideales cuando se trata de estudiar los fenómenos de generación, relajación y recombinación excitónica en semiconductores, siendo dichos procesos determinantes para la estrategia presente y futura en el diseño y fabricación de dispositivos optoelectrónicos más eficientes³. El inconveniente en este caso proviene del hecho de que resulta difícil obtener cajas cuánticas aisladas en el sentido macroscópico descrito arriba. En el capítulo 4 y las referencias allí incluídas, proporcionaremos más información sobre el método de crecimiento. Por ahora nos centraremos en su capacidad para producir nanoestructuras cuánticas aisladas. Tomando como referencia el sistema In(Ga)As/GaAs, las técnicas actuales basadas en el crecimiento autoensamblado son ineficientes en producir muestras con densidades superficiales menores de 10^8 cm^{-2} , siendo la densidad típica de 10^8 - 10^{11} cm^{-2} [fig. 2.3]. Así, si d_c es el espesor crítico en ML, la variación de la densidad superficial con el número de monocapas de InAs depositadas d , viene dada por:

$$\rho_D = \rho_0(d - d_c)^\alpha \quad (2.4)$$

donde $\rho_0 = 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $\alpha = 1.76$ y $d_c = 1.5 \text{ ML}$ se obtienen experimentalmente del estudio sistemático de muestras crecidas en las mismas condiciones [12]. Cabe decir que bajo ciertas condiciones, se pueden obtener densidades hasta dos ordenes de magnitud menores si el sustrato no se rota durante la epitaxia. En tal caso, la concentración de cajas cuánticas en la superficie variará de un extremo a otro de la muestra según el gradiente de espesor depositado dado por la geometría de la cámara de crecimiento. Sin embargo, la dependencia crítica predicha por la ecuación (2.4) previene de conseguir áreas extensas con recubrimientos menores de 10^8 cm^{-2} y los resultados se reducen a unos pocos casos en la literatura [13].

³Ejemplos relevantes de estas aplicaciones aparecen en [8, 9, 10, 11].

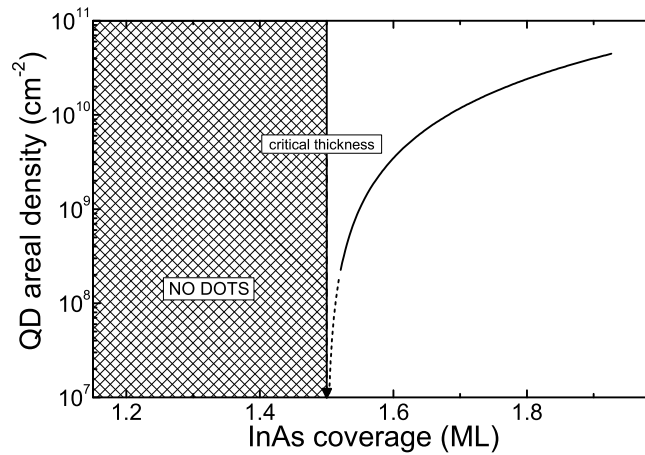


Figura 2.3: Dependencia de la densidad superficial de cajas cuánticas autoorganizadas InAs/GaAs con el espesor de InAs depositado durante la epitaxia según los parámetros obtenidos por Leonard *et al* [12].

Con esas elevadas densidades superficiales el estudio de las propiedades de una sola caja cuántica es complicado y, por tanto, es intensa la investigación dedicada al aislamiento efectivo de las mismas en éste y otros materiales. Por ejemplo, las llamadas cajas cuánticas *naturales* surgen de manera espontánea al crecer pozos cuánticos de pequeño espesor interrumpiendo el crecimiento entre las distintas capas para permitir un cierto desorden de la capa bidimensional. Las cajas cuánticas aparecen entonces de manera natural como fluctuaciones de monocapa en el espesor del pozo cuántico en cuestión. El resultado son islas de ~ 4 nm en la dirección de crecimiento y una extensión lateral entre 40 y 60 nm, que se hallan fuertemente acopladas electrónicamente al pozo cuántico que las contiene. Este sistema ha sido estudiado con notable éxito en la combinación GaAs/Al(Ga)As, y numerosos resultados en cajas cuánticas individuales de este tipo han aparecido en la literatura en experimentos de fotoluminiscencia (PL), fotoluminiscencia de excitación (PLE) [14, 15, 16], resolución temporal [17], espectroscopía no lineal [4] y más recientemente absorción [18]. Estas cajas cuánticas naturales, dejando aparte las diferencias en el crecimiento de las mismas, se diferencian de las cajas cuánticas autoensambladas de InAs/GaAs por el menor confinamiento de los portadores en las primeras debido

al pobre confinamiento lateral (~ 8 meV)⁴, pero por lo que respecta a la densidad superficial, los valores son igualmente elevados y del orden de las muestras basadas en cajas cuánticas autoensambladas InAs/GaAs.

La situación no mejora sustancialmente al cambiar a otros materiales. Así, aparte de las diferentes combinaciones In(Ga)As/(Al)GaAs o In(Al)As/(Al)GaAs derivadas en parte del primigenio sistema InAs/GaAs, otras combinaciones basadas en materiales III-V tales como InAs/InP, InP/GaAs, InAs/GaP, InP/GaInP o GaSb/GaAs han sido propuestas verificando experimentalmente su crecimiento. Igualmente, se han obtenido resultados satisfactorios en sistemas basados en materiales del grupo IV (Ge/Si), materiales II-VI (ZnCdSe/ZnSe) y recientemente en compuestos III-V con Nitrógeno (InGaN/AlGaN) [19]. Pero igual que antes, difícilmente la densidad superficial en todos estos sistemas es menor de 10^8 cm⁻².

Mención aparte merecen los recientes estudios llevados a cabo en el crecimiento de nanoestructuras cuánticas sobre substratos con preforma. En los mismos, la capa bidimensional sobre la que las nanoestructuras han de desarrollarse no es inicialmente plana, sino que consta de una determinada estructura tridimensional, por lo general altamente regular. Dicha preforma puede surgir de un proceso espontáneo, por ejemplo si el índice cristalográfico en la dirección de crecimiento es elevado, o bien artificial, caso de que la superficie se procese fisico-químicamente antes del crecimiento de las nanoestructuras. En ambos casos, el fin último de dicho proceso es conseguir controlar, sobre áreas extensas del substrato, la posición de las nanoestructuras semiconductoras autoensambladas, lo cual significa también controlar su densidad superficial [20, 21].

⁴La mayor extensión de la función de onda las beneficia con una mayor fuerza de oscilador, propiciando una mayor eficiencia radiativa y de ahí su relevancia en los numerosos estudios ópticos llevados a cabo. Sin embargo, los tiempos de decoherencia disminuyen proporcionalmente haciendo inadecuado su uso en dispositivos donde los estados hayan de permanecer inalterados, o a temperaturas > 4 K donde el pobre confinamiento se muestra insuficiente para mantener los portadores localizados [17].

2.1.3. Métodos de caracterización de alta resolución espacial

De lo dicho en la sección anterior vemos que, por medio del diseño y fabricación de sustratos adecuados, es de esperar que en un futuro próximo sea posible obtener cajas cuánticas autoensambladas libres de defectos y separadas entre si distancias macroscópicas. Entretanto, y dado que la gran mayoría de las muestras disponibles actualmente gozan de una densidad superficial elevada, es necesario recurrir a técnicas especiales para acceder a las propiedades individuales de dichas cajas. Tales técnicas están encaminadas a reducir el área de interacción entre el instrumento de medida y la muestra, de manera que solamente una caja cuántica sea examinada cada vez.

En el caso del estudio de las propiedades eléctricas, esto se ha conseguido recientemente reduciendo al máximo el tamaño de los contactos eléctricos para que una sola caja cuántica autoensamblada intervenga en el transporte de electrones de uno a otro contacto [fig. 2.4] [22].

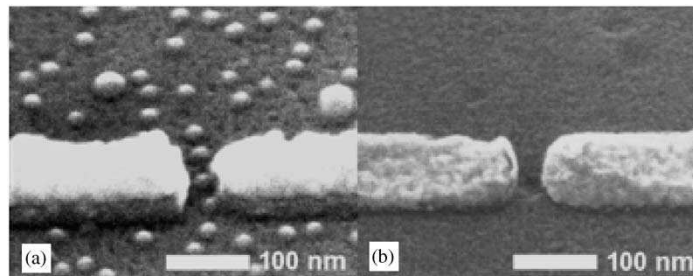


Fig. 2. (a) SEM image of typical samples fabricated on a wafer without a GaAs capping layer and (b) with a capping layer. An average nanogap width was 10–20 nm.

Figura 2.4: Hoy en día es posible contactar de manera individual una caja cuántica autoensamblada y medir sus propiedades de transporte. Reproducida de Jung *et al* [22].

Una aproximación equivalente aplicada al estudio de las propiedades ópticas consiste en procesar litográficamente la muestra que contiene las cajas cuánticas autoensambladas fabricando sobre ella una máscara de un metal (Au o Al, típi-

camente) en la cual se practican aperturas de distintos tamaños. Para tamaños lo bastante pequeños de la apertura se puede conseguir que una sola caja cuántica yazca en su interior, y si además las aperturas están suficientemente separadas entre si, es posible estudiar sus propiedades ópticas individuales, incluso si la resolución óptica de nuestro experimento es varias veces superior al diámetro de la apertura [23, 16, 24]. Sin embargo, dicho proceso no está libre de inconvenientes: por un lado, la metalización de la muestra es un proceso irreversible, y por tanto, invasivo, que invalida la muestra para otro tipo de estudios; por otro lado, para un diámetro de la apertura por debajo de cierto valor las propiedades de la caja cuántica no pueden considerarse independientes de la presencia de la máscara⁵. Estas o parecidas consideraciones se pueden hacer en relación a la utilización de procesos químicos encaminados a la micro-fabricación de estructuras tipo "mesa" en los que el material que rodea una o unas pocas cajas cuánticas es eliminado para poder medir sus propiedades individuales [25, 26].

Vemos pues que a fin de que las propiedades individuales de una sola caja cuántica puedan ser estudiadas, si se utilizan métodos invasivos, uno ha de sacrificar otros beneficios o ver modificadas dichas propiedades. Afortunadamente, en el caso de las propiedades ópticas, hoy en día el desarrollo de la tecnología óptica es tal que cada vez es posible alcanzar resoluciones más elevadas en las condiciones inusuales de baja temperatura que generalmente requiere la espectroscopía de semiconductores. En el caso del estudio de cajas cuánticas aisladas dos son las herramientas principales para llevar a cabo tal estudio:

⁵Este punto ha sido puesto de manifiesto estudiando las anchuras de línea homogéneas de la emisión de cajas cuánticas individuales para diferentes diámetros de la apertura. En dicho estudio se observa que la interacción entre el excitón confinado en la nanoestructura y el plasmón excitado por la luz incidente sobre la máscara puede ensanchar las líneas de emisión hasta un 400 % cuando la apertura se reduce de 500 a 80 nm [23].

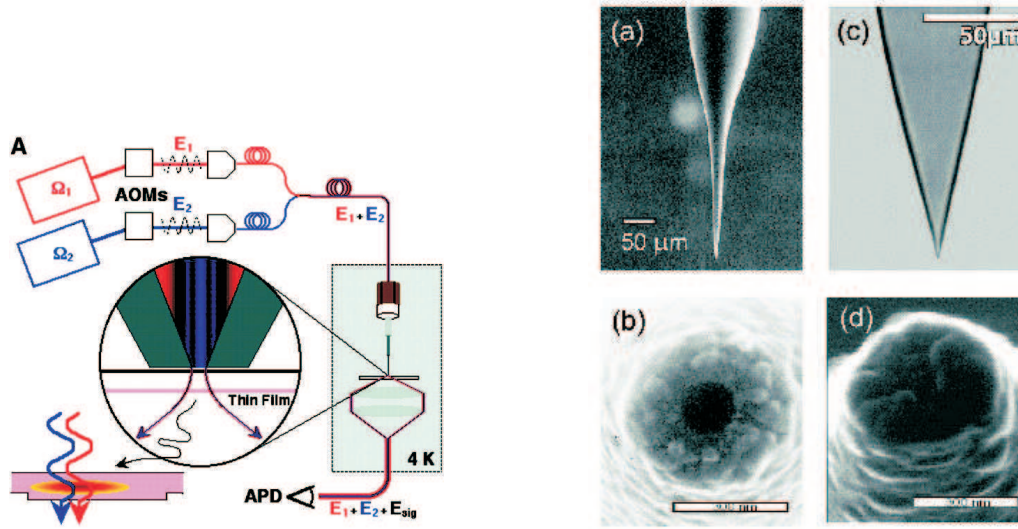


Figura 2.5: A la izquierda, diagrama esquemático de un experimento de espectroscopía coherente utilizando un microscopio NSOM. La superposición coherente de dos láseres E_1 y E_2 de distinta longitud de onda que iluminan la muestra en campo cercano genera la respuesta no lineal detectada en campo lejano de una caja cuántica natural GaAs/AlGaAs (NSOM en modo de iluminación). Reproducido de Guest *et al* [27]. A la derecha, imágenes de microscopía convencional (a,c) y SEM (b,d) de puntas de prueba NSOM fabricadas a partir de fibras ópticas monomodo mediante calentamiento-estiramiento (a,b) y ataque químico (c,d). La barra de escala en b y d corresponde a 300 nm. Reproducido de Hecht *et al* [28].

Microscopio óptico de barrido de campo cercano o NSOM

El primer NSOM⁶ surge en 1982 en los laboratorios IBM de Zurich merced al trabajo llevado a cabo por Dieter Pohl y colaboradores [29, 30]. Inicialmente ideado como dispositivo de imagen con ultraresolución, su nacimiento supuso la ruptura del límite hasta entonces impuesto para la microscopía óptica y expresado en el criterio de Rayleigh. Éste nos dice que dos objetos infinitesimales que se encuentren separados una distancia d en el plano objeto, no podrán ser resueltos individualmente en el plano imagen a no ser que $d \geq r_{Airy}$:

$$r_{Airy} = 0.61 \frac{\lambda_0}{NA_{obj}} \quad (2.5)$$

⁶De las siglas en inglés de *Near-field Scanning Optical Microscope*.

donde λ_0 es la longitud de onda de la luz en el vacío y NA_{obj} es la apertura numérica del objetivo utilizado. Dicho límite surge del hecho de que la imagen de un objeto infinitamente pequeño a través de un sistema óptico no es infinitamente pequeña sino que consiste en un halo de círculos brillantes concéntricos separados por zonas oscuras, siendo el radio del primer mínimo igual a r_{Airy} . Este resultado es consecuencia del análisis clásico de la difracción de la luz, y en sistemas reales es un límite inferior que aumenta siempre que el sistema sufra de aberraciones de cualquier tipo. Esta descripción de la resolución en sistemas ópticos convencionales puede ser comprendida también mediante la Óptica de Fourier sirviendo mejor a nuestros fines. Desde este punto de vista, la información contenida en el objeto y codificada a frecuencias espaciales $f > 1/\lambda$ resulta ser evanescente. Es decir, la información en estas frecuencias espaciales elevadas decae exponencialmente con la distancia desde la muestra. La constante de amortiguamiento es tal, que de manera efectiva, ninguna información concerniente al objeto procedente de detalles de tamaño menor que la longitud de onda, puede alcanzar los elementos ópticos remotos [31]. Dicho esto, la ventaja ofrecida por el NSOM resulta evidente. Como su propio nombre indica, el NSOM se beneficia de la interacción entre la punta óptica de prueba y el objeto, separados entre sí unos pocos nanómetros, de manera que dicha interacción es sensible a las ondas evanescentes del *campo cercano*. A dichas distancias de la superficie la resolución no depende ya más de la difracción de los frentes de onda si no que está limitada por la propia dimensión o apertura de la punta de prueba permitiendo resoluciones ópticas *sub-Rayleigh* [32]. Resaltamos el carácter óptico del instrumento, pues su funcionamiento es similar al de otras microscopías de barrido como las de efecto túnel (STM⁷) o de fuerzas atómicas (AFM⁸), donde el tamaño de la punta de prueba también determina en gran medida la resolución. En el caso del NSOM la ventaja es doble, pues, aunque lejos de la resolución atómica de los otros sistemas, todavía es un buen instrumento en el estudio morfológico (topográfico) de superficies, añadiendo a esto sus capacidades espectroscópicas derivadas de su

⁷De las siglas en inglés de *Scanning Tunneling Microscopy*.

⁸De las siglas en inglés de *Atomic Force Microscopy*.

naturaleza óptica [33] [fig. 2.5].

En el campo que nos ocupa de la espectroscopía de cajas cuánticas aisladas, las ventajas del NSOM son evidentes. Con resoluciones ópticas de ~ 150 nm y a temperaturas de 4 K, incluso las muestras más densas pueden ser estudiadas accediendo a las propiedades de cajas individuales en experimentos de PL [33, 34, 35], absorción lineal[18] y no lineal [36] y espectroscopía coherente [27]. Todo ello sin necesidad de procesar la muestra en ningún modo.

Microscopio óptico de barrido confocal

Dicho esto, uno ha de preguntarse si el NSOM es la herramienta definitiva en la espectroscopía óptica de nanoestructuras cuánticas semiconductoras. Como es habitual, la respuesta depende de las necesidades del estudio ha llevar a cabo. Para densidades superficiales elevadas, el NSOM es el único instrumento con resolución óptica suficiente como para que, en una posición dada sobre el sustrato, la luz colectada o proyectada interactúe con una sólo caja cuántica. Por tanto, en caso de que el interés se centre en la distribución espacial de la respuesta óptica, el NSOM es necesario a fin de determinar el origen de dicha respuesta con la máxima resolución⁹. Sin embargo, en muchos otros estudios, no son las características espaciales las que nos interesan principalmente, sino las espectrales. En tales casos, el interés se centra en identificar inequívocamente las características espectrales asociadas a una sola caja cuántica siendo de menor importancia su distribución espacial que será conocida sólo dentro de los límites del criterio de Rayleigh.

Consideremos un ejemplo concreto suponiendo que disponemos de una muestra que contiene cajas cuánticas autoensambladas InGaAs/GaAs con una densidad superficial de 1×10^9 cm⁻² y en la cual la inhomogeneidad de tamaños es menor del 10%. Si nuestro sistema óptico está libre de aberraciones y lo utilizamos

⁹Aparte de la aplicación directa en microscopía de imagen óptica de ultraresolución, otras aplicaciones menos evidentes se han beneficiado de sus especiales características. Por ejemplo, el estudio de la distribución espacial de la emisión mediante NSOM se ha mostrado como herramienta única para estudiar el desorden cuántico en sistemas bidimensionales [37].

apropiadamente, un objetivo diseñado para trabajar en aire con apertura numérica $NA_{obj} = 0.6$ nos ofrecerá una resolución dada por la ec. (2.5) igual a $\sim \lambda_0$. Para una longitud de onda de emisión característica en este sistema de 930 nm, esto nos arroja que aproximadamente unas 30 cajas cuánticas se encuentran en el interior del área de colección en un experimento de PL. Ahora, puesto que no todas las cajas cuánticas son iguales entre si y dada la fuerte dependencia del confinamiento cuántico con el tamaño, incluso desviaciones menores del 10% son suficientes para proporcionar una anchura de línea inhomogénea típica de 30 nm¹⁰. Por lo tanto, si la anchura de línea homogénea característica de la emisión de cada caja cuántica individual es menor de 1 nm, éstas se podrán identificar unívocamente en el espectro a pesar de que su distribución espacial en el área de colección sea desconocida¹¹. En la práctica, la realidad nos dice que la anchura de emisión máxima típica, limitada además por la resolución experimental, de una caja cuántica autoensamblada InGaAs/GaAs no es mayor de 0.15 nm y por tanto el criterio se satisface ampliamente. Obviamente, en caso de que la respuesta espectral de cada caja cuántica sea múltiple (conste de más de una línea) el análisis no será tan sencillo. Así, mientras que para experimentos de PL convencionales, la respuesta se limita prácticamente al estado fundamental, en otro tipo de experiencias la multiplicidad de niveles cuánticos pertenecientes a una sola caja cuántica puede contribuir con diferentes líneas en el espectro haciendo mucho más restrictivos los criterios de resolución espacial.

En definitiva, vemos que la pérdida de la resolución pura que ofrece el NSOM no se produce a bajo coste, y en determinados casos es deseable e inevitable acudir al mismo. La enorme complejidad de dicho sistema, sobretodo si ha de ser operado a 4 K, provoca que, en tanto no sea estrictamente necesario, sea preferible perder resolución y optar por un sistema microscópico convencional o procesar la muestra de alguna manera a fin de aumentar invasivamente la resolución efectiva. Alternativamente, sin llegar a dichos métodos radicales y sin algunos de los inconvenientes

¹⁰Definida como la anchura total a media altura de la emisión de un colectivo estadísticamente significativo de tales cajas cuánticas en la misma muestra.

¹¹Este razonamiento supone una distribución uniforme en el rango espectral y ha de considerarse sólo a modo de ejemplo.

funcionales del NSOM, se encuentra el microscopio óptico confocal cuya relevancia en el trabajo de investigación llevado a cabo merece un estudio más detallado como el realizado en el siguiente capítulo.

Capítulo 3

Microscopía confocal aplicada a la espectroscopía de semiconductores

Desde que en 1957 M. Minsky propusiera el primer microscopio confocal [38], este dispositivo ha sido incorporado con remarcable éxito en laboratorios de todo el mundo para el análisis de especímenes biológicos, o como herramienta de inspección y diagnóstico en la industria de semiconductores. La versatilidad del montaje óptico confocal permite utilizarlo en configuraciones diversas como reflectividad, fluorescencia/luminiscencia, dispersión Raman, contraste de fase, etc [39].

De manera general, un microscopio confocal convencional consta de un objetivo de microscopio que colecta la luz de una fuente puntual (típicamente un láser filtrado espacialmente) sobre el objeto. La luz procedente del punto focal en el plano objeto es entonces colectada por el mismo u otro objetivo, de manera que la imagen se forma sobre un bloqueador antes de incidir sobre el detector. El bloqueador, que filtra espacialmente la amplitud del frente de onda del haz de luz incidente, puede ser típicamente de dos tipos: un estenope circular¹ o una rendija rectangular. Si el tamaño del mismo es igual o menor que la imagen del objeto puntual, el montaje se considera confocal.

El término confocal surge del hecho de que sobre el objeto han de superponerse las imágenes, formadas a través del sistema óptico, de la fuente de luz puntual y

¹*Pin-hole*

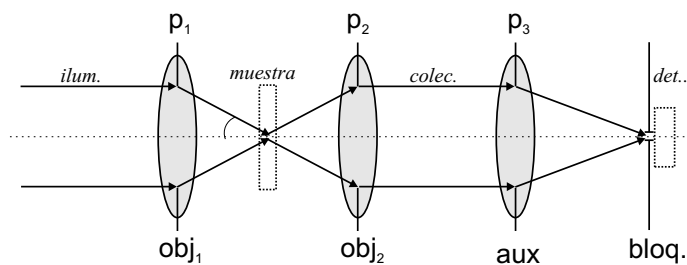


Figura 3.1: Diagrama esquemático de un montaje óptico confocal. Los objetivos (obj_1 , obj_2) se reducen a uno sólo en la mayoría de los casos. Este diagrama correspondería a una configuración en transmisión. El punto analizado puede variarse o bien desplazando la muestra en el plano focal del objetivo o mediante espejos galvanométricos que barran el campo de visión del microscopio de manera sucesiva (flying-spot).

también la del estenope. Sólo cuando ambas imágenes se superpongan perfectamente en el objeto el detector recibirá alguna señal y se cumplirá la confocalidad del sistema [fig. 3.1].

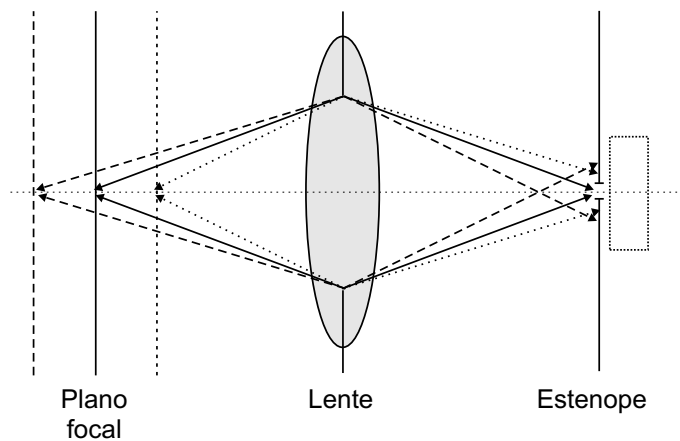


Figura 3.2: La capacidad de seccionamiento óptico del microscopio confocal se representa esquemáticamente. Sólo los rayos provenientes del plano focal objeto pueden atravesar el estenope y alcanzar el detector en el plano focal de la imagen.

La resolución lateral está directamente relacionada con el tamaño del estenope que limita el campo de visión para el detector. Por otro lado, la resolución axial

está determinada por la reducción de la luz que recibe el detector procedente de zonas fuera del plano focal, efecto que se conoce como *seccionamiento óptico* y se esquematiza en la figura 3.2. Este poder de discriminación axial, exclusivo del microscopio confocal, permite acceder a planos contiguos de la muestra a analizar, siendo posible adquirir imágenes a distintas profundidades y reconstruir posteriormente una imagen tridimensional de la misma. Sin embargo, estas ventajas se obtienen a costa de una reducción importante de la cantidad de luz colectada en el detector para un nivel de iluminación dado. Ello provoca que el alineamiento y el diseño del sistema óptico y de detección haya de ser realizado de manera cuidadosa. Junto a esto, el microscopio confocal como dispositivo de imagen ofrece una menor velocidad de adquisición pues la imagen ha de obtenerse pixel a pixel de manera sucesiva y no en paralelo como ocurre en un microscopio convencional de campo extenso.

En la siguiente sección vamos a calcular cuál es la ganancia en términos de resolución espacial que proporciona este dispositivo. Para ello partiremos del resultado conocido de una lente delgada que se discute de manera separada en el apéndice A.

3.1. Resolución lateral y axial de un microscopio confocal

Las tres magnitudes introducidas en el apéndice A, w_{Airy} , z_{Airy} y γ_{Airy} , son el límite superior de cualquier microscopio convencional libre de aberraciones y todas ellas pueden ser disminuidas al utilizar un montaje confocal. Cuantificar cuál va a ser la ganancia en términos de resolución de un montaje confocal dado no es sencillo, puesto que no existen expresiones analíticas simples que expresen la resolución axial y lateral en función de unos pocos parámetros. A modo de ejemplo, vamos a mostrar la deducción de la resolución lateral del sistema más sencillo posible, suponiendo que el sistema está libre de aberraciones, la apertura numérica es lo bastante pequeña como para que la condición de bajo ángulo se cumpla, y el objeto y la fuente de luz son puntuales [40] [fig. 3.3]. A pesar de todas estas simplificaciones el resultado muestra con claridad las ventajas del montaje confocal. Comenzaremos escribiendo

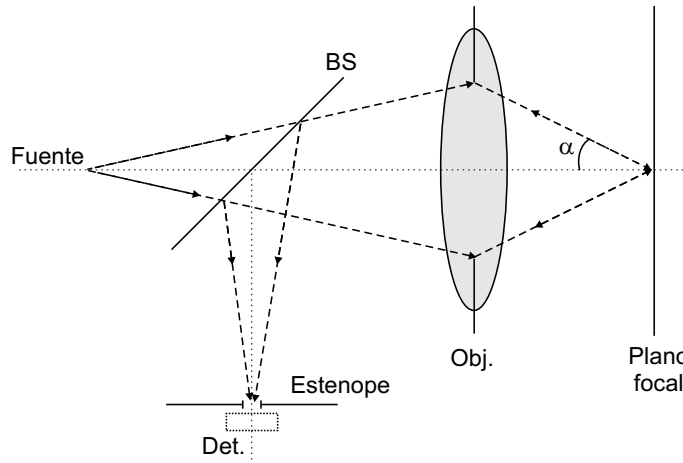


Figura 3.3: Diagrama esquemático de un microscopio confocal simple. BS se refiere a las siglas en inglés de *Beam Splitter*. La fuente de luz y el objeto iluminado se consideran puntuales.

la intensidad medida por un detector de detectividad D en tal sistema como:

$$I = |h|^2 (|h|^2 * D) \quad (3.1)$$

siendo h la *PSF* de la lente, ya introducida en la ec. (A.11), y que en este caso particular se puede expresar como:

$$h(u, v) = \int_0^1 P(\rho) \exp\left(j \frac{u\rho}{2}\right) J_0(v\rho) \rho d\rho \quad (3.2)$$

En la obtención de (3.2) se ha empleado la simetría cilíndrica del problema junto con el siguiente cambio de coordenadas:

$$\begin{aligned} v &= kr \sin \alpha \\ u &= kz \sin^2 \alpha \end{aligned} \quad (3.3)$$

que se conocen como coordenadas ópticas y simplifican el análisis posterior². En particular, u representa la distancia axial entre el plano focal del microscopio y el objeto puntual que queremos investigar o *defoco*. En el caso en que el objeto se halle en dicho plano focal, $u = 0$, la ec. (3.3) se reduce a $h(v) = 2J_1(v)/(v)$ en analogía con

²A modo de ejemplo tenemos que cuando r es $r_{Airy} = 0.61 \frac{\lambda}{NA}$ la coordenada óptica radial toma el valor $2\pi \cdot 0.61 \sim 3.8$ u.o.

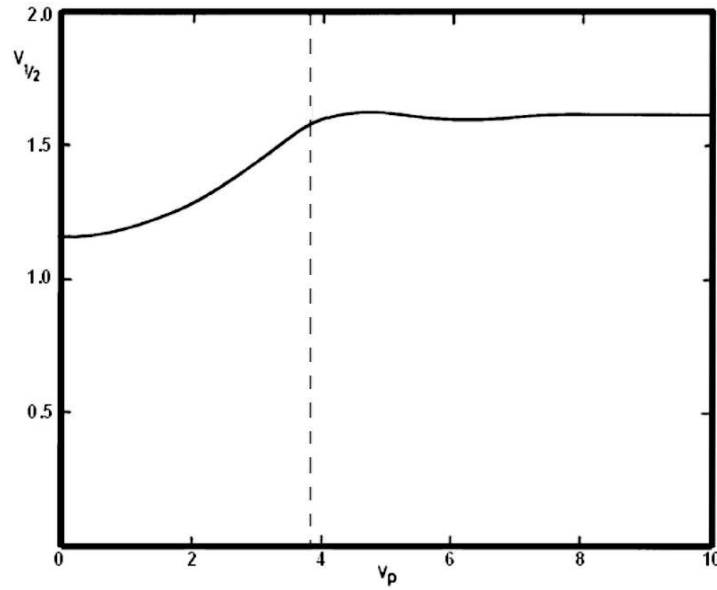


Figura 3.4: Variación de la anchura mitad a media altura de la función $I(v)$ para diferentes valores del radio del estenope. Reproducida de Wilson *et al* [40].

(A.12). Si v_p es el radio del estenope en coordenadas ópticas, la detectividad viene descrita por una función circular $D=circ(v/v_p)$ [ec. (A.7)], por lo que la ecuación (3.1) se puede escribir como:

$$I(v) = |h(v)|^2 \left[2\pi \int_0^{v_p-v} |h(t)|^2 t dt + 2 \int_{v_p-v}^{v_p+v} |h(t)|^2 \cos^{-1} \left(\frac{t^2 + v^2 - v_p^2}{2tv} \right) t dt \right], \text{ si } v \leq v_p \quad (3.4)$$

$$I(v) = 2|h(v)|^2 \int_{v_p-v}^{v_p+v} |h(t)|^2 \cos^{-1} \left(\frac{t^2 + v^2 - v_p^2}{2tv} \right) t dt, \text{ si } v > v_p \quad (3.5)$$

donde todos los parámetros y funciones han sido definidas. Nos hallamos ahora en condiciones de poder comparar la resolución lateral del microscopio confocal y el convencional. Como medida de dicha magnitud se escoge el valor de v para el cual la intensidad calculada numéricamente disminuye a la mitad de su valor en $v = 0$, con lo que se puede representar dicha anchura mitad a media altura, $v_{1/2}$, en función del radio del estenope v_p , y evaluar el efecto de éste [fig. 3.4].

En la figura 3.4 observamos que la resolución aumenta abruptamente al reducir el radio del estenope por debajo de $v_p \sim 3.8$ u.o. señalado por la línea punteada en

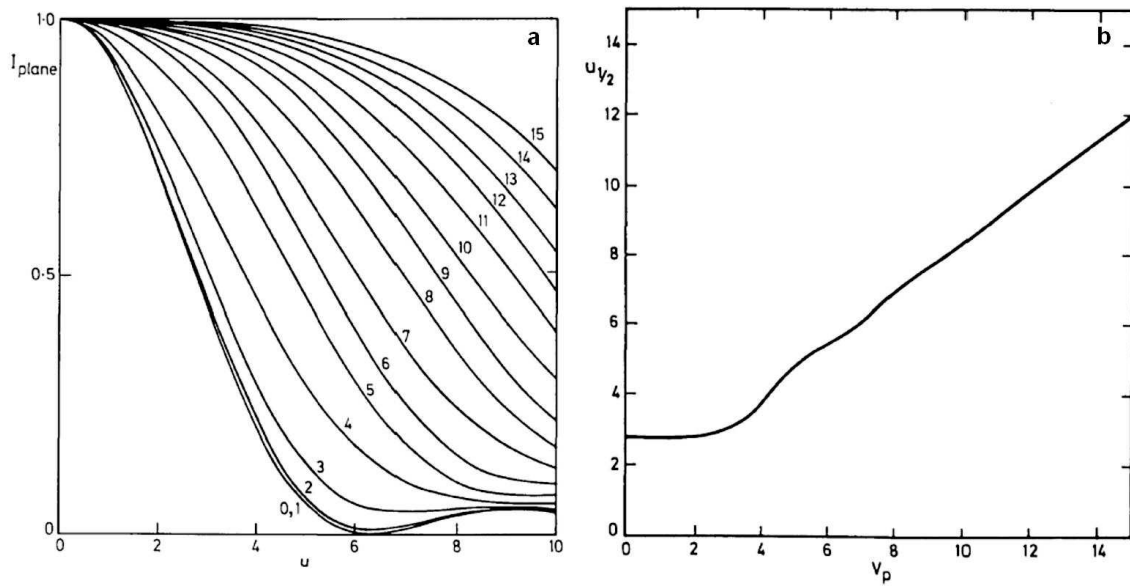


Figura 3.5: a) Variación para diversos radios del estenope de la intensidad detectada en función del defoco, u , del plano bidimensional objeto. En b) se aprecia la curva que surge de extraer la anchura mitad a media altura de las intensidades representadas en a). Reproducidas de Wilson *et al* [40].

la figura. El valor mínimo de $v_{1/2}$, o máxima resolución, ocurre para un estenope de dimensión nula, aunque la forma plana de la curva en torno a $v_p = 0$ permite alcanzar valores similares para valores cercanos pero finitos. Dicho valor mínimo es $\sim \sqrt{2}$ menor que el valor en ausencia de estenope, $v_p \gg 1$, correspondiente al microscopio convencional, y es una medida de la ganancia máxima en términos de resolución lateral que cabe esperar de este montaje.

Sin embargo, los beneficios del microscopio confocal aumentan al considerar su respuesta axial. En la figura 3.5(a) se muestra la variación de la intensidad detectada en función del defoco, u , del plano bidimensional objeto³. Las diferentes curvas corresponden a diferentes valores del radio del estenope y como se aprecia sólo cambian apreciablemente cuando $v_p \gtrsim 2$. Esto se puede observar mejor representando $u_{1/2}$, extraído de dichas curvas, en función de v_p tal y como se realizó en el caso

³Para dicho cálculo se supone un objeto puramente 2D y la intensidad se integra en la coordenada radial [40].

lateral. El resultado es la curva de la figura 3.5(b). Para valores de v_p superiores a 2.5 u.o., el aumento paulatino de $u_{1/2}$ se corresponde con la pérdida progresiva de la discriminación axial y por tanto del efecto de seccionamiento óptico. Cuanto mayor es el estenope mayor es la cantidad de luz proveniente de planos alejados del plano focal que penetran en el detector disminuyendo el contraste de la información en foco. Mientras tanto, para valores $v_p \leq 2.5$ u.o no hay ganancia neta en términos de resolución axial puesto que la curva entra en saturación⁴.

En definitiva, a fin de aprovechar las cualidades que ofrece el microscopio confocal, es necesario reducir el radio del elemento de bloqueo hasta valores por debajo de ~ 3.8 u.o. o lo que es lo mismo, por debajo del disco de Airy correspondiente al plano en que dicho elemento se encuentra. Sin embargo, hemos visto que dicha reducción no es arbitraria ya que, por debajo de cierto valor, lo único que se conseguirá es reducir la intensidad sin aumentar la resolución. Para cada montaje, el valor óptimo se ha de ajustar valorando las necesidades de resolución y nivel de intensidad mínimo requerido. Dichos niveles de intensidad son por lo general reducidos, especialmente en fluorescencia y fotoluminiscencia, y hacen de la elección del detector adecuado uno de los pasos clave en el diseño de la experiencia. Más adelante, particularizaremos este cálculo para el microscopio empleado en la investigación de cajas cuánticas aisladas de InAs [sec. 8.1.1].

Mientras que las conclusiones generales extraídas son válidas en todo sistema, las deducciones teóricas llevadas a cabo son válidas exactamente sólo bajo ciertas aproximaciones que no siempre se cumplen. Por un lado, en muestras reales, los objetos iluminados no pueden considerarse simplemente puntuales o bidimensionales. Por otro lado, a fin de coleccionar la máxima cantidad de luz los objetivos utilizados tienen una apertura numérica alta que inválida cualquier aproximación paraxial. Igualmente, en el caso de luz parcialmente polarizada, es necesario introducir una descripción vectorial del campo. En la literatura, se encuentran diversos estudios que tratan el microscopio confocal con aproximaciones de complejidad creciente. Pero dado que el objetivo de esta discusión era mostrar el origen de sus beneficios, queda

⁴En contraste con la resolución lateral que sólo saturaba por debajo de $v_p \leq 0.5$ u.o.

fuera de lugar discutir las aquí [41].

Por último, los elementos ópticos y el sistema objetivo-muestra no pueden considerarse en la mayoría de los casos completamente libres de aberraciones. Obviamente, éstas serán más importantes cuando la experiencia a realizar sea policromática como el caso de la fluorescencia o fotoluminiscencia (aberraciones cromáticas), o si el punto de foco sobre la muestra no siempre se halla en el eje óptico (barrido por espejos galvanométricos o *flying-spot*), y también han de ser valoradas en el experimento particular.

3.2. Algunas consideraciones de tipo instrumental

Una vez introducidos en la sección anterior los conceptos básicos de la microscopía confocal, pretendemos a continuación presentar algunos de los aspectos más específicos de la microscopía confocal aplicada a la espectroscopía óptica de semiconductores. Éstas, como es habitual, son las más importantes a la hora de la práctica diaria que nos permite llevar a cabo la investigación.

Para empezar, una de las primeras cuestiones a tener en cuenta es la valoración de la eficiencia del sistema que estamos utilizando. Un examen pormenorizado de los elementos ópticos y optoelectrónicos involucrados posibilita cuantificar la respuesta óptica de la muestra investigada en términos absolutos tales como eficiencia cuántica electrónica, polarizabilidad, etc. . . . Sin embargo, no siempre dicha caracterización se puede hacer con total detalle. En primer lugar, hay elementos cuya respuesta es compleja, por ejemplo dependen del estado de polarización de la luz o de manera no lineal con su intensidad. En segundo lugar, los fenómenos involucrados en la absorción-emisión de luz por nuestro sistema no son totalmente conocidos, y por ello, hasta que no se han llevado a cabo suficientes experimentos, es difícil hacer valoraciones por ejemplo de las pérdidas no radiativas. Aún así, sin pretender ser exhaustivo, introduciremos a continuación algunas de las consideraciones esenciales, que al menos de forma cualitativa, siempre han de ser tenidas en cuenta. La discusión

se particulariza para lo que más tarde será nuestro caso real, detallando aquellos aspectos instrumentales que son relevantes para una evaluación adecuada de los resultados experimentales en nuestro caso.

3.2.1. Fuente de luz

Casi con total universalidad, la fuente de luz por excelencia en espectroscopía de semiconductores es el láser. Sus cualidades principales son su alta direccionalidad, que facilita la manipulación de la luz hasta hacerla llegar a la muestra, y su reducido ancho de banda, que permite excitar niveles o bandas concretas de la muestra en cuestión. De manera general, la microscopía confocal, e igualmente la convencional, requieren de láseres con un modo óptico transversal de alta calidad. La distribución modal del haz es la que ulteriormente determina la mayor o menor eficiencia del sistema focalizador. Así, en el caso de un laser monomodo con distribución transversal TEM_{00} , la propagación a través del sistema óptico será puramente gaussiana, repercutiendo en PSFs más estrechas, y por tanto, en una mayor resolución. En el caso confocal, la introducción de un filtro espacial en el brazo de excitación reduce dichos requerimientos puesto que dicho sistema filtra los modos de orden superior, pero indudablemente la densidad de potencia acoplada siempre será mayor cuanto mejor sea la calidad modal del láser.

Otro factor a tener en cuenta es la coherencia del láser utilizado. Mientras que esta propiedad es indispensable cuando se trata de hacer estudios basados en el contraste de fase, en el resto de los casos, la coherencia se traduce simplemente en franjas y manchas no deseadas en la imagen obtenida por el microscopio convencional. Dado que el microscopio confocal es un dispositivo de barrido, el campo de visión se reduce a un sólo punto del tamaño de la resolución tridimensional y la coherencia espacial en el plano focal no juega ningún papel. Aún así, si existen fuentes de interferencias en el camino óptico, éstas serán visibles cuando la longitud de onda del láser cambie de manera continua.

Esto nos lleva a otra de las propiedades interesantes de algunos láseres utilizados

en espectroscopía y que no es más que su capacidad de sintonización ⁵. Mientras que la mayoría de los láseres de gas tienen una emisión multilínea que los hace sintonizables a longitudes de onda discretas, aquí nos referimos más específicamente a la capacidad de sintonización continua, en rangos más o menos amplios, que ofrecen los láseres de colorante, los de estado sólido como el Ti-Zafiro ($\text{Ti}^+:\text{Al}_2\text{O}_3$) y los láseres de semiconductor de cavidad externa. Los primeros han caído en desuso desde la llegada del láser de Ti-Zafiro, y los últimos representan un sistema de reciente aplicación en espectroscopía de semiconductores de alta resolución espectral y amplia tradición en la Física Atómica. Por ello, y dada su implicación en el trabajo de investigación llevado a cabo discutiremos ambos con algo más de atención.

El láser de Ti-Zafiro:

El láser de Ti-Zafiro ha sustituido paulatinamente al láser de colorante en prácticamente todos sus feudos de aplicación. Su facilidad de uso y superiores características lo han convertido en el sistema preferido cuando es necesaria una fuente de luz láser sintonizable capaz de funcionar en modo continuo y pulsado, con rangos de sintonización de varios cientos de nanómetros y anchuras de pulso de hasta 100 fs. El sistema se basa en la emisión secundaria de los iones de Titanio introducidos en la matriz huésped de Zafiro. La fuerte interacción de los iones con la red cristalina produce un ensanchamiento y desplazamiento de sus niveles vibracionales que dan lugar a bandas de absorción y emisión extensas en el rango visible-NIR [fig. 3.6].

El bombeo óptico de los estados excitados en torno a 500 nm se lleva a cabo, o bien, con láseres de Ar^+ en configuración multilínea, o bien con láseres de Nd:YAG doblados en frecuencia ($\lambda = 532$ nm). Así, para intensidades de bombeo de 8 a 14 W, es fácil obtener intensidades promedio de 1 a 3.5 W a 790 nm y de unos cientos de miliwatios en los bordes de la banda de sintonización. La selección de la longitud de onda se realiza aprovechando la anisotropía de polarización del medio activo. En este caso, dado que el estado de polarización intracavidad es lineal, la sintonización se realiza mediante filtros de cristal birrefringente cuya transmisión a

⁵Imprescindible para la espectroscopía láser de excitación, por ejemplo.

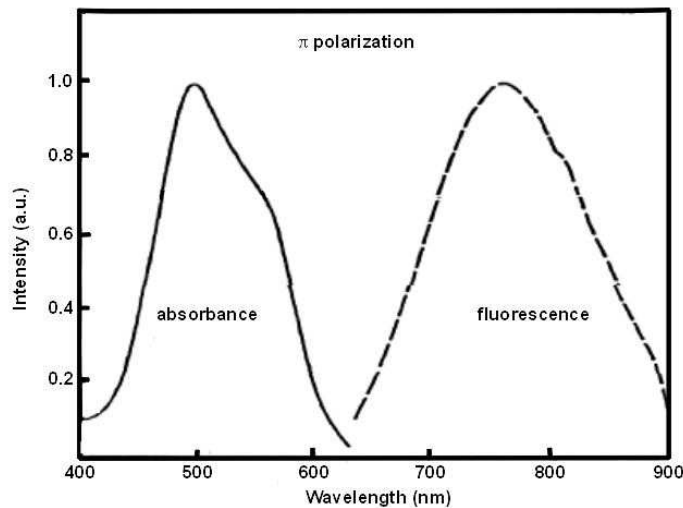


Figura 3.6: Espectro típico de absorción-emisión de un láser de Ti-Zafiro. Dependiendo del nivel de dopado y del modelo, la emisión puede sintonizarse entre algo menos de 700 nm y ~ 1050 nm con un sólo juego de óptica. Reproducida de [42].

una determinada longitud de onda depende críticamente del ángulo formado por el eje del cristal y el de polarización. Girando el cristal, el ángulo cambia y la longitud de onda amplificada en la cavidad también lo hace con una precisión dada por el ancho de banda del filtro (filtro de Lyot)⁶.

Las propiedades de sintonización en onda continua del láser de Ti-Zafiro son loables, pero sin duda lo que ha convertido este sistema en la herramienta por excelencia en espectroscopía láser de semiconductores son sus cualidades en régimen pulsado. Como es de esperar del principio de Fourier, anchos de banda espectrales tan amplios como los que ofrece este láser han de conllevar potencialmente anchuras de pulso muy reducidas si la cavidad óptica se diseña adecuadamente. El *Q-switching* consiste en la modulación periódica del factor de calidad (factor-Q) de la cavidad óptica. Un simple diafragma intracavidad ejemplifica este concepto, aunque a fin de generar pulsos en el rango de los μs es normal utilizar moduladores acustoópticos o electroópticos. Para conseguir anchuras de pulso de ps o fs los tiempos de respuesta

⁶A modo de ejemplo, el ancho de banda de un filtro birrefringente de una sola lámina es típicamente de 60 GHz y colocando 3 láminas se reduce a menos de 40 GHz.

de los moduladores de amplitud al uso no son suficientes. En tal caso, el fenómeno que nos permite generar pulsos ultracortos es el llamado *bloqueo modal* o *mode-locking*. En una cavidad láser convencional de longitud L toda longitud de onda que cumpla la condición láser del resonador:

$$L = m \frac{\lambda}{2} \quad (3.6)$$

es susceptible de ser amplificada a condición de que λ se halle dentro de la ganancia espectral, $G(\lambda)$, del medio activo ⁷. Esto da lugar a un conjunto discreto de longitudes de onda compatibles con (3.6) que constituyen la estructura modal longitudinal del láser. En el espacio de frecuencias, los modos longitudinales de un resonador pasivo se encuentran equiespaciados y separados entre si por el llamado *Free Spectral Range* de la cavidad o *FSR*:

$$FSR = \frac{c}{2L} \quad (3.7)$$

Es evidente que para un láser de cavidad larga como el Ti-Zafiro los modos se hallan muy juntos entre si, resultando que en el rango seleccionado por el filtro de Lyot más de un modo puede ser simultáneamente amplificado. Por ejemplo, para $L=1$ m tenemos que $FSR=150$ MHz, y el número de modos resulta ser $n \sim 60 \text{ GHz}/150 \text{ MHz} \sim 400$. Los diferentes modos longitudinales son creados con fases arbitrarias e interfieren unos con otros de manera aleatoria compitiendo por disponer de la ganancia del medio activo. Dado que no existe una relación de fase fija entre ellos, las interferencias no generan ningun patrón temporal periódico, produciendo fluctuaciones de la intensidad de tipo gaussiano. La situación cambia completamente cuando por algún medio establecemos una relación de fase fija entre los diferentes modos, introduciendo una variación del camino óptico a una frecuencia de modulación fija. Es obvio que la fase relativa de los diferentes modos longitudinales sufrirá tal modulación periódica y fija. El resultado es que las interferencias intermodales ya no ocurrirán de manera errática y la ganancia del medio activo se repartirá entre

⁷En dicha ecuación se han despreciado la propia modificación a la longitud de la cavidad introducida por el medio activo: $n(\lambda)d$, donde n es su índice de refracción y d la longitud efectiva del medio.

los diferentes modos generando un patrón temporal estacionario de pulsos cada vez más estrechos. En el caso de que el período de la modulación coincida exactamente con $1/FSR$, el tiempo por vuelta de uno de dichos pulsos se hallará perfectamente ajustado a la longitud de la cavidad y finalmente se llevará toda la ganancia acumulada en el medio activo. El resultado es un tren de pulsos de frecuencia FSR y anchura limitada idealmente por la transformada de Fourier de la ganancia espectral del medio⁸. Cabe decir que, si bien el cambio de operación pulsada a continua se realiza fácilmente inhibiendo la modulación, el diseño optimizado para funcionamiento pulsado de estos láseres puede producir oscilaciones de la intensidad promedio en continua de hasta un 2% derivadas de la estructura multimodal de la emisión. Dichas oscilaciones, aunque insignificantes en la mayoría de las aplicaciones, pueden ser relevantes en otras.

Finalmente, la disponibilidad de pulsos ultracortos en un rango de longitudes de onda tan amplio, ha permitido extender los rangos de sintonización fuera de la banda de emisión del Ti-Zafiro propiamente. Así, utilizando un láser de Ti-Zafiro como fuente, los procesos no lineales de mezcla de ondas tales como el doblado, suma y resta, o amplificación paramétrica, permiten extender el rango de sintonización desde los ~ 300 nm hasta ~ 3 μ m en sucesivas etapas de conversión no lineal.

El láser de semiconductor de cavidad externa

En la discusión del láser de Ti-Zafiro hemos visto que una característica fundamental del principio de operación del mismo es su estructura multimodal. Sin ella no es posible la generación de pulsos ultracortos, pero a cambio, sus propiedades en régimen continuo no resultan adecuadas cuando la resolución espectral es importante.

Por ejemplo, en espectroscopía atómica o molecular la anchura natural de línea de un nivel electrónico dado puede ser desde unos pocos Hz a varios cientos de MHz.

⁸Dependiendo del diseño de la cavidad los efectos de dispersión de la velocidad de grupo y automodulación de fase ensanchan el pulso hasta unos pocos ps. Si dichos efectos son compensados intra o extracavidad la anchura se acercará a su límite natural en este sistema de ~ 100 fs.

En aplicaciones convencionales, uno no debe preocuparse demasiado de ello, pues la anchura de línea inhomogénea, ensanchada por efecto Doppler, nos prohíbe llegar a ese límite natural. Sin embargo, en aplicaciones o investigaciones más avanzadas, pueden ser necesarias resoluciones espectrales *sub-Doppler* [43].

En espectroscopía de semiconductores, o más concretamente, de nanoestructuras semiconductoras, el efecto Doppler es sustituido por el ensanchamiento inhomogéneo debido a la dispersión de tamaños de las nanoestructuras investigadas. Como ya hemos visto, dicha barrera es suprimida mediante el desarrollo de técnicas de crecimiento y caracterización que nos permitan estudiar nanoestructuras cuánticas individuales o aisladas. Aquí, el carácter cuasi-atómico de la estructura electrónica nos revela anchuras de línea homogéneas del orden del GHz, y la anchura del láser vuelve a ser un parámetro crucial.

El láser de semiconductor o de diodo como fuente láser para espectroscopía se beneficia sobre todo de un diseño compacto y de bajo coste. Con una fuente de corriente estabilizada y un control adecuado de la temperatura del dispositivo, es posible obtener emisión láser de intensidad estable con potencias de 1-1000 mW en continua y en un sólo chip. La diversidad de medios activos disponibles, extienden el rango espectral cubierto por los diferentes láseres de diodo desde el visible hasta el infrarrojo medio a longitudes de onda discretas. Además, cada vez son mayores las eficiencias alcanzadas gracias a la introducción de las nanoestructuras cuánticas en la zona activa del láser [8]. Desde el punto de vista de la anchura de línea, estos láseres se benefician de la relativa facilidad con que el diseño de la cavidad óptica puede optimizarse para hacer que la emisión sea monomodo. Dicha cavidad está formada por los propios planos cristalográficos que definen la frontera del chip y que por si mismos forman superficies ópticas de gran calidad. El índice de refracción del medio no puede despreciarse en estos casos en el cálculo del FSR y tenemos:

$$FSR = \frac{c}{2nL \left(1 + \frac{\nu}{n} \frac{dn}{d\nu}\right)} \quad (3.8)$$

o:

$$FSR = \frac{\lambda^2}{2nL \left(1 - \frac{\lambda}{n} \frac{dn}{d\lambda}\right)} \quad (3.9)$$

A modo de ejemplo, si $L = 500 \mu\text{m}$, $n = 2.5$ y $(\nu/n)(dn/d\nu)=1.5$, resulta $FSR=48 \text{ GHz}$ o (1.6 \AA para $\lambda = 1 \mu\text{m}$) que, sin ir más lejos, es mucho mayor que los 100 MHz obtenidos en el láser de Ti-Zafiro. De esta manera, sólo unos pocos modos longitudinales de la cavidad se encontrarán dentro del rango de la ganancia espectral del semiconductor y los procesos normales de competición de modos provocarán que aquel situado en el centro de dicha curva de ganancia sobreviva resultando en emisión monomodo⁹. En la figura 3.7 se muestran los resultados obtenidos con uno de los láseres de diodo disponibles en nuestro laboratorio (Hitachi HL8325G + fuente de corriente estabilizada). La estructura multimodal típica de la emisión espontánea amplificada se observa claramente en 3.7(a) donde el FSR del láser se ha señalado explícitamente. Aumentando la corriente que atraviesa el diodo, el umbral de pérdidas es superado en el máximo de la ganancia espectral y el modo allí situado domina sobre el resto. Lógicamente, el máximo de $G(\lambda)$ se desplaza al aumentar la corriente debido al aumento de la temperatura en el chip y la emisión láser aparece a frecuencias más bajas en 3.7(b).

Sin embargo, sin tomar las precauciones necesarias, la anchura de línea obtenida de esta manera no es la que se deriva de las características del resonador, *i.e.* de la relación de Schawlow-Townes:

$$\Delta\nu_{L(ST)} = \frac{\pi h \nu_L \Delta\nu_c^2}{P_L} \quad (3.10)$$

en la cual la anchura está determinada principalmente por la resolución espectral de la cavidad a través de $\Delta\nu_c$ ¹⁰. Ello es debido a que las posibles inestabilidades mecánicas, térmicas, barométricas, etc... afectan a la longitud del resonador o al índice de refracción del medio activo produciendo que $\Delta\nu_L \gg \Delta\nu_{L(ST)}$ en escalas temporales de distinta magnitud. Afortunadamente, gracias a su compacto tamaño y a su mecanismo de bombeo electrónico, en el caso de los láseres de diodo todas ellas se pueden controlar satisfactoriamente si la aplicación así lo requiere.

Conseguido esto, aún nos queda la cuestión de como sintonizar la longitud de

⁹Las estrategias para reducir el número de modos transversales a uno sólo son diferentes y consisten en el diseño de cavidades ópticas con confinamiento óptico transversal (láseres DFB).

¹⁰Por ejemplo: $\Delta\nu_c = FSR \left(\frac{1-R}{\pi\sqrt{R}} \right)$ en una cavidad Fabry-Perot [43].

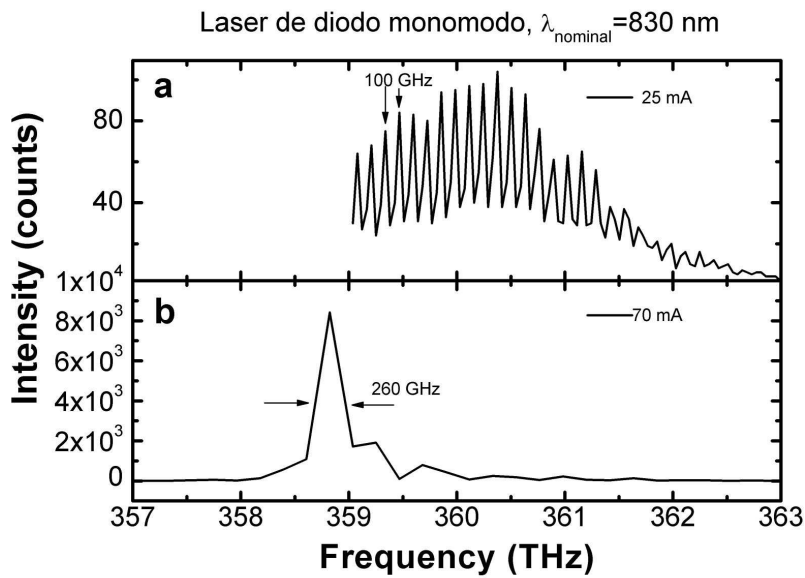


Figura 3.7: Espectro de un láser de diodo monomodo operado por debajo de su corriente umbral (a) y por encima (b). La temperatura del láser no se haya estabilizada externamente y de ahí el desplazamiento observado al aumentar la corriente de inyección

onda del láser a voluntad. Por lo dicho hasta ahora, es evidente que un cambio de temperatura o, simplemente, de la corriente de inyección, es suficiente para producir un cambio en el máximo de la ganancia espectral del medio activo, pero esto no asegura la operación del láser en régimen monomodo. Efectivamente, si n_1 es el modo centrado en el máximo de la ganancia espectral para $T = T_0$, un cambio de temperatura desplazará la curva de ganancia $G(\lambda)$ según lo haga la banda prohibida de energía del material semiconductor en la capa activa. Si la longitud del semiconductor no varía, el cambio de la frecuencia del modo n_1 quedará reducido a la pequeña contribución dada por la variación del índice de refracción del medio. En un momento dado, el máximo de $G(\lambda)$ será resonante con un modo adyacente $n_1 \pm 1$ y se producirá un salto de modo o *mode-hopping*.

A fin de preservar el carácter monomodo del láser mientras variamos su frecuencia, Littman y Metcalf idearon un sistema de sintonización acoplando el láser a una cavidad externa adicional [44]. Inicialmente aplicado a láseres de colorante, el concepto ha sido aplicado en los últimos años a láseres de diodo proporcionando un

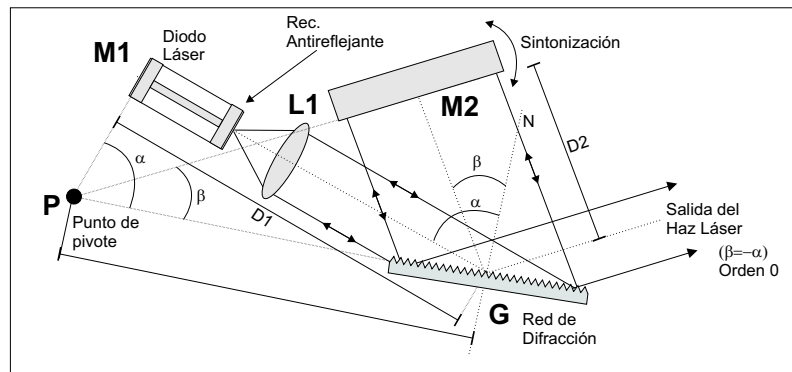


Figura 3.8: Diagrama de un láser de diodo de cavidad externa en la configuración de Littman-Metcalf modificada. El punto de pivote P situado adecuadamente permite la satisfacción simultánea de la ecuación de Bragg de la red y la de condición láser del resonador para una misma longitud de onda.

modo sencillo de ajustar la longitud total del resonador mientras se ajusta la longitud de onda de emisión [45]. La figura 3.8 muestra un diagrama del *láser de diodo de cavidad externa* basado en una cavidad Littman-Metcalf modificada. El diodo láser, estabilizado en temperatura y corriente, sólo ha de ser modificado aplicando un recubrimiento antirreflejante a la intercara frontal o de salida del haz. Dicho haz es colimado por la lente L y proyectado en incidencia rasante sobre una red de difracción G. El bajo ángulo de incidencia maximiza el área de la red iluminada por el láser y con ello el número de líneas que contribuyen a la difracción proporcionando una resolución espectral óptima. En este sistema, la luz reflejada en el orden cero constituye el haz de salida del dispositivo, y dado que el ángulo α es fijo, su dirección no varía al cambiar la longitud de onda. Por otro lado, la red de difracción proporciona la deseada sintonización mediante realimentación en la cavidad formada por M1 y M2 del haz difractado en el primer orden. En esta configuración:

$$\lambda_L = d(\sin \alpha + \sin \beta) \quad (3.11)$$

siendo d el espaciado entre líneas de la red.

Para seleccionar una longitud de onda dada, el ángulo β se modifica girando el espejo M1 respecto al punto de pivote P. Esto aumenta o disminuye la distancia D2

entre la red y el espejo y con ello la longitud total de la cavidad de manera que en todo momento se cumple:

$$D1 + D2 = n \frac{\lambda_L}{2} \quad (3.12)$$

con n fijo por construcción¹¹.

Ambas condiciones se satisfacen simultáneamente gracias a la especial configuración de la cavidad permitiendo la sintonización continua de un sólo modo longitudinal en el rango donde $G(\lambda) > 0$ ($\sim \pm 20$ nm), y proporcionando con facilidad anchuras de línea de unos pocos cientos de kHz dependiendo de la red utilizada.

3.2.2. Elementos ópticos

Examinaremos a continuación algunos aspectos importantes de los elementos ópticos que constituyen un microscopio óptico confocal optimizado para espectroscopía.

Objetivo de microscopio

En el apéndice A y la sección 3.1 se puso de manifiesto la importancia del objetivo del microscopio en el cálculo de la resolución lateral y axial de un microscopio confocal dado. En la actualidad es posible disponer de objetivos comerciales capaces de corregir la mayoría de las aberraciones, cromáticas y no cromáticas, en campos de visión extensos. Dichos objetivos plan-apo-acromáticos (PAA) deben sus excelentes características al diseño especial de sus superficies ópticas y a una selección cuidadosa de los materiales que lo forman. Sin embargo, aunque ideales para la obtención de imágenes tridimensionales de máxima resolución en especímenes biológicos, su aplicación en la espectroscopía de semiconductores es mucho más limitada.

En primer lugar, la señal de luminiscencia es muy débil en comparación con los niveles usuales en biología, haciendo desaconsejable el elevado número de superficies de estos objetivos. Por otro lado, mientras que para el rango visible existe un número elevado de objetivos PAA, las opciones se reducen cuando el rango de interés se

¹¹Despejando λ_L de (3.12) e igualando a (3.11) se obtiene $D1 = C \sin \alpha$ con $C = \frac{nd}{2} = \overline{PG}$ en la figura 3.8.

desplaza al infrarojo cercano, donde la emisión se sitúa en la mayoría de las nanoestructuras semiconductoras. Finalmente, a fin de coleccionar el máximo de luminiscencia y con la máxima resolución es necesario optar por objetivos de apertura numérica elevada y por tanto corta distancia de trabajo. Puesto que los estudios a llevar a cabo se realizan generalmente a temperaturas criogénicas, esto conlleva someter al objetivo a ciclos de temperatura para los cuales no fue obviamente diseñado. El deterioro provocado en los cementos ópticos que unen las superficies complejas de dichos objetivos termina entonces por hacerlos inservibles, suponiendo un costo muy elevado dado su precio. En consecuencia, los objetivos utilizados en este campo han de estar compuestos por pocas superficies recubiertas con capas antirreflejantes optimizadas a la longitud de onda de interés y basados en elementos monolíticos (sin cementos). Esto nos asegurará una eficiencia de colección mejorada y un funcionamiento libre de problemas a costa de una pérdida de resolución, especialmente en puntos alejados del eje óptico y/o longitudes de onda no optimizadas.

Elegido el objetivo, uno puede evaluar sus características de transmisión, T , y calcular su eficiencia de colección. Si la emisión es isótropa, la eficiencia puede calcularse de manera aproximada por criterios puramente geométricos como:

$$\gamma = \frac{I_{Colec}}{I_{Total}} = \frac{1}{2}T \left(1 - \sqrt{1 - \left(\frac{NA}{\eta} \right)^2} \right) \quad (3.13)$$

donde todas las magnitudes ya han sido introducidas previamente. Esta relación es cierta sólo para puntos cercanos a la superficie a no ser que el objetivo se sumerja en un medio con el mismo índice de refracción que la muestra a estudiar. Otra ecuación útil nos permite obtener la irradiancia máxima focalizada por un objetivo de apertura numérica conocida al que llega una potencia P :

$$I_P = \frac{\pi}{2}PT \left(\frac{\eta}{\lambda} \right)^2 (1 - \cos \alpha) (3 + \cos \alpha) \quad (3.14)$$

con $\alpha = \sin^{-1}(NA/\eta)$ el ángulo de semi-apertura del objetivo y que es válida para cualquier NA [46].

Filtros, espejos, y demás superficies

El resto de los elementos ópticos que el haz se encuentra entre la fuente de luz puntual y el estenope del detector juegan también un papel en la eficiencia del microscopio. Como norma general su número ha de reducirse al máximo evitando la multiplicidad de superficies en el brazo de colección. Asimismo, habrá que tener especial cuidado con la limpieza y planitud de filtros, espejos, divisores de haz, lentes, etc... pues toda distorsión del frente de onda al atravesarlos ensanchará la PSF en el plano objeto, desvirtuando cualquier esfuerzo anterior en el diseño del objetivo. Otro aspecto importante a tener en cuenta es la diferente eficiencia de transmisión, reflexión, atenuación, etc... que los elementos empleados puedan ofrecer según el estado de polarización de la luz incidente. Siempre que sea posible, dichos factores habrán de evaluarse antes de realizar un estudio polarimétrico sobre la muestra.

Elementos dispersivos

Lógicamente, si hablamos de espectroscopía, la luz colectada o proyectada sobre el objeto ha de ser dispersada espectralmente de alguna manera. Para la espectroscopía de excitación o absorción, la resolución y rango espectral viene dado por la fuente de luz láser, tal y como se ha comentado en el apartado anterior. Para los experimentos de emisión, sin embargo, lo habitual es utilizar un espectrómetro o monocromador, según vayamos a utilizar como detector un dispositivo multicanal o monocanal, respectivamente. Las propiedades de dispersión de dichos dispositivos son bien conocidas y no pasaremos a discutir las aquí, tan sólo destacar que las reglas generales ya mencionadas y aplicables al resto de elementos ópticos deben prevalecer también en este caso.

3.2.3. Detectores

En la discusión llevada a cabo se ha hecho hincapié varias veces sobre los bajos niveles de señal disponibles en un microscopio confocal, en general, y en las experiencias de espectroscopía basadas en este sistema, en particular. El haz de luz que incide

en el detector situado tras el estenope es tan ténue que rara vez supera unos miles de fotones por segundo en configuraciones de reflectividad, que se convierten en cientos o decenas cuando lo que pretendemos es estudiar la fluorescencia o luminiscencia de especímenes biológicos o nanoestructuras semiconductoras. Con semejantes valores de la irradiancia, no es de extrañar que los únicos dispositivos capaces de proporcionar una señal eléctrica útil sean aquellos con una relación señal-ruido, S/N , más que excelente, esto es, dispositivos capaces de detectar un único fotón. A fin de evaluar el S/N para un detector en particular, lo primero a tener en cuenta es la naturaleza discreta de la detección. Si n_p es el número medio de fotones por segundo que alcanzan el detector y Q_E es la eficiencia cuántica del mismo, el número medio de fotoelectrones generados en un tiempo t es igual a $Q_E n_p t$, y la estadística de Poisson nos dice que la desviación típica de dicho valor es $\sigma_P = \sqrt{Q_E n_p t}$. En este caso:

$$S/N = \frac{Q_E n_p t}{\sqrt{Q_E n_p t}} = \sqrt{Q_E n_p t} \quad (3.15)$$

En segundo lugar, dado un detector cualquiera, S/N disminuirá por el ruido generado en el propio detector. Si n_D es el número de electrones promedio generado por el detector en ausencia de luz, se cumple que $\sigma_D = \sqrt{n_D t}$ y, dado que ambos tipos de eventos son independientes:

$$S/N = \frac{Q_E n_p}{\sqrt{Q_E n_p + n_D}} \sqrt{t} \quad (3.16)$$

De este resultado, se deducen dos regímenes. Por un lado, para un flujo elevado de fotones, la ecuación (3.16) es proporcional a la raíz cuadrada de Q_E . Por otro lado, cuando $n_p t$ es pequeño, S/N aumenta según el ratio entre la eficiencia cuántica y el ruido intrínseco del detector. Vemos, por tanto, que a fin de obtener una señal aceptable en espectroscopía confocal, necesitamos detectores con la máxima eficiencia cuántica, pero también con un nivel de ruido lo más pequeño posible. Esto, que parece obvio en cualquier tipo de experiencia, es especialmente crítico en espectroscopía confocal dado que n_p puede ser tan bajo como unas pocas decenas de fotones, reduciendo las alternativas a unas pocas opciones.

Fotomultiplicador (PMT)

Consideraremos en primer lugar los dispositivos fotoemisores de los cuales el fotomultiplicador es el representante típico. En un fotomultiplicador, la radiación incidente provoca la emisión al medio circundante de electrones superficiales pertenecientes a un material que ha sido depositado en el cátodo de un tubo de vacío. La respuesta espectral de dicho material determina el rango de aplicación del detector y su eficiencia cuántica para diferentes longitudes de onda¹². Estos fotoelectrones primarios son arrastrados por un campo eléctrico de alto voltaje e inciden sobre los *dínodos*, los cuáles, por emisión secundaria, aumentan el número de electrones en sucesivas etapas de amplificación [fig. 3.9]. A mayor ganancia, mayor es la altura del pulso de corriente generado en el ánodo pues mayor número de electrones son incorporados en las etapas de amplificación. Dependiendo del diseño de las etapas de amplificación y del material empleado, los PMT's gozan de mayor o menor ruido térmico, provocado por la termoemisión de electrones del cátodo y/o dinodos (termoelectrones)¹³. En consecuencia, los pulsos de electrones que llegan al ánodo pueden provenir tanto de fotones incidentes en el fotocátodo como de estos termoelectrones. No obstante, las características de uno y otro tipo de pulsos son diferentes, lo que constituye la base del método de contaje de fotones.

En la figura 3.10(a) se han representado la distribución de alturas de los pulsos que llegan al ánodo tanto en oscuridad como con iluminación. De ella se deduce que el número de electrones generado por un fotoelectrón es mayor y fluctua menos que el número de electrones generado por un termoelectrón, dando lugar a pulsos más intensos y a una distribución más estrecha en el primer caso. Por tanto, aplicando un filtro pasa alta a la intensidad del pulso detectado, la mayoría de los eventos asociados a termoelectrones pueden ser discriminados. Obviamente, esto conlleva que parte de los eventos válidos sean también discriminados (tantos más, cuanto

¹²La eficiencia cuántica del fotocátodo aún no es la del detector pues los electrones fotogenerados han de ser convertidos en cuentas.

¹³A fin de reducir al mínimo el ruido en oscuridad, los PMT's utilizados en espectroscopía confocal operan a bajas temperaturas enfriados a -30 °C por efecto Peltier.

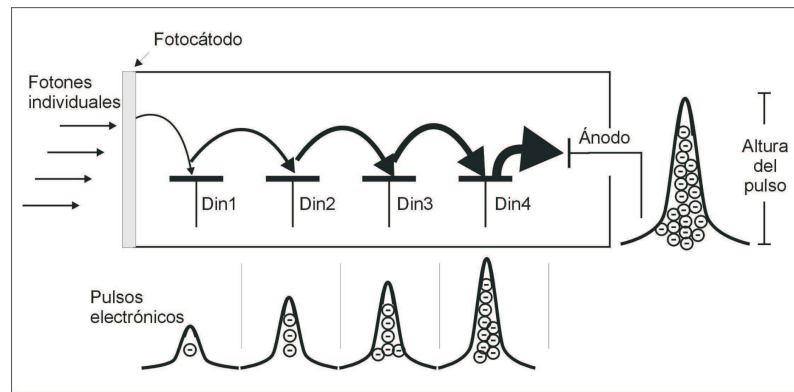


Figura 3.9: Diagrama esquemático del funcionamiento de un tubo fotomultiplicador. Los fotones incidentes, con energía dentro del rango espectral del material depositado en el fotocátodo, generan fotoelectrones que son amplificados en sucesivas etapas produciendo pulsos de electrones de intensidad variable en el ánodo.

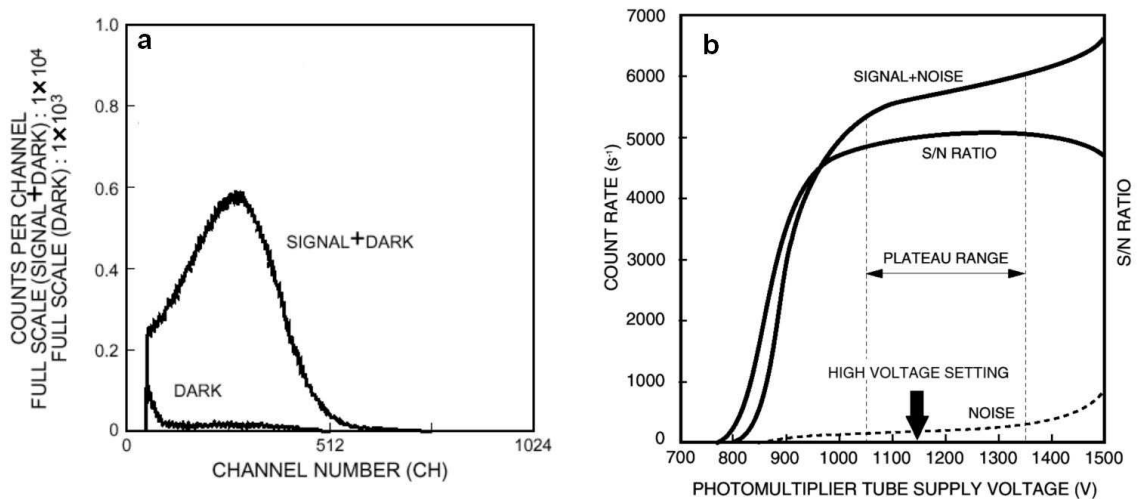


Figura 3.10: La distribución de alturas de los pulsos de electrones detectados en un tubo fotomultiplicador se muestra en a) en presencia de luz y en oscuridad. A la derecha, la variación del número de cuentas en función de la ganancia en un experimento de contaje de fotones produce una curva tipo *plateau* en la relación señal-ruido del PMT. Reproducidas del *Manual de usuario del módulo de contaje de fotones C3866* de Hamamatsu Photonics (Japón).

más ancha sea la distribución de intensidades asociada), y, por ello, se han de elegir los valores de discriminación y de ganancia (voltaje aplicado) de manera adecuada.

El procedimiento para ajustar ambos parámetros se basa en el método del *plateau*. El método consiste en aplicar un cierto umbral de discriminación, e ir aumentando paulatinamente la ganancia bajo un nivel de iluminación constante. El número de eventos válidos, es decir provenientes de fotoelectrones, ha de saturar a un voltaje dado, a partir del cual ya han sido contados *todos* los pulsos asociados a fotoelectrones. Las cuentas en la oscuridad, sin embargo, aumentarán paulatinamente desde cero, no mostrando comportamiento alguno de saturación. Dada la estrecha distribución de alturas de los pulsos de electrones *válidos*, el aumento de la señal será rápido a partir de cierto valor de la ganancia saturando rápidamente. En estas condiciones, la curva obtenida tiene forma de *plateau* y permite establecer el nivel de ganancia y discriminación óptimos [fig. 3.10(b)].

Detector de carga acoplada (CCD)

En el apartado anterior hemos visto que en la técnica de contaje de fotones basada en detectores fotoemisores la señal se detecta en forma de pulsos de electrones que viajan del fotocátodo al ánodo siendo amplificados en sucesivas etapas. En un dispositivo de carga acoplada, la señal consistirá asimismo en paquetes de electrones, pero éstos, una vez generados por la radiación incidente, pueden ser almacenados en áreas minúsculas de un semiconductor durante un tiempo determinado, y ser transferidos posteriormente de manera que sea posible reconstruir un mapa bidimensional de la intensidad de la radiación en cada punto del detector. A fin de que la carga pueda ser detectada y almacenada, esta tecnología se basa en el Silicio como medio activo (lo que determina el rango espectral del detector) y en la arquitectura metal-óxido-semiconductor (MOS) como medio condensador para la acumulación y transferencia de carga.

En la figura 3.11(a) se ha representado el perfil de las bandas de energía en el punto Γ a través de un dispositivo MOS tipo p (por ejemplo, Au:Ni/SiO₂/Si:p⁺) en equilibrio térmico. El nivel de Fermi en el metal y en el semiconductor están alineados, los portadores se hayan en equilibrio en todas las uniones y los potenciales intrínsecos o *built-in voltages* se mantienen constantes. El dispositivo está formado

por varias decenas o centenares de pixeles adyacentes entre si. Cada uno de ellos es susceptible de recibir un voltaje aplicado de manera externa e independiente. Cuando un voltaje V_G se aplica externamente al metal, la situación cambia como muestra la figura 3.11(b). El voltaje aplicado se distribuirá entre el óxido y el semiconductor de manera que:

$$qV_G = qV_{Ox} + q\phi_S \quad (3.17)$$

y creando una zona de agotamiento en el semiconductor próxima a la intercara con el óxido. Mientras no se produzcan portadores minoritarios por generación térmica o iluminación, la situación se mantendrá estacionaria. Ahora bien, según vayan apareciendo pares electron-hueco en las inmediaciones de la zona de agotamiento, los electrones se difundirán hacia la intercara SiO₂-Si formando un gas de electrones bajo la superficie del dispositivo allí donde el voltaje está siendo aplicado. Además, los huecos generados neutralizarán parte de los aceptores ionizados en la zona de agotamiento, reduciendo la anchura de ésta. En esta situación, el campo aumentará paulatinamente en el óxido, disminuyendo el pozo de potencial en el semiconductor [3.11(c)]. Este proceso continuará hasta que el número de electrones acumulado sea tal que la carga restante comience a fluir por encima de la barrera formada por el óxido alcanzándose la capacidad máxima del pozo o *full well capacity*. En la figura 3.11(d) vemos como aplicando los voltajes adecuados, la carga acumulada puede transferirse lateralmente de un pozo al siguiente de manera secuencial enviando finalmente un tren de paquetes de electrones hacia un multiplexador. La sincronización de la secuencia de voltajes con la frecuencia interna del dispositivo permite identificar el origen espacial de cada paquete produciendo el mapa de intensidades deseado.

Esta sencilla descripción del funcionamiento de una CCD es suficiente para deducir sus principales características. En primer lugar, dado que se trata de un fotodetector basado en Silicio, la respuesta espectral viene determinada por la banda prohibida de este semiconductor. Por otro lado, si la luz incide por la parte frontal del semiconductor¹⁴, la respuesta espectral de los materiales que forman el dispositivo

¹⁴Allí donde se encuentran los contactos.

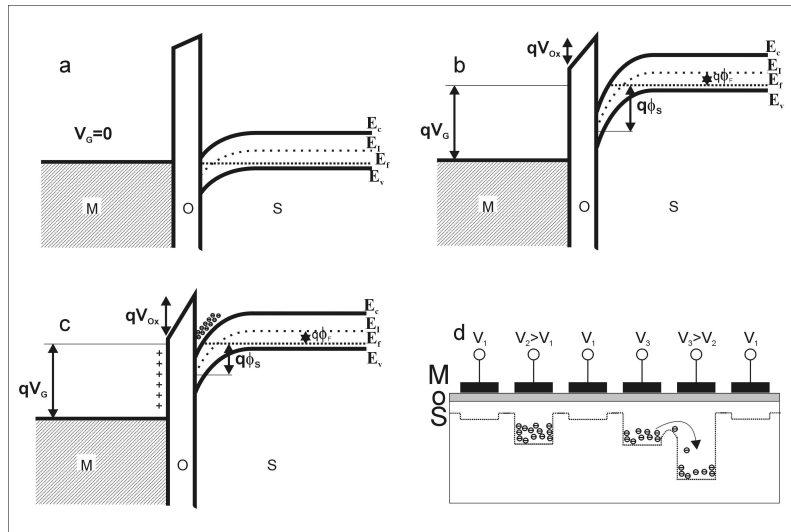


Figura 3.11: En a), b) y c) se muestran los perfiles de las bandas de energía de un dispositivo MOS en equilibrio, tras la aplicación de un voltaje V_G en oscuridad y aplicándolo bajo iluminación, respectivamente. La figura d) muestra esquemáticamente el proceso de transporte de carga lateral de un contacto al siguiente.

MOS ha de ser tenida en cuenta. Se puede conseguir una mayor eficiencia cuántica y un mayor rango espectral si la luz incide por la parte trasera del chip. Estas cámaras *back illuminated* se iluminan a través del sustrato, que ha sido adelgazado expresamente hasta unas pocas micras de espesor ($\sim 20\mu m$), con lo cual se consigue que longitudes de onda más largas puedan penetrar hasta la zona de agotamiento mejorando la eficiencia por encima de 600 nm. Si esto se combina con un perfil de dopado adecuado, que extienda la zona de agotamiento a distancias más profundas (*deep-depletion*), la zona activa del detector incluirá la práctica totalidad del sustrato, alcanzándose eficiencias cuánticas hasta del 90 % a 800 nm. De la descripción del funcionamiento del dispositivo se pueden deducir también cuales son las fuentes de ruido asociadas. Aparte del ruido asociado a las fluctuaciones del flujo de fotones determinado por la estadística de Poisson, dos son las fuentes adicionales de ruido en una CCD. En primer lugar, la generación térmica de pares electron-hueco contribuirá al número de electrones acumulados en un pixel dado de manera parecida a como lo hacían los termoelectrones en un PMT. Este ruido disminuye exponencial-

mente con la temperatura por lo que las CCDs para espectroscopía confocal operan a ~ -90 °C ¹⁵. La otra fuente de ruido en una CCD está asociada a la lectura del registro de cada pixel (error de lectura) y se debe principalmente a las fluctuaciones de carga producidas en los procesos de transporte lateral descritos anteriormente. Si t es el tiempo de integración tenemos que:

$$S/N = \frac{Q_E n_P t}{\sqrt{Q_E n_P t + n_D t + n_R^2}} \quad (3.18)$$

Para tiempos de integración cortos, el ruido se haya dominado por el ruido de lectura, sin embargo, para tiempos de integración elevados, S/N se reduce a la ecuación (3.16) y a las conclusiones extraídas allí.

PMT´s vs CCD´s

A fin de ejemplificar los conceptos introducidos en lo que atañe a la detección, vamos a calcular la relación señal-ruido de dos detectores disponibles en nuestro laboratorio. Ambos se cuentan entre los mejores de su clase y son capaces de detectar fotones individuales. El fotomultiplicador R3310-02 de Hamamatsu dispone de un fotocátodo de InGaAs(Cs) y su diseño está optimizado para ofrecer un nivel de cuentas en la oscuridad de 6 cps¹⁶ a -30 °C. Por otro lado, disponemos de una CCD DU401-BR-DD de Andor Technologies, iluminada a través del substrato, con zona de agotamiento profunda, y que ofrece un nivel de cuentas en la oscuridad de 0.3 cps y pixel a -76 °C, y un ruido de 0.8 cuentas por pixel/lectura al que hay que añadir 0.4 cuentas más por lectura debido al ruido de la electrónica exterior ¹⁷. En la figura 3.12 hemos representado la respuesta espectral de cada detector, representando la eficiencia cuántica del mismo en función de la longitud de onda. A partir de los datos colectados es posible calcular fácilmente S/N para ambos detectores. Sustituyendo los datos correspondientes a $\lambda=950$ nm en las ecuaciones (3.16) y (3.18) se obtienen las curvas representadas en la figura 3.13. La simple comparación de

¹⁵La temperatura no se reduce más pues la eficiencia cuántica del detector se vería afectada en el rango NIR.

¹⁶Cuentas por segundo.

¹⁷Valores correspondientes a una ganancia de 7 el./c.

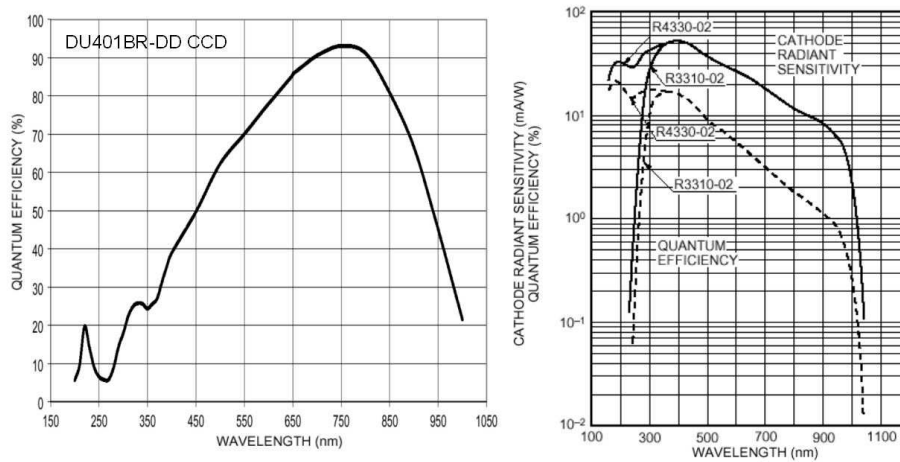


Figura 3.12: Eficiencia cuántica de una CCD iluminada por el sustrato y de zona de agotamiento profunda a), y de un fotomultiplicador de InGaAs(Cs) optimizado para conteo de fotones b). Ambas figuras extraídas de los manuales de los respectivos fabricantes: Andor Technologies (UK) y Hamamatsu Photonics (Japón).

ambas curvas nos revela que la CCD considerada es superior en todos los conceptos a nuestro fotomultiplicador de altas prestaciones, en aplicaciones dentro del rango espectral común de ambos. La diferencia se hace aún más patente al considerar el carácter multicanal de la CCD que permite acumular verticalmente la señal de varios píxeles multiplicando de manera efectiva la relación señal-ruido del detector y adquirir espectros completos en el tiempo en que el PMT sólo adquiere los datos correspondientes al ancho de banda del monocromador. De hecho, la aparición de este tipo de CCDs desde mediados de los años 90 han hecho posible la investigación de cajas cuánticas individuales In(Ga)As/GaAs como demuestra un buen número de trabajos experimentales publicados basados en estos dispositivos.

3.3. Microscopio confocal de fibra óptica

Para finalizar este capítulo vamos a analizar un montaje confocal particular que es de especial relevancia para el trabajo de investigación llevado a cabo. Como es sabido, los tres elementos más importantes desde el punto de vista óptico de todo

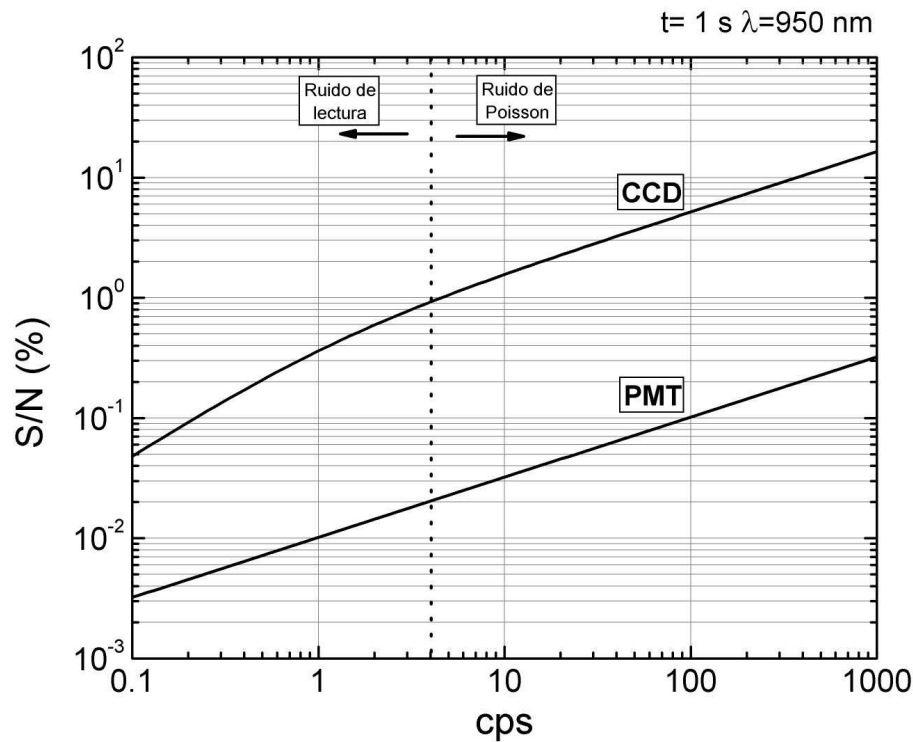


Figura 3.13: Ratio S/N extraído de las características nominales de los dos detectores considerados en el texto. El cambio de pendiente en la curva de la CCD separa la región dominada por el ruido de lectura de la región donde el ruido se debe a las fluctuaciones del flujo de fotones.

microscopio confocal son el objetivo de microscopio, la fuente puntual y el estenope, por ello, los requisitos que han de cumplir todos ellos han sido expuestos en las secciones anteriores. Consideremos ahora el montaje de la figura 3.14. En el mismo, la fuente puntual y el estenope están implementados por sendas fibras ópticas situadas en el plano focal de las lentes $L1$ y $L2$. Las ventajas de este montaje son evidentes en términos de estabilidad mecánica del microscopio. Mediante el uso de fibras ópticas, la utilización de láseres y detectores situados en lugares remotos respecto al microscopio permite aislar éste físicamente del resto del montaje experimental. Además, una vez alineado el microscopio las posiciones relativas de los elementos ópticos del mismo permanecen inalteradas cualquiera que sea la modificación llevada a cabo en los elementos remotos. Por así decirlo, el microscopio está desacoplado del exterior.

Otro notable beneficio de este montaje es la posibilidad de minituarización que

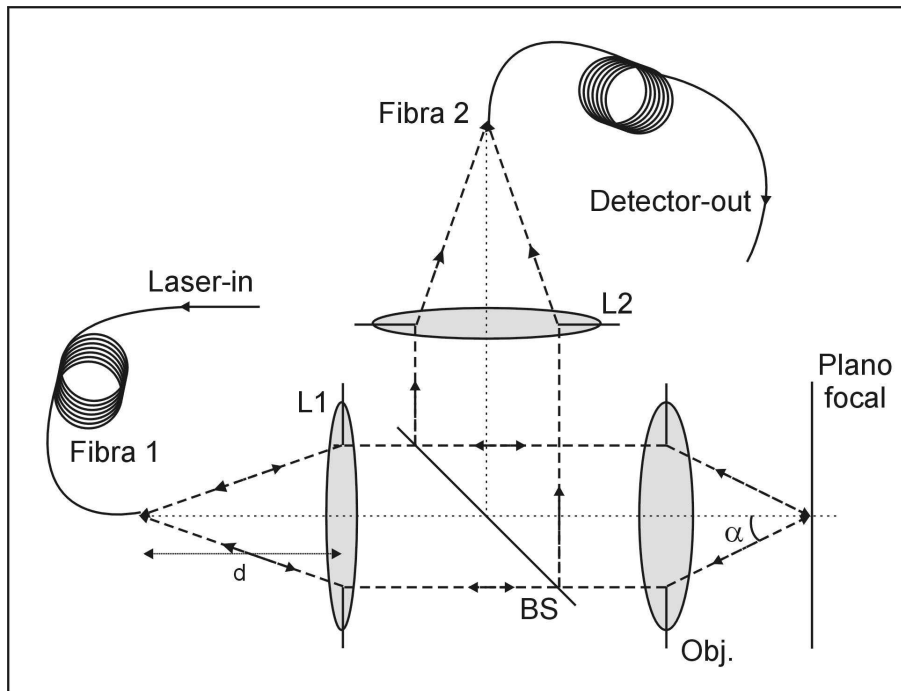


Figura 3.14: Diagrama esquemático de un microscopio basado en fibra óptica.

ofrece. En modo de imagen por reflexión y en experimentos de espectroscopía resonante, el montaje se puede simplificar prescindiendo de uno de los brazos del microscopio. Así, una sola fibra óptica situada en el foco de una lente suministra la señal de excitación y recoge la reflexión/luminiscencia que es dirigida hacia y desde el objetivo de microscopio. El alineamiento en este caso se reduce al ajuste de las distancias axiales simplificando y mejorando el funcionamiento del dispositivo. La señal de excitación y colección viajan por la misma fibra y son separadas en el extremo lejano de ésta, bien sea con un divisor de haz, bien por un espejo dicróico o un acoplador de fibra de tres o cuatro puertos¹⁸.

La resolución lateral y axial de este microscopio en diferentes configuraciones se han investigado teórica [48, 49] y experimentalmente [50, 51]. En el caso más sencillo

¹⁸Una característica exclusiva de este tipo de microscopios es que debido a la estructura modal de la propagación, la fibra actúa como detector coherente independientemente del radio r_0 , cosa que en el microscopio convencional sólo ocurre para estenopes de dimensión nula. Así, midiendo el contraste de fase entre dos modos propagándose en una misma fibra, Wilson *et al* [47] han demostrado que es posible determinar con mayor precisión distancias axiales en el plano objeto.

tenemos una fibra circular de salto de índice por la que se propaga un haz de luz monocromático de longitud de onda λ , en la que podemos definir el número de onda normalizado:

$$V = k\rho NA = \left(\frac{2\pi\rho}{\lambda}\right) \sqrt{\eta_1^2 - \eta_2^2} \quad (3.19)$$

donde ρ es el radio del núcleo de la fibra de índice de refracción η_1 , y η_2 es el índice de refracción de la cubierta. Cuando $V \gg 1$, el número de modos soportados por la fibra es aproximadamente igual a:

$$N \sim \frac{V^2}{2} = \left(\frac{2\pi\rho}{\lambda}\right)^2 \frac{\eta_1^2 - \eta_2^2}{2} \quad (3.20)$$

y la fibra se dice que es multimodo. Sin embargo, una fibra cuyo núcleo sea lo bastante pequeño cumplirá en determinado rango de longitudes de onda que $V < 2.405$. En dicho rango se puede demostrar que sólo un modo puede propagarse en el interior de la fibra. La longitud de onda de corte, λ_c , por debajo de la cual la fibra ya no es monomodo se obtiene aplicando la condición $V > 2.405$ y es característica de una fibra dada. En el caso en que la diferencia de índices entre el núcleo y la cubierta sea pequeña (confinamiento débil), los modos resultantes son linealmente polarizados (LP). Bajo estas condiciones, el modo fundamental LP_{01} es radialmente simétrico y su amplitud puede aproximarse por una gaussiana:

$$\phi(r) = \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \right] \quad (3.21)$$

donde r_0 puede calcularse a partir del número de onda normalizado:

$$r_0 = \frac{\rho}{\sqrt{2 \ln V}} \quad (3.22)$$

y es la magnitud equivalente al radio del estenope del microscopio confocal convencional, y no ρ como se podría pensar en un principio. La luz que no se focalice sobre la punta de la fibra dentro de un círculo de radio r_0 y con un ángulo menor que el cono de aceptación dado por su apertura numérica, no se propagará a través de la misma, y por tanto, no incidirá en el detector colocado en el extremo lejano de ésta. Por tanto, a una longitud de onda dada, el radio r_0 obtenido de la expresión (3.22)

determina la resolución axial y lateral máxima en el plano objeto del microscopio a falta de incluir posibles aberraciones.

Desde el punto de vista del diseño de la experiencia, uno ha de determinar la longitud de onda o rango de longitudes en el cual el experimento ha de ser llevado a cabo, y elegir la fibra óptima para el mismo. Es erróneo pensar que es suficiente con optimizar el diseño para la longitud de onda más corta que se ha de propagar en la fibra. Pese a que es cierto que si $\lambda_1 > \lambda_2$ la fibra será monomodo para la primera si lo es para la segunda, también ocurre que el factor de confinamiento óptico se degrada rápidamente al aumentar la longitud de onda por encima de λ_c . Esto provocará que a longitudes de onda largas la mayor parte de la energía viaje por la cubierta de la fibra siendo por tanto mucho más sensible a las pérdidas por deformación, etc... Por otro lado, junto a la posible presencia de aberraciones cromáticas en el sistema óptico, se deduce también de la ecuación (3.22) que la resolución también variará como consecuencia del cambio de λ , y habrá de ser tenido en cuenta en caso necesario en la experiencia particular.

Capítulo 4

Estudio macroscópico de nanoestructuras cuánticas autoensambladas de InAs

En este capítulo recopilaremos los resultados más relevantes obtenidos en experimentos de espectroscopía realizados en cajas cuánticas autoensambladas de InAs. Este capítulo introduce los conceptos necesarios para la comprensión de los resultados que forman el trabajo de investigación principal de esta tesis. El término macroscópico se refiere al hecho de que debido a la limitada resolución espacial, las propiedades extraídas se refieren a colectivos macroscópicos de tales nanoestructuras. Tal y como se discutió en la sección 2.1, las propiedades individuales de las mismas sólo podrán ser estudiadas reduciendo de manera efectiva dicha resolución, y serán objeto de una discusión detallada en los próximos capítulos.

Los resultados recopilados se basan en gran parte en trabajos de investigación llevados a cabo desde Septiembre de 1998 hasta la actualidad y han sido difundidos en publicaciones internacionales de diversa índole. La inclusión de estos resultados responde, como se ha dicho, a su carácter introductorio. En segundo lugar, dicha introducción está basada en trabajos donde el grado de participación del autor es elevado, respondiendo así a la realidad histórica de su ciclo formativo. La selección se ha centrado en aquellos aspectos más relevantes que son de utilidad para la discusión

ulterior. No se pretende, por tanto, una exhaustividad que en algunos casos no es simplemente posible por tratarse de temas de investigación aún abiertos.

4.1. Nanoestructuras cuánticas autoensambladas de InAs

Las primeras heteroestructuras semiconductoras capaces de confinamiento cuántico de los portadores de carga fueron los pozos cuánticos basados en semiconductores III/V con constantes de red similares pero bandas de energía diferentes [5]. El estudio de un número creciente de combinaciones de materiales para generar o mejorar propiedades deseables en los dispositivos basados en tales pozos cuánticos no tardó en producir, en ocasiones de manera accidental, un nuevo tipo de nanoestructuras donde el confinamiento espacial de los portadores ocurría en más de una dimensión [52]. Inicialmente bautizadas como islas o pozos cuánticos corrugados, hoy en día la forma y tamaño de las mismas son mejor conocidas y hasta cierto punto controladas.

Por ejemplo, los hilos cuánticos de InAs obtenidos sobre substratos de InP(001) surgen como consecuencia de la anisotropía de la relajación elástica en las direcciones (110) y $(1\bar{1}0)$ del substrato. La diferente constante de red de ambos materiales provoca un desacuerdo de malla compresivo del 3.2% y genera una deformación elástica de las sucesivas monocapas (ML) de InAs cuando éste es depositado epitaxialmente sobre InP. A partir de un espesor depositado superior al espesor crítico, 2.5 ML en este sistema, los procesos de autoensamblado tridimensional provocan la aparición de cajas o hilos cuánticos [fig. 4.1] que mantienen sus propiedades morfológicas una vez recubiertos y retirados de la cámara de crecimiento. Gracias al estudio de dichos procesos, hoy en día es posible utilizar las condiciones de crecimiento adecuadas para controlar la composición, tamaño y densidad de dichos hilos dentro de los límites impuestos por el carácter autoorganizado del método.

Más información sobre éstas nanoestructuras incluyendo conceptos relevantes como el de emisión multimodal, que caracteriza las propiedades ópticas de las mismas, o el efecto de autofiltrado por propagación coherente del campo elástico, que

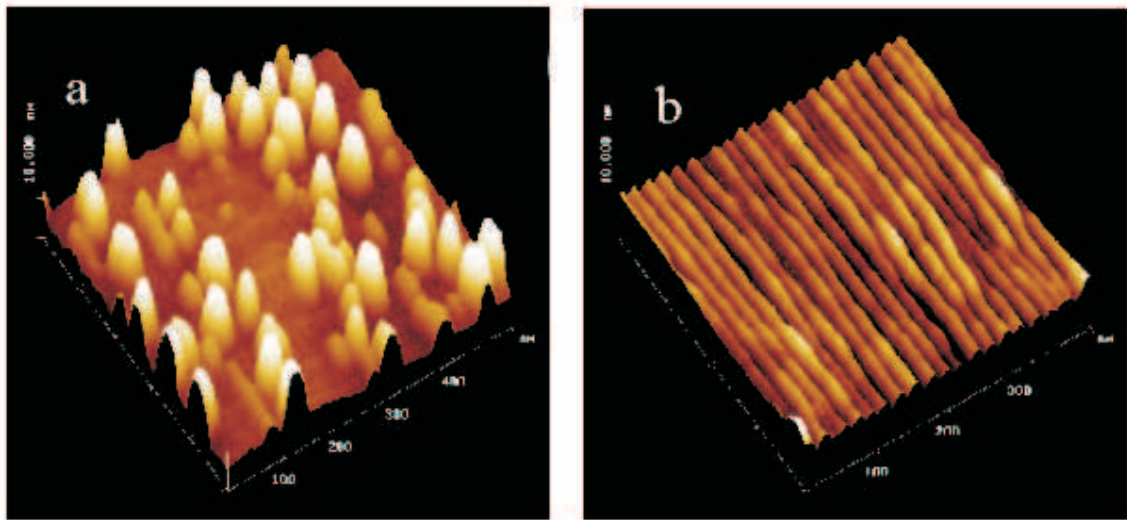


Figura 4.1: Imagen de microscopía de fuerzas atómicas (AFM) de nanoestructuras de InAs formadas sobre una capa tampón de InP(001). El área escaneada es de 500×500 nm en a) y 400×400 nm en b). El eje vertical corresponde a 10 nm. Imágenes por cortesía de la Dra. Luisa González (IMM-CSIC, Madrid).

determina sus propiedades morfológicas, pueden ser encontradas en el anexo I y en las referencias allí incluidas¹ [53, 54, 55, 56, 57, 58].

En esta sección y la siguiente, nos centraremos en resultados previos que nos permiten comprender aspectos básicos de la estructura electrónica de las cajas cuánticas autoensambladas de InAs/GaAs. Al igual que en el sistema InAs/InP, el crecimiento de capas bidimensionales de InAs sobre GaAs no es estable elásticamente a partir de un espesor de la capa de InAs, $d_c \sim 1.5$ ML, conocido como *espesor crítico*, y que está determinado por la tensión compresiva del 7.2% presente entre ambos materiales y debida a su diferente constante de red[12, 59]. Las estructuras tridimensionales resultantes tras la relajación de la deformación elástica son conocidas de manera genérica como cajas cuánticas autoensambladas InAs/GaAs o SAQDs², aunque de-

¹Este anexo resume y revisa los trabajos de investigación realizados para la obtención del Diploma de Estudios Avanzados (DEA) en *Fotónica: Fundamentos y Dispositivos* de la Universidad de Valencia (Valencia, Noviembre de 2001).

²De las siglas en inglés de *Self-Assembled Quantum Dots*.

pendiendo de las condiciones de crecimiento, hoy en día es posible obtener anillos cuánticos u otras formas, de tamaño nanométrico [60, 61]. Conocida la composición química, tamaño y forma de las nanoestructuras, el cálculo de los estados electrónicos puede llevarse a cabo con modelos realistas utilizando diferentes métodos numéricos [62, 63, 64]. Sin embargo, no siempre es posible conocer al detalle todos estos parámetros, o la potencia de cálculo no es suficiente para introducir formas reales del potencial de confinamiento (asimetría, difusión, deformación triaxial, . . .). Incluso cuando las energías y multiplicidad de los niveles electrónicos son conocidas perfectamente, los portadores que habitan en los mismos están llamados a interactuar entre ellos, con el campo electromagnético, los fonones, . . . , dibujando una dinámica de relajación y recombinación cuanto menos complicada. En definitiva, las propiedades individuales y colectivas de las cajas cuánticas de InAs constituyen un campo abierto donde nuevos resultados experimentales corroboran o desdican las predicciones teóricas y nuevas teorías arrojan luz donde varios experimentos no convergían. Sirva como ejemplo la variedad de los resultados que mostramos a continuación y la investigación llevada a cabo en los siguientes capítulos.

La figura 4.2 muestra los espectros de fotoluminiscencia (PL) y fotoluminiscencia de excitación (PLE) a baja temperatura (20 K) obtenidos en muestras que contienen diez capas de SAQDs crecidas en idénticas condiciones excepto por el espesor de la capa espaciadora utilizado en cada una [65]. El panel de la izquierda contiene los resultados en excitación no resonante utilizando un láser de Ar^+ a 514 nm, y en la derecha se recogen, junto a los resultados de PLE, los espectros de PL obtenidos al excitar resonantemente con un láser de Ti-Zafiro a 835 nm. Muestras similares que contenían una sola capa de SAQDs han sido estudiadas en trabajos previos [66], revelando una importante inhomogeneidad de alturas de las cajas cuánticas examinadas por AFM en diferentes puntos de la muestra. Estadísticas realizadas en un número representativo de cajas arrojan un valor promedio de 7 y 22 nm para la altura (h) y diámetro (D), respectivamente, y con variaciones entre 3 y 9 nm para h y una relación $\sim 1:3$ constante entre dicha magnitud y D^3 . Por tanto, cabe esperar

³Dicha relación de aspecto implica un grado de truncamiento elevado respecto al caso piramidal

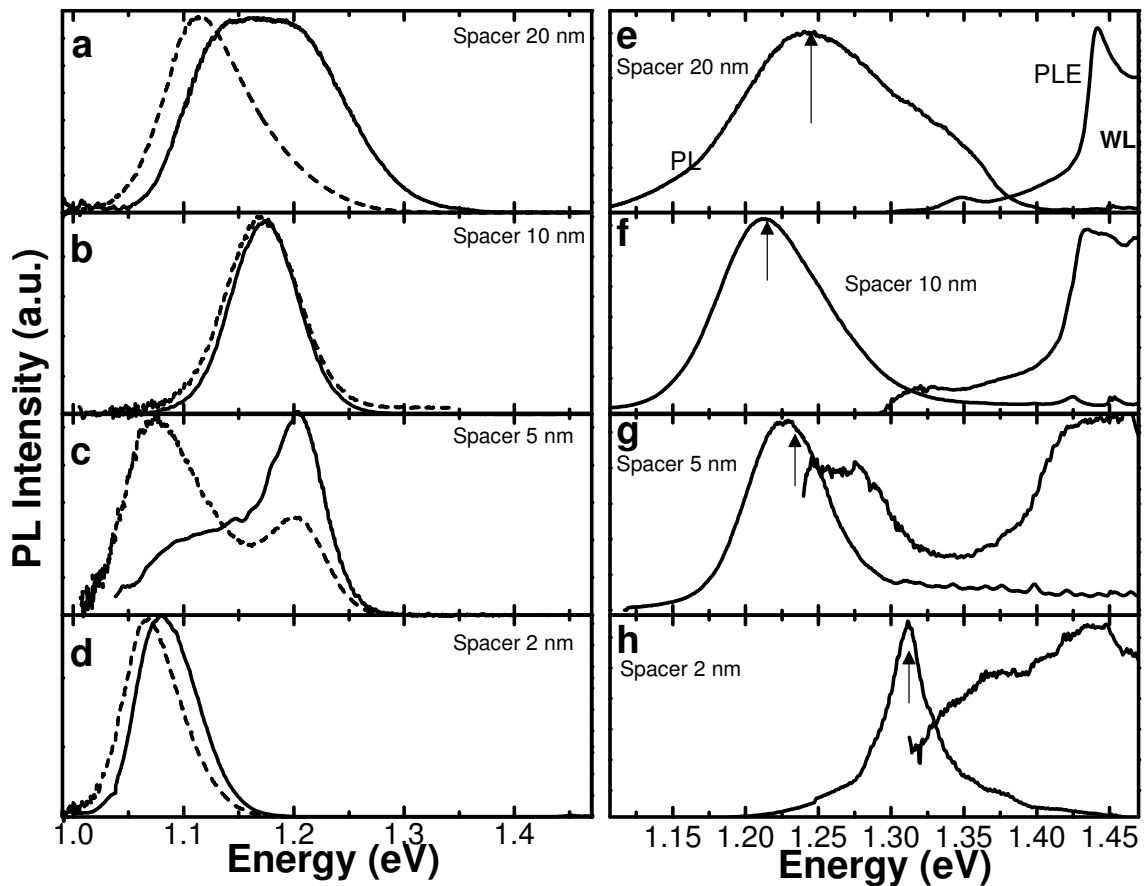


Figura 4.2: Espectros de fotoluminiscencia a 20 K de una serie de muestras que contienen diez capas de cajas cuánticas InAs/GaAs. A la izquierda, los diferentes tipos de línea corresponden a la PL en puntos distintos de cada muestra bajo excitación no resonante. A la derecha, el caso de excitación resonante se representa junto a los espectros de PLE correspondientes.

una emisión de tipo multimodal donde la fotoluminiscencia de cajas cuánticas de distinto tamaño se suma inhomogéneamente en una banda extensa [anex. I].

Apilando varias capas separadas entre si una distancia mucho mayor que la altura típica de las cajas, la situación no mejora y el resultado es el que muestran las figuras 4.2(a) y (e). Sin embargo, reduciendo la capa espaciadora de 20 a 10 nm, la banda de emisión se estrecha más de un factor 2, de lo que se deduce una reducción similar para la distribución de tamaños a través del mecanismo de autofiltrado conocido del estudio de hilos cuánticos apilados [Figs. 4.2(b),(f)].

de base cuadrada con lados perpendiculares a la dirección (111) que proporciona $h/D = \sqrt{2}/2$ [19].

Si continuamos reduciendo la cantidad de GaAs depositado, está claro que llegará un momento en que el espesor de la capa espaciadora será menor que la altura de las cajas cuánticas antes de ser recubiertas. Tal situación propicia el intercambio In/Ga y la desadsorción del material que forma parte de la caja, generando nanoestructuras de altura menor que la caja original y posiblemente forma diferente [61, 19]. Así, en la figura 4.2(c) vemos que para un espaciamiento de 5 nm, la banda de emisión se vuelve bimodal, indicando que la distribución de tamaños original se ha dividido en dos. A 1.075 eV la emisión procedente de las cajas más grandes que probablemente se hallen acopladas electrónicamente (columnas), y a 1.204 eV aquellas de menor tamaño que aunque homogeneizadas por el apilamiento no establecen dicho acoplamiento.

Reduciendo aún más el espaciamiento a sólo 2 nm, las primeras dominan el espectro bajo excitación no resonante, pero excitando a 835 nm sólo un pico a 1.312 eV domina la PL de esta muestra [Figs. 4.2(d),(h)]. Tampoco en la figura 4.2(g) se observa traza alguna de la banda de más baja energía y sólo los estados a ~ 1.22 eV contribuyen a la emisión de la muestra de 5 nm en condiciones resonantes. Este desplazamiento de la emisión hacia altas energías es patente en todas las muestras y puede relacionarse con la menor capacidad de difusión de los pares electrón-hueco fotogenerados cerca del borde de absorción fundamental del material⁴. En todo caso, los resultados de uno u otro panel confirman la hipótesis de autofiltrado de tamaños mediante apilamiento, al que hay que añadir, cuando el espaciamiento es menor que la altura de las cajas cuánticas enterradas, la descomposición bimodal de la distribución y por tanto de las bandas de emisión.

La presencia de una capa bidimensional de InAs sobre la que las cajas cuánticas sobresalen es conocida de la caracterización morfológica mediante TEM y resulta visible en los experimentos ópticos. Dicha capa recibe el nombre de *capa mojante* o WL⁵, y está formada por el InAs que no se reorganiza en el proceso de autoensamblado, su anchura es por tanto menor que el espesor crítico y se halla fuertemente

⁴La energía de exceso respecto al borde de banda determina el número de fonones LO emitidos a baja temperatura y con ello la difusión de cada portador.

⁵De las siglas en inglés de *Wetting Layer*.

tensionada biaxialmente. Además, dado su carácter bidimensional su densidad de estados es elevada y contribuye de manera importante en los procesos de relajación de los portadores.

En las figuras 4.2(e)-(h) se han representado los espectros de PLE obtenidos en las diferentes muestras a baja temperatura. Fijada la energía de detección, la fotoluminiscencia de excitación nos proporciona información sobre aquellos estados de energía $E_{exc} > E_{det}$ que contribuyen a la emisión en E_{det} . En los espectros mostrados, la señal de PLE alcanza un máximo pronunciado en torno a 1.4 eV, que se corresponde con el estado fundamental de la WL. En un experimento de PL, la anchura de dicho máximo nos daría información sobre la calidad morfológica de la propia WL, tal y como se hace en espectroscopía de pozos cuánticos. En PLE, sin embargo, los estados del continuo de las cajas cuánticas contribuyen a la señal a energías cercanas y resonantes con la WL ensanchando ésta y produciendo una cola de emisión que penetra por debajo de 1.4 eV [67]. Este efecto es tanto más pronunciado cuanto más pequeñas son las cajas cuánticas en cuestión, como se observa en las figuras 4.2(e)-(h). Así, para las muestras con 20 nm y 10 nm de espaciador, las cajas más grandes muestran un espectro de PLE estrecho y con una WL bien definida aunque la cola sea apreciable [fig. 4.2(e),(f)]. Para cajas cuánticas más pequeñas, y paulatinamente con el desplazamiento hacia altas energías de la PL, la señal de PLE a 1.4 eV se ensancha de forma pronunciada hasta casi solaparse con la energía de emisión [Figs. 4.2(g),(h)].

Podemos extraer más información del estudio de la emisión de cada muestra para diferentes energías de excitación resonantes. En las figuras 4.3(a)-(d) se han reunido los espectros de PL obtenidos variando la longitud de onda de excitación por encima y por debajo de la WL a 20 K.

Empezando por la muestra con mayor espaciamiento entre las capas, observamos que para $E_{exc} \leq 1.417$ eV (*i.e.* por debajo de la WL), en la banda de PL aparecen varias componentes, equiespaciadas ~ 32 meV, que se desplazan a la vez que lo hace la longitud de onda del láser. El origen fonónico de las mismas está claro con sólo recordar que las energías correspondientes a los fonones LO en el InAs y el GaAs son

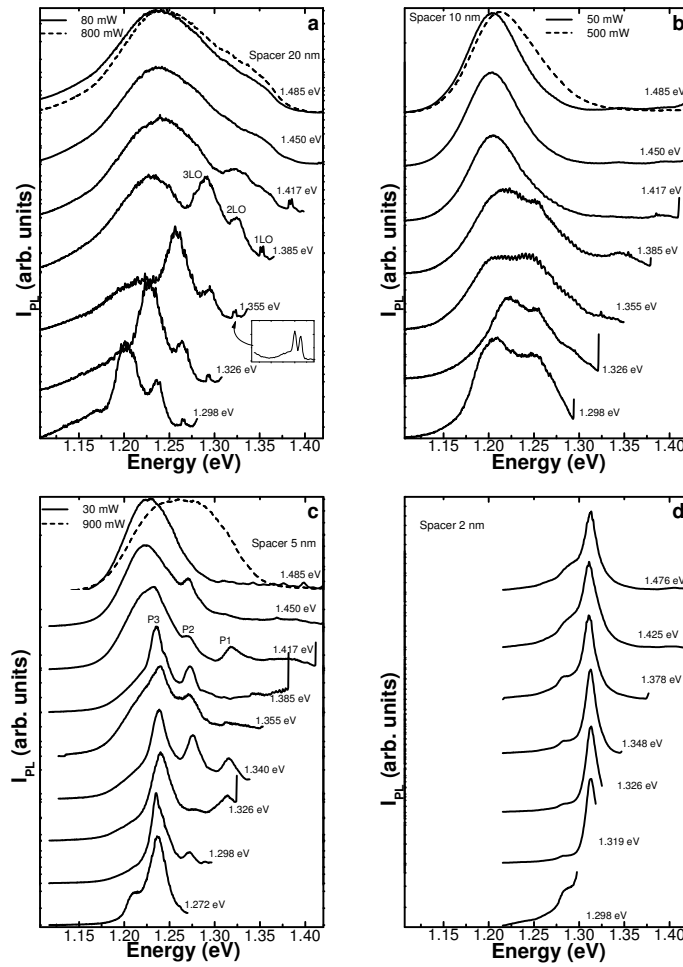


Figura 4.3: Espectros de fotoluminiscencia obtenidos a diferentes energías de excitación resonantes en muestras con cajas cuánticas apiladas verticalmente. La mayor o menor importancia de los estados excitados en cada muestra se extrae del comportamiento con la densidad de excitación (línea discontinua) y la evolución de la RPL en cada caso.

~ 29.5 meV y ~ 36 meV, respectivamente [68], y que debido a la deformación triaxial dichos valores pueden variar en un cierto ancho de banda [69, 70]. La interacción electrón-fonón en SAQDs se ha estudiado desde su aparición, habiéndose propuesto la emisión de fonones LO a baja temperatura como mecanismo principal de captura y relajación de la energía en este sistema [71, 72]. Ello a pesar de la primigenia predicción de un cuello de botella⁶ en la relajación intra-banda debido al carácter

⁶Phonon bottleneck

discreto de la densidad de estados[73]. Más adelante, veremos que éste no es el único mecanismo importante cuando la excitación es completamente resonante con los estados excitados. Pero por ahora podemos afirmar que la aparición de dichas bandas en nuestros espectros ha de estar relacionada con la captura eficiente de excitones en cajas cuánticas cuyo estado fundamental se haya separado por E_{LO} , $2 \times E_{LO}$ y $3 \times E_{LO}$ de la energía del láser. La ancha distribución inhomogénea de esta muestra favorece esta relajación multifonónica, a pesar de ser un proceso de orden superior, debido a la densidad de estados final accesible. Esta interpretación multimodal de la emisión está corroborada por el comportamiento de la PL con la densidad de excitación que muestra la figura 4.3(a) con $E_{exc}=1.485$ eV y la estadística de tamaños realiza en capas simples y ya descrita.

Conforme reducimos la capa espaciadora, la distribución se estrecha y el efecto es menos pronunciado [fig. 4.3(b)]. Aquí, los estados excitados cobran importancia en la relajación, frente al carácter multimodal que se reduce. En la muestra con un espaciamiento de 5 nm, al aumentar la potencia excitando por encima de la WL, la banda de emisión muestra un comportamiento inequívoco de llenado de bandas por saturación del estado fundamental [fig. 4.3(c)]. Disminuyendo la energía de excitación, la RPL nuevamente se descompone en varias bandas estrechas. Aunque dichas bandas se hayan equiespaciadas más o menos ~ 39 meV, y no se desplazan con el láser. En este caso, por tanto, no pueden asociarse a resonancias fonónicas. El origen de dichas bandas es pues menos obvio. En la figura 4.2(f) se observa que cuando detectamos en el máximo de la banda (justo donde el pico de más baja energía se resuelve ahora), la curva de PLE muestra un incremento importante en la región de energías donde los otros dos picos aparecen en RPL. La conexión entre ellos es por tanto indudable. La hipótesis más plausible es que nos hallamos ante estados excitados y fundamental de una familia de cajas cuánticas especialmente eficiente en la captura de excitones. Como veremos a lo largo de esta tesis, una aproximación parabólica para el confinamiento lateral explica a la perfección la equiseparación entre los estados excitados y el fundamental en una caja cuyo diámetro es mucho mayor que su altura. Hemos de asumir por tanto que en esta muestra y debido al

intercambio In/Ga durante el crecimiento, un buen número de las nanoestructuras formadas difieren de los típicos puntos cuánticos de InAs formados en las muestras de mayor espaciamento [60, 74]. Esto queda corroborado observando la banda que domina la señal de RPL en la muestra con $d = 2$ nm. Dicha banda corresponde exactamente a la energía fundamental de anillos cuánticos de InAs que serán estudiados más adelante [fig. 4.3(d)]. Es chocante sin embargo, que en esta muestra no encontramos signos de acoplamiento entre el estado fundamental y los excitados en este experimento. Una descripción definitiva de las razones que producen uno y otro resultado esperamos que esté disponible próximamente, analizando la fotoluminiscencia en el dominio temporal de estas muestras, completando así la investigación abierta.

En definitiva, hemos comprobado que tan sólo variando un parámetro en el crecimiento de una serie de muestras que contienen cajas cuánticas autoensambladas InAs/GaAs podemos estudiar una amplia variedad de fenómenos nuevos y exclusivos. La mayoría de ellos son consecuencia directa de la estructura discreta de niveles producida por el elevado confinamiento cuántico de estas nanoestructuras. Desgraciadamente, el ensanchamiento inhomogéneo impide apreciar su naturaleza discreta y a tal fin se dedicará el esfuerzo de la investigación descrita en los capítulos siguientes.

4.2. Efecto de un campo eléctrico en cajas cuánticas InAs/GaAs.

En esta sección introduciremos los conceptos más importantes a tener en cuenta en el estudio de las propiedades ópticas y electrónicas de cajas cuánticas autoensambladas InAs/GaAs sometidas a un campo eléctrico externo. Pero antes de ello, examinemos brevemente la situación en un semiconductor convencional⁷. La dependencia con el campo eléctrico de la absorción óptica a energías cercanas a la banda de energía prohibida de un semiconductor es conocida como *electro-absorción* y ha

⁷Por convencional nos referimos a muestras semiconductoras en volumen.

sido estudiada prácticamente desde que éstos se conocen. La violación de la invariancia traslacional introducida en el Hamiltoniano por el potencial electrostático, $H_{EF} = -eFz$, da lugar a un ensanchamiento y corrimiento hacia bajas energías del frente de absorción del semiconductor conocido como *efecto Franz-Keldysh* [5]. Cuando el semiconductor está libre de impurezas, o a baja temperatura, la absorción en torno al gap está dominada por las resonancias excitónicas y el efecto se traduce igualmente en un desplazamiento y ensanchamiento de las mismas [75]. La analogía entre el excitón y el átomo de hidrógeno permite hablar, en tal caso, de *efecto Stark* tomando el nombre de la Física Atómica. Sin embargo, cuando aplicamos un campo eléctrico y pretendemos medir el desplazamiento del estado $1S$ excitónico, ΔE_{1S} , se observa que conforme aumenta el campo, la anchura de línea aumenta rápidamente y para valores de $\Delta E_{1S}^{max} \sim 0.1 \times R_y$ ⁸, ya no es posible resolver el máximo de la resonancia excitónica.

El desplazamiento máximo observable es un límite natural impuesto por la ionización del excitón a campos relativamente moderados en un semiconductor convencional. Al aumentar el campo eléctrico, el electrón y el hueco están separados cada vez más, de manera que a partir de un determinado valor del campo, conocido como *campo de ionización*, la interacción coulombiana se halla completamente apantallada, diluyéndose cualquier rasgo excitónico en las propiedades ópticas⁹. Por ejemplo, en el caso del GaAs, donde tenemos $R_y = 4.58$ meV y un radio excitónico de 122 Å[5]. Según lo que hemos dicho, esto implica $\Delta E_{1S}^{max} \sim 0.44$ meV y un campo de ionización relativamente bajo de $F_{ion}^{GaAs} \sim 0.44$ meV/122 Å $\sim 4 \times 10^2$ V/cm.

Con la aparición de los primeros pozos cuánticos GaAs/AlGaAs, no es de extrañar pues, la sorpresa que suscitó el comprobar que en dicho sistema el campo eléctrico aplicado podía tomar valores hasta 50 veces superiores a F_{ion}^{GaAs} siendo al mismo tiempo perfectamente visibles las resonancias excitónicas en diferentes experimentos y constatando corrimientos del máximo de éstas de varias veces la energía de

⁸ $R_y = \frac{\mu e^4}{\hbar^2 \epsilon^2}$ es la energía de enlace del excitón en el estado 1S.

⁹La situación resultante puede describirse también en una imagen excitónica en la cual el excitón confinado en el estado 1S de un potencial coulombiano $\sim 1/r$, se ioniza por efecto tunel del electrón y el hueco hacia lados opuestos del pozo de potencial.

enlace del excitón. Además, se comprobó que esto sólo ocurría para campos eléctricos perpendiculares a la dirección de crecimiento, mientras que en configuraciones paralelas el resultado era equivalente al del material en volumen, es decir, se hizo patente la importancia del confinamiento cuántico en el fenómeno observado. Esta prominencia del efecto Stark en pozos cuánticos se bautizó como *Efecto Stark de Confinamiento Cuántico* o QCSE¹⁰ [76], siendo su importancia determinante para el estudio que vamos a realizar en cajas cuánticas aisladas de InAs.

El excitón, que ahora se halla sometido al campo eléctrico, pero también al confinamiento cuántico lateral y/o vertical, responde a dicho campo aumentando la separación electrón-hueco, pero dado que ambos se encuentran fuertemente confinados, la ionización no ocurre a los valores predichos anteriormente y el tiempo de vida no se reduce drásticamente (*i.e.* la anchura no aumenta), permitiendo observar claramente el corrimiento Stark.

Si H_0 y $\psi_{e(h)}^0$ son el Hamiltoniano y la función de onda del electrón (hueco) en el estado fundamental cercano al borde de la banda de conducción (valencia) de una nanoestructura semiconductor dada, el Hamiltoniano perturbado puede escribirse:

$$H = H_0 + H' \quad (4.1)$$

con $H' = eFz$ el potencial electrostático para el electrón ($e > 0$) producido por el campo uniforme F aplicado, que por ahora consideraremos pequeño. La función de onda en presencia del campo puede escribirse en primer orden de aproximación:

$$\Psi_{e(h)} = \psi_{e(h)}^0 + F\psi'_{e(h)} \quad (4.2)$$

donde el segundo término se ha reescrito para enfatizar el carácter lineal con el campo. Utilizando teoría de perturbaciones de segundo orden la energía del electrón resulta:

$$E_e(F) = E_e(0) + eF\langle z_e \rangle + eF^2\langle \psi_e^0 | z | \psi'_e \rangle \quad (4.3)$$

donde $\langle z_e \rangle = \langle \psi_e^0 | z | \psi_e^0 \rangle$ es el valor promedio de la posición del electrón a lo largo de z para campo nulo. Si hacemos lo mismo para el hueco tenemos que:

$$E_h(F) = E_h(0) - eF\langle z_h \rangle - eF^2\langle \psi_h^0 | z | \psi'_h \rangle \quad (4.4)$$

¹⁰De las siglas en inglés de *Quantum Confined Stark Effect*.

dato que el potencial electrostático para el hueco disminuye para $z > 0$ si F es positivo [fig. 4.4(a)]. Y, finalmente, la energía de la transición inter-banda se puede calcular como:

$$E_{TR}(F) = E_{TR}(0) - eF (\langle z_h \rangle - \langle z_e \rangle) - eF^2 (\langle \psi_h^0 | z | \psi_h' \rangle - \langle \psi_e^0 | z | \psi_e' \rangle) \quad (4.5)$$

Por tanto, en esta aproximación, llegamos a que el corrimiento Stark varía cuadráticamente con el campo aplicado:

$$E_{TR}(F) = E_{TR}(0) - \alpha F - \beta F^2 \quad (4.6)$$

donde el coeficiente $\alpha = e (\langle z_h \rangle - \langle z_e \rangle)$ es idénticamente igual al momento dipolar eléctrico permanente en la nanoestructura, $p = er$; y el coeficiente $\beta = (\beta_h + \beta_e)$ depende de las polarizabilidades del electrón y hueco, $\beta_e = -e \langle \psi_e^0 | z | \psi_e' \rangle$ y $\beta_h = e \langle \psi_h^0 | z | \psi_h' \rangle$, respectivamente [77].

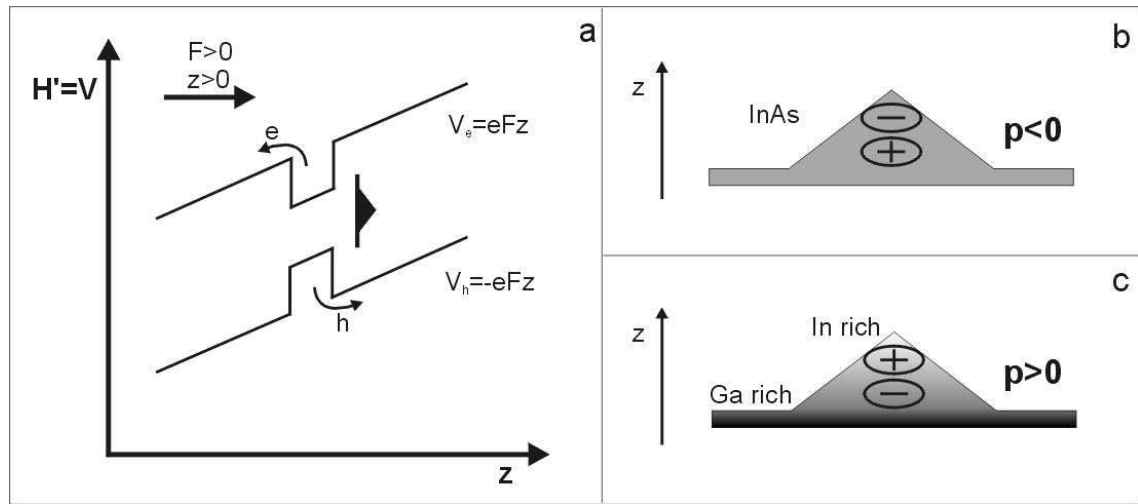


Figura 4.4: a) Convenio de signos y geometría utilizada en la derivación de la ec. (4.5) tomado de Barker y O'Reilly [77]. Las diferentes configuraciones del momento dipolar permanente posibles en una caja cuántica autoensamblada se representan en b) y c).

De manera general, el momento dipolar permanente en un pozo cuántico es nulo debido a la simetría del confinamiento para huecos y electrones. En ese caso, el corrimiento Stark está determinado únicamente por la polarizabilidad del electrón

y el hueco y el corrimiento es simétrico respecto al eje $F = 0$. Para un pozo de paredes infinitas y anchura L tenemos que $\beta \propto (m^*L^4)$, lo cual demuestra que dicha magnitud depende fuertemente de la extensión de las funciones de onda y, en menor grado, de la masa efectiva del portador en cuestión. Si el potencial cambia (pozo finito, potencial armónico, . . .), la constante de proporcionalidad también lo hace, pero la dependencia general se mantiene, sin más que sustituir la anchura del pozo infinito por la extensión lateral de la función de onda en cada caso [78, 79].

En cajas cuánticas autoensambladas InAs/GaAs, la asimetría del confinamiento para electrón y hueco introduce un momento dipolar permanente distinto de cero, al tiempo que modifica la polarizabilidad de ambos. Un cálculo teórico realista de dichas magnitudes debe incluir, al menos, el carácter triaxial de la deformación elástica presente en el interior de la caja. En presencia de una deformación biaxial compresiva que aumenta desde la base de la caja hasta su punto más alto, el hueco pesado experimentaría un gradiente de potencial negativo hacia la base que le empuja hacia la misma más rápido de lo que lo hace el electrón, menos sensible a las componentes de cizalladura de la deformación [77]. El resultado es que, para cualquier geometría realista¹¹, en ausencia de campo el electrón se halla sobre el hueco produciendo un momento dipolar permanente negativo según la ecuación (4.5) ($p = \alpha < 0$ si $z_h < z_e$) [fig. 4.4(b), (c)].

Descartada, pues, la morfología, se demuestra que para obtener el resultado inverso, y que el electrón se sitúe por debajo del hueco, es necesario que la composición de la caja cuántica no sea homogénea y se produzca un gradiente de concentración $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, con x aumentando desde la base hasta el ápice de la caja [77]. En la actualidad, se han obtenido ambos resultados investigando cajas cuánticas autoensambladas $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, encontrándose valores de $r = -1.2$ nm [79], $r = 0.4$ nm [80], $r = 0.62$ nm [81] y $r = 0.5$ nm [82]. Esta disparidad de valores demuestra hasta que punto es importante conocer la morfología y composición exacta en la modelización de estos sistemas, aunque como vamos a ver algunas precauciones han

¹¹Se puede demostrar que en esta aproximación es suficiente con que el área de la sección transversal disminuya desde la base hasta la parte superior de la caja.

de ser tomadas a la hora de determinar este valor experimentalmente.

Por último, como ocurre en pozos cuánticos, la polarizabilidad del electrón y del hueco dependen fuertemente de las dimensiones de la caja cuántica en cuestión. De manera general, la polarizabilidad del hueco es superior a la del electrón para las cajas de mayor tamaño en las que la diferencia de masas efectivas entre ambos da un balance positivo para el hueco. Cuando el tamaño disminuye, la penetración de las funciones de onda en la barrera cobra importancia y la situación se equilibra por la mayor extensión del electrón en este caso [77]. En el convenio de signos y geometría utilizado, $\beta > 0$ y del orden de unos pocos $\mu\text{eV}/(\text{kV}/\text{cm})^2$.

A fin de ejemplificar los conceptos introducidos, describiremos a continuación algunos de los estudios llevados a cabo en una muestra que contiene una capa de SAQDs depositada en la zona intrínseca de un diodo Schottky de canal n. Dicha investigación comprende el análisis de las propiedades ópticas y eléctricas mediante experimentos de fotoluminiscencia, fotocorriente, espectroscopía de capacitancia-voltaje e intensidad-voltaje, caracterización en el dominio temporal de algunas de éstas magnitudes y su correspondiente modelización [83, 84, 85, 86]. No obstante, para nuestros fines demostrativos será suficiente con limitarnos a los resultados de PL. En el panel de la izquierda de la figura 4.5 hemos representado los espectros de fotoluminiscencia en función del campo eléctrico obtenidos en la muestra a 77 K y bajo excitación resonante (810 nm). Podemos observar que la intensidad, anchura y posición de la banda de emisión se ven fuertemente afectadas por la aplicación de un voltaje tanto en polarización directa ($V > 0$), como inversa ($V < 0$). Si V_b es el *voltaje de unión*, y d es la separación entre el contacto metálico y la zona n, la relación entre el campo eléctrico y el voltaje aplicado es lineal en primera aproximación¹², cumpliéndose que $F = -(V - V_b)/d$ es uniforme en el interior de la zona intrínseca a voltaje fijo. En nuestro caso, $V_b \sim 0.7$ V y $d \sim 0.18$ μm , se obtienen de la caracterización eléctrica y de las condiciones de crecimiento, respectivamente.

¹²Básicamente, despreciando la propia variación del voltaje de unión con el voltaje aplicado, y considerando que en la zona de agotamiento no hay cargas libres (*depletion approximation*). Ambas son válidas en esta estructura en la zona de polarización inversa, y en la zona directa hasta $V \sim V_b$ [87, 88].

En el panel de la derecha de esta figura, se han representado los resultados del ajuste multigaussiano de los espectros experimentales. Del análisis se desprende que los efectos del campo son diferentes dependiendo de la región de voltaje en que nos encontremos.

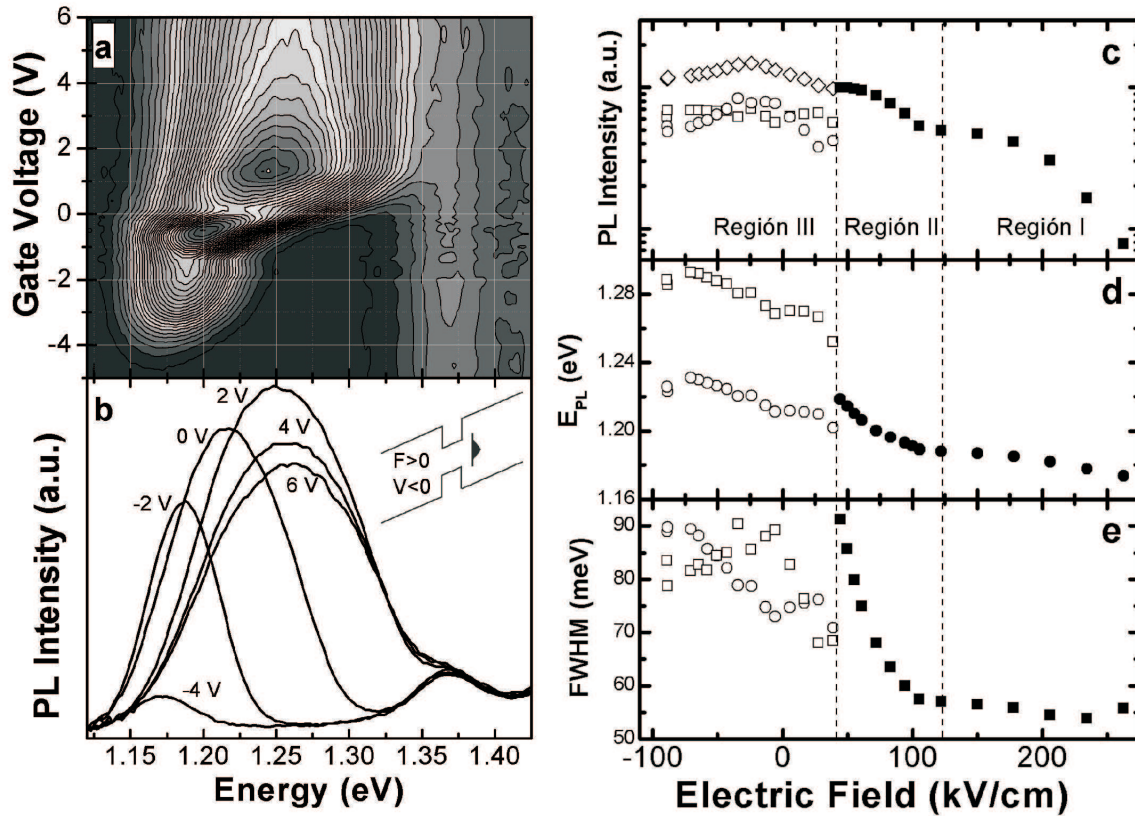


Figura 4.5: La evolución de la fotoluminiscencia a baja temperatura (77 K) en función del voltaje aplicado se representa en el panel izquierdo ($V < 0$ polariza inversamente el diodo Schottky). A la derecha la evolución de la PL se analiza estudiando la anchura, intensidad y posición del máximo experimentales. Hasta tres regiones pueden identificarse en función del régimen de transporte de carga en que se encuentra el dispositivo [83].

En la región III, el diodo Schottky se halla polarizado directamente y $V > V_b$. La inyección de portadores mayoritarios en la zona intrínseca da lugar a un ensanchamiento de la banda de emisión, por un lado debido a la población de cajas cuánticas más pequeñas de la cola de la distribución inhomógena, y por otro lado debido al aumento de temperatura asociado a la conducción eléctrica a través del

dispositivo. Dos familias de cajas cuánticas contribuyen a la banda de emisión en este caso, dando lugar a un ajuste bigaussiano de la PL (símbolos huecos en la figura). Las dos familias son consistentes con la distribución de tamaños derivada de las condiciones de crecimiento y analizada en muestras similares [fig. 4.2(e)].

Al disminuir el voltaje, los fenómenos de conducción pierden importancia y la anchura de la banda de emisión se reduce drásticamente ($V = 0$ V, en el panel de la izquierda). Nos encontramos en la región II, donde la banda de emisión resulta de la recombinación de portadores fotogenerados que recombinan radiativamente en las cajas cuánticas de mayor tamaño. En esta región, la recombinación radiativa compite con el efecto túnel de los electrones a través de la barrera triangular formada por el campo aplicado (ver más adelante). Esto provoca una disminución de la intensidad de la PL por ionización del par electrón-hueco, que afecta, en primer lugar, a los estados de más alta energía de la banda de PL. El desplazamiento del máximo en esta región es por tanto una convolución del efecto Stark de confinamiento cuántico y de la reducción de la anchura por la parte de alta energía debida al túnel [fig. 4.5(d), (e)].

Finalmente, para voltajes $V \lesssim -1.5V$, la anchura de la banda se mantiene prácticamente constante y la intensidad se reduce debido al agotamiento de portadores por efecto túnel directamente desde la WL. De ello se deduce que el desplazamiento de la banda de emisión es sólo debido al efecto Stark en la región I.

A fin de extraer información sobre las propiedades electrónicas de nuestras cajas cuánticas, los resultados experimentales pueden compararse con el modelo teórico descrito anteriormente. En primer lugar, en la figura 4.6(a) se ha representado la posición del máximo de la banda de emisión en la región I en función de F . El desplazamiento observado corresponde a la variación de la energía de la transición fundamental debida al efecto Stark de confinamiento cuántico y puede ajustarse, tal y como hemos visto, con la ecuación $E_{TR}(F) = E_{TR}(0) - \alpha F - \beta F^2$. El resultado del ajuste proporciona $r = p/e = (-3.6 \pm 0.7) \text{ \AA}$ y $\beta = (0.35 \pm 0.03) \mu\text{eV}/(\text{kV}/\text{cm})^2$, según las definiciones introducidas anteriormente.

El signo obtenido para el momento dipolar permanente indica que en nuestro

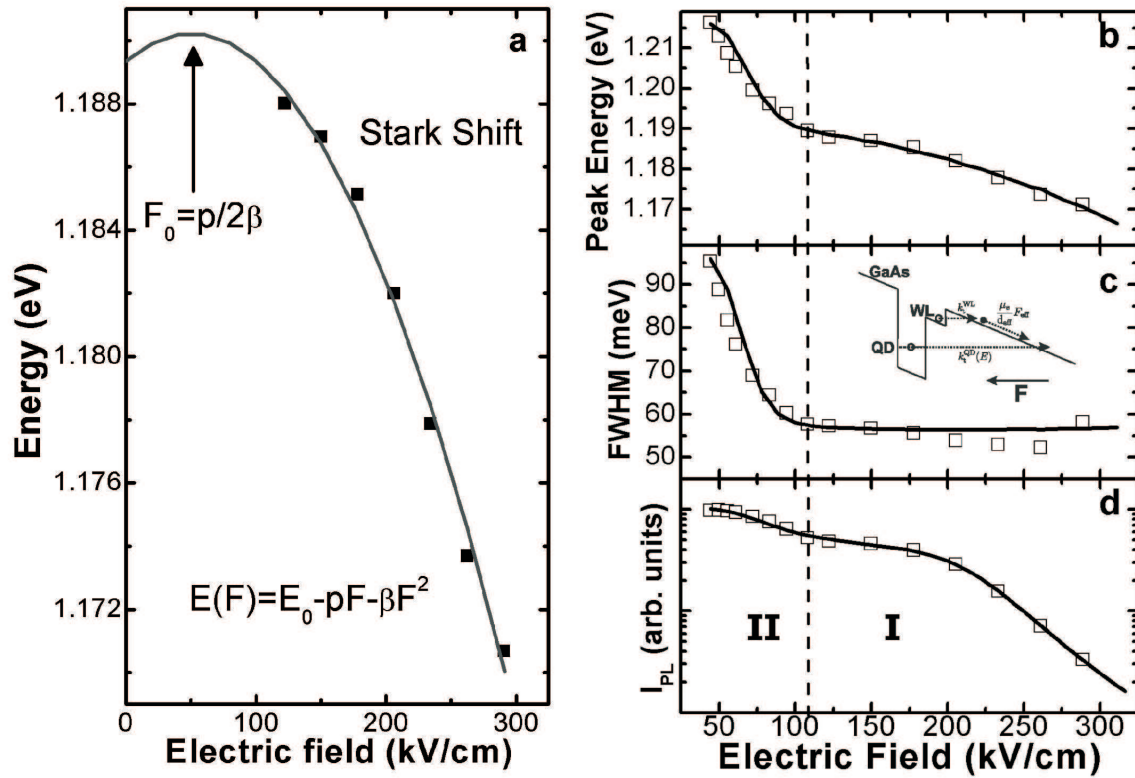


Figura 4.6: a) Ajuste de la posición del máximo de PL en la zona de dominio del efecto Stark cuántico. El momento dipolar y la polarizabilidad típica de estas cajas cuánticas puede extraerse de un ajuste parabólico. A la derecha, ajuste a un modelo de ecuaciones de balance estacionarias de las regiones donde el semiconductor se haya en equilibrio térmico (no conduce)[85, 86].

caso, hueco y electrón se disponen en el interior de las cajas cuánticas en la configuración de la figura 4.4(b) ($z_h < z_e$). Sin embargo, las máximas precauciones han de tomarse para extraer de ello conclusiones sobre la forma o composición de las cajas cuánticas. Atendiendo a los valores publicados y citados anteriormente, observamos que en experimentos de electroluminiscencia (EL) y fotocorriente (PC) llevados a cabo en cajas cuánticas cuya transición fundamental a 10 K se encuentra a 1.3 y 1.1 eV, respectivamente, el momento dipolar resulta positivo y $r \sim 4 \text{ \AA}$. Ello a pesar de que las condiciones de voltaje aplicado en ambos experimentos son muy diferentes ($V < 0$ en PC y $V > 0$ en EL) y que los tamaños asociados a ambas energías son también distintos ($h \sim 3 \text{ nm}$ y $h \sim 6 \text{ nm}$, respectivamente) [89, 80]. Lo mismo cabe decir de los experimentos de PL y PC llevados a cabo en cajas de InGaAs a 1.3 eV

por Findeis *et al* [82], que reportan $r \sim 5 \text{ \AA}$, o experimentos de electroreflectancia a 1.0 eV en cajas cuánticas InAs/InGaAs que resultan en $r \sim 6.2 \text{ \AA}$ [81]. Según la interpretación al uso, todos ellos habrían de ser explicados por el intercambio In/Ga durante el crecimiento que daría lugar al momento dipolar inverso observado. Sin embargo, el resultado de Warburton *et al* [79] es el único que reporta un momento dipolar negativo, y además elevado, en PL a 1.3 eV, $r \sim -12 \text{ \AA}$, para cajas cuánticas que se sabe con certeza que antes de ser recubiertas contienen un gradiente In/Ga como el de la figura 4.4(c).

Esta aparente contradicción tiene que ver con el hecho de que la derivación de la ecuación (4.5) se basa en un tratamiento perturbativo del campo y no considera la contribución al corrimiento Stark de estados alejados del borde de las bandas. Recientemente, Sheng y Leburton [90] han propuesto que dependiendo de la forma de la caja cuántica, el tratamiento perturbativo para los huecos no resulta válido, y puede llevar a resultados erróneos si la aproximación parabólica se extiende a regiones $F < F_0$, donde F_0 es el máximo de la parábola tal y como se señala en la figura 4.6(a). La extrapolación de los datos experimentales a dicha zona en dispositivos de canal n (Schottky-i-n ó p-i-n) no es fiable cuando la forma de las cajas cuánticas se aleja de una pirámide truncada y falla en la predicción del alineamiento electrón-hueco a partir de dicho ajuste. En el caso que nos ocupa, sabemos que nuestras cajas cuánticas se hallan truncadas con una relación de aspecto $\sim 1:3$ y una altura promedio de 6-7 nm (pág. 60). Tomando los resultados de Sheng y Leburton [90] para cajas cuánticas de InAs truncadas de $6.6 \times 18 \text{ nm}$, el cálculo exacto arrojaría $r \sim -5.4 \text{ \AA}$ y el correspondiente ajuste parabólico $r \sim -3.9 \text{ \AA}$ que, como vemos, se ajusta perfectamente al valor hallado en la figura 4.6(a) de $r \sim -3.6 \text{ \AA}$ y valida el alineamiento de electrón y hueco que hemos propuesto en este caso.

En la discusión anterior hemos introducido el concepto de ionización por efecto túnel. Podemos obtener más información si atendemos a la evolución de la intensidad de emisión a diferentes energías en función del campo eléctrico aplicado. La disminución de la intensidad de la PL a una energía dada siempre se halla asociada al balance entre los mecanismos no radiativos y radiativos presentes. Si $\tau_R(E, F)$ y

$\tau_{NR}(E, F)$ son respectivamente los tiempos radiativos y no radiativos a una energía y campo eléctrico fijos, y $G(E)$ es la tasa constante de generación de portadores a dicha energía, la evolución de la población instantánea en tal nivel, considerado aislado, puede escribirse como:

$$\frac{dn(E, F, t)}{dt} = G(E) - \frac{n(E, F, t)}{\tau_R(E, F)} - \frac{n(E, F, t)}{\tau_{NR}(E, F)} \quad (4.7)$$

En el caso estacionario podríamos obtener la intensidad de la PL a partir de:

$$I_{PL} \propto \frac{n(E, F)}{\tau_R(E, F)} = \frac{G(E)\tau_{NR}(E, F)}{\tau_R(E, F) + \tau_{NR}(E, F)} \quad (4.8)$$

donde vemos que tanto si aumenta el tiempo radiativo, como si disminuye el tiempo no radiativo, la intensidad de la PL va a disminuir.

En el caso que nos ocupa, a temperatura constante, el mecanismo no radiativo que debemos considerar es la ionización del excitón por efecto del campo eléctrico. Para un par electrón-hueco capturado en el interior de una caja cuántica, el campo eléctrico aleja uno del otro según la polarizabilidad, β , de la caja en cuestión provocando un efecto doble. Por un lado, la separación de las funciones de onda disminuye el solapamiento de ambas reduciendo la fuerza de oscilador (*i.e.* aumentando $\tau_R(E)$). Por otro lado, para un campo lo bastante elevado, el electrón o el hueco tendrán una probabilidad no nula de atravesar la barrera de potencial triangular, ionizándose el excitón y disminuyendo la intensidad de PL. La probabilidad de que un electrón atravesase dicha barrera de potencial por efecto túnel puede ser calculada por el método WBK y su dependencia con el campo es [91]:

$$\frac{1}{\tau_{NR}(E, F)} \propto e^{-\frac{4}{3e\hbar} \frac{\sqrt{2m^*}(\Delta E_c - E_e)^{3/2}}{F}} \quad (4.9)$$

donde ΔE_c es el valor de la barrera del pozo potencial para campo nulo y E_e es la energía de adición del nivel electrónico, correspondiente. De esta manera, $\Delta E_c - E_e$ es la energía de escape del electrón hasta el borde de la banda de conducción en la barrera de GaAs. La probabilidad aumenta cuanto menor es la energía de escape y cuanto más negativo es el campo aplicado F . En el sistema InAs/GaAs, la reducida masa efectiva de los electrones, permite una eficiente transferencia de carga entre

las cajas cuánticas y la zona dopada tipo n, con frecuencias de corte elevadas que dependen de la distancia d entre ambas determinada durante el crecimiento. En el panel de la derecha de la figura 4.6 se han representado en línea continua los resultados arrojados por un modelo de ecuaciones de balance que tiene en cuenta los diferentes mecanismos que intervienen en la dinámica de relajación y efecto túnel en las regiones I y II mencionadas (es decir, cuando el dispositivo no conduce). El modelo reproduce adecuadamente los resultados experimentales, si bien se han tenido en cuenta ciertas aproximaciones que limitan en cierta medida la interpretación del resultado [86]. En particular, el modelo de ecuaciones de balance considera un tiempo de vida radiativo del estado fundamental constante e independiente de la energía y el campo aplicado (~ 1 ns). Recientemente, se han llevado a cabo medidas de fotoluminiscencia resuelta en tiempo en el mismo rango de voltajes y temperatura en que se obtuvieron los resultados anteriores. La figura 4.7(a) recoge los transitorios obtenidos en el máximo de la banda de emisión para diferentes valores del voltaje externo aplicado.

A la derecha se recogen los correspondientes valores para el tiempo de vida obtenidos ajustando cada transitorio a un decaimiento monoexponencial y para diferentes energías de recombinación dentro de la banda. A la vista de estos resultados se deriva que el tiempo de vida radiativo no puede ser constante como se ha supuesto anteriormente. Ello se deduce notando que el tiempo de vida no radiativo, es decir, el de ionización por efecto túnel, ha de disminuir necesariamente al aumentar el voltaje inverso aplicado a la muestra [eq. 4.9]. Esto provocaría una disminución del tiempo de vida efectivo que no se observa experimentalmente. En lugar de ello, en el rango de energías y voltajes investigado, el tiempo de vida aumenta al aumentar el campo de ionización hasta alcanzar un valor de saturación que depende de la energía de recombinación considerada. Se concluye pues, que el tiempo de vida radiativo aumenta significativamente en ese rango debido a la progresiva separación de electrón y hueco dada por la polarizabilidad, β , de las cajas cuánticas. En la actualidad, se está desarrollando un modelo variacional excitónico para dar cuenta de este fenómeno, en combinación con el modelo de ecuaciones de balance considerado

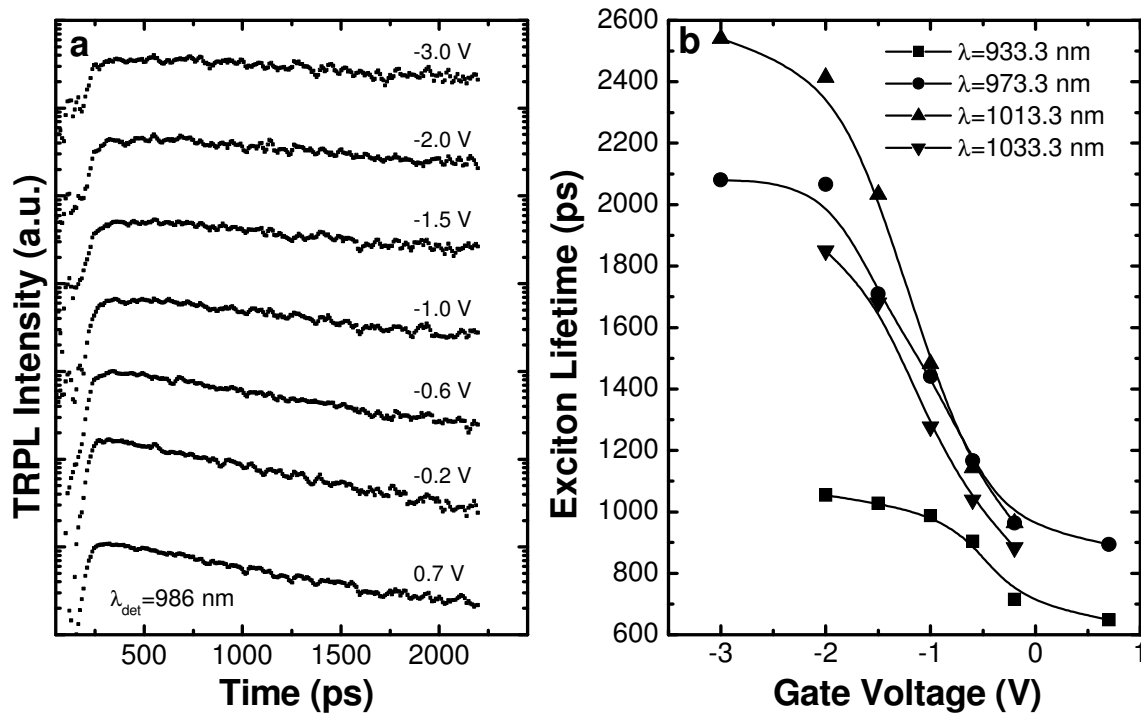


Figura 4.7: a) Espectros de PL resuelta en tiempo en el máximo de emisión y para diferentes voltajes aplicados. El aumento del tiempo de vida efectivo con la polarización inversa se recoge en b). Las líneas continuas son una guía visual en este caso.

previamente.

Capítulo 5

Interacción de Coulomb intra-banda en un semiconductor

Para finalizar los capítulos dedicados a la introducción de los principales conceptos y herramientas que nos han permitido llevar a cabo la interpretación de nuestros resultados, en este capítulo vamos a describir el formalismo teórico que permite tratar las interacciones coulombianas en un semiconductor. La descripción se centrará en las interacciones intra-banda pues éstas son las más importantes en el análisis de nuestros resultados, además de, por lo general, menos conocidas en la espectroscopía óptica de semiconductores. Partiendo de resultados generales, el formalismo se simplificará introduciendo ciertas aproximaciones que nos permitan abordar cuantitativamente algunos de los resultados correspondientes a cajas cuánticas autoensambladas de InAs. Al final del capítulo se discutirá asimismo el rango de validez de los modelos que van a ser empleados.

5.1. La ecuación de Hartree

Si consideramos un gas de electrones en un semiconductor sometido al potencial periódico producido por los iones positivos fijos en sus posiciones de red, podemos escribir para cada electrón [68]:

$$H = - \sum_k \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_k^2 + \sum_k V(r_k) + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_{kk'}' \frac{e^2}{|r_k - r_{k'}|} \quad (5.1)$$

donde la interacción electrón-ión está tenida en cuenta con el término $\sum_k V(r_k)$ con $V(r_k) = \sum_i V(r_k - R_i^0)$. Los dos primeros términos de dicho Hamiltoniano sólo dependen de cada electrón individual en la posición r_k , mientras que el último término introduce la interacción coulombiana presente entre dos electrones del gas en sus posiciones $r_k, r_{k'}$. Si este término no estuviera presente, el Hamiltoniano total, $\sum_k H_k \phi = E \phi$, se podría resolver separadamente, escribiendo:

$$\Phi(r_1 \dots r_N) = \varphi(r_1) \varphi(r_2) \dots \varphi(r_n) \quad (5.2)$$

y $E = \sum_k E_k$. Resolver el Hamiltoniano completo dado en (5.1) para un número incluso reducido de electrones es altamente costoso en términos de tiempo de computación. Por ello diversas aproximaciones se pueden realizar a fin de que el problema sea abordable. En primera aproximación, es posible considerar que cada electrón no interactúa directamente con sus vecinos, sino que lo hace a través de un potencial promedio que da cuenta de las fuerzas de Coulomb entre el electrón particular que consideramos y el resto. Minimizando la energía por un método variacional, podemos escribir la ecuación de Schrödinger para el electron j con función de onda φ_j como:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(r) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{k \neq j} \int \frac{|\varphi_k(r')|^2}{|r - r'|} d\tau' \right] \varphi_j(r) = E_j \varphi_j(r) \quad (5.3)$$

conocida como *ecuación de Hartree* y que, como vemos, supone que cada electrón sufre el mismo potencial promedio $V'(r) = V(r) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{k \neq j} \int \frac{|\varphi_k(r')|^2}{|r - r'|} d\tau'$ (supuesto que despreciamos la restricción en el sumatorio). No obstante, resolver la ecuación (5.3) no es tarea fácil, pues supone hallar unas funciones de onda a partir de un potencial que las incluye a ellas mismas. Esto significa que la solución ha de buscarse de manera autoconsistente.

5.2. El método $k \cdot p$ y la aproximación de la masa efectiva

Afortunadamente, existen métodos para simplificar el cálculo. Según el *Teorema de Bloch*, la solución de (5.3) debe ser una función de onda con la periodicidad de la red $\varphi_j(n, k; r) = \exp(ikr)u_{nk}^j(r)$. Aquí k es el momento del electrón j en la banda de energía n de la primera zona de Brillouin. Introduciendo $p = -i\nabla$ y aplicando el teorema de Bloch, llegamos a la siguiente ecuación [5]:

$$\left[\frac{p^2}{2m} + \frac{\hbar k \cdot p}{m} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + V' \right] u_{nk} = E_{nk} u_{nk} \quad (5.4)$$

donde se han omitido subíndices para mayor claridad, y cuya solución es más accesible dado que las funciones de Bloch son periódicas. La mayoría de las propiedades electrónicas de los semiconductores pueden ser estudiadas adecuadamente aplicando teoría de perturbaciones para el término en $k \cdot p$. Así, si sólo estamos interesados en lo que ocurre en las cercanías de un punto k_0 de la primera zona de Brillouin, podemos resolver primero la ecuación (5.4) en dicho punto. Esto es especialmente útil, por ejemplo, para estudiar los procesos que ocurren en el borde de las bandas de conducción y de valencia de un semiconductor directo ($k = 0$). En este caso, la simetría de las bandas en dicho punto simplifica sustancialmente el problema. Conocidos E_{n0} y u_{n0} , los términos restantes dependientes de k pueden tratarse perturbativamente para hallar las funciones u_{nk} . Si la banda n es no degenerada la aproximación de segundo orden es:

$$u_{nk} = u_{n0} + \frac{\hbar}{m} \sum_{n' \neq n} \frac{\langle u_{n0} | k \cdot p | u_{n'0} \rangle}{E_{n0} - E_{n'0}} u_{n'0} \quad (5.5)$$

y las energías E_{nk} :

$$E_{nk} = E_{n0} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \frac{\hbar^2}{2m} \sum_{n' \neq n} \frac{|\langle u_{n0} | k \cdot p | u_{n'0} \rangle|^2}{E_{n0} - E_{n'0}} \quad (5.6)$$

Aunque no es posible extender la suma a un número infinito de funciones base, u_{nk_0} , con $n=1,2,\dots$, si que es necesario un número mínimo para que el método per-

turbativo de resultados satisfactorios. Así, es habitual utilizar las cuatro primeras bandas del borde de la banda de conducción y de valencia para describir las propiedades de un semiconductor III-V. Dichos estados son: $|\Gamma_1\rangle$ de la banda de conducción y que tiene simetría s, y los tres estados tipo p de la banda de valencia Γ_4 : $|X\rangle$, $|Y\rangle$, $|Z\rangle$. Si la polarización es transversal, los elementos de matriz $k \cdot p$ inter-banda son sólo distintos de cero para los siguientes casos:

$$\langle X|p_x|\Gamma_1\rangle = \langle Y|p_y|\Gamma_1\rangle = \langle Z|p_z|\Gamma_1\rangle = i\frac{m_0P}{\hbar} \quad (5.7)$$

y son responsables de las reglas de selección en las transiciones dipolares inter-banda en estos materiales. Dado que la banda de conducción es no degenerada podemos utilizar las ecuaciones (5.5) y(5.6) y escribir:

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m} + \frac{2}{m^2k^2} \sum_{n' \neq n} \frac{|\langle u_{n0}|k \cdot p|u_{n'0}\rangle|^2}{E_{n0} - E_{n'0}} = \frac{1}{m} + \frac{2P^2}{\hbar^2 E_g} \quad (5.8)$$

donde hemos introducido las definiciones de los elementos de matriz, y particularizado $E_{n0} - E_{n'0} = E_g$. De esta manera, la energía en un entorno del punto Γ tiene una dispersión parabólica dada por:

$$E_c(k) = E_c(0) + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (5.9)$$

y se conoce como aproximación de la masa efectiva, m^* .

Los primeros estados de la banda de valencia son degenerados, y para calcular su relación de dispersión, $E(k)$, la aproximación perturbativa anterior no es válida. Además, en un material formado por elementos de número atómico elevado, el acoplamiento spin-órbita no puede ser despreciado. Teniendo esto en cuenta, calcular la estructura de bandas a partir de las ocho funciones base en el punto Γ , requiere elegir una base más adecuada que la elegida arriba. Los nuevos estados de la base, combinación lineal de los $|\Gamma_1\rangle$, $|X\rangle$, $|Y\rangle$, $|Z\rangle$, se construyen a partir del momento total $J = L + S$ y su tercera componente, $|J, J_z\rangle: |\frac{1}{2}, \pm\frac{1}{2}\rangle$ para BC, y $|\frac{3}{2}, \pm\frac{3}{2}\rangle$, $|\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}\rangle$, $|\frac{1}{2}, \pm\frac{1}{2}\rangle$ para BV. Estos ocho estados forman la columna vertebral de las propiedades ópticas y electrónicas alrededor del punto Γ , y por tanto tienen su propio nombre y apellido: electrón, hueco pesado, hueco ligero y *split-off*, respectivamente. Elegida la

base, calcular la estructura de bandas a partir de estos ocho estados supone diagonalizar el llamado *Hamiltoniano de Kane*, y virtualmente la estructura electrónica completa del semiconductor puede ser calculada de manera alternativa a métodos basados en pseudo-potenciales, o autoconsistentes. Dicha solución, sin embargo, sólo será exacta si el número de funciones de onda de la base fuera infinito.

Hasta ahora, nos hemos preocupado de un semiconductor homogéneo e infinito y hemos derivado algunos resultados útiles para su estudio. Hoy en día, sin embargo, es posible obtener materiales cuyas propiedades distan de ser homogéneas y su extensión es mucho menos que infinita. Tal es el caso, de pozos cuánticos, hilos cuánticos y cajas cuánticas de todo tipo y composición, que forman parte de dispositivos ya cotidianos en nuestra vida diaria. Afortunadamente, para el estudio de los mismos, todo el trabajo realizado en la modelización de semiconductores convencionales se puede aprovechar. Esto es así, porque la modulación, o el cambio, de las propiedades del sólido que define el tamaño de estas nanoestructuras es de un período mucho mayor, aunque acercándose cada día más, que la constante de red atómica. Dicho de otra manera, las nanoestructuras contienen varios miles o cientos de miles de átomos o celdillas unidad del semiconductor que las aloja y por tanto, las propiedades asociadas a una y otra escala espacial no se entremezclan. Matemáticamente, esto significa que las funciones de onda que describen un electrón o hueco en una de estas nanoestructuras, pueden desarrollarse en serie de los estados propios del Hamiltoniano del cristal no perturbado. Dado que estos últimos son periódicos, son aplicables las ventajas ya descritas. En definitiva, si $m^*(r)$ es la masa efectiva y $V_{conf}(r)$ el potencial de confinamiento que define la nanoestructura¹, tenemos:

$$-\frac{\hbar^2}{2} \nabla \left[\frac{1}{m^*(r)} \nabla \chi(r) \right] + V_{conf}(r) \chi(r) = E \chi(r) \quad (5.10)$$

que se conoce como *Hamiltoniano efectivo*. La sofisticada expresión del término cinético permite que el Hamiltoniano correspondiente sea hermítico y evita problemas a la hora de aplicar condiciones de contorno complicadas en los límites del

¹Entendido de una manera más general, el método es válido para describir mediante tal potencial, impurezas, defectos, campos externos, o incluso las interacciones coulombianas.

potencial [92]. $\chi(r)$ es conocida como la *función de onda envolvente* y describe un nivel electrónico propio del hamiltoniano efectivo que describe la modulación. Como vemos, el potencial periódico de la red, así como toda alusión a las funciones de onda del cristal, ya no aparecen explícitamente en la ecuación de Schödinger. Sin embargo, dicha dependencia está incluida implícitamente en la masa efectiva que sustituye a la masa del portador. Los problemas más comunes de la física de las nanoestructuras semiconductoras se pueden estudiar mediante este método utilizando una o varias funciones base para construir la función de onda envolvente [93].

5.3. La ecuación de Hartree-Fock: partículas indistinguibles

La ecuación de Hartree tal y como se ha introducido en (5.3), considera los electrones como partículas clásicas distinguibles entre sí. Esto ignora uno de los principales principios de la mecánica cuántica, y, por tanto, falla en describir al menos una de las interacciones fundamentales. Para introducir el carácter indistinguible de los electrones, la aproximación de Hartree se puede mejorar si sustituimos la función de onda totalmente factorizada (5.2), por una que tenga en cuenta el carácter fermiónico de los electrones o huecos. Tal función de onda es conocida como *determinante de Slater* y constituye el estado fundamental de un sistema de N fermiones. De esta manera, si $\phi_j(q_k)$ es la función de onda del electrón j con coordenadas q_k (que ahora son r_k coordenadas espaciales más el spin), entonces N de estos electrones interaccionando entre si, vendrán descritos por:

$$\Phi = \sqrt{N!} \begin{vmatrix} \varphi_1(q_1) & \dots & \varphi_N(q_1) \\ \cdot & & \cdot \\ \cdot & & \cdot \\ \varphi_1(q_N) & \dots & \varphi_N(q_N) \end{vmatrix} \quad (5.11)$$

Escrita así, la función de onda está normalizada y cumple el *principio de exclusión de Pauli* [91]. Si se intercambian dos electrones, dos columnas del determinante

son permutadas entre si y Φ cambia de signo. Además, si dos electrones tienen las mismas coordenadas (espaciales+spin), dos columnas son idénticas y $\Phi = 0$. Con esta función de onda, y por un método similar al que lleva a (5.3), la ecuación de Schrödinger que nos permite calcular las funciones de onda, φ_j , y sus energías, E_j , resulta [68]:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(r) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{k \neq j} \int \frac{|\varphi_k(r')|^2}{|r - r'|} d\tau' - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{k \neq j, \text{spin}} \int \frac{\varphi_k^*(r') \varphi_j(r')}{|r - r'|} d\tau' \right] \varphi_j(r) = E_j \varphi_j(r) \quad (5.12)$$

y se conoce como *ecuación de Hartree-Fock*. Lo primero que cabe notar es la aparición de un tercer término no presente en la ecuación (5.3). Este término no tiene análogo clásico y su aparición se debe al carácter fermiónico de los portadores. Dada la interdependencia con el *principio de simetrización*², éste recibe el nombre de término de *interacción de Coulomb de intercambio*, en contraposición con el segundo término que se conoce como *interacción de Coulomb directa*. En ausencia de acoplamiento spin-órbita, la función de onda es separable en parte espacial y de spin y por tanto, el término de intercambio solo se extiende a los términos que tengan igual coordenada de spin. Ello permite escribir la ecuación de Hartree-Fock utilizando r en lugar de q .

Como es de esperar, resolver la ecuación de Hartree-Fock de manera autoconsistente es una tarea, por lo general, complicada. Y aún así, esta aproximación no describe completamente todas las interacciones presentes. Al basarse en la existencia de un campo medio, no puede tener en cuenta correlaciones coulombianas en sentido estricto, entendidas como la respuesta espacial y temporal coherente de un electrón al movimiento de otros. Una descripción completa exige incluir las interacciones entre más de dos electrones o, en general, portadores, si los huecos se incluyen en el tratamiento. La carga numérica de estos métodos aumenta rápidamente con el número de portadores presentes en el sistema, aunque pueden adaptarse al estudio

²Que establece que los estados puros de un sistema de partículas idénticas deben ser totalmente simétricos o antisimétricos bajo el intercambio de dos cualesquiera de ellas [91].

de cajas cuánticas, donde dicho número es limitado [94]. La cuantización del campo electromagnético en estos casos es la manera natural de estudiar las propiedades ópticas y electrónicas de dicho sistema [95, 96].

Por último, el grado de aproximación más sencillo de resolver consiste en considerar la contribución de las interacciones coulombianas como perturbaciones del Hamiltoniano H_0 que proporciona los estados y energías de la estructura electrónica en ausencia de portadores [fig. 5.1]. En estas condiciones, el cálculo se reduce a evaluar un elemento de matriz, o una suma de elementos de matriz, entre los estados no perturbados que actúan como base [97]. De ahí, las energías coulombianas directas, E_{ij}^C , y de intercambio, E_{ij}^X , entre pares de portadores en sus respectivos niveles electrónicos pueden ser calculadas como:

$$E_{ij}^C = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \int \frac{|\varphi_i(r)|^2 |\varphi_j(r')|^2}{|r - r'|} d\tau' d\tau \quad (5.13)$$

$$E_{ij}^X = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \int \frac{\varphi_i^*(r) \varphi_j^*(r') \varphi_i(r') \varphi_j(r)}{|r - r'|} d\tau' d\tau \quad (5.14)$$

A modo de ejemplo, consideremos un sistema de dos electrones idénticos que pueden ocupar cualesquiera de los cuatro posibles estados definidos por la componente vertical del spin $s = \frac{1}{2}$: $|\uparrow, \uparrow\rangle$, $|\downarrow, \uparrow\rangle$, $|\downarrow, \downarrow\rangle$, $|\uparrow, \downarrow\rangle$. La paridad de dichos estados no está bien definida y es necesario reescribirlos a fin de que cumplan el principio de simetrización. Una vez simetrizados, los posibles estados del sistema de dos electrones vienen descritos por el spin total y su tercera componente:

$$|s, s_z\rangle = \begin{cases} \text{Triplete} \rightarrow \begin{cases} |\uparrow, \uparrow\rangle = |1, 1\rangle \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow, \downarrow\rangle + |\downarrow, \uparrow\rangle) = |1, 0\rangle \\ |\downarrow, \downarrow\rangle = |1, -1\rangle \end{cases} \\ \text{Singlete} \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow, \downarrow\rangle - |\downarrow, \uparrow\rangle) = |0, 0\rangle \end{cases} \quad (5.15)$$

Con esta elección, es claro que los estados del triplete son simétricos, mientras que el estado singlete es antisimétrico. Puede parecer extraño que un sistema de fermiones tenga una función de onda simétrica pero obviamente nos hemos olvidado

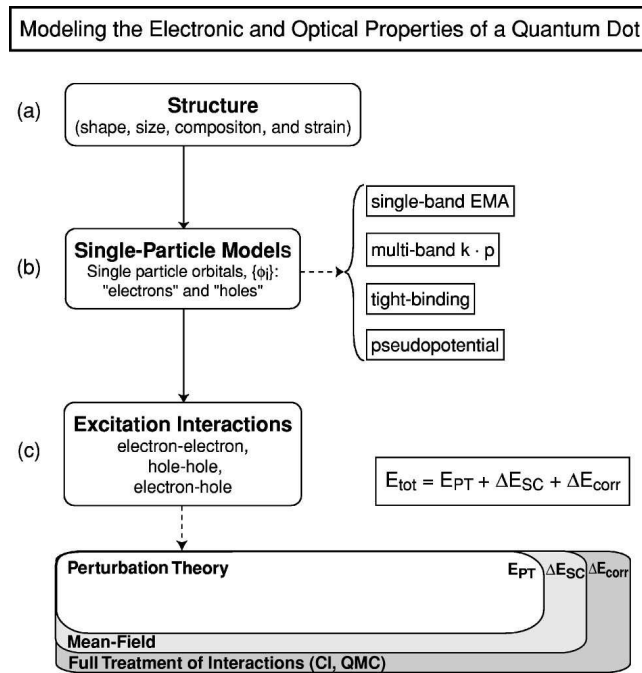


Figura 5.1: Los tres pasos necesarios para modelizar las propiedades electrónicas de una caja cuántica. a) Primero la estructura es parametrizada por un tamaño, forma y composición. La deformación elástica se calcula en este punto. b) A continuación, los estados electrónicos individuales de huecos y electrones se encuentran resolviendo la ecuación de Schrödinger por alguno de los métodos posibles. c) Estos estados individuales son la base para calcular las interacciones entre partículas con diferente grado de aproximación. Reproducida de Shumway *et al* [98].

de la parte espacial de la función de onda. Si la función de onda de spin es simétrica, entonces la correspondiente parte espacial para dicho estado será antisimétrica, y por tanto, el carácter fermiónico de la función de onda total se conservará. Esto tiene importantes consecuencias desde el punto de vista de la interacción coulombiana. En la integral de intercambio, tal y como ha sido introducida en la ecuación (5.14), solamente interviene la parte espacial de la función de onda. De ello se deduce que para el estado triplete (simétrico), la función de onda espacial es antisimétrica y, por tanto, $E_{ij}^X = -I/2$, con I positivo y dado por el módulo de la integral, es la energía de intercambio en este estado. Lo contrario ocurre para el estado singlete, que es antisimétrico en la parte de spin, en dicho caso, la integral de intercambio

resulta $+I/2$. El resultado es que la energía total del estado singlete es mayor que la del estado triplete y que éstos se hayan separados una energía E_{ij}^X . Es decir, hemos llegado a la *regla de Hund* de la Física Atómica, que establece que los estados con función de onda de spin simétrica son ocupados antes que los de función de onda de spin antisimétrica [91]. Para un sistema de N fermiones más general, las interacciones coulombianas pueden calcularse evaluando analíticamente o numéricamente las integrales (5.13) y (5.14), siempre teniendo en cuenta que su contribución a la energía total del sistema ha de ser menor que la del Hamiltoniano no perturbado a fin de que el método sea válido.

5.4. Interacción coulombiana en cajas cuánticas de InAs

Todo lo dicho hasta ahora habría sido ilustrativo, pero de relativa utilidad en esta tesis si no tuviera aplicación directa al estudio de cajas cuánticas de InAs. Las cajas estudiadas aquí, destacan por su pequeño tamaño y baja relación de aspecto altura/diámetro. En el caso de los puntos cuánticos autoensamblados, la forma de los mismos puede considerarse en buena aproximación como el de una lente o casquete esférico [fig. 5.2]. Para los anillos cuánticos la forma es más complicada y la relación de aspecto más pequeña.

En la aproximación del Hamiltoniano efectivo o de la función de onda envolvente, el potencial de confinamiento describe la forma particular de la nanoestructura además de incluir posibles modulaciones de composición, tensiones elásticas, etc. . . . En el caso de las cajas cuánticas de la figura 5.2, un potencial parabólico bidimensional describe adecuadamente el confinamiento lateral que sufren los portadores [99]. El confinamiento vertical, por el contrario, es mucho más intenso (recordemos que la energía de confinamiento en un pozo unidimensional de paredes infinitas es inversamente proporcional al cuadrado de la anchura de éste [92]), y, en primera aproximación, podemos suponer que no da a lugar a estados ligados más allá del estado fundamental de cada banda. Resolviendo el Hamiltoniano efectivo para el

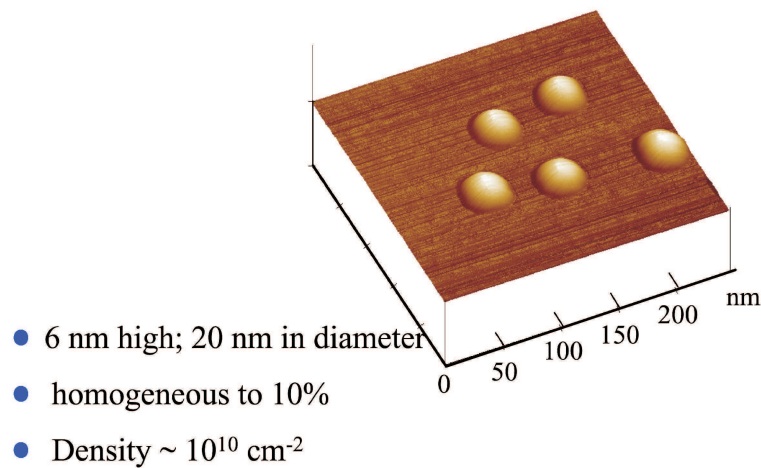


Figura 5.2: Imagen de microscopía de fuerzas atómicas y parámetros típicos de puntos cuánticos de InAs/GaAs. Imagen por cortesía del Dr. Khaled Karrai (LMU Universität, Munich).

potencial parabólico bidimensional, no encontraremos los estados propios del potencial total, sino tan sólo el grado de confinamiento lateral del estado fundamental y la subestructura atribuible a los estados excitados. Por ello, las conclusiones extraídas serán sólo válidas para analizar diferencias relativas en energía. Obviamente esta aproximación dejará de ser cierta cuando las condiciones asumidas respecto a la morfología y tamaño de las nanoestructuras dejen de serlo. También cabe esperar que el modelo parabólico sea más rudo en la descripción de los estados de la banda de valencia, donde sabemos que los efectos de mezcla hueco pesado-hueco ligero pueden ser más importantes. En esta aproximación consideraremos que las propiedades de los huecos pueden ser descritas adecuadamente por la masa efectiva del hueco pesado y su pseudo-spin, $s_h = \pm 1/2$ cuando $j = \pm 3/2$. Dicho esto, nuestros estados electrónicos quedan descritos por las energías y funciones de onda de un oscilador armónico bidimensional. Las tres primeras subbandas tienen energías $\hbar\omega$, $2\hbar\omega$ y $3\hbar\omega$, y son, teniendo en cuenta el spin, doble, cuadruple y sextuplemente degeneradas en ausencia de campo magnético, respectivamente. Sus números cuánticos quedan descritos en la siguiente tabla con los estados no simetrizados $|n, m, s_z\rangle$, donde n denota

el índice de la banda, m es el momento angular y s_z la tercera componente de spin:

$$|n, m, s_z\rangle = \begin{cases} \text{estados d} \rightarrow \begin{cases} |2, 2, \pm\frac{1}{2}\rangle \\ |2, 0, \pm\frac{1}{2}\rangle \\ |2, -2, \pm\frac{1}{2}\rangle \end{cases} \\ \text{estados p} \rightarrow \begin{cases} |1, 1, \pm\frac{1}{2}\rangle \\ |1, -1, \pm\frac{1}{2}\rangle \end{cases} \\ \text{estados s} \rightarrow |0, 0, \pm\frac{1}{2}\rangle \end{cases} \quad (5.16)$$

La notación s, p, d es arbitraria pero muy extendida en la literatura de cajas cuánticas de InAs. Además, en analogía con los orbitales atómicos, ciertas propiedades de los estados electrónicos en estos sistemas son asimilables a dichos orbitales. Por ejemplo, si la caja cuántica no tiene simetría de revolución, cabe esperar que los estados p_x y p_y sean no degenerados. Las degeneraciones recién descritas corresponden a los estados no perturbados y no ocupados de cada nanoestructura. Cuando los portadores ocupen los niveles de energía en la banda de conducción y de valencia, la interacción coulombiana desplazará dichos niveles y las degeneraciones se romperán. Para describir esta interacción es suficiente utilizar teoría de perturbaciones no degenerada y simplemente calcular los elementos de matriz de los términos coulombiano y de intercambio. En dicho cálculo, a cada lado del elemento de matriz aparece la función de onda antisimétrica combinación de los estados de la base y dada por el determinante de Slater. Si sólo estamos interesados en estados de N electrones y un sólo hueco, podemos construir:

$$\Phi = \Phi_e(r_1, r_2 \dots r_N) \psi_h(r_h) \quad (5.17)$$

que es suficiente para describir las transiciones inter-banda de excitones neutros y cargados negativamente. Por ejemplo, para calcular la interacción coulombiana entre los dos electrones del estado s , debemos considerar el estado fundamental del oscilador armónico:

$$\psi_s^e = \frac{1}{\sqrt{\pi}l_e} \exp(-r^2/2l_e^2) \quad (5.18)$$

donde la longitud efectiva, l_e :

$$l_e = \sqrt{\hbar/(m_e^*\omega_0)} \quad (5.19)$$

depende de la masa efectiva y frecuencia asociada al confinamiento ω_0 . Con esto, las integrales son analíticas y la energía de repulsión directa resulta:

$$E_c^{ss} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{l_e} \quad (5.20)$$

mientras que la de intercambio es cero, por el principio de exclusión de Pauli. Los términos correspondientes a las interacciones entre electrones y huecos individuales se han calculado en la literatura y aparecen en las tablas I (directa e-e), II (intercambio e-e) y III (directa e-h) de R. J. Warburton *et al* [99]. A lo largo de la discusión haremos explícitos los términos necesarios para la descripción de nuestros resultados. La interacción de intercambio e-h no será contemplada, pero se sabe que produce corrimientos menores de $150 \mu\text{eV}$ [100], nuestra resolución experimental en emisión. La energía del estado fundamental del sistema de N electrones y un hueco, se hallará por adición de estos términos a las energías que surgen del confinamiento lateral $n\hbar\omega_{e,h}$.

Finalmente, hay que tener en cuenta que el reducido número de estados de la base no ha de ser una limitación en puntos cuánticos pequeños en los cuáles éstos son los únicos ligados de facto. Los resultados teóricos reproducen cualitativa y cuantitativamente los resultados experimentales obtenidos hasta la fecha en puntos cuánticos [101]. El acuerdo cuantitativo es menor en anillos cuánticos pues su geometría se aleja de la forma ideal para considerar un potencial parabólico [60]. El acuerdo cualitativo es no obstante notable [74, 102]. Ambos extremos serán corroborados en nuestros propios resultados experimentales.

5.5. Confinamiento fuerte *vs* confinamiento débil: validez del modelo perturbativo

Hemos dicho que el método perturbativo reproduce satisfactoriamente los estados electrónicos de cajas cuánticas de un determinado tamaño y forma. El método perturbativo implica que las funciones de la base están bien definidas y no se ven modificadas por el término perturbativo que pretendemos describir [98]. Aquí, vamos a ver que la validez de esa afirmación depende del grado de confinamiento cuántico en la nanoestructura. En investigaciones pioneras sobre micro-cristales semiconductores, tres regímenes fueron propuestos para describir el grado de confinamiento de electrones y huecos en el potencial del micro-cristal [103, 96]. La clasificación atiende a la relación existente entre la dimensión característica del micro-cristal en comparación con el radio del excitón del semiconductor en volumen, a_0 , y prevé diferentes resultados en función de la contribución a la energía total del sistema del confinamiento cuántico y las interacciones coulombianas. En el caso del Arseniuro de Galio tenemos que $a_0 \sim 12$ nm que aumenta a ~ 38 nm para el InAs. Esto proporciona diferentes regímenes dependiendo del tamaño de las nanoestructuras cuánticas al uso.

Para cajas cuánticas pequeñas comparadas con el radio del excitón, nos hallamos en el régimen de confinamiento fuerte. En el mismo, el movimiento del electrón y el hueco se hallan confinados por separado y los estados electrónicos de cada partícula individual forman una buena base de partida para describir las interacciones de Coulomb por métodos perturbativos.

Si el tamaño de las cajas aumenta, paulatinamente entramos en lo que se conoce como régimen de confinamiento intermedio. Dado que la masa del hueco es mucho mayor que la del electrón, el grado de confinamiento es diferente para uno y otro. En este régimen el hueco aún se haya confinado mientras que el electrón se encuentra mucho más deslocalizado.

Por último, para cajas cuánticas de gran tamaño, el confinamiento sólo es significativo para el centro de masas (CM) del excitón y la ecuación de Schrödinger se

puede separar en coordenadas relativas y de CM. Los estados de electrón y hueco se hallan en este caso fuertemente correlacionados por la interacción de Coulomb y no tiene sentido utilizarlos en una expansión perturbativa. De hecho, no existen estados electrónicos individuales que sean propios del Hamiltoniano efectivo en este régimen de confinamiento.

Esta interdependencia ha sido estudiada de manera intensa en el caso de pozos cuánticos, y algunas cuestiones relevantes son más fáciles de analizar en este sistema [104]. En el caso puramente bidimensional (pozo de anchura nula y barreras infinitas), el Hamiltoniano del par electrón-hueco queda descrito por un problema hidrogenoide en dos dimensiones. La energía de enlace del excitón en este caso es $4R_y^*$, es decir, cuatro veces su valor en el semiconductor en volumen. De igual manera, el radio del excitón se reduce a la mitad en el caso puramente bidimensional. Si partimos de un pozo cuántico muy ancho y vamos reduciendo paulatinamente su espesor, L , la energía de enlace aumentaría monotonamente hasta alcanzar $4R_y^*$ cuando $L = 0$. Sin embargo, esto sólo es cierto en pozos con paredes infinitas. Si la barrera de potencial es finita, el electrón y el hueco están sometidos a potenciales diferentes definidos por el alineamiento de las bandas en los dos materiales. En esta situación, repitiendo el experimento anterior, la energía de enlace pasará por un máximo, pero si continuamos disminuyendo el espesor del pozo, comprobaremos que comienza a disminuir rápidamente. Esto es así, porque en el límite $L \rightarrow 0$ recuperamos el caso tridimensional y el pozo se ha desvanecido. Visto de otra manera, electrón y hueco, cada vez más y más confinados alcanzan una energía de confinamiento resonante con el continuo de la barrera, y, por tanto, se hacen indistinguibles de los estados de ésta.

Igualmente interesante es estudiar lo que le ocurre a la fuerza de oscilador de una transición inter-banda dada en cada uno de estos regímenes. Cuando los efectos polaritónicos pueden ser despreciados³, la fuerza de oscilador de una transición dada puede relacionarse directamente con el coeficiente de absorción, $\alpha(\omega)$. Integrando

³régimen de acoplamiento débil entre radiación y materia.

sobre la resonancia:

$$I_A = \int \alpha(\omega) d\omega = \frac{\hbar e^2 \pi}{2m_0 \epsilon_0 c n} \frac{f}{V} \quad (5.21)$$

donde f es la fuerza de oscilador, n es el índice de refracción del material y V el volumen considerado⁴. Por tanto, la fuerza de oscilador puede extraerse del experimento de absorción. Por otro lado, la fuerza de oscilador surge de la aplicación de la *regla de oro de Fermi*, en la aproximación dipolar, aplicada a la interacción radiación-materia en el semiconductor:

$$f_{\hat{\epsilon}} = \frac{2}{m_0 \hbar \omega} \left| \langle \Psi_{exc} | \hat{\epsilon} \cdot \sum_i p_i | \Psi_0 \rangle \right|^2 \quad (5.22)$$

donde $\hbar \omega = E_{exc} - E_0$ es la energía de la transición, p_i es el operador momento, y $\hat{\epsilon}$ es el vector de polarización. Evaluando el elemento de matriz en la aproximación de la masa efectiva resulta:

$$f_{\hat{\epsilon}} = \frac{2 |\hat{\epsilon} \cdot p_{cv}|^2}{m_0 \hbar \omega} \left| \int \chi(r_e, r_h) \delta(r_e - r_h) dr_e dr_h \right|^2 \quad (5.23)$$

que es proporcional al volumen del cristal ocupado por la intersección entre hueco y electrón en sus respectivos estados. Dado que la función envolvente es sólo espacial se ha de incluir un factor de degeneración g para dar cuenta de la degeneración de spin del estado si todas las transiciones son posibles. El factor $|\hat{\epsilon} \cdot p_{cv}|^2$ involucra las funciones de Bloch en el borde de la banda de conducción y valencia, tal y como se introdujeron en la sección 5.2, y da lugar a reglas de selección en las transiciones inter-banda [ec. (5.7)]. Cuando la transición es permitida, este término contribuye con una fracción de $m_0^2 P^2 / \hbar^2$.

Dicho esto, podemos analizar lo que cabe esperar para una variación de la anchura del pozo, es decir, un cambio en el grado de confinamiento. De la ecuación (5.23), queda claro que, reduciendo el espesor del pozo, en el régimen de confinamiento fuerte, el electrón y el hueco van a superponerse cada vez más y la fuerza de oscilador va a aumentar. De igual manera, se puede demostrar que, cuando el confinamiento es débil, la fuerza de oscilador resulta ser proporcional al volumen ocupado por el centro de masas del excitón, y por tanto, aumenta al hacerlo la anchura del pozo.

⁴Escrita así I_A se mide en J/m.

Juntando ambos resultados tenemos que la fuerza de oscilador ha de tener un mínimo en el cambio entre un régimen y otro. Si continuamos reduciendo la anchura del pozo, llegará un momento que las funciones de onda penetren de manera importante en la barrera. En esta situación, la fuerza de oscilador comenzará a disminuir. En definitiva, la fuerza de oscilador alcanza un máximo para el régimen de confinamiento fuerte en que electrón y hueco se hallan fuertemente confinados pero sus funciones de onda no penetran significativamente en la barrera.

Más adelante, veremos como nuestros resultados ofrecen información sobre el grado de confinamiento en las cajas cuánticas de InAs y como el concepto de fuerza de oscilador resulta de gran utilidad en la descripción de los mismos.

Capítulo 6

Dispositivo experimental

Comenzaremos la descripción de los resultados describiendo los montajes experimentales que nos han permitido investigar las propiedades ópticas y electrónicas de cajas cuánticas aisladas de InAs en diferentes muestras, y que se discuten en los capítulos siguientes. La caracterización completa de las mismas exige, como vamos a ver, el estudio de sus propiedades de transporte, y propiedades ópticas, en varios experimentos de emisión y modulación. Mientras que dichos experimentos son convencionales en configuraciones macroscópicas, la alta resolución espacial requerida para el estudio de cajas cuánticas aisladas complica considerablemente el diseño experimental. Por ello, se han desarrollado diversos dispositivos experimentales adaptados específicamente para la espectroscopía confocal de estos sistemas.

6.1. Sistema criogénico y de vacío

Como se ha mencionado anteriormente la estructura electrónica de las cajas cuánticas semiconductoras goza de propiedades exclusivas debido a su carácter discreto producido por el confinamiento cuántico. No obstante, a fin de que éstas puedan ser explotadas completamente, la temperatura de la muestra tiene que ser lo bastante baja para evitar el ensanchamiento de los niveles por la interacción electrón-fonón. En el caso de la caracterización macroscópica, un criogenerador de Helio de ciclo cerrado es suficiente para reducir la temperatura hasta 10 K y mantenerla

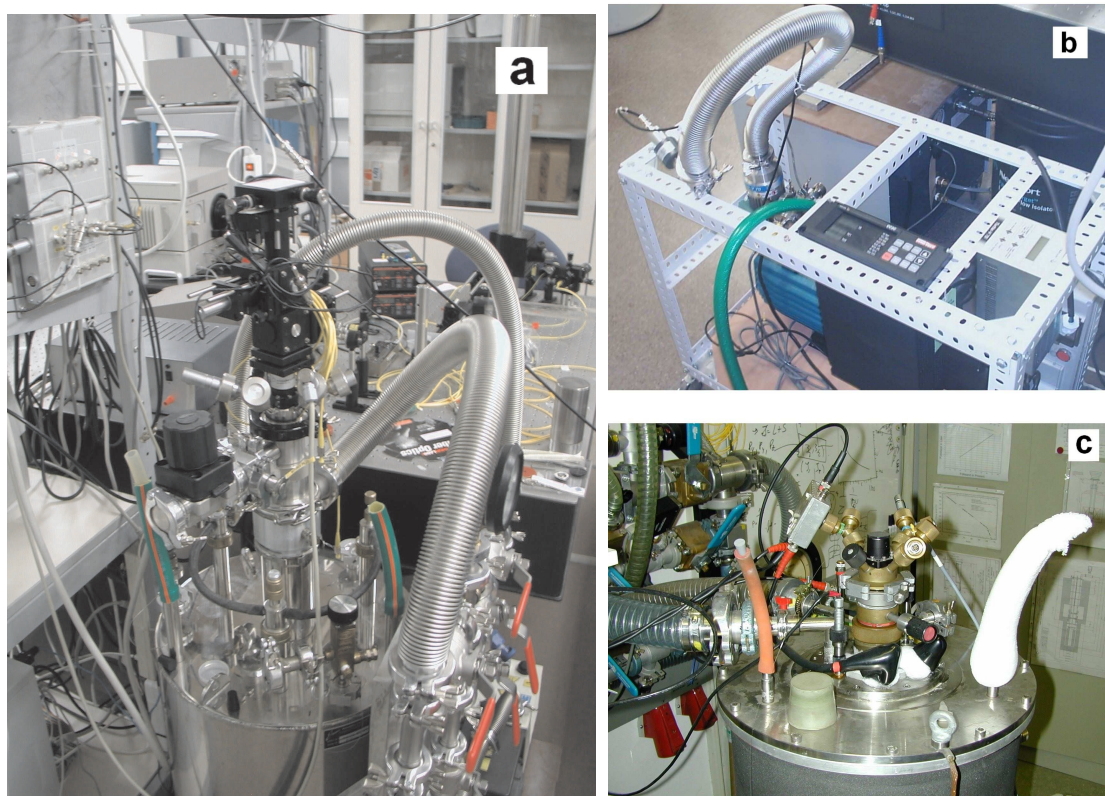


Figura 6.1: Criostatos de inmersión de Helio utilizados en las experiencias de espectroscopía confocal. El montaje del criostato empleado en Valencia y del sistema de vacío se muestran en a) y b). La imagen c) corresponde al montaje del laboratorio del Dr. Khaled Karrai en Munich. Ambos criostatos se encuentran sobre soportes antivibratorios para aumentar la estabilidad mecánica.

estable, y éste ha sido el sistema elegido en dicho caso. Para aplicaciones de alta resolución espacial las vibraciones producidas por el ciclo criogenerativo impiden que estos dispositivos puedan ser utilizados. En este caso, lo habitual es utilizar un criostato de helio líquido de inmersión o bien de flujo. Se han utilizado dos criostatos de inmersión de este tipo en experiencias llevadas a cabo en el Center for NanoScience de la Ludwig Maximilians Universität (Munich) y nuestro laboratorio en Valencia [fig. 6.1]. La principal diferencia entre ellos, es la disponibilidad in-situ de un imán superconductor en el del CENS y la posibilidad de variar la temperatura de la muestra en el de nuestro laboratorio. Otra diferencia es la existencia de un sistema de recuperación de helio en el primero, que facilita las labores de mantenimiento y llenado.

Ambos criostatos, así como los microscopios que son insertados en ellos (ver más abajo), han de ser evacuados hasta presiones del orden de 1×10^{-6} mbar a fin de preservar el aislamiento térmico y problemas de condensación sobre la muestra. Este vacío se consigue mediante una bomba primaria rotatoria y una bomba turbomolecular. Los tiempos de bombeo mediante este sistema son de aproximadamente 14 horas para el criostato y 6-8 horas para el microscopio. Antes de introducir el helio líquido, es necesario preenfriar la cámara de helio con nitrógeno líquido. La temperatura estabilizada en la muestra, enfriada por radiación de la camisa de nitrógeno, es de unos 120 K tras 30 horas. En estas condiciones una transferencia de ~ 30 litros de helio líquido, permite realizar experimentos a ~ 5 K durante unas 56 horas.

6.2. Montaje de caracterización eléctrica: PC, y C-V

Las muestras consideradas se han diseñado específicamente para el estudio de nanoestructuras cuánticas aisladas sometidas a la acción de un campo eléctrico externo aplicado en la dirección de crecimiento. Con ello, vamos a ver que, además de modificar la estructura electrónica y el estado de ocupación de cada nanoestructura individual, las características de fotocorriente (PC) y capacitancia-voltaje (C-V) pueden ser correlacionadas con otras propiedades ópticas y electrónicas del sistema.

El dispositivo experimental utilizado para dicha caracterización es similar al que se utiliza para la medida del perfil de dopado en dispositivos semiconductores multicapa o substratos dopados [105, 106]. Más detalles sobre los principios físicos que permiten dicha medida se darán en la discusión de los correspondientes resultados. Para llevar a cabo el experimento, es necesario aplicar una modulación de voltaje a la muestra de frecuencia f y amplitud ΔV . La capacitancia diferencial de baja señal [105]:

$$C = A \lim_{\Delta V \rightarrow 0} \frac{\Delta Q}{\Delta V} = A \frac{dQ}{dV} \quad (6.1)$$

puede ser así medida a partir de la corriente reactiva existente entre ambos contactos y desfasada 90° respecto al voltaje aplicado. La calibración de dicha corriente

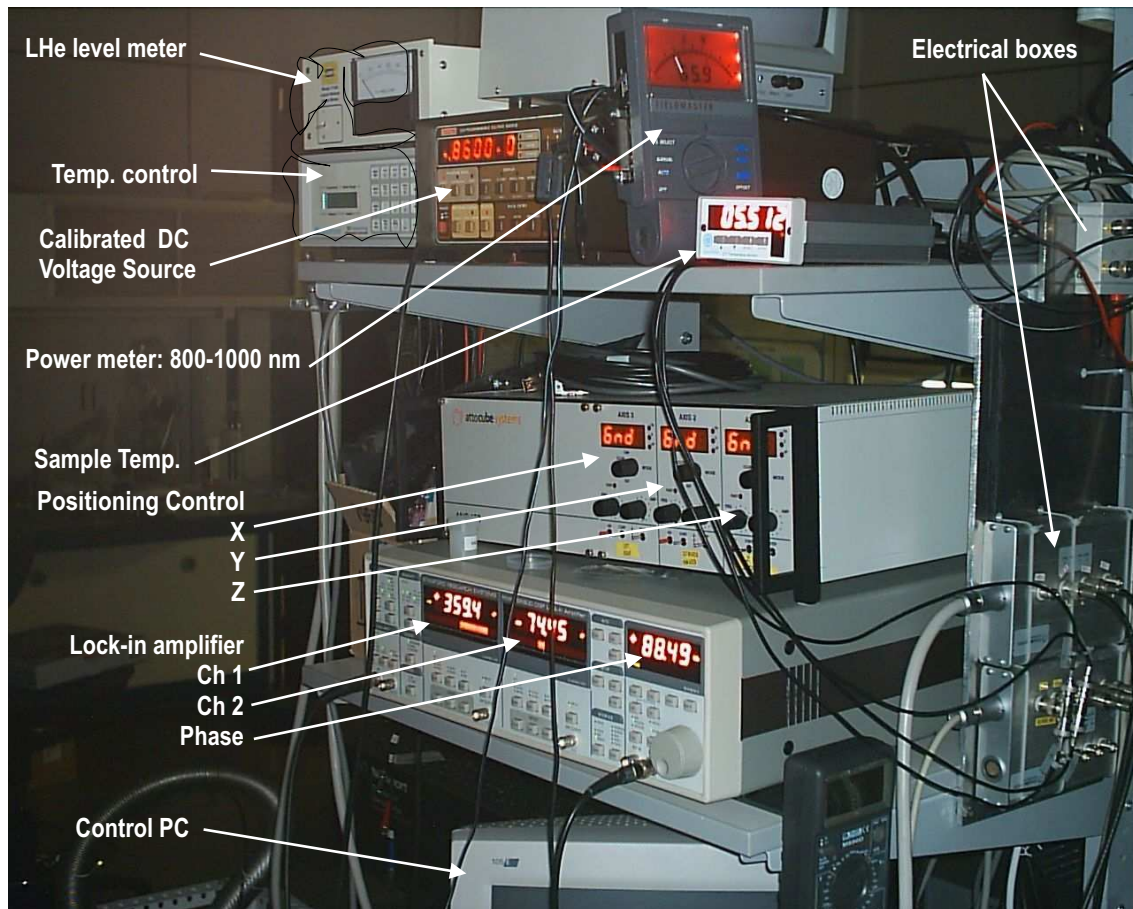


Figura 6.2: Dispositivo experimental diseñado para la caracterización eléctrica de nanoestructuras cuánticas autoensambladas a ~ 5 K (Valencia).

con una batería de condensadores de capacidad conocida, junto al valor del área del dispositivo, nos permite conocer la capacidad de la muestra en función del voltaje aplicado. A partir de ahí, un modelo de baja señal del dispositivo, en el que se tengan en cuenta los diversos estados electrónicos involucrados en el almacenamiento de carga, nos permite hallar la densidad de estados de manera autoconsistente con la ecuación de Poisson unidimensional. El estudio detallado de las nanoestructuras mediante este método ha sido objeto de una investigación exhaustiva en el pasado. Sin embargo, el uso de estas técnicas en este trabajo es instrumental. La caracterización eléctrica nos servirá para determinar las propiedades ópticas de las nanoestructuras aisladas, cuyo estudio es el tema principal de la investigación llevada a cabo. No obstante, como veremos, unas sin las otras no pueden ser comprendidas.

El montaje experimental de caracterización eléctrica se basa en la utilización de una fuente de voltaje calibrada continua, con precisión y estabilidad suficientes [fig. 6.2]. Ésta proporciona la señal DC que aplicamos a la muestra y resulta en un campo eléctrico uniforme en la zona activa. Para la detección síncrona de la corriente se han utilizado diversos pre-amplificadores de corriente de baja impedancia, y amplificadores (lock-in) sincronizados a la frecuencia de modulación sinusoidal, $f = 177$ Hz, que es proporcionada por el oscilador interno de los mismos. Esto permite la detección de corrientes de unos pocos picoamperios con relaciones señal a ruido de $\sim 1 \times 10^{-3} \text{ Hz}^{-\frac{1}{2}}$. Ambas señales de voltaje, continua y modulada, se aplican en los contactos de la muestra, tras ser mezcladas en una red pasiva con filtros pasa-alta y pasa-baja dimensionada al rango de frecuencias e impedancias que se pretende caracterizar. A fin de evitar capacitancias parasitarias todos los cables utilizados han de estar convenientemente apantallados y ser lo más cortos posibles. La capacidad de los cables fuera del criostato no afectan al valor final de la capacidad pues son compartidos en el proceso de calibración. La capacidad de los cables que transportan las señales eléctricas entre la muestra y el exterior sí que contribuyen, pero su impacto es mínimo al nivel de señal que pretendemos medir. Los contactos de la muestra se conectan de manera flotante y todas las tierras eléctricas se unifican a un único dispositivo (el lock-in). Esto evita corriente parasitarias debidas a lazos entre tierras. Todas estas precauciones son necesarias para la caracterización eléctrica de dispositivos de baja señal y, por tanto, se han respetado.

Por último, dado que nuestros amplificadores sincronizados son de doble canal, la conductancia de la muestra se puede medir simultáneamente registrando la corriente diferencial en fase con la modulación de voltaje. Esto permite medir la fotocorriente en función del voltaje aplicado y/o la longitud de onda de excitación.

6.3. Montaje de caracterización óptica macroscópica: PL

Tal como hemos visto en el capítulo 4, para estudiar las propiedades de la estructura electrónica de nanoestructuras cuánticas autoensambladas, aisladas o no, una de las técnicas más fructíferas es la de fotoluminiscencia (PL). A baja temperatura, la ocupación de la banda de conducción es prácticamente cero y la difusión de portadores muy elevada, gracias a la ausencia de defectos estructurales. En dispositivos optoelectrónicos basados en estas nanoestructuras, la inyección de portadores mayoritarios produce una electroluminiscencia de gran intensidad con bajas corrientes umbrales. Ésta es la base de los láseres de puntos cuánticos, hilos cuánticos y anillos cuánticos desarrollados hasta el momento ya citados. Alternativamente, la estructura electrónica de estas nanoestructuras se puede estudiar analizando la recombinación radiativa de portadores fotogenerados en la barrera o resonantemente. Diversos parámetros de la excitación pueden ser modificados entre los que destacan la energía de excitación o la densidad de potencia. Otros parámetros se pueden variar externamente para investigar fenómenos dependientes del campo eléctrico, magnético, temperatura, presión, etc. . . . Todos ellos ofrecen información valiosa sobre las nanoestructuras. Mención aparte merecen la espectroscopía de resolución temporal lineal o no lineal, con las cuáles se puede extraer información no accesible por otros medios [sec. 4.2].

En el caso que nos ocupa, hemos caracterizado la emisión de conjunto de nanoestructuras cuánticas autoensambladas en función del campo eléctrico como paso previo a la caracterización de sus propiedades individuales. Para ello, un voltaje DC externo se ha aplicado a la vez que se registraban los espectros de fotoluminiscencia. Como fuente de luz se ha utilizado un láser de Ti-Zafiro sintonizable en régimen continuo, cuyas características se han descrito en el capítulo 3. La emisión correspondiente es colectada con espejos y lentes, optimizados para el rango de emisión de las nanoestructuras, y dispersada por un monocromador doble con una resolución de (0.3×2) m de focal. La resolución espectral es de ~ 0.1 nm a 950

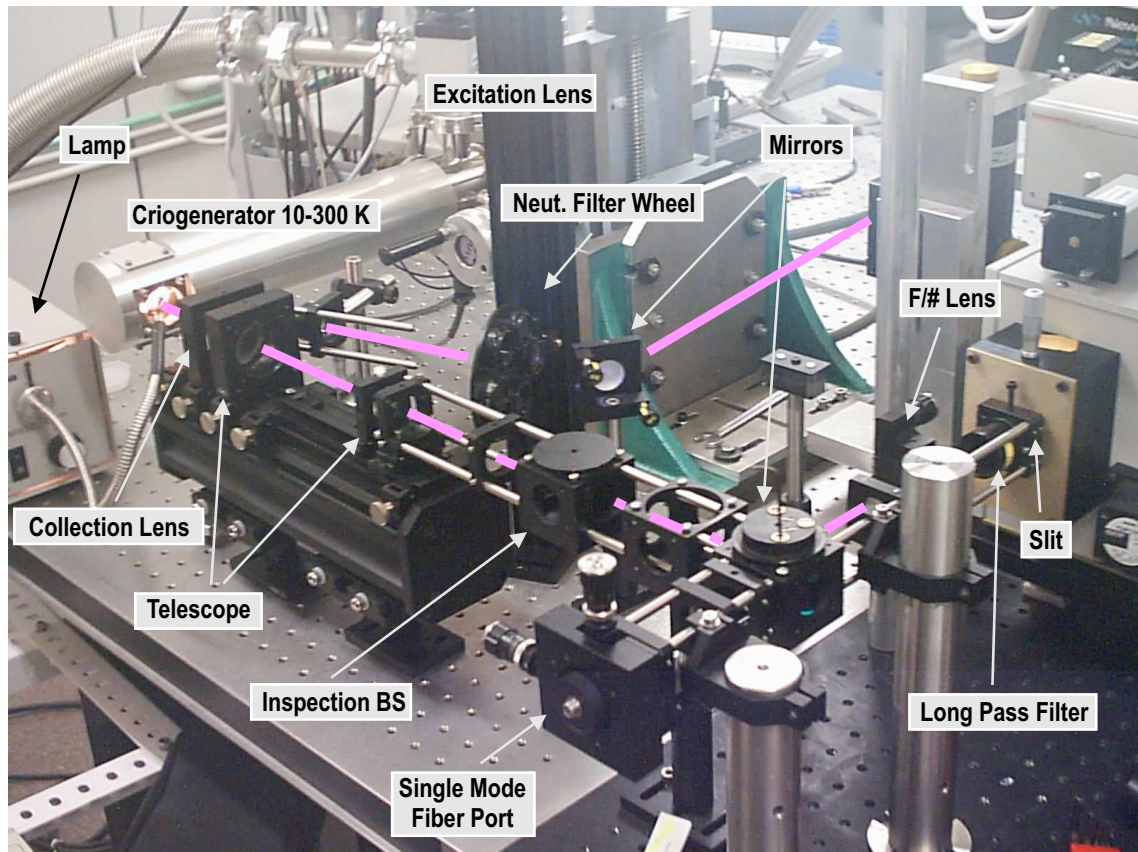


Figura 6.3: Dispositivo experimental diseñado para la caracterización óptica macroscópica de nanoestructuras cuánticas semiconductoras a ~ 10 K. En la parte inferior de la imagen se observa también el puerto de fibra monomodo preparado para alojar la fibra que porta la señal de μ PL (Valencia).

nm, aunque la emisión, en este caso, será mucho más ancha debido al ensanchamiento inhomogéneo. Como fotodetectores se han empleado dos fotomultiplicadores diferentes según el rango de longitudes de onda necesario en cada caso. Los bajos niveles de potencia empleados requieren del uso de técnicas de conteo de fotones, dado los beneficios que de ello se extrae en la relación señal ruido. Debido a que las muestras sólo son activas ópticamente (ver en capítulo siguiente) en regiones muy reducidas de su superficie, se ha empleado un montaje de inspección sobre el eje óptico para optimizar la posición. Por último, el diámetro de la PSF conjunta de excitación/colección puede estimarse entre 10 y 20 μm correspondientes a $0.5\text{-}1 \times 10^4$ nanoestructuras contribuyendo inhomogéneamente a la emisión.

6.4. Montaje de micro-espectroscopía óptica de emisión: μ PL, y μ PLE

El objetivo principal de esta tesis es el estudio de las propiedades individuales de cajas cuánticas autoensambladas. Tal como se ha discutido en el capítulo 2, para ello es necesario una resolución espacial $< 1 \mu\text{m}$. En nuestro caso, esto se consigue con un montaje óptico confocal basado en fibra óptica, que se haya optimizado para el rango de emisión de las nanoestructuras. La cabeza del microscopio completa, incluyendo el sistema de posicionamiento piezoeléctrico, el portamuestras, el objetivo de microscopio y la fibra de colección, tiene unas dimensiones de $D \times H = 45 \times 130$ mm [fig. 6.4]. Esto permite introducirlo sin problemas en el interior de criostatos de inmersión o flujo de diferentes tamaños y usos, y, por tanto, adaptarlo a aplicaciones ya existentes. Este sistema de posicionamiento criogénico y óptica de colección confocal adaptada, se hayan disponibles desde hace pocos años [107], y constituyen un avance importante para la espectroscopía óptica de nanoestructuras cuánticas aisladas [74, 108, 100, 109]. La unidad de posicionamiento se controla electrónicamente por una fuente de voltaje pulsada específica. El movimiento de los motores piezoeléctricos es inercial. La amplitud de los pulsos suministrados y su frecuencia, determinan la longitud y frecuencia de los pasos reales. Ambas magnitudes se pueden establecer de manera independiente para cada eje. Para realizar un ajuste fino de la posición, pasos individuales pueden realizarse de manera manual. Además, dado el carácter inercial del movimiento, el voltaje aplicado es nulo cuando el motor se halla en reposo en su posición final. Cortocircuitando la salida de alto voltaje de la fuente en este punto, evitamos que cualquier ruido eléctrico se convierta en desplazamientos espúreos. A temperaturas de 5 K la longitud del paso se puede variar entre 5 y 1500 nm sobre un recorrido total de 7×7 mm en XY y 6 mm en Z. Vemos por tanto, que sus especificaciones son ideales para el tipo de estudio que queremos realizar.

Es necesario disponer de un método para realizar la optimización de la posición sobre la muestra y la distancia axial, una vez que el microscopio se ha introducido

6.4 Montaje de micro-espectroscopía óptica de emisión: μ PL, y μ PLE105

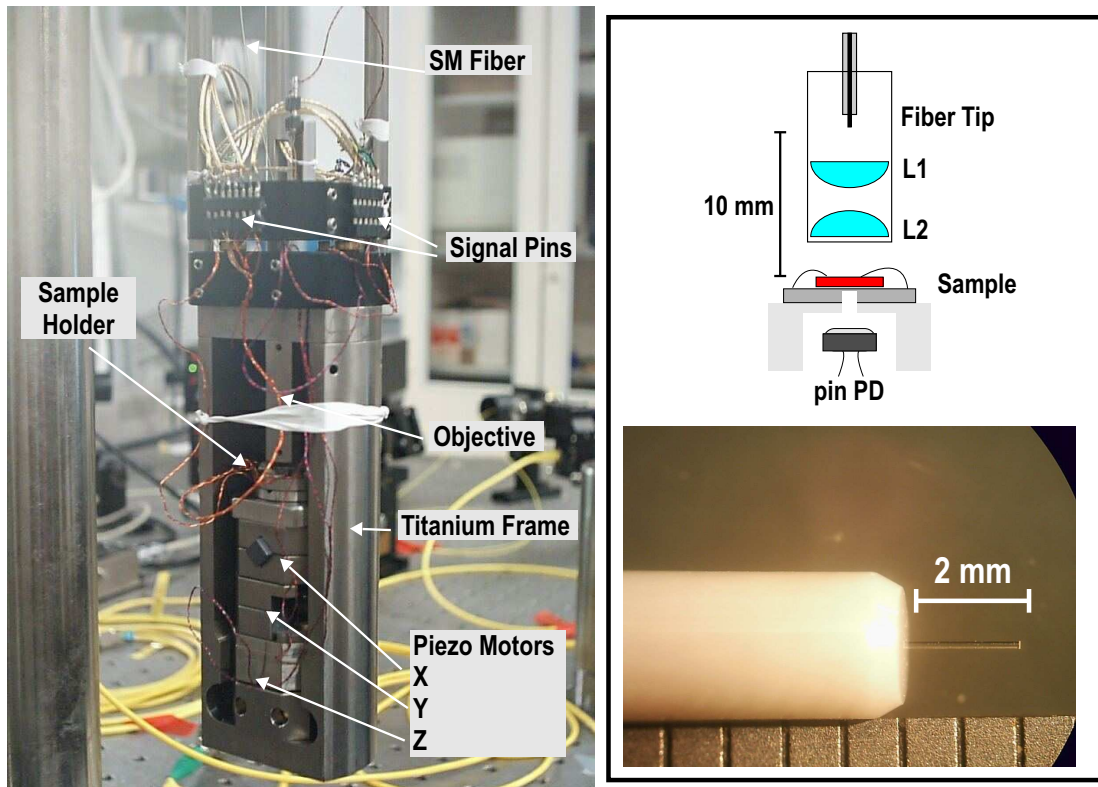


Figura 6.4: A la izquierda, cabeza del microscopio confocal basado en fibra óptica, $D \times H = 45 \times 130$ mm. La misma fibra porta las señales de excitación y luminiscencia hacia y desde la muestra como muestra el diagrama de la derecha (Valencia).

en el criostato. A tal fin, acoplamos la luz de dos láseres de diodo diferentes a la fibra óptica de excitación-colección [fig. 6.5]. Uno de ellos, con $\lambda = 980$ nm, es resonante con la longitud de onda de emisión de las nanoestructuras. Monitorizando la señal de reflectividad del mismo, se optimiza la distancia entre el objetivo y la superficie de la muestra justo para esa longitud de onda. Esto es importante dado que el objetivo no es acromático. El otro láser, con $\lambda = 830$ nm, tiene la longitud de onda adecuada para producir una señal de fotocorriente en la muestra que podamos monitorizar. De esta manera, la posición de la muestra se ajusta hasta encontrar una región ópticamente activa. Adicionalmente, a través de un pequeño agujero practicado en el portamuestras, y un fotodiodo de germanio colocado bajo el mismo, disponemos de un punto de referencia durante el posicionamiento.

Una vez optimizada la posición, el láser de excitación se puede acoplar a la fibra

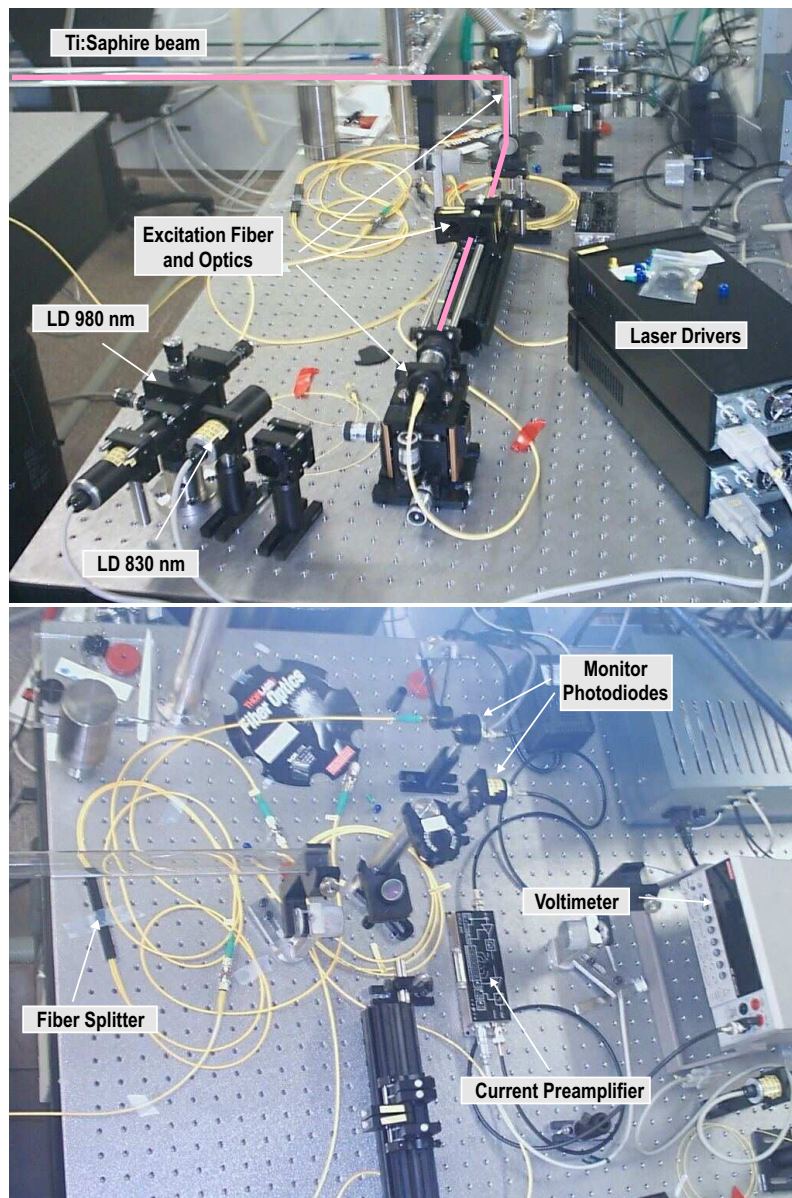


Figura 6.5: Montaje optomecánico diseñado para la manipulación de las diferentes señales ópticas que intervienen en el experimento de μ PL y μ PLe.

óptica. Dado que las señales de excitación y colección viajan por la misma fibra se utiliza un divisor de haz de fibra óptica o acoplador 2×2 [fig. 6.5]. La luz del láser de Ti-Zafiro, dividida en el acoplador, se utiliza en parte para excitar la fotoluminiscencia, y en parte se dirige a diversos medidores de potencia. La caracterización de este acoplamiento en función de la longitud de onda de excitación permite deducir

6.5 Montaje de micro-espectroscopía óptica de modulación: $\mu\Delta T$, y $\mu\Delta R$

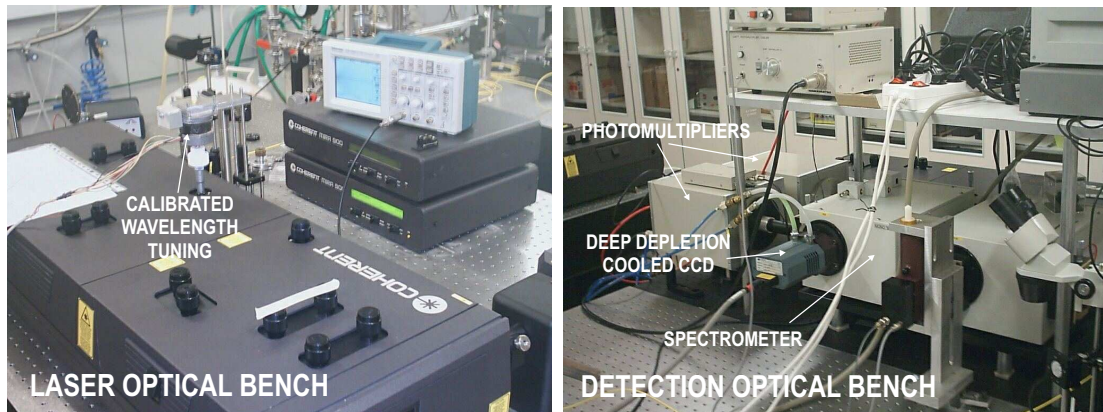


Figura 6.6: Montajes de excitación y de detección utilizados en las experiencias de microscopía confocal. El láser de Ti-Zafiro puede ser sintonizado automáticamente mediante un motor paso a paso que se ha calibrado previamente. Diferentes detectores se colocan en los puertos de salida del espectrómetro, aunque para las experiencias de μPL y μPLE , sólo la cámara CCD refrigerada es capaz de producir una relación señal ruido suficiente [sec. 3.2.3] (Valencia).

la densidad de potencia aproximada sobre la muestra. Finalmente, la señal de fotoluminiscencia colectada por el objetivo confocal a través de la fibra de colección, es dirigida mediante otra fibra hacia los dispositivos de detección colocados en una mesa óptica adyacente [fig. 6.6].

Las operaciones recién descritas son necesarias para coleccionar y analizar la señal de fotoluminiscencia de cajas cuánticas autoensambladas de InAs. Para realizar el experimento de fotoluminiscencia de excitación, es necesario además optimizar la cavidad láser para una longitud de onda cuasi-resonante con el estado fundamental. Posteriormente, un motor paso a paso controlado externamente gira el filtro de Lyot permitiendo realizar un barrido de las longitudes de onda en el rango $\lambda_{exc} < \lambda_{det}$.

6.5. Montaje de micro-espectroscopía óptica de modulación: $\mu\Delta T$, y $\mu\Delta R$

El montaje de micro-espectroscopía de modulación es similar al de la sección anterior y está basado en el mismo tipo de microscopio confocal. La fibra de exci-

tación-colección, se utiliza en este caso para suministrar la luz de un láser de diodo de cavidad externa sintonizable del tipo descrito en el capítulo 3. A pesar de que se trata de un láser sintonizable, sus características son muy diferentes a las del láser de Ti-Zafiro como se dijo entonces. Por lo que a este experimento atañe, la principal diferencia es la anchura de línea de uno y otro. En el caso del láser de diodo mencionado, ésta permite resolver la anchura de línea homogénea de resonancias individuales asociadas al estado fundamental o excitados de cajas cuánticas aisladas de InAs. Ese es su principal propósito en el experimento de transmisión y reflectividad llevado a cabo.

A fin de medir la luz transmitida a través de la muestra, se coloca un fotodiodo p-i-n de germanio convencional bajo ésta. Como veremos, en nuestra configuración, la magnitud del coeficiente de absorción de una sola caja cuántica aislada es del orden de $\Delta T/T \sim 1 \times 10^{-4}$. En apariencia, este valor puede considerarse relativamente abordable desde el punto de vista experimental. Sin embargo, uno ha de recordar que el tamaño de estas nanoestructuras es típicamente de ~ 20 nm de diámetro. Por tanto, para que dicho coeficiente de absorción pueda ser discriminado del fondo, la interacción entre el campo electromagnético y la caja cuántica ha de tener lugar en un área lo más reducida posible. De otra manera, la mayoría de los fotones que atraviesan la muestra no interactuarían con la caja cuántica aunque sí incidirían en nuestro detector. El resultado, es que la relación señal-ruido necesaria para medir este fenómeno es de $\sim 1 \times 10^{-6}$, lo cual se encuentra varios ordenes de magnitud por debajo de lo habitual en una experiencia de este tipo. En el último capítulo de esta tesis veremos como tal nivel de señal-ruido se puede conseguir haciendo uso de ciertas propiedades de nuestras cajas cuánticas y de un cuidadoso procedimiento experimental. Posponemos para entonces los detalles de tal procedimiento, pues constituyen, en si mismos, un resultado notable.

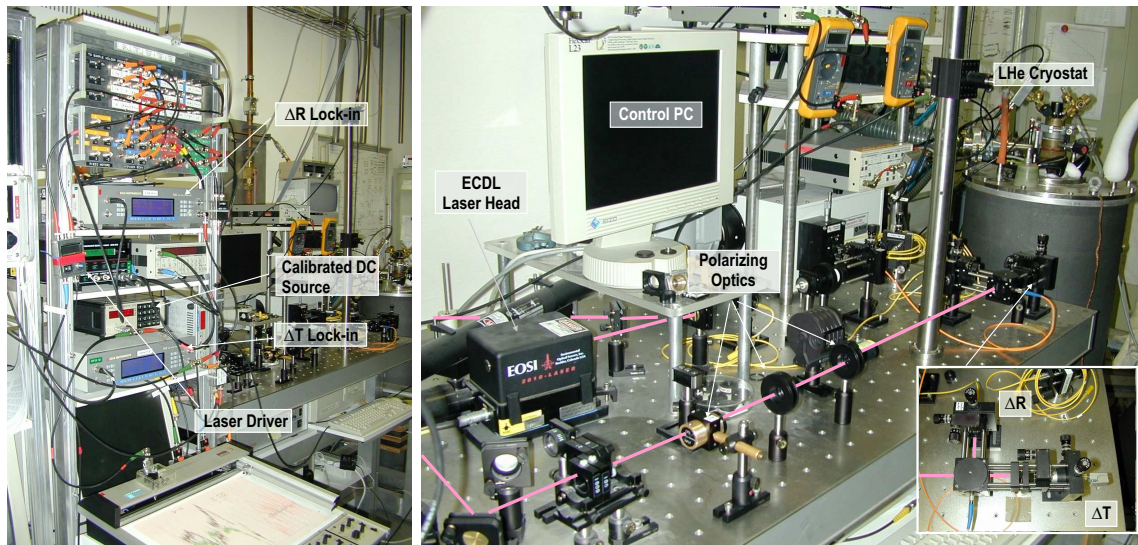


Figura 6.7: A la izquierda la consola electrónica utilizada para la experiencia de espectroscopía óptica de modulación. A la derecha montaje optomecánico diseñado específicamente para esta experiencia. El divisor de haz utilizado para monitorizar la reflectividad proveniente de la muestra se refleja ampliado en el extremo derecho. (CENS, Munich).

6.6. Control y automatización

Como ha quedado descrito en los apartados anteriores el número de dispositivos empleados en estos experimentos es elevado, como lo es es el de parámetros que hay que variar en una experiencia dada. Sincronizar la adquisición de la cámara CCD con la longitud de onda de excitación, o el voltaje externo aplicado, se puede realizar mediante un ajuste temporal entre el tiempo de adquisición y el paso del parámetro necesario. Sin embargo, dicho método introduce invariablemente errores sistemáticos que aumentan con el número de espectros adquiridos. Por otro lado, en más de una ocasión, es necesario realizar un espectro, bien sea de fotocorriente o de intensidad de emisión, en función de diferentes parámetros que actúan como eje de abscisas: longitud de onda de detección, excitación, voltaje, temperatura, tiempo... [fig. 6.8].

Por ello, desde el principio quedó claro que la mejor manera de llevar a cabo la sincronización de los diversos dispositivos era mediante un programa de control es-

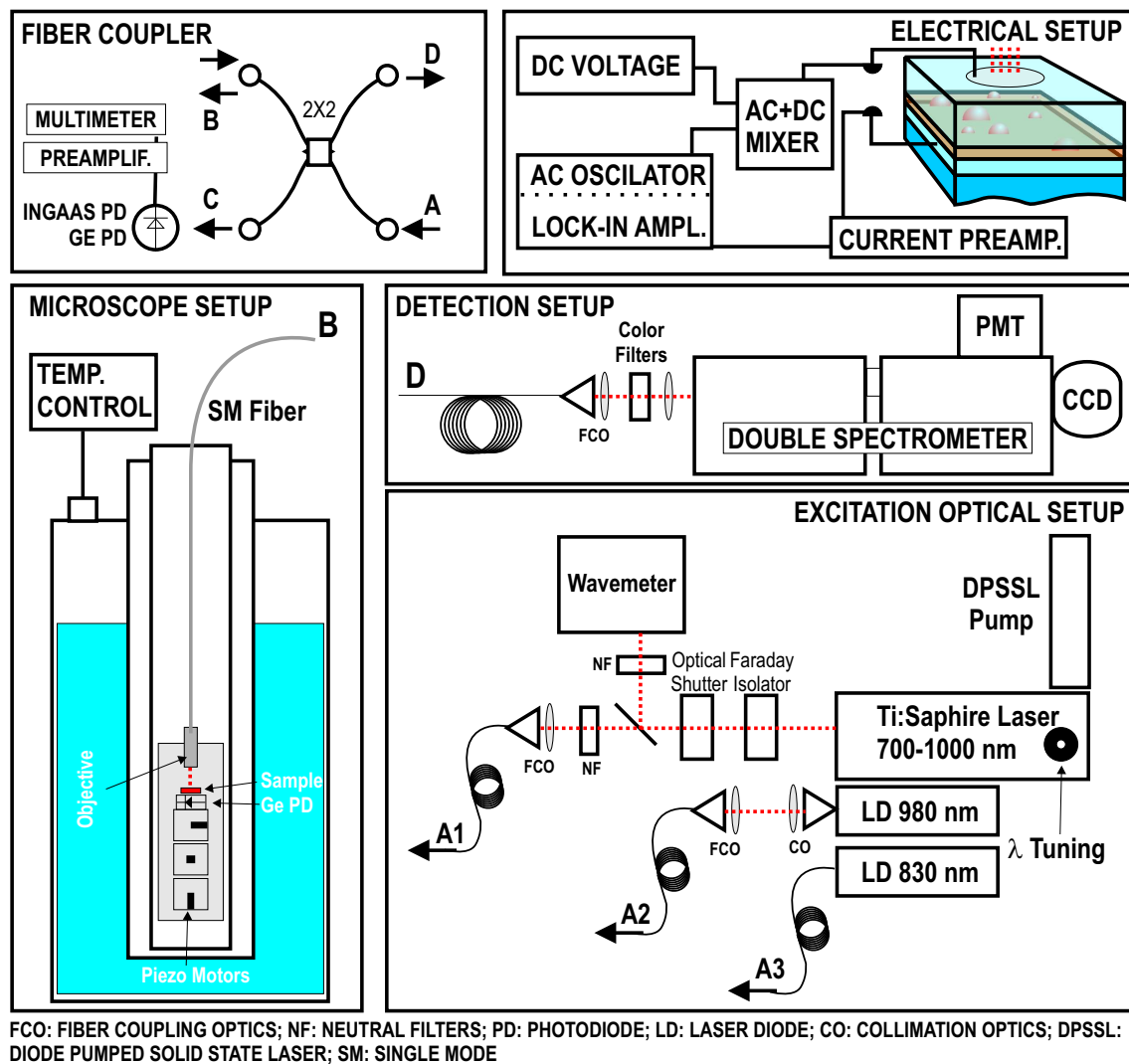


Figura 6.8: Diagrama esquemático de la experiencia de micro-espectroscopía óptica de emisión. La mayoría de los dispositivos involucrados pueden controlarse de manera automática (Valencia).

pecífico. Éste permite variar de manera independiente y sincronizada la mayor parte de los dispositivos de nuestro laboratorio. Tal programa de control ha sido desarrollado por el autor en colaboración con otros miembros del laboratorio en sucesivas etapas de desarrollo. Se ha desarrollado en lenguaje Visual Basic bajo el sistema operativo Windows, y utiliza intensivamente la tecnología de controles ActiveX. El protocolo de comunicación se realiza principalmente mediante IEEE-488.2 (más conocido como protocolo GPIB), aunque es capaz de comunicarse con tarjetas PCI específicas, u otros protocolos de comunicación en serie o paralelo. En la actualidad,

Tabla 6.1: Dispositivos controlados automáticamente por el programa de control UMDO-Virtudev.

Nombre del Dispositivo	Tipo
Keithley KPCI488	GPIB Card
Hewlett-Packard HPIB-82335B	GPIB Card
Acton SpectraPro 300i	X
Chromex 500i Spectrometer	X
Keithley 230 Progr. Voltage Source	X
Owis PCSM30 3 Axis Stepper Motor Driver	X
Hamamatsu M8784 Photon Counting Module	Y
Starford Research SR830 DSP Lock-in Ampl.	Y
Starford Research SR810 DSP Lock-in Ampl.	Y
Keithley K2000 8 Digits Multimeter	Y
Andor DU-401 BR-DD CCD Camera	TTL Sync.
Owis Electromechanical Shutter	TTL Sync.

es capaz de detectar automáticamente y autoconfigurar los dispositivos listados en la tabla 6.1. Cada dispositivo detectado es clasificado como *Tipo X* o *Tipo Y* en función de su uso más común. Aquellos dispositivos detectados, que no intervienen directamente en el eje de ordenadas o de abscisas, pueden ser utilizados para modificar parámetros externos para cada espectro. La funcionalidad de cada dispositivo se exporta al programa a través de paneles de control individuales. Tiempos de integración, redes de difracción, configuración de las rendijas, etc... se pueden controlar así directamente. Por último, la sincronización con dispositivos multicanal se realiza mediante pulsos TTL que lanzan la adquisición, a la vez que controlan el tiempo de exposición mediante un obturador automático de uso común a todas las experiencias. Los espectros registrados de esta manera pueden ser visualizados y comparados entre sí dentro del mismo programa.

Por último, cabe destacar que el diseño del programa es altamente modular, y permite con relativa facilidad añadir nuevas funcionalidades al mismo.

Capítulo 7

Muestras

En este capítulo describiremos las principales características de las muestras que son objeto de esta tesis atendiendo a sus condiciones de crecimiento y a sus características ópticas y eléctricas macroscópicas. Esta descripción nos facilitará la interpretación de los resultados obtenidos en el estudio de las propiedades individuales de las nanoestructuras aisladas que serán descritas en los siguientes capítulos.

Se han estudiado tres muestras en diferentes experimentos llevados a cabo en el Instituto de Ciencia de Materiales de la Universidad de Valencia (ICMUV) y el Center for NanoScience de la Ludwig-Maximilians Universität en Munich (CENS). Todas ellas fueron crecidas por el Dr. Jorge M. García del Instituto de Microelectrónica de Madrid (IMM-CSIC) y colaboradores¹.

Desde 1997, se ha estudiado y demostrado la posibilidad de modificar de manera drástica y controlada la morfología de cajas cuánticas autoensambladas de InAs/GaAs [60]. Generalmente conocidas como puntos cuánticos (QDs ó *Quantum Dots*), las morfologías más frecuentes de las cajas cuánticas autoensambladas han sido del tipo piramidal, piramidal truncado o lentiforme [19]. Hoy en día sin embargo, es posible obtener de manera reproducible otras morfologías entre las que destacan especialmente los llamados anillos cuánticos (QRs o *Quantum Rings*), por su interés teórico y experimental en la investigación del efecto Aharonov-Bohm y/o

¹Daniel Granados (IMM) y Gilberto Medeiros (Universidad de California en Santa Barbara-UCSB).

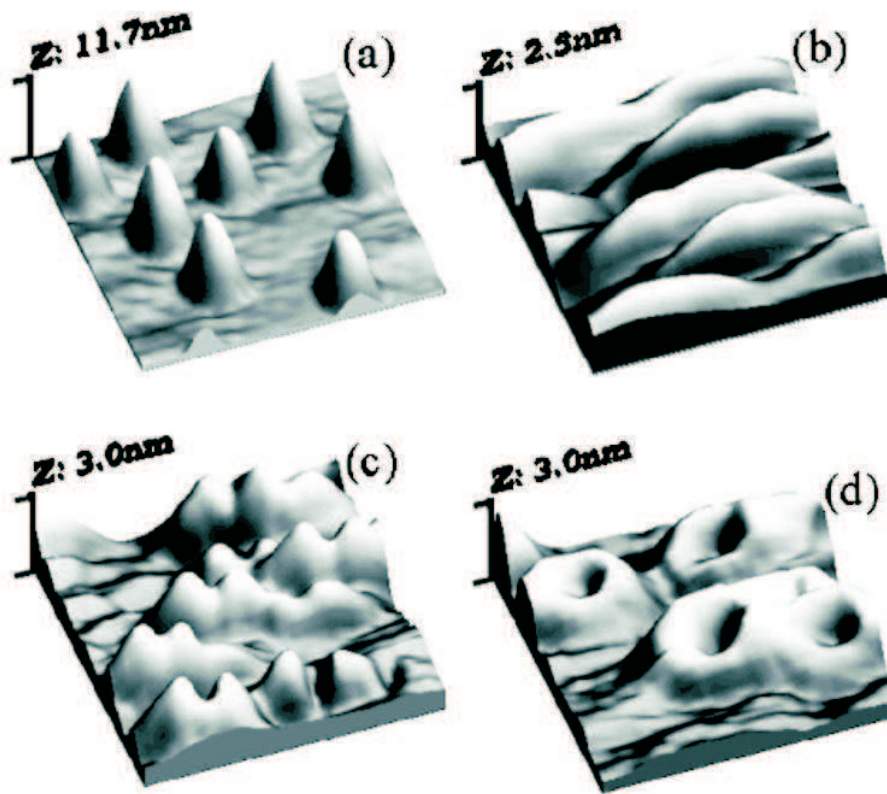


Figura 7.1: Imagen de microscopía de fuerzas atómicas (AFM) de nanoestructuras cuánticas autoensambladas de InAs/GaAs. El área escaneada es de 250×250 nm en todos los casos. Reproducida de Granados *et al* [61].

de las corrientes persistentes [110, 111, 112].

En la figura 7.1, se han caracterizado cuatro tipos diferentes de nanoestructuras por microscopía de fuerzas atómicas ex-situ en muestras sin recubrir. Partiendo de la situación más común de los puntos cuánticos representados en la figura 7.1(a), el resto de las nanoestructuras se obtienen, una vez formados los puntos cuánticos, por recubrimiento parcial de los mismos por una fina capa de GaAs. El resultado de este proceso es una nueva autoorganización del material que depende, entre otros factores, de la fuente de Arsénico utilizada (As_2 ó As_4) y de la temperatura de crecimiento. Más detalles sobre las condiciones de crecimiento y los procesos que dan lugar a unos y otros tipos de nanoestructuras se pueden encontrar en Granados *et al* [61]. La característica más importante desde el punto de vista de las propiedades

ópticas y electrónicas es, sin duda, la reducción de la altura y el aumento consiguiente del diámetro típico de las nanoestructuras. Como se observa en la figura 7.1, siguiendo el eje vertical de a) a d), los QRs pueden ser hasta cuatro veces más pequeños que los QDs en la dirección de crecimiento. La extensión lateral de los anillos es por el contrario mucho mayor que la de los puntos cuánticos con idéntica cantidad de InAs depositado. Ello provoca que el potencial de confinamiento sea diferente en unos y otros. Así, mientras que la transición fundamental excitónica de los anillos se encuentra en torno a 1.3 eV, dicha transición ocurre en los puntos cuánticos de InAs a unos 1.1 eV. Junto a esto, es evidente de la observación de las figuras que la simetría de las funciones de onda puede ser también muy distinta para un excitón confinado en un punto cuántico o en un anillo cuántico. Todo ello tendrá consecuencias en las propiedades ópticas y estructura electrónica como se verá más adelante.

Por último, hemos de recordar que las imágenes mostradas corresponden a muestras sin recubrir. En muestras o dispositivos no dedicados a la caracterización morfológica, las nanoestructuras son recubiertas completamente por diversas capas epitaxiales. La caracterización ex-situ por microscopía transversal de transmisión de electrones (X-TEM²) o de efecto túnel (X-STM³), puede revelar en estos casos cuál es la forma final de las nanoestructuras en las muestras recubiertas [fig. 7.2]. En general, se observa un truncamiento o achatamiento de los puntos cuánticos de manera que el cociente altura a diámetro es aproximadamente un tercio [pág. 60]. Para los anillos, por el momento, los resultados son escasos, aunque es generalmente aceptado que el intercambio In/Ga durante el recubrimiento puede ser importante en estos sistemas.

²De las siglas en inglés de *Cross-Sectional Transmission Electron Microscopy*.

³De las siglas en inglés de *Cross-Sectional Scanning Tunneling Microscopy*.

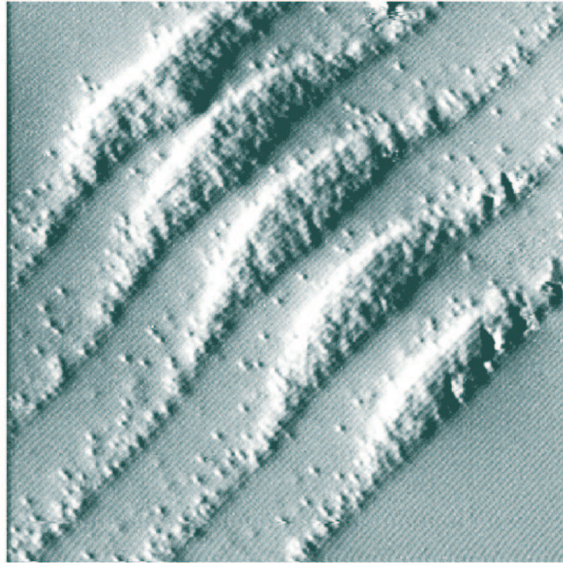


Figura 7.2: Imagen de microscopía de barrido de efecto túnel tomada en la sección transversal de una muestra que contiene varias capas de cajas cuánticas apiladas (X-STM). Tamaño de la imagen 55×55 nm. Reproducida de Koenraad *et al* [113].

7.1. Epitaxia

Todas las muestras estudiadas se han obtenido por el método de epitaxia de haces moleculares (MBE⁴) de fuente sólida. Puesto que el objetivo último de esta investigación es explotar las aplicaciones optoelectrónicas de dispositivos avanzados basados en las nanoestructuras, las muestras consisten de hecho en dispositivos Schottky de canal n. La capa que contiene las nanoestructuras (capa activa) se deposita durante la epitaxia de manera que se encuentre en la potencial zona de agotamiento del diodo [88, 87]. Los parámetros más importantes en este sentido son:

1. La distancia entre la capa activa y la zona altamente dopada tipo n. Esto determina en gran medida la probabilidad de que un electrón pueda ser transferido por efecto túnel desde una a otra zona del dispositivo [pág. 76].

⁴De las siglas en inglés de *Molecular Beam Epitaxy*.

2. La distancia entre la zona altamente dopada tipo n y la superficie de la muestra, donde se encuentra la barrera Schottky. Este parámetro influye en cuál va a ser la posición del nivel de Fermi respecto a los estados electrónicos de las nanoestructuras y por tanto nos permite diseñar las características eléctricas del dispositivo.
3. El perfil de dopado intencionado y residual en la muestra. En ausencia de dopado residual, es suficiente con considerar las distancias arriba mencionadas y el voltaje aplicado para determinar el perfil de potencial en la banda de conducción de un dispositivo de este tipo (*depletion approximation* [88, 87]). Sin embargo, como se verá más adelante, esto no es cierto en ningún modo si la muestra se halla inadvertidamente parcial o altamente compensada.

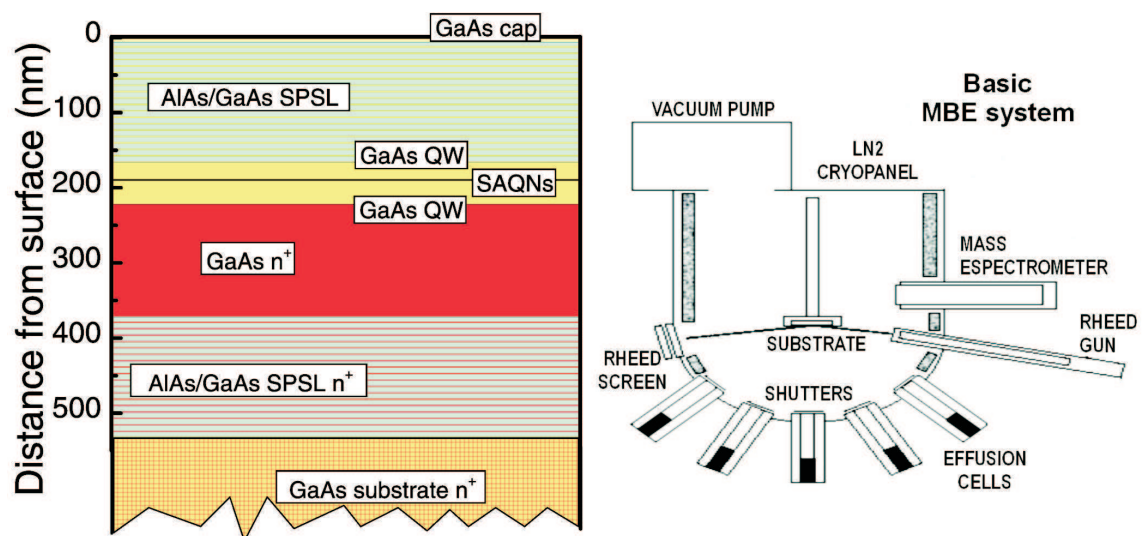


Figura 7.3: A la izquierda diagrama esquemático de la epitaxia realizada en las muestras. El eje vertical es exacto sólo para la muestra QR2. A la derecha un dibujo de una cámara de reacción MBE típica.

En la figura 7.3 se recoge un esquema de la epitaxia realizada junto a un diagrama de una cámara de reacción MBE típica. La epitaxia representada corresponde a la muestra que a partir de ahora llamaremos QR2, y que ha sido crecida y procesada

Tabla 7.1: Las dimensiones y composición de cada muestra se recogen en esta tabla. Los parámetros más importantes son t_d (ver texto), y la distancia total, t_{tot} , que separa el contacto posterior BC y la superficie de la muestra. SPS: Short Period Superlattice (B: Barrier), BC: Back contact, SL: Spacer Layer, CL: Capping Layer.

Muestra	Subs.	SPS	BC (GaAs:n ⁺)	t_b (GaAs:i)
QD1-UCSB	GaAs:i	AlAs:i/GaAs:i \rightarrow (20 Å + 20 Å) \times 160	200 Å	250 Å
QR1-UCSB	GaAs:i	–	200 Å	250 Å
QR2-IMM	GaAs:n ⁺	AlAs:n ⁺ /GaAs:n ⁺ \rightarrow (20 Å + 20 Å) \times 40	1500 Å	250 Å

Muestra	SAQN	SL (GaAs:i)	SPSB (AlAs:i/GaAs:i)	CL (GaAs:i)	t_{tot}
QD1-UCSB	QDots	300 Å	(30 Å + 10 Å) \times 29	40 Å	1750 Å
QR1-UCSB	QRings	300 Å	(30 Å + 10 Å) \times 29	40 Å	1750 Å
QR2-IMM	QRings	250 Å	(30 Å + 10 Å) \times 40	60 Å	2160 Å

en el IMM-CSIC. En este caso, sobre un sustrato de GaAs:n⁺ se depositaron sucesivamente una superred de período corto AlAs:n⁺/GaAs:n⁺ y una capa de GaAs:n⁺ dopadas con Si, $N_D = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. La superred servirá en este caso como capa tampón a fin de mejorar la calidad de las capas bidimensionales subsiguientes. La zona dopada de GaAs actuará como contacto posterior del dispositivo, y como veremos en la sección siguiente, ha de ser lo bastante gruesa como para permitir un procesado posterior sin problemas. A continuación, se depositan las capas de la zona intrínseca del dispositivo. La capa que actúa como barrera túnel es un pozo cuántico de GaAs:i de anchura t_b , sobre el que se forman las nanoestructuras de InAs por el método Stranski-Krastanow o autoensamblado. La cantidad depositada de InAs es de $\sim 1.7 \text{ ML}$ y el procedimiento particular varía según se pretenda formar puntos cuánticos (muestra QD1) o anillos cuánticos (muestras QR1 y QR2) [60, 61]. Una vez formadas, éstas se recubren con una capa espaciadora de GaAs:i que mejora la eficiencia de captura de los portadores en las nanoestructuras y una nueva superred de período corto AlAs:i/GaAs:i. Esta superred funciona como barrera para los portadores asegurando un acoplamiento puramente capacitivo entre el contacto

óhmico y la capa activa. Finalmente, la muestra se recubre con una capa protectora de GaAs:i para prevenir la oxidación de la misma.

En la tabla 7.1 se han reunido las dimensiones y composición características de las diferentes muestras. Las diferencias estriban principalmente en el tipo de sustrato y la anchura de la capa dopada de GaAs que forma el contacto posterior (BC). El perfil de dopado intencionado es importante tan sólo en esta capa, pues es el que va a determinar la posición del nivel de Fermi en las inmediaciones de la zona intrínseca. El dopado residual sin embargo, puede ser distinto según el origen de unas y otras. Este dopado es producto de la contaminación inadvertida de la cámara MBE (y por tanto dependiente de la cámara en cuestión) y puede ser de tipo p o de tipo n. Por debajo de $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, el dopado residual no juega un papel importante en las características eléctricas de la muestra, pero si éste aumenta es de esperar que las propiedades del dispositivo se vean afectadas.

Otro factor a tener en cuenta antes de pasar a la caracterización de las muestras, es el del tamaño y distribución de las nanoestructuras formadas. Las muestras con anillos cuánticos son similares en este sentido y las densidades superficiales promedio según la caracterización realizada por AFM son del orden de $\sim 1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [61] y $\sim 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [74] para QR1 y QR2, respectivamente. Respecto a su tamaño y forma, los anillos tienen una relación altura/diámetro muy pequeña. Típicos valores para estas magnitudes son $\sim 2 \text{ nm}$ y $\sim 80 \text{ nm}$. Por otro lado, la indentación central es de unos 20 nm de diámetro y una profundidad de hasta dos veces la altura antes de recubrir [61, 110, 114]. Durante el recubrimiento con la capa espaciadora de GaAs, el intercambio In/Ga no se detiene y diversas evidencias apuntan a que el perfil de composición lateral de estas nanoestructuras puede cambiar significativamente dando lugar a un núcleo *duro* de InAs rodeado de un área más extensa de InGaAs⁵[79]. La muestra QD1 contiene $\sim 5 \times 10^9$ puntos cuánticos por centímetro cuadrado. A pesar del aspecto que muestran las imágenes de AFM de la figura 7.1, los puntos cuánticos son mucho achatados tras ser recubiertos completamente con la capa SL de GaAs. Valores típicos para el diámetro y la altura en este caso son $\sim 20 \text{ nm}$ y

⁵J. M. García y D. Granados: comunicación privada.

~ 7 nm, respectivamente, cumpliéndose una relación h/D de aproximadamente un tercio.

7.2. Procesado

Una vez extraídas las muestras de la cámara de MBE, se han de procesar los contactos eléctricos. Dos son básicamente las operaciones que hay que llevar a cabo. Por un lado, la capa altamente dopada tipo n, BC, ha de ser contactada óhmicamente. Esto asegura una única zona de agotamiento en la región intrínseca, determinada por el voltaje aplicado al contacto Schottky en la superficie. La otra operación es obviamente la realización de dicho contacto Schottky, que, además, ha de ser semi-transparente para poder estudiar las propiedades ópticas de las nanoestructuras.

Diversas estrategias en creciente orden de complejidad son posibles para llevar a cabo estas dos tareas. Para el contacto óhmico es habitual calentar una pequeña porción de metal, depositada en la superficie limpia de la muestra mantenida en atmósfera de Nitrógeno, a una temperatura tal que, por percolación, alcance la capa n^+ posterior [fig. 7.4]. La temperatura óptima depende del metal y del tipo de muestra, pero es fácilmente reproducible y no suele causar problemas. Un ejemplo típico es In ó Au/Ge en GaAs tipo n, ó Au/Zn en GaAs tipo p, siendo la temperatura del proceso de unos 450 °C [105].

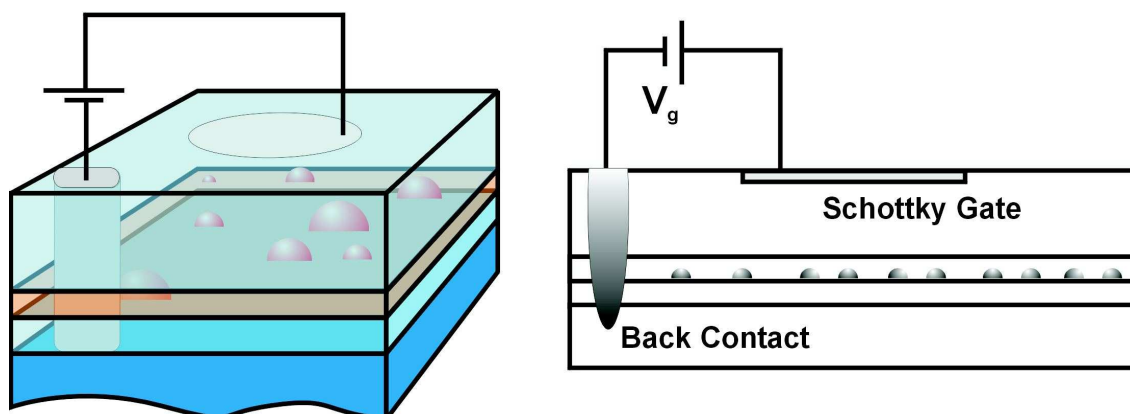


Figura 7.4: Diagrama esquemático de la configuración de los contactos en las muestras QD1 y QR1.

Respecto al procesado del contacto Schottky, el procedimiento usual incluye diferentes etapas de fotolitografía y evaporación de una o varias capas metálicas sobre la superficie de la muestra previamente limpiada y planarizada químicamente. La creación de un contacto Schottky de alta calidad requiere evitar la presencia de impurezas, tales como óxidos diversos, o defectos, tales como rayaduras, en la superficie de la muestra. De esta manera, el potencial de barrera entre el metal y el semiconductor sólo dependerá de propiedades intrínsecas de ambos, permitiendo reproducir los resultados obtenidos en diferentes muestras. Hoy en día, esto se puede conseguir rutinariamente en las condiciones de atmósfera controlada de una sala limpia dedicada al crecimiento y procesado de semiconductores. En el caso que nos ocupa, las muestras QD1 y QR1 comparten idénticas etapas de procesado similares a las recién descritas y recogidas en la tabla 7.2. En estas condiciones, el área activa del dispositivo queda definida por el área del contacto Schottky depositado en la superficie.

Por lo que respecta a la muestra QR2, ésta tiene algunas peculiaridades que pasamos a describir. El grupo de crecimiento del IMM, en trabajos previos realizados sobre muestras del mismo sustrato, ha constatado la presencia de un dopado residual tipo p que ha sido estimado en $\sim 10^{16} - 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Por ello, el procedimiento para realizar los contactos en esta muestra es más elaborado. El objetivo es reducir el posible impacto, que sobre las propiedades eléctricas del dispositivo, pueda tener este dopado residual. A tal fin, sobre la muestra se han procesado estructuras tipo *mesa*, de un diámetro ligeramente superior al del contacto Schottky. Dichas estructuras se obtienen por ataque químico vertical de la superficie de manera que quede expuesta en la zona atacada la capa n^+ BC [fig. 7.5]. A continuación, los contactos óhmicos y Schottky se realizan de la manera habitual por métodos litográficos y de evaporación. La idea detrás de este procedimiento es reducir al máximo las corrientes de pérdidas en la zona intrínseca asociadas a la carga libre proveniente de las impurezas residuales. Mediante el ataque químico, las cargas libres se reducen al volumen inmediatamente por debajo del contacto Schottky, aunque como veremos éstas son suficientes para alterar el comportamiento del diodo.

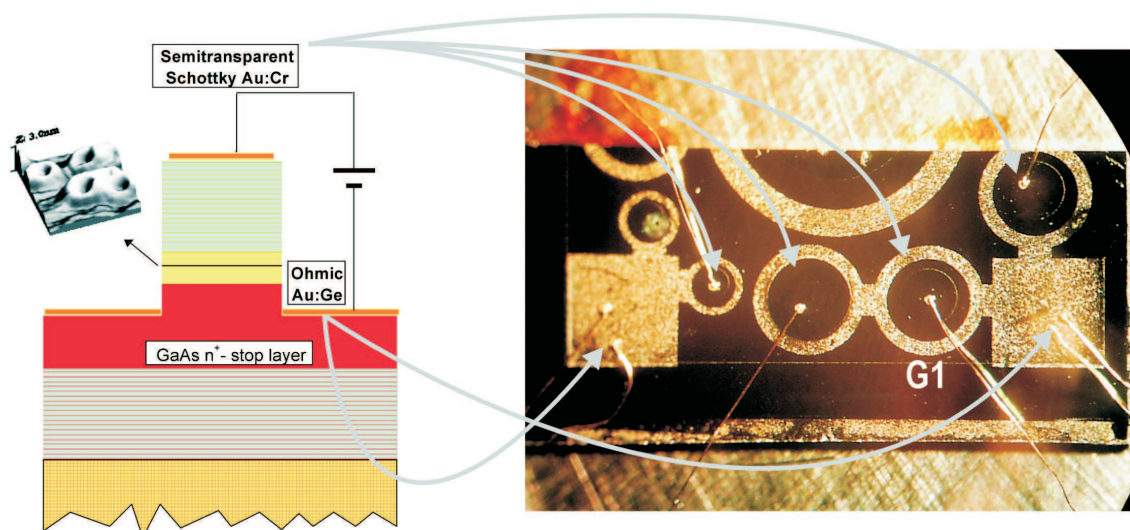


Figura 7.5: A la izquierda aspecto de la epitaxia de la muestra QR2 una vez realizadas las estructuras tipo *mesa*. A la derecha una fotografía de la muestra una vez terminado el procesado y encapsulamiento. Hasta cuatro contactos Schottky diferentes fueron contactados con éxito con hilos de oro de $25 \mu\text{m}$. El diodo G1 es el único accesible en las experiencias a 4 K.

Tabla 7.2: Características de los contactos procesados en las diferentes muestras. Las abreviaturas se refieren al método de calentamiento y difusión (dif.) o al método de evaporación (ev.).

Muestra	Óhmico	Schottky (ev.)	Área (mm^2)
QD1	In (dif.)	Ni:Cr:Au	~ 5
QR1	In (dif.)	Ni:Cr:Au	~ 5
QR2 (G1)	Au:Ge (ev.)	Au:Cr	~ 0.2

7.3. Caracterización electroóptica macroscópica I: C-V y P-C

En esta sección presentaremos los resultados más relevantes de la caracterización macroscópica, eléctrica y óptica, realizada en las diferentes muestras bajo diferentes condiciones de iluminación y a baja temperatura. En primer lugar, cabe discutir cuál es la motivación principal de dicho estudio. Las propiedades eléctricas de dispo-

sitivos basados en nanoestructuras cuánticas semiconductoras han recibido objeto de investigación desde la aparición de las mismas. En principio motivada por sus importantes aplicaciones, el estudio fundamental de las propiedades electrónicas de las nanoestructuras se ha visto beneficiado por la investigación realizada en estos dispositivos [115, 116, 117, 118]. En nuestro caso, y tal y como se ha mencionado anteriormente, la elección adecuada de la distancia entre la zona altamente dopada BC y las nanoestructuras, y entre éstas y la superficie, determina cuáles van a ser las características de la transferencia de carga en el dispositivo. Para un dispositivo ideal, a baja temperatura y en la zona de polarización inversa, dicha transferencia está dominada por el mecanismo intra-banda de efecto túnel que fue introducido en la sección 4.2 [pág. 76]. Otros mecanismos como la termoemisión, la corriente de avalancha, o la corriente por efecto túnel inter-banda (rotura Zéner), sólo son importantes a temperaturas elevadas (>100 K) y/o campos inversos elevados. En estas condiciones, la energía del nivel de Fermi, medida desde el borde de la banda de conducción, E_F , y a una distancia t_b de la capa altamente dopada n^+ , se puede escribir:

$$\frac{E_F}{e} \sim \frac{t_b}{t_{tot}} (V_g - V_b) \quad (7.1)$$

donde t_b y t_{tot} son las distancias introducidas en la tabla 7.1, V_g es el voltaje aplicado ($V_g < 0$ en polarización inversa), y V_b es el voltaje intrínseco del contacto Schottky que surge de la unión metal-semiconductor en equilibrio térmico.

A fin de esclarecer el origen de la expresión (7.1), en la figura 7.6 se ha representado el perfil de las bandas de energía en las inmediaciones de la capa activa calculado resolviendo iterativamente la ecuación de Poisson particularizada a la muestra QR2⁶. En ausencia de cargas libres en la zona intrínseca, y dado que el dopado del contacto óhmico es muy elevado, la diferencia de potencial existente entre los dos contactos disminuye de manera lineal a lo largo de la zona intrínseca⁷, cumpliéndose la ecua-

⁶Programa de cálculo por cortesía de G. Snyder, University of Notre Dame.

⁷El pequeño cambio en la pendiente existente entre la zona de la superred y la zona de GaAs:i es debido a una sobrevaloración de la densidad de estados en la capa de InAs debido a que el programa de cálculo utilizado sólo puede considerar capas bidimensionales. Dicho cambio de pendiente no es relevante para la discusión y es despreciable en este caso.

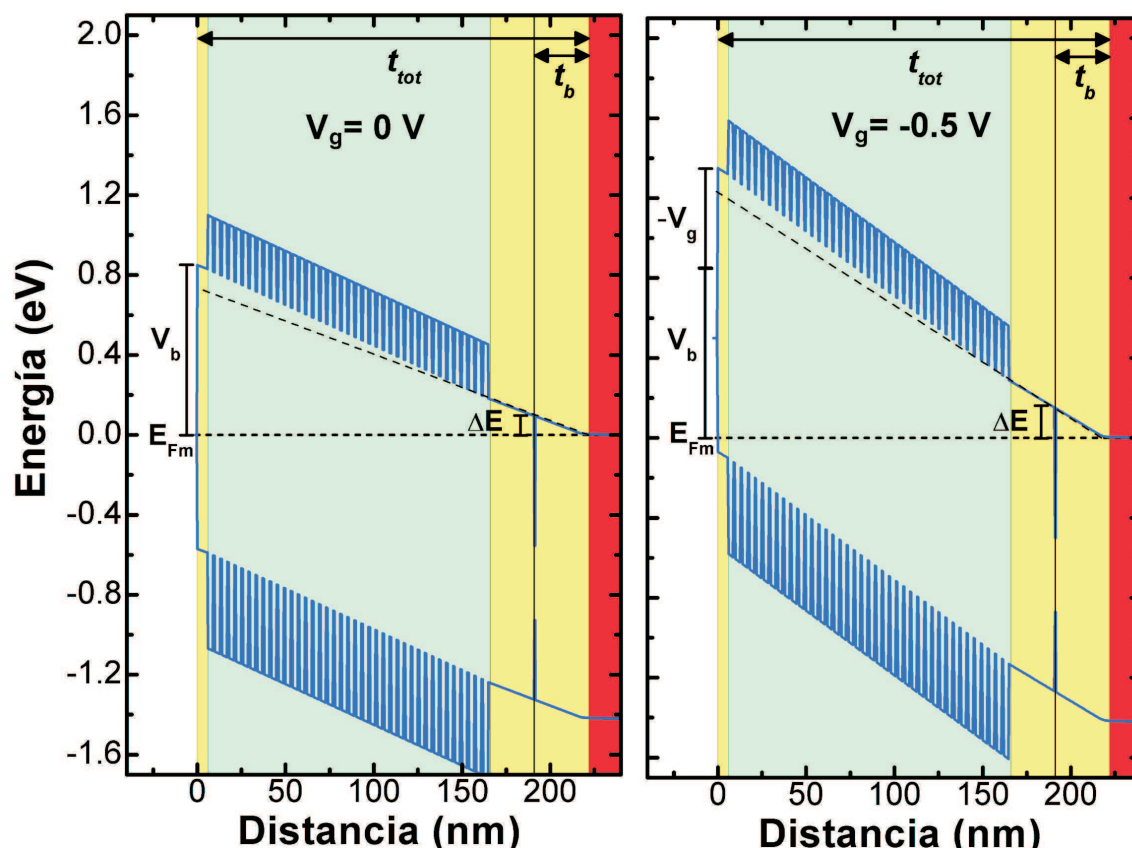


Figura 7.6: Resultado del cálculo del perfil de las bandas de conducción y de valencia en el punto Γ a lo largo de la dirección de crecimiento. La energía del nivel de Fermi y la extrapolación de una ley lineal con pendiente dada por la ecuación (7.1) se representan en línea punteada. El cálculo supone un dopado tipo n de $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $E_D = 6 \text{ meV}$ y $T = 10 \text{ K}$.

ción (7.1). Utilizando esta aproximación lineal, se han investigado las propiedades estáticas [115, 116, 117, 118] y dinámicas [119, 120] de los niveles electrónicos de la banda de conducción de cajas cuánticas autoensambladas. Recientemente, también se ha caracterizado la estructura electrónica de la banda de valencia en dispositivos con dopado tipo p [121], y la simetría de las funciones de onda se ha determinado estudiando la dependencia de la frecuencia de túnel en función de un campo magnético externo [122].

La característica C-V de un dispositivo cualquiera nos ofrece información valiosa sobre la distribución de la carga libre y fija en el mismo [105]. En nuestro caso, el

interés se centra en la variación de la carga libre transferida entre el contacto óhmico y las nanoestructuras. Bajo la aproximación lineal que estamos considerando, la aplicación de un voltaje inverso, V_g , produce una inclinación proporcional de la banda de conducción respecto al nivel de Fermi E_F que puede ser calculada por la expresión (7.1). En el caso en que la energía del nivel de Fermi sea resonante con un estado electrónico de una de las nanoestructuras de la capa activa, un electrón puede atravesar la barrera de potencial triangular y ocupar dicho estado con probabilidad dada por la ecuación (4.9)[fig. 7.7(a)]. El número de electrones que pueden ocupar un estado dado depende de la degeneración del mismo, y, en general, el voltaje necesario para que sucesivos electrones ocupen los estados disponibles en la nanoestructura va a depender de las energías de adición del confinamiento cuántico y de las interacciones coulombianas y de intercambio entre los propios electrones.

Si aplicamos un voltaje que varía armónicamente en el tiempo de la forma $V_g = V_{g_0} + \Delta V_m \sin \omega t$, con ΔV_m lo bastante pequeño, la situación estática descrita se convertirá en una oscilación de la carga entre el contacto óhmico y la nanoestructura cuando V_{g_0} sea cuasi-resonante con un nivel electrónico dado. La frecuencia de corte, $f_c = 2\pi\omega_c$, para la cual la carga ya no puede ser totalmente transferida en la mitad de un ciclo, dependerá de la probabilidad del efecto túnel, y, por tanto, de propiedades intrínsecas del sistema particular, que pueden ser así investigadas. Por otro lado, la corriente inducida debido a dicha transferencia de carga, $i(t) = dq/dt$, dependerá de la impedancia de baja señal del dispositivo y puede ser detectada sincronamente mediante el uso de un amplificador sintonizado.

En la figura 7.7 se han representado los espectros de capacitancia-voltaje (C-V) obtenidos en las muestras QD1 y QR1 a baja temperatura y en oscuridad. Los espectros de dicha figura han sido obtenidos ajustando la fase relativa entre la corriente inducida y el voltaje de referencia aplicado a 90° y por tanto la capacitancia de la muestra es investigada en este caso. En la figura 7.7(b) el modelo de baja señal del dispositivo se encuentra esquematizado. La capacidad C_{geo} es la capacidad geométrica del diodo Schottky y disminuye si t_{tot} aumenta, su valor es el responsable de la capacidad constante observada en los espectros para voltajes inversos elevados. En

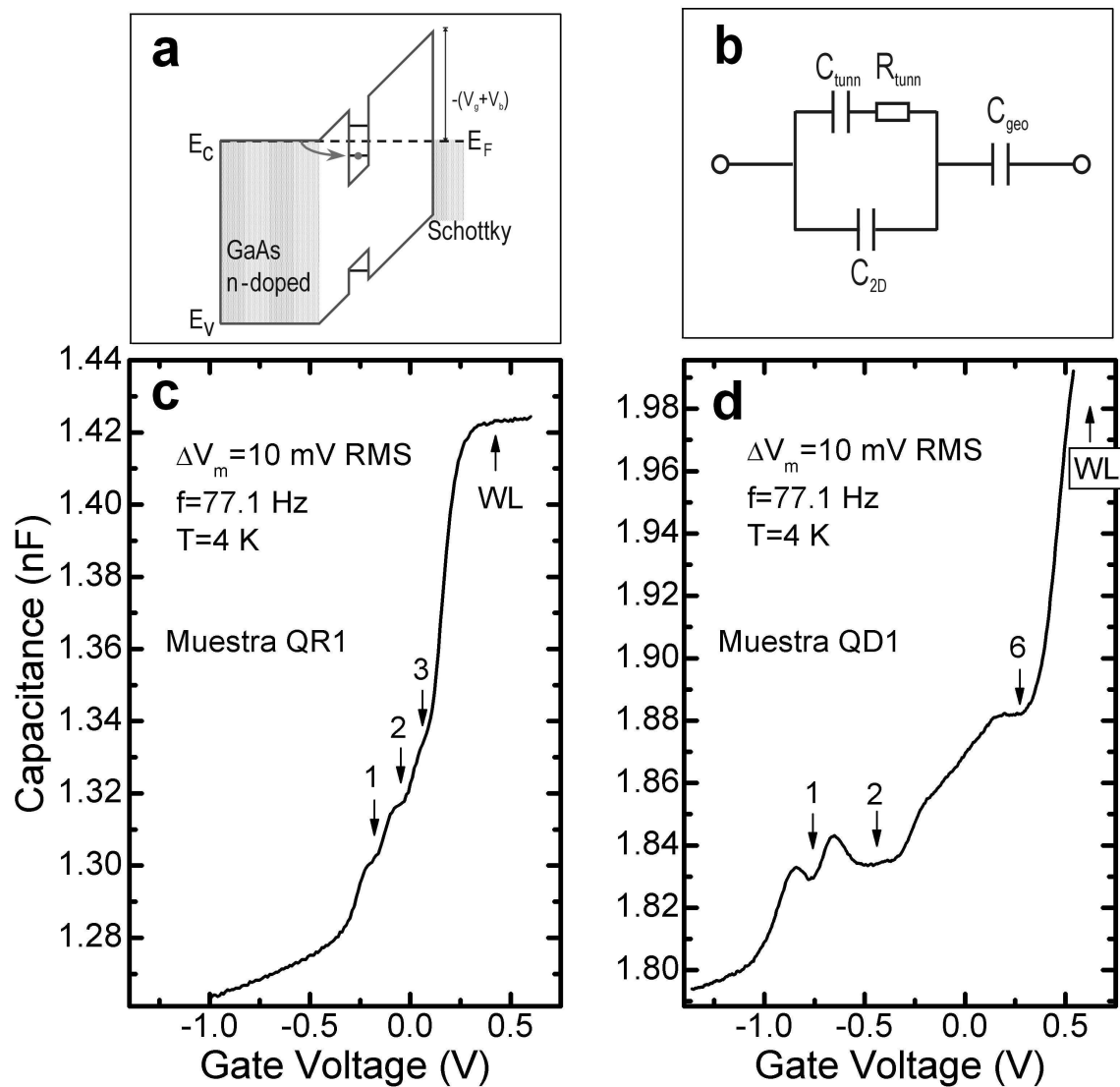


Figura 7.7: El mecanismo de transferencia de carga en nuestras muestras se representa esquemáticamente en a). El panel b) contiene un diagrama del modelo de baja señal que simula el dispositivo Schottky. Abajo, se muestran los espectros de capacitancia-voltaje en la oscuridad de las muestras QR1 y QD1. Los números sobre los espectros indican el número de ocupación promedio, N_e , a dicho voltaje.

segundo lugar, C_{2D} , resulta de la creación de un gas de electrones bidimensional cuando el voltaje aplicado es tal que los electrones son transferidos directamente a la capa mojante (WL) [pág 4.1]. Dicho proceso produce el aumento abrupto de la señal y posterior *plateau* en ~ 0.25 V en el caso de la muestra QR1 ó ~ 0.5 V

en la muestra QD1. Por último, R_{tunn} y C_{tunn} describen fenomenológicamente el proceso de carga y descarga de las nanoestructuras por efecto túnel con una constante de tiempo característica $\tau = R_{tunn}C_{tunn}$ que depende del estado particular [119, 120, 121].

De la discusión llevada a cabo, queda claro que el origen de los picos observados en los espectros de C-V se debe a la estructura electrónica de la banda de conducción de las nanoestructuras cuánticas estudiadas. Utilizando la ecuación (7.1) y los parámetros de la tabla 7.1, se pueden investigar las energías de confinamiento de dichos niveles en función del número de ocupación N_e . Para voltajes inversos elevados, el nivel de Fermi se encuentra por debajo del primer estado de la banda de conducción y la capacidad es puramente geométrica. Cuando el nivel de Fermi penetra en la banda de conducción varias resonancias pueden ser observadas.

En el caso de los puntos cuánticos, muestra QD1, el menor confinamiento en la dirección vertical ($h \sim 7$ nm) provoca que el número de estados ligados sea más elevado. En este caso, hasta seis electrones pueden ser alojados en los estados de la banda de conducción en cada una de estas nanoestructuras. Dos resonancias son claramente visibles en el rango -1.0 a -0.5 V, que corresponden, respectivamente, a la ocupación por un electrón del nivel fundamental y a la ocupación de dicho nivel por un segundo electrón. Si E_0 es la energía del estado fundamental dada por el confinamiento cuántico, la energía a la cual el segundo electrón atravesará la barrera de potencial será $E = E_0 + E_c^{ss}$, donde E_c^{ss} da cuenta de la energía de repulsión coulombiana entre ambos electrones introducida en la ecuación (5.20):

$$E_c^{ss} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{l_e}$$

Como se dijo entonces, l_e es la longitud efectiva característica del estado fundamental en estos puntos cuánticos [99, 123]. En nuestro caso, de la figura 7.7(b), $E_c^{ss} = 1/7\Delta V_g \sim 28$ meV e introduciendo $\epsilon_r(InAs) = 15.5$ en la ecuación (7.3), resulta $l_e \sim 4.2$ nm. Por encima de $V_g = -0.5$ V, nuevas resonancias son observadas en el espectro de C-V de esta muestra. Dichas resonancias son atribuidas a los estados excitados propios del potencial armónico descrito en la sección 5.4. Las resonancias observadas se hayan ensanchadas inhomogéneamente debido al tamaño finito del

dispositivo. Para una densidad superficial de $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, el área de los contactos nos informa que aproximadamente 5×10^7 nanoestructuras contribuyen a la señal detectada. En particular, esto impide resolver completamente los estados p en la muestra QD1 que, sin embargo, se pueden resolver individualmente en muestras con contactos adecuados más pequeños [99].

En el caso de los anillos cuánticos, se observan tres resonancias al aumentar el voltaje a $\sim -0.2 \text{ V}$, $\sim -0.07 \text{ V}$ y $\sim 0.06 \text{ V}$, respectivamente. Aumentando un poco más el voltaje, el nivel de Fermi se alinea rápidamente con el estado fundamental de la WL y la capacidad aumenta de manera drástica hasta alcanzar un máximo a $\sim 0.3 \text{ V}$. De la relación $e\Delta V = 7\Delta E_F$, válida para estas dos muestras, vemos que el primer estado electrónico en la muestra QR1 se encuentra a $\sim -71 \text{ meV}$ por debajo de la WL, mientras que el segundo y tercero se hallan a $\sim -53 \text{ meV}$ y $\sim -34 \text{ meV}$, respectivamente. El reducido tamaño de los anillos cuánticos ($h \sim 2 \text{ nm}$), provoca que los niveles discretos se encuentren relativamente cerca del continuo de la WL aun en ausencia de carga (confinamiento cuántico elevado). Debido a esto, la repulsión coulombiana entre los electrones desplaza rápidamente los estados superiores a un nivel de energía resonante con el continuo de la WL. En esta situación, no hay posibilidad de añadir nuevos electrones a la nanoestructura que den lugar a nuevas resonancias en el espectro de CV.

Describiremos a continuación los resultados obtenidos en la muestra QR2. En la figura 7.8 se ha representado el espectro de C-V a baja temperatura y en oscuridad, obtenido en condiciones similares a los de las otras muestras. Lo primero que cabe destacar es la disminución general de la capacitancia de la muestra en más de un orden de magnitud. En segundo lugar, el aumento de la señal debido a la transferencia de carga hacia la WL es apreciable a $\sim 1 \text{ V}$, aunque su pendiente es menor que en las otras muestras. Por último, no hay rastro de resonancias que puedan ser asociadas al túnel de electrones hacia estados ligados de la banda de conducción de los anillos en esta muestra. La reducida capacidad geométrica se ajusta aproximadamente a las diferencias en el área de los contactos en la muestra QR1 y la muestra QR2 [Tabla 7.2]. Pero la ausencia de resonancias en la zona de 0 V es más preocupante, habida

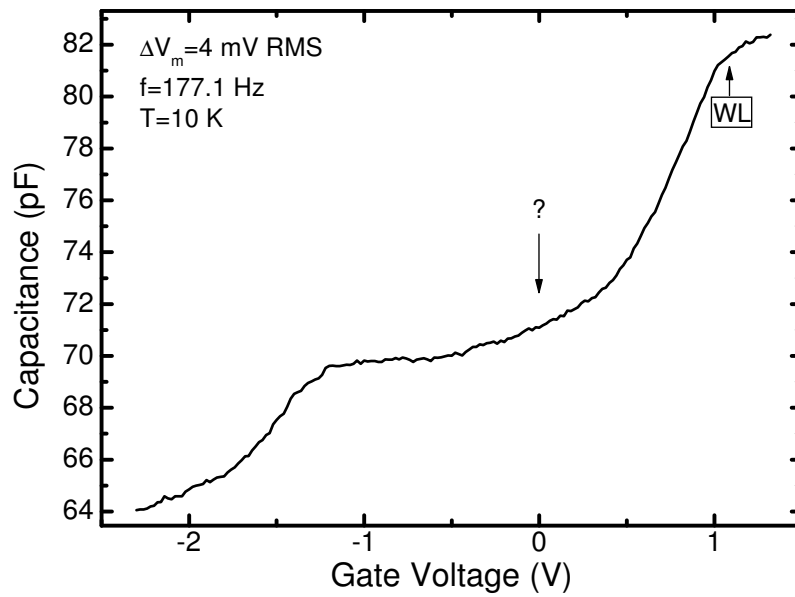


Figura 7.8: Espectro de C-V de la muestra QR2 en la oscuridad.

cuenta de que los anillos de una y otra muestra se sabe que tienen dimensiones y morfología muy parecidas.

Al igual que antes resolvimos la ec. de Poisson para calcular el perfil de las bandas de energía y justificar la validez de la ec. (7.1), ahora podemos hacer lo mismo, pero incluyendo un dopado residual tipo p, que, como sabemos, no es despreciable en la muestra QR2. La figura 7.9 muestra el resultado de dicho cálculo para dos valores elevados del dopado residual e indicados en la misma. Observando la figura, queda claro que la aproximación lineal deja de ser válida en este caso. Por un lado, la presencia de una carga fija de densidad volúmica N_A elevada, provoca la aparición de sendas zonas de agotamiento en las inmediaciones del contacto Schottky (unión metal/Semic.:p) y de la intercara GaAs:p/GaAs:n⁺ (unión p-n). Para valores crecientes del dopado residual entre $10^{16} - 10^{17}$ cm⁻³, el efecto es notable y las bandas se curvan de manera parabólica. En estas condiciones, incluso sin aplicar voltaje inverso alguno, la elevada curvatura de la banda de conducción provoca que el nivel de Fermi se halle por debajo de los niveles de energía de las nanoestructuras, inhibiendo la inyección de electrones por efecto túnel y, por tanto, la observación de las resonancias correspondientes. Es interesante notar que aun así, según se observa

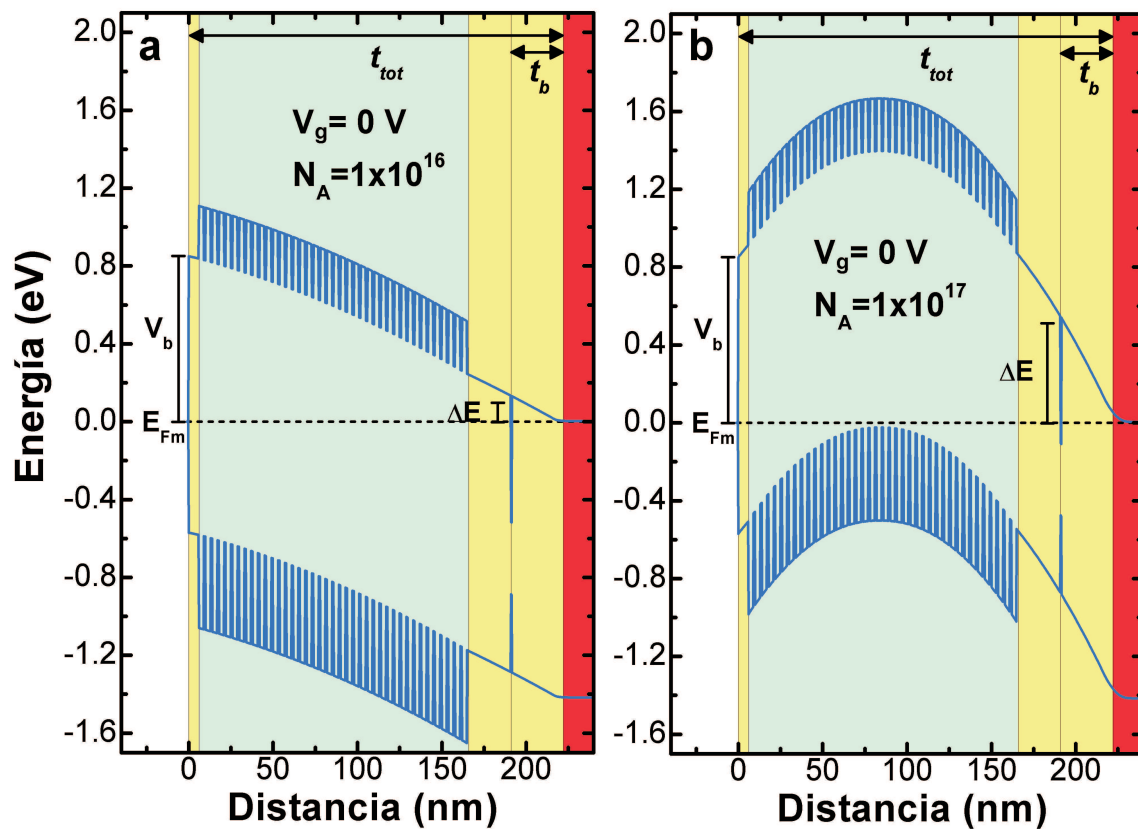


Figura 7.9: Resultado del cálculo del perfil de las bandas de conducción y de valencia en el punto Γ a lo largo de la dirección de crecimiento. El cálculo supone un dopado tipo n en la zona extrínseca con $N_D = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $E_D = 6 \text{ meV}$, y un dopado residual tipo p dado por N_A en cm^{-3} y $E_D = 30 \text{ meV}$ ($T = 10 \text{ K}$).

en la figura 7.8, la señal de capacitancia es distinta de cero. En este caso, dicha señal ha de estar relacionada con procesos de transferencia de carga no resonantes y mediatizados por las impurezas presentes en la capa activa.

La presencia de una concentración elevada de impurezas tipo p va a tener consecuencias adicionales en las características electroópticas del dispositivo. A fin de investigar las mismas, se han realizado en esta muestra experiencias de fotocorriente a longitud de onda de excitación fija (variando V_g) y a voltaje fijo (variando λ_{exc}). La fotocorriente en este caso, surge de la elevada tasa de recombinación que cabe esperar de los portadores fotogenerados por la luz incidente. Iluminando la muestra a través del contacto Schottky semitransparente con fotones de una energía $\sim E_g(\text{GaAs})$, un

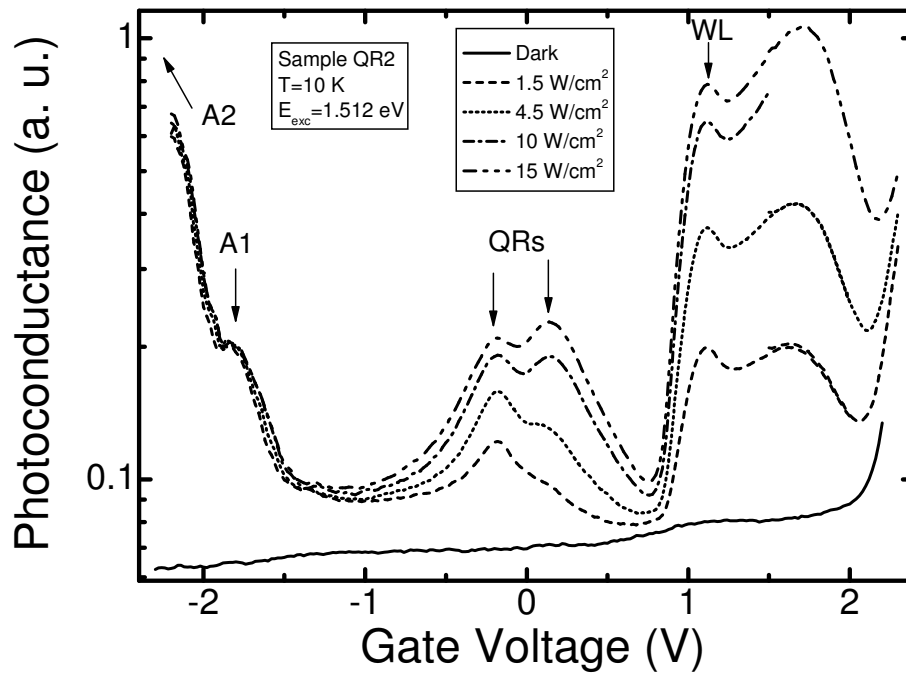


Figura 7.10: Espectros de fotocorriente a baja temperatura obtenidos en la muestra QR2 para distintas densidades de potencia.

número elevado de pares electrón-hueco dependiente de la densidad de excitación van a ser creados en la zona de GaAs anexa a las nanoestructuras. Dichos portadores van a recombinar radiativa y no radiativamente modificando, por un lado, la neutralidad de la zona activa y, por otro, generando luz en forma de fotoluminiscencia. Desafortunadamente, el cálculo de los perfiles de energía en presencia de portadores fuera de equilibrio no puede ser descrito adecuadamente por el sencillo programa de cálculo utilizado, y queda fuera del objetivo de esta tesis desarrollar un modelo capaz de simular dicho efecto. No obstante, la descripción cualitativa y razonada será suficiente a la vista de la evidencia de los resultados experimentales.

La figura 7.10 muestra diversos espectros de fotocorriente obtenidos excitando la muestra con fotones a ~ 1.52 eV y diversas potencias. Partiendo de la curva en oscuridad en línea continua, vemos que el diodo rectifica adecuadamente y la corriente aumenta exponencialmente para $V_g \gtrsim 2.1$ V. Sólo se aprecia un pequeño aumento de la corriente en torno a 1 V, que debemos asociar a la WL. La situación cambia

completamente al introducir portadores fotogenerados en la zona activa. La fotocorriente aumenta súbitamente a -1.5 V, en cuanto portadores fotogenerados son incorporados a la zona activa. En dicha región de voltaje, en las inmediaciones de la capa activa el dispositivo se comporta como un fotodiodo de unión p-n inversamente polarizado. Sin embargo, los pares electrón-hueco contribuyen de manera diferente a la señal observada. Mientras que los electrones son libres de viajar hacia la zona n desde la zona de agotamiento del diodo dando lugar a una fotocorriente, esto no es así para los huecos. La presencia de la superred de AlAs/GaAs, como se ha mencionado anteriormente, impide que los huecos puedan atravesar la distancia que los separa del contacto Schottky 7.11. Dichos huecos se acumulan irremediabilmente en la intercara entre la capa espaciadora de GaAs (SL) y la superred, modificando la neutralidad local del semiconductor. Esto es así debido a que los fotones incidentes son de una energía inferior a la banda prohibida de la superred y por tanto toda la generación de portadores tiene lugar en la capa activa. Estos huecos lógicamente no pueden permanecer indefinidamente acumulados y el equilibrio se alcanza porque parte de ellos recombinan radiativa y no radiativamente. Mientras que la recombinación radiativa dará lugar a señales de fotoluminiscencia que estudiaremos más adelante, los huecos que recombinan no radiativamente tienen un efecto beneficioso para nuestros fines. La presencia de una zona de agotamiento con impurezas aceptoras ionizadas es la responsable de que el comportamiento de la muestra QR2 sea anómalo respecto a lo visto en las otras dos muestras. Sin embargo, la gran cantidad de huecos fotogenerados es capaz de renormalizar la situación neutralizando dichas impurezas en la zona activa a bajas temperaturas. A esto hay que añadir que dichos huecos acumulados son capaces de apantallar eléctricamente la configuración electrostática presente en la superficie (intercara p-Schottky), lo cual aún redundará más en la *normalización* de la situación⁸ [fig. 7.11].

El resultado combinado de estos procesos es que ahora sí que son claramente visibles las resonancias asociadas a los niveles electrónicos de nuestras nanoestruc-

⁸Este efecto es parecido al que gobierna la acumulación de carga en un dispositivo MOS, tal y como fué descrito al discutir el funcionamiento de una CCD [pág. 48].

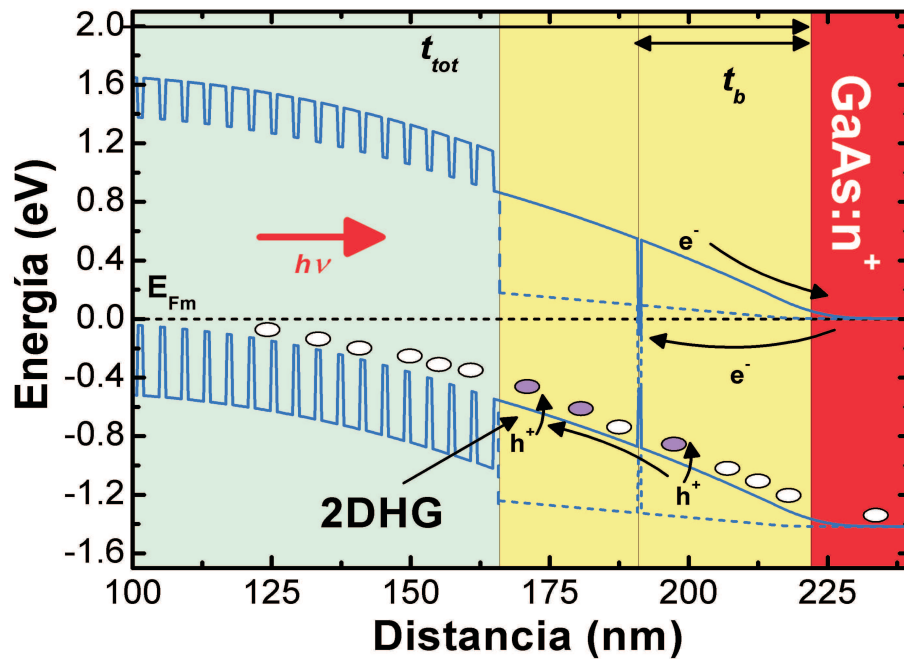


Figura 7.11: El mecanismo que explica la señal de fotocorriente en la muestra QR2 se ha esquematizado en este diagrama. Mientras que los electrones fotogenerados son capaces de alcanzar el contacto óhmico, los correspondientes huecos se acumulan en la vecindad de la superred dando lugar a un gas bidimensional de huecos (2DHG). Esto produce un doble efecto de neutralización y apantallamiento que permite que las resonancias asociadas a las nanoestructuras sean observadas. Los perfiles esquemáticos de las bandas de energía antes y después del apantallamiento se muestran en línea continua y discontinua, respectivamente.

turas. Tal y como se ve en la figura 7.10 la señal de fotocorriente contiene los picos esperados en la zona de 0 V asociados a la transferencia de carga resonante entre el contacto óhmico y los anillos [fig. 7.7(a)]. También ahora es claramente visible el máximo, ahora pronunciado, asociado a la WL a ~ 1 V. Por encima de dicho voltaje, un máximo de la fotocorriente a ~ 1.7 V podría ser debido al gas de electrones bidimensional asociado a los pozos cuánticos de GaAs que forman la capa activa, si bien su importancia no es primordial para esta discusión. Dado que el acoplamiento ahora no es de tipo capacitivo⁹, la señal detectada en la zona de las nanoestructu-

⁹Recordemos que estas medidas se realizan con detección sensible a la fase y $\phi = 0^\circ$, en este caso.

ras es proporcional a la tasa de recombinación de los portadores confinados en las mismas. Esto explica la dependencia observada con la densidad de excitación. Al aumentar la potencia, los niveles de más baja energía no son capaces de vaciarse completamente por recombinación radiativa o no radiativa y ello provoca el efecto de saturación del nivel fundamental que se observa en la figura 7.10 y que se conoce habitualmente como *band-filling*.

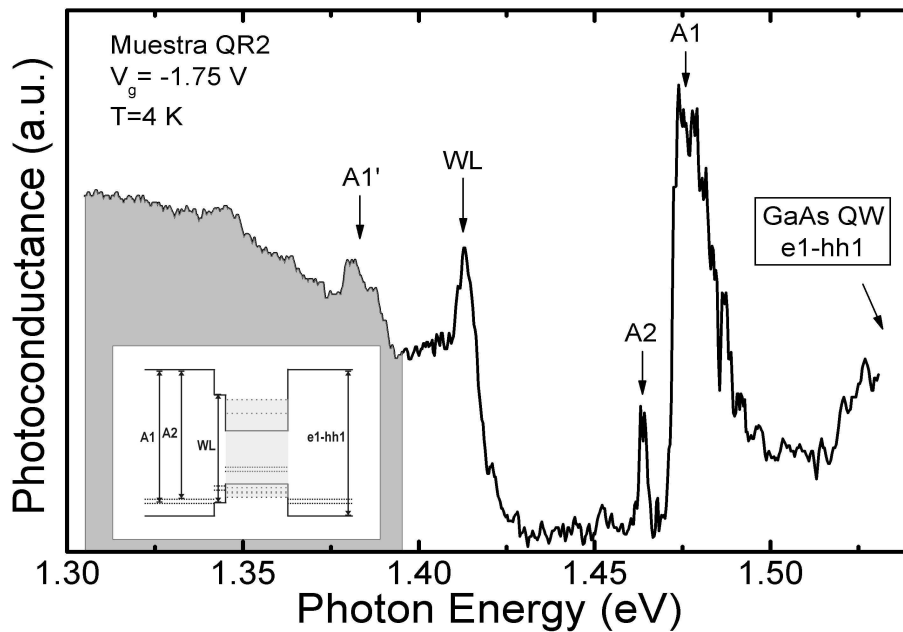


Figura 7.12: Espectro de fotocorriente en función de la energía de excitación de la luz y diagrama de bandas en la dirección de crecimiento de la muestra QR2 polarizada inversamente. El diámetro del área iluminada en este caso es $\sim 1 \mu\text{m}$, lo que explica la anchura reducida de las resonancias observadas.

Se puede obtener más información sobre el perfil de dopado en la muestra, estudiando la fotocorriente en polarización inversa en función de la energía de excitación. A tal fin, se ha utilizado el láser de Ti-Zafiro para sintonizar la longitud de onda de manera continua en el rango 810-950 nm, mientras se monitorizaba la fotocorriente con $V_g = -1.75$ V. Como se ha dicho, para este voltaje, el dispositivo se comporta como un fotodiodo y, por tanto, la señal de fotocorriente en la muestra reflejará la

respuesta espectral dependiente de la densidad de estados a cada energía. La figura 7.12 muestra el espectro obtenido, junto a un pequeño diagrama con las transiciones detectadas dibujadas sobre el perfil de las bandas de conducción y de valencia. Por debajo de la transición fundamental de la barrera de GaAs (energía a la que se obtuvieron los espectros de fotocorriente de la figura 7.10), se observan dos picos denotados como A1 y A2. No cabe ninguna duda después de la discusión llevada a cabo que dichos picos están asociados a niveles de impureza aceptores de la banda de valencia que contribuyen a la señal de fotocorriente a través de transiciones entre electrones libres y huecos ligados a esas impurezas. Tomando como referencia la banda prohibida del GaAs a baja temperatura $E_g(GaAs) = 1.515$ eV, dichos niveles se encuentran separados de éste, 40 y 52 meV, respectivamente. Estas energías de ionización son compatibles con un dopado tipo p por Si ($E_A \sim 34.5$ meV), para A1, y un dopado asociado a vacante sin identificar para A2, pero que resulta menos importante que el primero dada su intensidad. Esto nos permite finalmente identificar la fuente de dopado residual en nuestra cámara de reacción, habida cuenta de que el Si ha sido utilizado para dopar la zona n^+ del dispositivo. El hecho de que los niveles aceptores de Ge y Cd en GaAs se encuentren también en torno a 35 meV es menos significativo, dada la remota probabilidad que tienen dichos elementos de incorporarse a la cámara de crecimiento [105].

El resto de las transiciones observadas en la figura 7.12 corresponden a la absorción inter-banda en la WL y la transición electrón-aceptor neutro, A1', que involucra electrones confinados en la misma. Por debajo de esta transición, la señal de fotocorriente aumenta paulatinamente debido a la absorción en las cajas cuánticas, no observándose una estructura apreciable en las condiciones de este experimento.

7.4. Caracterización electroóptica macroscópica II: PL

Finalizaremos este capítulo mostrando los resultados obtenidos en experimentos de fotoluminiscencia convencional (no microscópica) en la muestra QR2. Las mues-

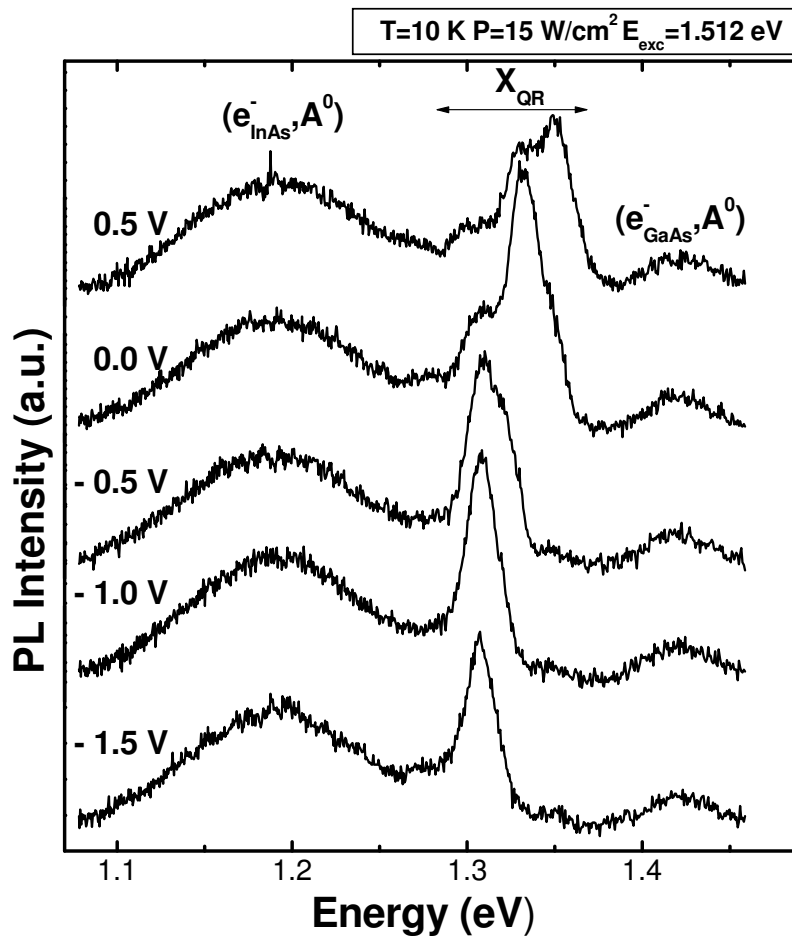


Figura 7.13: Espectros de fotoluminiscencia en función del voltaje externo aplicado en la muestra QR2.

tras QD1 y QR1 no aparecen en esta revisión pues dicha caracterización no se llevó a cabo en el laboratorio del Prof. K. Karrai en Munich donde las mismas fueron estudiadas. Respecto a la muestra QR2, la experiencia se realizó con excitación láser a 815 nm y colectando la luz emitida en un área de diámetro $\sim 40 \mu\text{m}$ en el interior del contacto Schottky semitransparente. La luz dispersada por un espectrómetro doble de 0.3 m ($\times 2$) es detectada por un fotomultiplicador refrigerado con fotocátodo tipo S1. En estas condiciones, y tal y como se describió en el apartado anterior, la luz incidente es absorbida totalmente en las inmediaciones de la zona activa, produciendo los mismos efectos, discutidos previamente, en relación al perfil de las bandas de energía. De esta manera, el efecto de un campo eléctrico externo sobre la emisión se

puede analizar y correlacionar con los resultados ya conocidos.

A tal fin, la figura 7.13 muestra los espectros de fotoluminiscencia obtenidos en la muestra QR2 a baja temperatura y diferentes voltajes aplicados. En primer lugar, observamos que el efecto del campo es muy diferente según la región del espectro considerada. En cada espectro representado, dos bandas de emisión, centradas en 1.425 eV y 1.19 eV, dominan la emisión a altas y bajas energías, respectivamente. La anchura, posición e intensidad de dichas bandas no varía en absoluto por la aplicación de un campo eléctrico externo. Por el contrario, la señal de fotoluminiscencia comprendida entre dichas bandas, depende fuertemente del voltaje aplicado pudiendo observarse hasta tres picos a ~ 1.35 eV, ~ 1.33 eV y ~ 1.30 eV para $V_g = +0.5$ V. Aunque la anchura de estos picos es prácticamente constante e igual a unos ~ 25 meV (FWHM), el máximo de cada uno se desplaza al variar el campo inverso aplicado al dispositivo. Igualmente, la intensidad relativa de unos y otros cambia cuando el voltaje externo lo hace.

La transición fundamental inter-banda de anillos cuánticos autoensamblados de InAs/GaAs de características similares se ha determinado experimentalmente de manera independiente y resulta ser igual a $E_{s-s} \sim 1.3$ eV [61, 74]. Por tanto, las resonancias observadas a dicha energía las atribuiremos a la recombinación radiativa de excitones confinados en nuestras cajas cuánticas y provenientes de los pares electrón-hueco fotogenerados en la capa activa. La presencia de las otras dos bandas, sin embargo, es inédita en este tipo de muestras y en consecuencia, hemos de atribuirla a un origen extrínseco y característico de nuestra muestra particular. Basándonos en la investigación llevada a cabo, parece razonable suponer que dichas bandas se deben a la presencia de impurezas aceptoras en el borde de la banda de valencia.

La recombinación radiativa de excitones ligados a impurezas neutras o ionizadas, o de pares electrón-hueco en las diversas combinaciones posibles para cada portador ligado o libre, son un fenómeno utilizado universalmente para la caracterización y evaluación de la calidad de muestras semiconductoras de todo tipo. En nuestro caso, habida cuenta de que dichas impurezas están presentes en concentraciones de hasta $\sim 1 \times 10^{17}$ cm $^{-3}$ en la región activa, es obvio que buena parte de la luz

emitida por la muestra está asociada a este tipo de recombinación. Sin embargo, ello no resta interés a los resultados que se puedan derivar al respecto, dada la escasa información disponible sobre los mecanismos de relajación y recombinación en nanoestructuras cuánticas eventualmente dopadas. Por ejemplo, si consideramos el caso de un excitón confinado en una nanoestructura y sometido al potencial de la impureza, la situación puede diferir sustancialmente de la misma situación en muestras en volumen o de confinamiento bidimensional. En particular, tal y como se ha deducido en la sección anterior, es de esperar que la mayor parte de las impurezas se hallen neutralizadas. En estas condiciones, el complejo (X, A^0) se puede considerar en muchos aspectos análogo a una molécula de hidrógeno H_2 . El cociente entre la energía de enlace del excitón, E_X , y la de ligadura de éste con la impureza, E_{X-A^0} , depende del ratio entre las masas efectivas de electrones y huecos pesados[5]. De ello deducimos que E_{X-A^0} ha de depender del potencial de confinamiento 3D que actúa sobre el excitón, así como de si se trata de un excitón neutro o cargado. Estos efectos sin embargo, no pueden ser observados en un experimento de PL donde el ensanchamiento inhomogéneo es elevado. La energía de enlace $E_b(A^0, X)$ medida en capas epitaxiales de InAs a baja temperatura es < 3 meV, la estructura fina asociada al complejo excitónico es de pocos cientos de μeV . Estos efectos no pueden ser observados en la PL de la figura 7.13, y de hecho sólo son claramente resueltos a 1.4 K en las capas epitaxiales mencionadas [124], pero cabe esperar que sean visibles si el ensanchamiento inhomogéneo es suprimido. Lo que sí es evidente en los espectros de la figura 7.13 es la contribución de las transiciones entre electrones confinados en nanoestructuras y huecos ligados a impureza (e, A^0) . La banda de emisión centrada en 1.19 eV tiene su origen en dichas transiciones electrón-aceptor, y constituye el 66% del total de la emisión integrada en estas condiciones. Ello compromete la eficiencia cuántica de la emisión asociada a las nanoestructuras como vamos a ver en los siguientes capítulos. De igual manera, la banda a 1.425 eV se debe a transiciones análogas en las que intervienen electrones de la barrera de GaAs.

A fin de investigar con más detalle los efectos producidos por el campo eléctrico en la zona donde la emisión está asociada a recombinación excitónica en las nanoes-

estructuras (electrón y hueco localizados), el experimento se ha repetido utilizando un fotomultiplicador de InGaAs:Cs optimizado para el conteo de fotones¹⁰[sec. 3.2.3]. La respuesta espectral del mismo no es suficiente para registrar la banda a 1.19 eV, pero a cambio la relación señal-ruido mejora considerablemente. La figura 7.14 muestra los diferentes espectros medidos en estas condiciones.

En dicha figura, los espectros de PL pueden ser comparados con el espectro de fotocorriente del panel superior adquirido en las mismas condiciones. Podemos observar entonces que las bandas de emisión asociadas a las nanoestructuras sufren los mayores cambios en la región de voltaje entre -0.5 y 0.5 V, justo donde ocurren los procesos de transferencia de carga según el espectro de PC. Por encima de 0.75 V, el nivel de Fermi se alinea con la WL y los electrones son inyectados en la misma por efecto túnel desde el contacto óhmico posterior. Por debajo de -0.75 V, el nivel de Fermi se haya a energías inferiores al estado fundamental de los electrones en la banda de conducción y la señal de fotocorriente proviene de electrones fotogenerados en la barrera que son arrastrados hacia el contacto óhmico por el campo eléctrico. Entre estos dos voltajes, las nanoestructuras se pueden cargar con electrones adicionales que penetran desde el contacto óhmico cuando el nivel de Fermi atraviesa un estado confinado dado. Se observan hasta tres picos entre 1.275 eV y 1.375 eV en los espectros de PL de las figuras 7.13 y 7.14(b). Dichos picos cambian de intensidad relativa al variar el voltaje en dicha región. Partiendo del espectro a -0.75 V, en la figura 7.14 vemos que el pico a 1.3 eV domina la emisión en este caso. A la derecha del mismo, un hombro a 1.32 eV y un pequeño pico a 1.35 eV completan la luminiscencia a dicho voltaje. Si disminuimos el voltaje inverso aplicado, la banda a 1.32 eV cobra importancia paulatinamente y domina el espectro de PL cuando el voltaje es -0.125 V. A dicho voltaje, el espectro de fotocorriente de la figura 7.13(a) acaba de pasar por un máximo que asumiremos que corresponde al alineamiento del nivel de Fermi con el primer estado excitado de la mayoría de las nanoestructuras.

¹⁰Las densidades de excitación a lo largo de todo este trabajo son lo suficientemente bajas como para prevenir corrientes en el dispositivo que puedan hacer peligrar su integridad, especialmente críticas en este caso debido al elevado dopado residual.

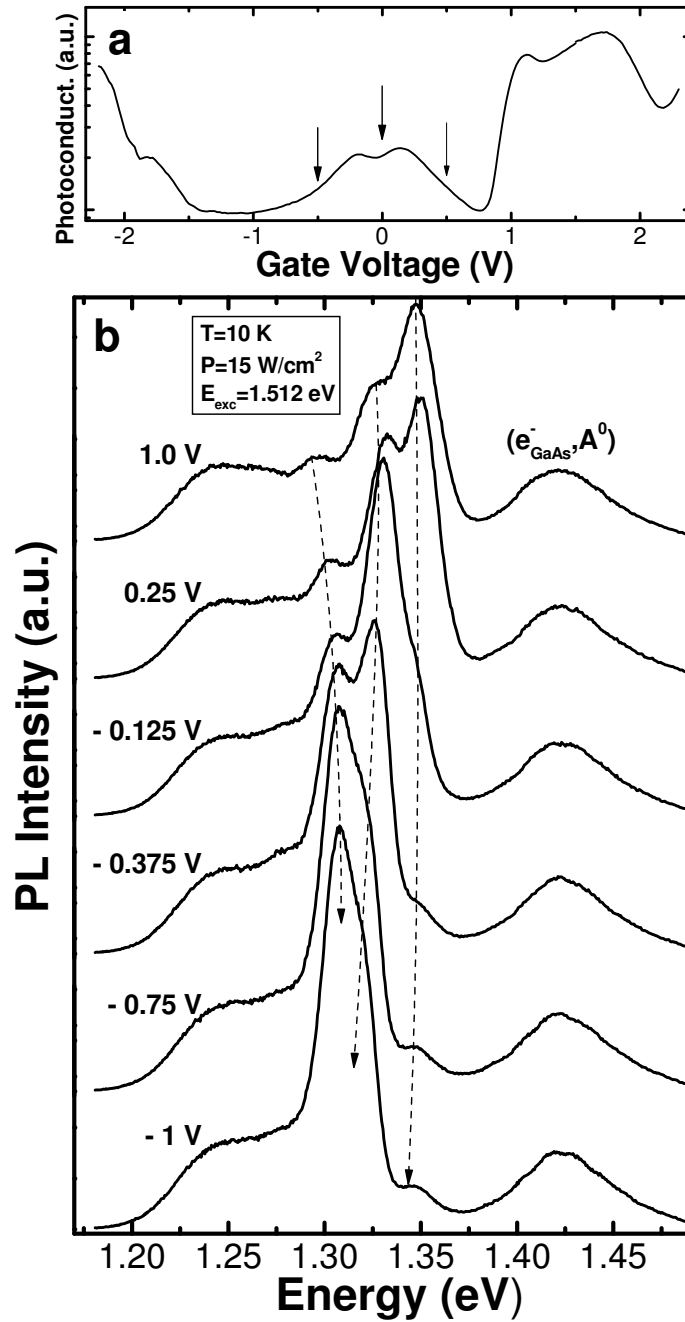


Figura 7.14: Espectros de fotoluminiscencia a baja temperatura para diferentes voltajes aplicados en la muestra QR2. Las líneas entre los espectros son una guía visual que señalan de manera aproximada la posición de los máximos de diferentes picos a cada voltaje. El panel superior recoge un espectro de fotocorriente adquirido en las mismas condiciones de excitación.

En esta situación, tanto el estado fundamental, como el primer estado excitado de la banda de conducción, se hayan en promedio ocupados simultáneamente. Lo mismo ocurre cuando el voltaje supera el segundo máximo del espectro de fotocorriente para $V_g = 0.25$ V y nuevos electrones ocupan los niveles superiores disponibles en la banda de conducción. Justo para ese voltaje, el máximo del espectro de fotoluminiscencia se desplaza hacia altas energías y ocurre a 1.35 eV. Como es de esperar, la situación a partir de ahí no cambia sustancialmente, como tampoco lo hace para voltajes menores de -0.75 V, pues la distribución de carga en las nanoestructuras es constante en ambos casos.

Uno ha de preguntarse en este punto, que tipo de complejos excitónicos dan lugar a los diferentes picos recién descritos. Existen varias posibilidades dependiendo del estado de ocupación de la banda de valencia. Si en promedio el número de huecos es igual a 1, las resonancias se hallarán asociadas a excitones cargados negativamente o neutros (X^0, X^{1-}, \dots), según el rango de voltaje considerado. Si el número de huecos es mayor que uno, la formación de complejos excitónicos de orden superior tales como biexcitones, biexcitones cargados, etc. . . ha de ser contemplada ($2X^0, 2X^{1-}, \dots$). Una tercera posibilidad, debida a la elevada ocupación de la banda de conducción, es la recombinación asociada a transiciones inter-banda con participación de estados excitados ($s-s, s-p, p-p \dots$).

Comenzando por la primera posibilidad, o de excitones cargados negativamente, la energía de repulsión coulombiana, $E_c^{ss} \sim 25$ meV, tal y como fue calculada a la vista de los experimentos de C-V en la muestra QD1 no tiene en cuenta la atracción electrón-hueco presente en el experimento de PL. Como veremos en el siguiente capítulo, cuando ésta es considerada, debido al dominio de los términos atractivos sobre los repulsivos en este caso, el excitón cargado con uno o más electrones es un complejo ligado que tiene una energía de enlace del orden de ~ -5 meV [74, 101]. Es improbable entonces que excitones cargados negativamente recombinando en su estado fundamental den lugar a un desplazamiento hacia altas energías de la PL como el observado. Lo mismo cabe decir de la recombinación biexcitónica, que es bien conocido que, en general, produce un desplazamiento hacia bajas energías y que

en este sistema particular ha sido determinada en ~ -2 meV [100]. Además, esta posibilidad puede ser descartada dada la reducida densidad de potencia empleada que asegura que en promedio sólo un hueco va a ser capturado en la nanoestructura en el tiempo de recombinación radiativa.

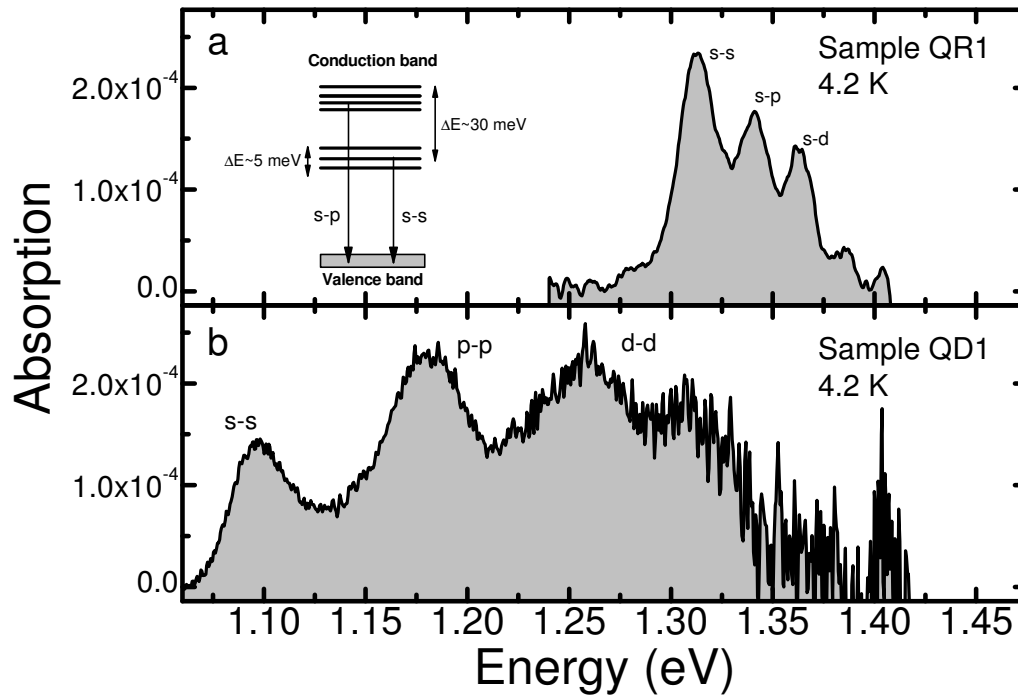


Figura 7.15: Espectros de absorción a baja temperatura de las muestras QR1 y QD1. Las diferentes transiciones ópticas inter-banda han sido etiquetadas en función de si involucran o no estados excitados de la banda de valencia. Datos por cortesía del Dr. Khaled Karrai (LMU Universität, Munich).

Por tanto, sólo nos queda contemplar la recombinación radiativa asociada a transiciones de orden superior al fundamental y cuya separación energética sea compatible con lo observado en PL. A tal fin, podemos incluir aquí los espectros de absorción de las muestras QR1 y QD1 realizados independientemente por H. Pettersson *et al* [125]. En la figura 7.15 se observan sendos espectros de absorción a baja temperatura junto a un pequeño diagrama de bandas con las transiciones relativas a la muestra QR1. Repitiendo el experimento de transmisión en función del campo magnético externo, se ha podido demostrar que los estados excitados del espectro de absorción de

la muestra que contiene anillos, no muestran una simetría claramente tipo p como si lo hacen los correspondientes a la muestra con puntos cuánticos. Ello parece indicar que las resonancias observadas en la figura 7.15(a) tienen una componente importante asociada a transiciones entre el estado fundamental de la banda de valencia y los diferentes estados de la banda de conducción dados por el confinamiento lateral, tal y como se ha representado en el diagrama de dicha figura. La estructura fina de cada estado asociada a la interacción coulombiana y de intercambio queda reflejada en el mismo diagrama, y sólo contribuyen a la anchura de cada pico pues no tienen el signo ni magnitud necesarios para explicar la separación existente entre los mismos como se ha comentado anteriormente. Dicho esto, el origen de las resonancias observadas en el experimento de fotoluminiscencia queda igualmente claro. El hecho de que la PL se realice a baja potencia, la separación y posición de los picos y la correlación con los experimentos de fotocorriente y absorción dejan pocas dudas al respecto. Asumiremos por tanto que los tres máximos observados en la banda de PL corresponden a transiciones entre subbandas diferentes del confinamiento lateral de nuestras cajas cuánticas. En el siguiente capítulo obtendremos nuevas evidencias a este respecto.

Antes de finalizar, aún podemos comentar otro hecho que hemos pasado por alto. En la discusión, no se ha mencionado la posibilidad de que familias de anillos de diferentes tamaños contribuyan a la señal de fotoluminiscencia exactamente a las energías de las resonancias observadas. Sin embargo, el comportamiento de la intensidad integrada de la banda de emisión descarta dicha posibilidad. En contraposición a lo observado en la muestra estudiada en la sección 4.2, no se observa en esta muestra un cambio apreciable de la intensidad integrada, siendo constante dentro de un 15% al variar el voltaje aplicado en todo el rango. Esto no podría ser así en caso de que familias de anillos de diferente tamaño se incorporasen sucesivamente a la banda de emisión. En dicho caso, o bien la intensidad integrada aumentaría paulatinamente y de manera aditiva con el número de cajas que contribuyen a la emisión, o bien hemos de suponer que los portadores de carga son transferidos eficientemente de unas cajas a otras. Dado que este efecto de túnel lateral es altamente improba-

ble en nuestra configuración de campo eléctrico vertical y baja densidad superficial, concluimos que la dinámica observada corresponde a una redistribución de la fuerza de oscilador entre las diferentes transiciones inter-banda de un mismo anillo, siendo constante el número total de excitones, como también el número promedio de huecos fotogenerados por la radiación incidente a potencia constante.

El resultado al que hemos llegado, aclara también la verdadera naturaleza de la intensa señal de fotocorriente detectada en esta muestra y estudiada en la sección anterior. Toda vez que el nivel de Fermi se alinea con un nivel excitado de la banda de conducción, nuevos electrones penetran en la nanoestructura y por lo que hemos visto recombinan radiativamente e inmediatamente con el nivel fundamental de la banda de valencia. La desaparición de electrones por este mecanismo, provoca un máximo en la señal de fotocorriente que es en consecuencia detectado a esa energía. El comportamiento de la fotocorriente con la densidad de excitación es un fiel reflejo del efecto de *band-filling* en dichos estados.

En conclusión, a la vista del resultado de diferentes experimentos, hemos identificado distintas transiciones ópticas inter-banda y las hemos asociado a la estructura de la banda de conducción de anillos cuánticos autoensamblados de InAs. Sin embargo, conceptualmente parece difícil de conciliar la observación de transiciones asociadas a estados excitados en presencia de un canal de más baja energía no saturado. En el régimen de confinamiento débil, tal y como fue introducido en la sección 5.5, varios electrones y un hueco confinados en la misma nanoestructura se hallan fuertemente correlacionados por las interacciones de Coulomb, y deberían recombinar radiativamente en el estado fundamental generando un fotón de energía ligeramente menor que la del excitón neutro. Alternativamente, en el régimen de confinamiento fuerte, electrones y huecos se hayan sólo ligeramente perturbados por las interacciones, varios canales de desintegración radiativa son posibles con probabilidad dada por la fuerza de oscilador de cada uno. La redistribución de la fuerza de oscilador entre las diferentes transiciones identificadas en el espectro de PL, es consistente con la existencia de dos canales con fuerza de oscilador similar pero modulada por la aplicación del campo eléctrico externo. Dicha modulación corresponde a la presencia

de electrones en exceso en el interior de la nanoestructura que llenan completamente los estados de baja energía en la banda de conducción. Una fuerza de oscilador elevada para transiciones inter-banda entre niveles excitados es necesaria para que la emisión radiativa de éstos sea apreciable. El experimento de transmisión de la figura 7.15 corrobora dicha interpretación pues sugiere similares intensidades para unas y otras transiciones. Concluimos por tanto que el comportamiento observado se debe al fuerte confinamiento de electrones y huecos en nuestras nanoestructuras. A la vista de este resultado, las energías de la interacción directa y de intercambio de Coulomb podrán ser analizadas con los modelos perturbativos introducidos en la sección 5.4, tal y como veremos en el estudio microscópico de las muestras que mostraremos a continuación.

Capítulo 8

Espectroscopía óptica de emisión de nanoestructuras cuánticas aisladas: μ PL y μ PLe

En los capítulos anteriores hemos visto el considerable esfuerzo que hay que realizar para, primero fabricar, y luego caracterizar, muestras y dispositivos que contengan nanoestructuras cuánticas autoensambladas de alta calidad. En este capítulo y el siguiente, llevaremos un poco más allá el grado de complejidad de los experimentos a fin de analizar las propiedades individuales de tales nanoestructuras. Para lograrlo, éstas serán analizadas con la ayuda del microscopio confocal de fibra óptica descrito en el capítulo 4, a baja temperatura (4 K), y por medio de diferentes experimentos de espectroscopía óptica. En el caso de la espectroscopía de emisión, la luz emitida ha de ser detectada mediante un detector multicanal de alta sensibilidad y bajo ruido, tal y como quedó claro en el capítulo 3. Esto restringe dicho estudio a las muestras QR1 y QR2, pues son las únicas que emiten luz en el rango adecuado para las cámaras CCD refrigeradas de altas prestaciones disponibles en el mercado.

8.1. Fotoluminiscencia de cajas cuánticas aisladas de InAs

8.1.1. Resolución espacial y propiedades individuales de cajas cuánticas de InAs

Para llevar a cabo la experiencia de fotoluminiscencia, la cabeza confocal del microscopio, que contiene la muestra, el sistema de posicionamiento y el objetivo, es introducida en un criostato de inmersión de Helio líquido montado sobre un soporte antivibratorio. El ajuste del microscopio a temperatura ambiente incluye la optimización de la distancia entre la superficie de la muestra y el objetivo a fin de cumplir la condición de foco, y la colocación del punto de iluminación sobre el contacto Schottky semitransparente deseado. La inspección visual, la señal de fotocorriente a temperatura ambiente del dispositivo y el contraste dado por el seccionamiento óptico axial del microscopio se emplean para realizar dicha tarea. Una vez introducido el microscopio en el criostato, el gradiente de temperatura existente modifica las distancias relativas debido al diferente coeficiente de dilatación de los materiales empleados, por tanto, ulteriores ajustes se han de llevar a cabo hasta alcanzar la temperatura de trabajo (4.2 K). En esta situación el punto de foco es estable sobre la muestra, como también lo es la distancia axial, y la caracterización puede realizarse sobre un área limitada sólo por la resolución del microscopio confocal.

Para una longitud de onda de 830 y 950 nm, la resolución lateral del objetivo en ausencia de aberraciones viene dada por el criterio de Rayleigh y la ecuación (A.14), y resulta $w_{Airy} = 784$ nm y $w_{Airy} = 876$ nm, respectivamente. Aquí, $NA=0.65$ es la apertura numérica del objetivo, y todavía un factor $\sqrt{2}$ puede ser aplicado a dichos valores para dar cuenta de la ganancia neta máxima de nuestro montaje confocal de fibra óptica¹ [pág. 30]. Respecto a la resolución axial, la ecuación (A.15) nos permite calcular la profundidad de foco de un objetivo como $d = z_{Airy}/4$ resultando de 1.9 a 2.3 μ m en el rango de longitudes de onda considerado. Sin embargo, en

¹Se opta por no aplicar dicho factor dado que el objetivo no se haya corregido cromáticamente.

este caso la ganancia de resolución axial asociada al estenope formado por el núcleo de la fibra sí que ha de ser tenido en cuenta. El objetivo de microscopio utilizado se haya optimizado para máxima transmisión y mínima aberración a 950 nm. En estas condiciones, la magnificación del objetivo sobre el plano de la fibra es tal que el modo fundamental de la misma se haya perfectamente acoplado. Tomando las ecuaciones (3.22) y (3.19) y sustituyendo el valor de la apertura numérica de la fibra y $V \sim 2.405$ (fibra monomodo), se puede calcular el radio del modo fundamental y consecuentemente del estenope. El resultado es que $r_0 \sim 2.2 \mu\text{m}$, o $v_p \sim 1.7$ u.o., y de la figura 3.5 se puede extraer el valor de $u_{1/2}$ que corresponde a la resolución axial confocal. El resultado es ~ 215 nm y da cuenta de la tremenda ganancia en términos de profundidad de foco obtenida por el seccionamiento óptico, pero también de la sensibilidad de la señal que cabe esperar de cualquier desplazamiento axial de la muestra.

La fibra monomodo utilizada en la experiencia de fotoluminiscencia está optimizada para operar a 950 nm cumpliéndose la condición monomodo entre 770 nm y 1020 nm aproximadamente. En dicho rango, sin embargo, la resolución lateral no es constante, debido a que el objetivo no es acromático, y se esperan desviaciones importantes en el diámetro de la PSF de excitación y colección, si éstas se encuentran alejadas. Más importante es la variación de la distancia focal, f , debida a la cromaticidad del objetivo. El efecto de seccionamiento óptico descrito provoca que optimizando f a una longitud de onda dada, la luz emitida desde la región activa (~ 500 nm de espesor) a esa longitud de onda y colectada por el objetivo (ec. (3.13)) penetrará en su mayor parte en la fibra, pero dicha eficiencia disminuirá rápidamente para longitudes de onda moderadamente alejadas de la de optimización. Esto restringe el rango de longitudes de onda útil, tanto en excitación como en colección, para un acoplamiento óptico del microscopio.

Otra consideración importante es el cálculo y medida de la densidad de potencia presente en el punto focalizado para un nivel de iluminación dado en la pupila de entrada del objetivo. Dicha magnitud se puede calcular a partir de la expresión (3.14). En nuestro montaje confocal (ver diagrama en la figura 8.1), parte de la luz

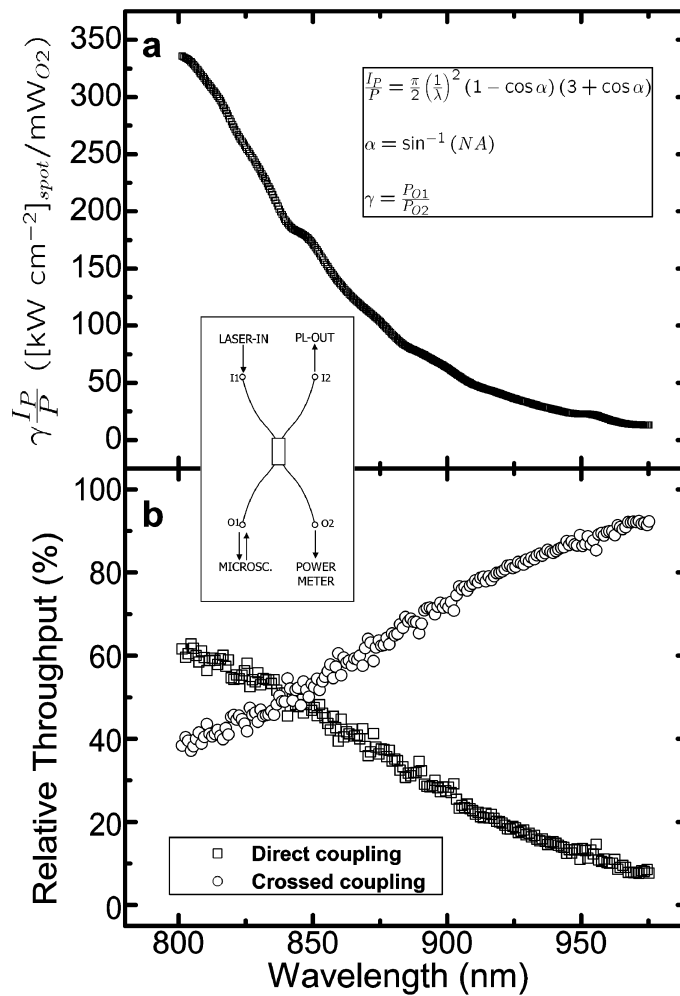


Figura 8.1: Curvas de calibración del sistema divisor de fibra+objetivo obtenidas variando la longitud de onda del láser de Ti-Zafiro acoplado al puerto I_1 y aplicando la ecuación (3.14).

láser enviada hacia la fibra que desciende hasta el objetivo, (O_1), es desviada por un divisor de fibra hacia un medidor de potencia calibrado (O_2). Ello nos permite, conocido el factor de acoplamiento, γ , en función de la longitud de onda, medir la densidad de potencia aproximada aplicada a la muestra de manera simultánea con la adquisición. En la figura 8.1(a) se ha representado la curva de conversión entre la potencia transmitida a través del puerto de fibra O_2 y la densidad de potencia correspondiente sobre la muestra². El divisor de fibra en si mismo tiene una respues-

²En dicho cálculo, la transmisión del objetivo, T , se ha considerado plana e igual a 1 en todo el rango de longitudes de onda cubierto.

ta espectral no despreciable como muestra la figura 8.1(b). La división de potencia sólo es al 50% para $\lambda = 845$ nm. Por debajo de esta longitud de onda la conexión directa (I_1-O_1) es más eficiente, mientras que para longitudes de onda superiores lo es la conexión cruzada (I_2-O_1). A la vista del resultado, se deduce que la configuración óptima para la experiencia de fotoluminiscencia es la que muestra el diagrama insertado en dicha figura.

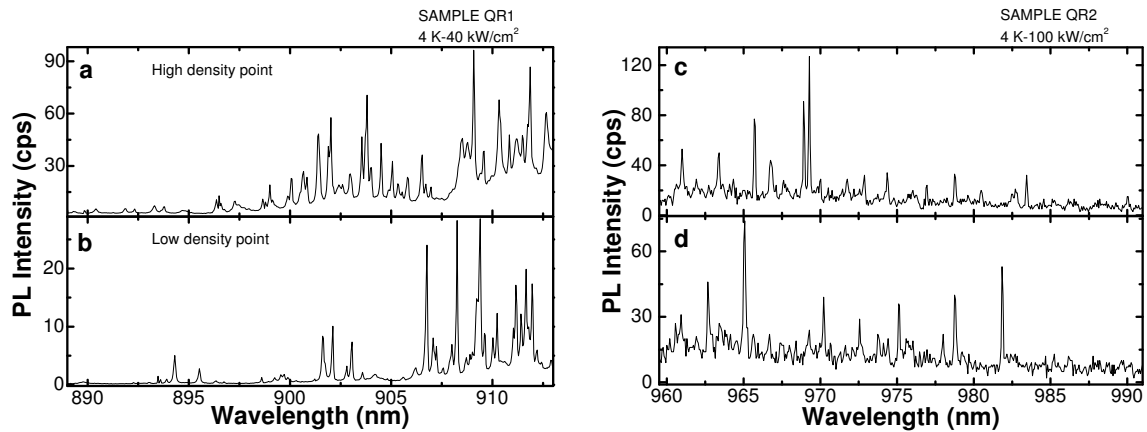


Figura 8.2: Espectros de micro-fotoluminiscencia a baja temperatura obtenidos en puntos diferentes de las muestras QR1 y QR2. La distribución y número de picos depende de la posición, tal y como corresponde a la emisión de nanoestructuras cuánticas individuales.

Calculada la resolución del microscopio, y conocida la densidad superficial de nuestras muestras, podemos estimar el número promedio de cajas cuánticas presentes en el área iluminada. Por ejemplo, tomando la muestra QR1 con una densidad de $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, el resultado es que hasta 30 cajas cuánticas pueden estar presentes en un área de $w_{Airy} = 876$ nm de diámetro. Sin embargo, por un lado, no cabe esperar que la muestra sea homogénea a dicho nivel de magnificación y además, debido al ensanchamiento inhomogéneo de la emisión, dichas cajas cuánticas individuales emitirán a diferentes energías. Ello nos permite discriminar espectralmente la emisión de diferentes cajas cuánticas a la vez que implica que el número de resonancias observadas en el espectro de fotoluminiscencia debe depender del rango de energía y de la posición³ [fig. 8.2]. A la vista de los espectros de la figura 8.2 queda demostrado

³Una prueba inequívoca de su carácter localizado y por tanto del origen de las mismas asociado

que disponemos de una herramienta para investigar la emisión de cajas cuánticas aisladas de InAs a baja temperatura.

8.1.2. Resolución espectral y propiedades individuales de cajas cuánticas de InAs

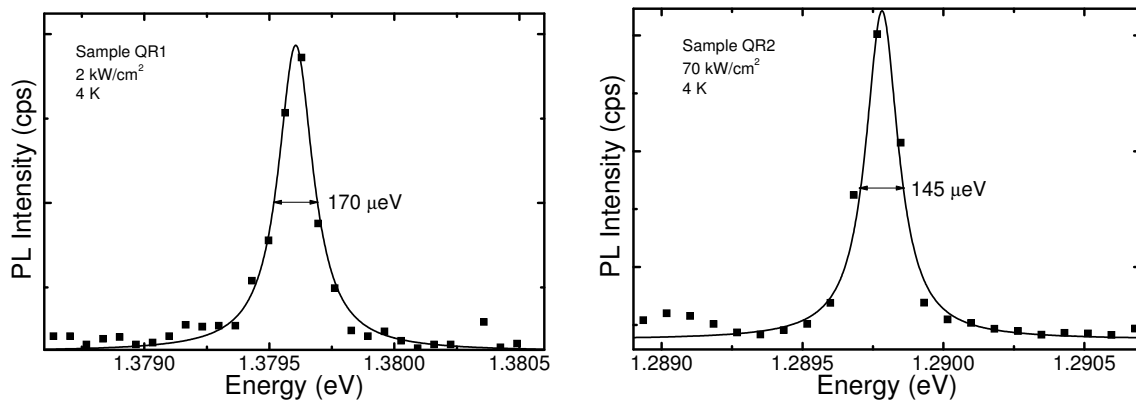


Figura 8.3: Dos ejemplos de ajuste lorentziano en dos resonancias excitónicas de las muestras QR1 y QR2. La anchura de línea está limitada por la resolución espectral del sistema de detección.

De manera general, la anchura observada en los espectros de μ PL responde a la resolución espectral de nuestro sistema de detección formado por espectrómetro y cámara CCD ($\sim 150 \mu\text{eV}$). Desviaciones sustanciales respecto a esta regla general (hacia mayores anchuras, obviamente), habrá que atribuir las a propiedades intrínsecas de las resonancias observadas. La anchura de línea homogénea de emisión de una transición óptica entre dos niveles discretos dados, es la de una curva lorentziana dada por la ecuación:

$$L(E_0, \Gamma) = C \frac{\Gamma}{4(E - E_0)^2 + \Gamma^2} \quad (8.1)$$

donde Γ corresponde a la anchura total a media altura de una lorentziana centrada en E_0 y amplitud máxima C/Γ . El valor de la constante C depende, entre otros, de la fuerza de oscilador de la transición, y será analizada con más detalle en el capítulo 9. Respecto a la anchura, sabemos que ésta va a depender de la coherencia y vida

a las nanoestructuras autoensambladas.

media del estado particular según la ecuación introducida en el capítulo 2:

$$\Gamma = \Gamma^r + \Gamma^{nr} + 2\gamma_{xd} \quad (8.2)$$

donde γ_{xd} da cuenta de aquellos procesos que afectan a la coherencia del estado, pero no a su tiempo de vida [4]. Despreciando el término de desfase puro⁴, γ_{xd} , dos son las fuentes de ensanchamiento de la línea homogénea de una resonancia dada. Por un lado, Γ^r da cuenta de la componente radiativa de la anchura de línea. Para excitones libres en su estado fundamental, se sabe que los tiempos de vida radiativos son del orden de 800 ps a 1.2 ns. Esto nos arroja una anchura debida sólo a decaimiento por radiación de $\Gamma_r = \hbar/\tau_r < 1 \mu\text{eV}$. Es obvio que para llegar a detectar éstas anchuras de línea nuestro espectrómetro es poco adecuado. En el caso de que el tiempo de vida del estado no se halle tan sólo limitado por radiación, varios mecanismos no radiativos competirán en la relajación de la energía. La contribución de Γ^{nr} puede aumentar la anchura de línea del estado hasta varias decenas o cientos de μeV . Dichos mecanismos son múltiples, incluyendo la relajación por interacción electrón-fonón, electrón-electrón, spin-núcleo, o electrón-plasmón, aunque no todos son aplicables en cada caso particular [23]. No obstante, para que dicho ensanchamiento sea observable en una emisión radiativa, debe ocurrir que el estado inicial decaiga radiativamente en un estado final excitado. El decaimiento no radiativo del estado final introduce una incertidumbre en la energía de la transición radiativa, que puede así ser monitorizada. Este tipo de convolución, pero a la inversa, es la que se realiza en un experimento de PLE, donde el estado excitado primero relaja su energía no radiativamente y luego un fotón es emitido desde el estado fundamental.

⁴Esta aproximación está justificada en nanoestructuras cuánticas a baja potencia pero no en pozos cuánticos como ha sido recientemente sugerido por Guest *et al* [27]. Una pequeña componente de desfase puro no afecta de todas maneras a nuestra descripción cualitativa por el momento.

8.1.3. Estudio general de la μ PL en función del campo eléctrico

Como ya sabemos, las nanoestructuras contempladas en este trabajo de investigación se encuentran en la zona activa de un dispositivo Schottky o de efecto campo. Esto nos permite estudiar los efectos de la aplicación de un campo eléctrico externo producidos sobre las propiedades ópticas y electrónicas de las nanoestructuras. A fin de poder comparar los resultados obtenidos en las muestras QR1 y QR2, y los de éstas con resultados anteriores que aparecen en la literatura, se han corregido los espectros correspondientes a la muestra QR2, eliminando la contribución debida a recombinación ligada a impurezas u otras contribuciones extrínsecas asociadas al dispositivo experimental y descritas en el apéndice B.

En la figura 8.4 se ha representado en diversas vistas la μ PL de la muestra QR2 a baja temperatura en función del voltaje aplicado. De estos espectros se pueden extraer las principales características ya discutidas a la vista de la fotoluminiscencia en configuración macro, junto con nuevos resultados no observados allí. Comenzando por el panel (a), observamos que la banda de emisión procedente de la recombinación excitónica en las nanoestructuras sólo es visible apreciablemente a partir de cierto voltaje cercano a 0 V. Incrementando el voltaje aplicado hasta ~ 1 V, la banda de emisión a 870 nm, correspondiente a la WL, es claramente visible en este panel y en la reconstrucción tridimensional del panel adyacente, (b). Para voltajes menores de 1 V, en la figura 8.4(c), vemos que la banda de emisión está compuesta de multitud de resonancias aisladas cuyo máximo puede resolverse independientemente, pero que colapsan más o menos a la mitad de su altura. El número de resonancias y su separación depende de la energía de emisión, y así, en los diferentes espectros de este panel, se distinguen hasta tres máximos de la envolvente centrados a 1.31 eV, 1.34 eV y 1.36 eV. La contribución a la intensidad de la emisión de cada uno de estos máximos depende del voltaje aplicado de manera que para voltajes menores la recombinación a longitudes de onda mayores es más intensa. Para voltajes superiores a 1 V, simultáneamente con la aparición de la WL en el espectro, observamos que

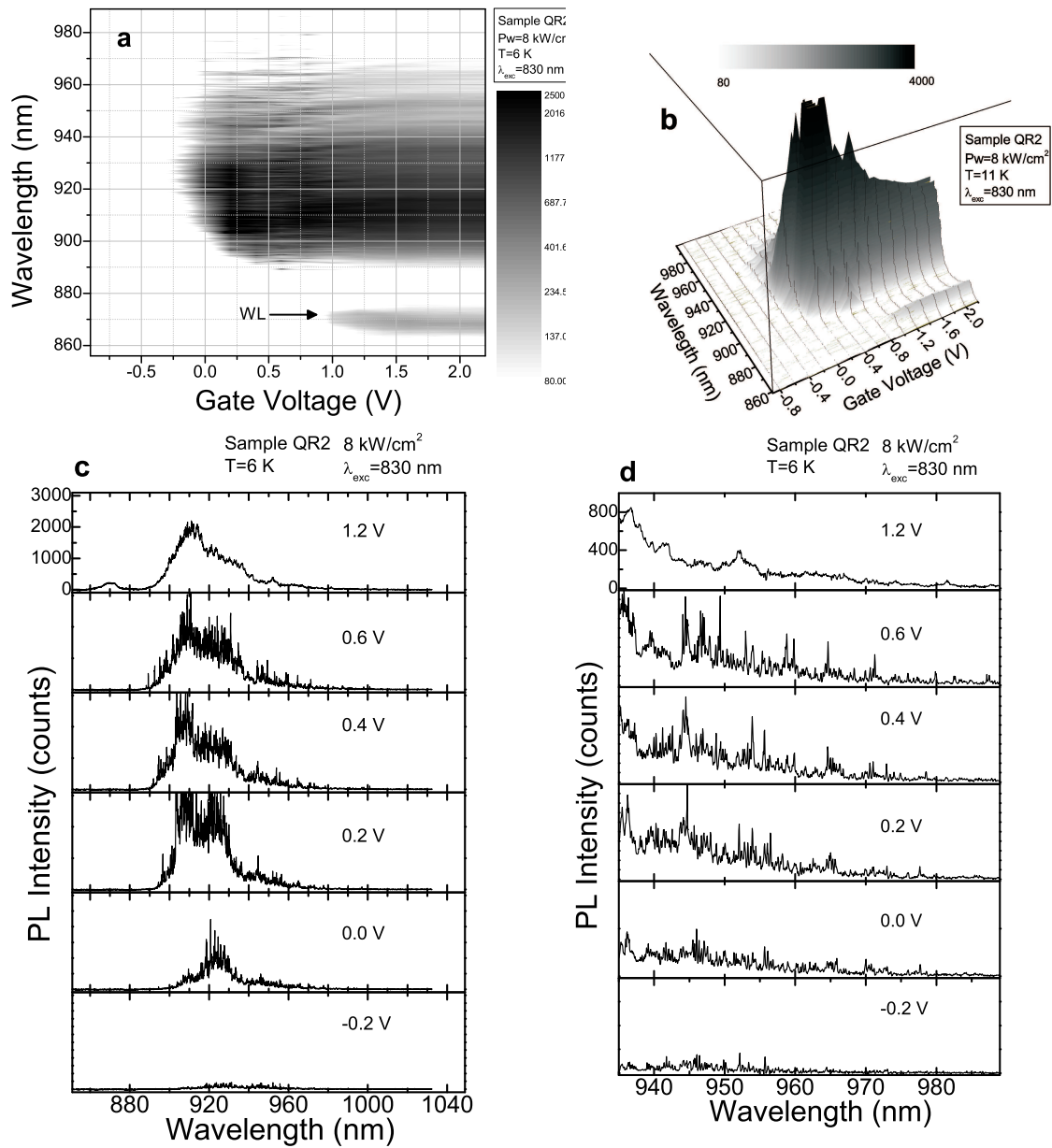


Figura 8.4: Espectros de μ PL en función del voltaje aplicado obtenidos en la muestra QR2 a baja potencia y temperatura. La emisión recogida en el mismo punto de la muestra en estas condiciones se ha representado de diversas maneras para facilitar la discusión.

las líneas de emisión individuales colapsan entre si en todo el rango de energía y la banda se convierte en una PL típica no confocal. En la figura 8.4(d) se muestra ampliada la zona de baja energía de los espectros representados en el panel (c).

La presencia de tres bandas de emisión que dependen del voltaje aplicado nos

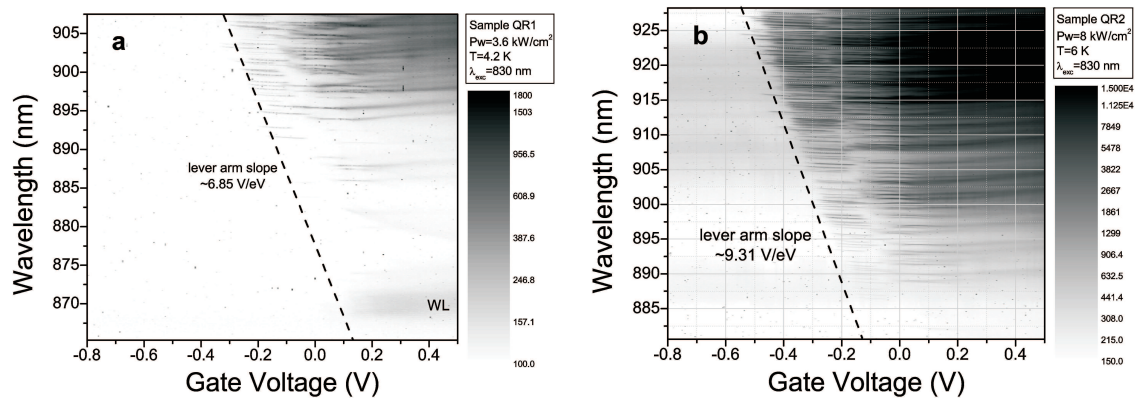


Figura 8.5: Cada panel contiene la μ PL en función del voltaje aplicado obtenidos en puntos diferentes de la muestra QR1.

es conocida y su origen se ha atribuido en el capítulo anterior a la recombinación radiativa entre diferentes niveles de la banda de conducción y el fundamental de la banda de valencia [pág. 140]. Se pueden encontrar nuevas evidencias que confirmen esta hipótesis del estudio de los espectros de μ PL. A potencia de excitación constante, vemos que la intensidad de cada banda depende de la posición del nivel de Fermi respecto al borde de la banda de conducción. Esto es así incluso para la WL, que ahora es visible, pero sólo cuando los electrones procedentes del contacto óhmico posterior son inyectados en la misma para formar un gas de electrones bidimensional. La mayor probabilidad de que hueco y electrón coincidan espacialmente resulta así en una fuerza de oscilador efectiva mayor para la WL. En el caso de las nanoestructuras, sin embargo, sólo un número limitado y reducido de electrones pueden coincidir en un anillo cuántico particular. En este caso, la modulación de la fuerza de oscilador ha de ser entendida atendiendo a las interacciones individuales electrón-electrón y electrón-hueco en un régimen de confinamiento elevado. Dichas interacciones pueden ser estudiadas analizando el comportamiento frente al campo de las líneas de μ PL individuales.

Antes de pasar a dicho estudio detallado, podemos comparar las características generales de la emisión de ambas muestras. Por razones históricas, la muestra QR1 sólo ha sido estudiada mediante μ PL en el rango de alta energía cercano a la WL,

pero esto nos sirve precisamente para investigar las transiciones excitadas. En la figura 8.5 se han incluido varias series de espectros obtenidos en diferentes puntos de esta muestra variando el voltaje aplicado al dispositivo. En la figura 8.5(a), la emisión asociada a recombinación excitónica en la WL aparece cuando el voltaje aplicado es ~ 0.15 V. Este voltaje es distinto del encontrado para la otra muestra, pero concuerda con los resultados de C-V y P-C de las muestras QR1 y QR2, respectivamente [figs. 7.7 y 7.10]. La diferencia en el voltaje para el cual los niveles electrónicos se alinean con el nivel de Fermi hay que atribuirla a un potencial de barrera Schottky diferente en ambas muestras [ec. (7.1)]. El procesado llevado a cabo en una y otra, y reflejado en la tabla 7.2, puede afectar también a este parámetro debido al diferente acondicionamiento de la superficie y al empleo de capas metálicas de diferente espesor. No obstante, hay que recordar que en la muestra QR2 la presencia de un dopado residual elevado modifica las propiedades de transferencia de carga desde y hacia el contacto óhmico. La dependencia entre la energía del nivel de Fermi y el voltaje aplicado puede no ser lineal en dicho caso.

Este no es el caso en la muestra QR1, tal y como se observa en los paneles (a) y (b) de la figura 8.5. El voltaje umbral para el que una determinada línea de emisión es visible y la longitud de onda a la que ésta tiene lugar, están relacionados linealmente en este rango de longitudes de onda. Aun más, la pendiente de dicha relación es prácticamente igual a la que se deriva de la ley de la palanca $e\Delta V_g/\Delta E_F = t_{tot}/t_b \sim 7$ en esta muestra. A priori, esto no tendría porque ser así y refuerza nuestra hipótesis como vamos a ver. Si E_{WL} y E_{PL_i} son las energías de emisión correspondientes a la WL y a una de las líneas observadas en dicho rango, respectivamente, se cumple que:

$$p = \frac{V_{WL} - V_{PL_i}}{E_{WL} - E_{PL_i}} = \frac{\Delta V_g}{\Delta E_{PL}} \sim \frac{\Delta V_g}{\Delta E_F} \quad (8.3)$$

o lo que es lo mismo, $\Delta E_{PL} \sim \Delta E_F$. Dado que E_F en esta expresión es la posición del nivel de Fermi desde el borde de la banda de conducción, la variación de la energía de la emisión se debe tan sólo a cambios de la energía correspondiente al electrón que participa en la transición. Esto implica como venimos anunciando, que la emisión en este rango de energía se debe a la inyección directa de electrones en

los niveles superiores de la banda de conducción que recombinan radiativamente, e inmediatamente, con el hueco presente en el nivel fundamental de la banda de valencia. Ello ocurre en competición con el canal radiativo del nivel fundamental y es consecuencia del *principio de exclusión de Pauli*, que impide que el electrón inyectado pueda relajar su energía hacia niveles de energía inferior [fig. 8.6].

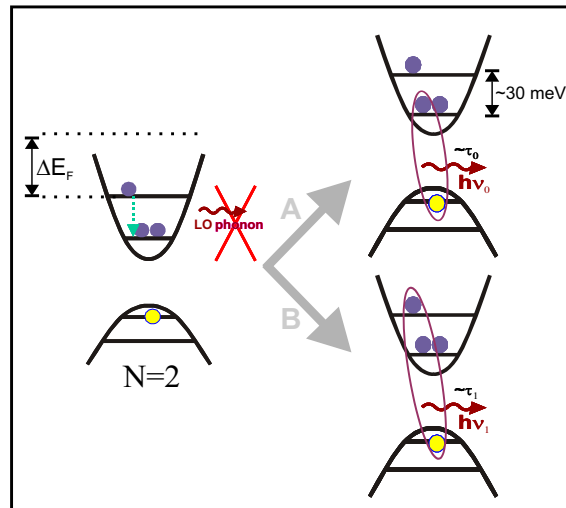


Figura 8.6: Esquema de los niveles de energía en un anillo cuántico con dos electrones en exceso y un par electrón-hueco. La ley de exclusión de Pauli impide que el electrón relaje su energía hacia el estado fundamental cuando es inyectado desde el contacto óhmico del dispositivo. En esta situación dos canales radiativos serán accesibles para la aniquilación del par electrón-hueco. El canal A genera un fotón de energía $E_0 = h\nu_0$ y deja tras de sí un estado excitado. El canal B genera un fotón de energía $E_1 > E_0$ y minimiza la energía del estado final.

Como veremos más adelante, conforme penetramos en la banda de luminiscencia hacia estados de menor energía, la pendiente dada por la relación entre la energía de transición del excitón neutro y el voltaje umbral aumenta, para terminar siendo independiente del campo ($p \rightarrow \infty$). En este punto, las primeras resonancias aparecen aproximadamente a un mismo voltaje, o cuanto menos no hay correlación apreciable entre las dos magnitudes. Esto es precisamente lo que cabe esperar de un cambio en la dinámica intra-banda. En este caso, para un voltaje inverso suficiente, el nivel de Fermi deja atrás el borde de la banda de conducción del InAs y el electrón atraviesa

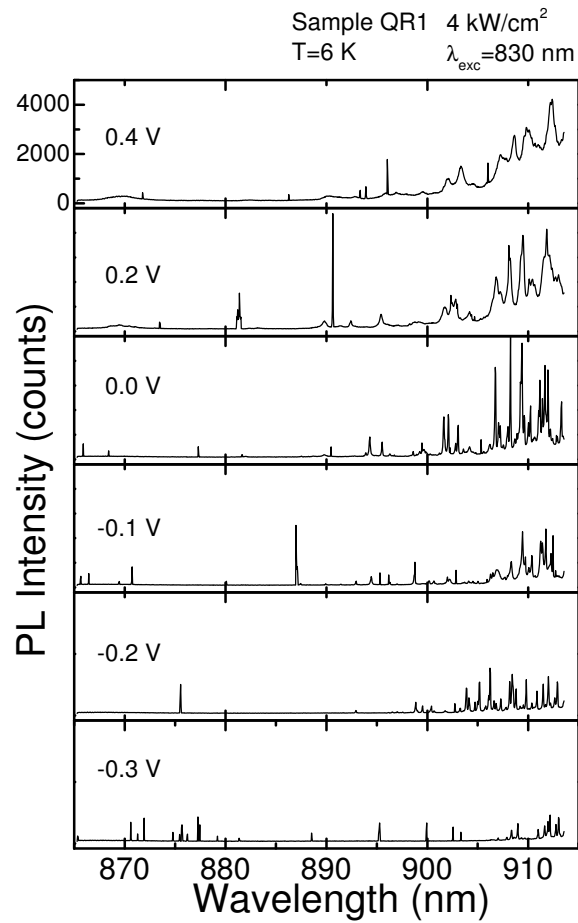


Figura 8.7: Espectros de μ PL en función del voltaje en la muestra QR1. En el rango de altas energías de la emisión el ensanchamiento de las líneas individuales es claramente visible para $V_g > 0.15$ V.

la barrera de potencial hacia el contacto óhmico antes de que pueda recombinar radiativamente. Para una distribución lo bastante homogénea, o para un rango de energías reducido, dicho voltaje de ionización está determinado por el tamaño de las nanoestructuras a través de la energía de adición del confinamiento, y resultará aproximadamente constante. Para acabar, la figura 8.7 muestra que, en este caso, y al igual que en la muestra QR2, cuando el voltaje inverso es lo bastante elevado, las resonancias individuales evolucionan hacia una banda menos estructurada.

8.1.4. Estudio detallado de la μ PL en función del campo eléctrico

Ahora nos hallamos en condiciones de estudiar los espectros de μ PL de nuestras nanoestructuras individuales. Con ello vamos a ver que las interacciones coulombianas y demás procesos intra e inter-banda puede ser estudiados de manera clara y precisa. Al contrario que en el apartado anterior, los espectros de este apartado no se han corregido en ningún modo y contienen la posible contribución asociada a la presencia de impurezas residuales. Dicha contribución será tratada en el apartado 8.1.5.

Zona de baja energía: Transiciones fundamentales

Consideremos en primer lugar qué es lo que ocurre en el extremo de baja energía de la banda de fotoluminiscencia. Basándonos en los resultados presentados hasta el momento, llegamos a la conclusión de que la emisión centrada en torno a 1.3 eV se debe a la recombinación excitónica fundamental de anillos de diferentes tamaños que cubre un rango de energía de ~ 25 meV (FWHM). Como se vió en la sección 8.1.1, si la densidad de la muestra es 5×10^9 cm $^{-2}$, aproximadamente 30 resonancias deberían ser visibles en ese rango. La figura 8.8 contiene los espectros de μ PL en función del voltaje aplicado en la muestra QR2. En ella se ha representado el rango de energías entre 1.3 eV y 1.24 eV, y corresponde por tanto a la cola de baja energía de la banda de emisión. En primer lugar, vemos que el número de resonancias es elevado. A simple vista, contamos unas 27 líneas individuales de alta intensidad, muchas más si contamos las que apenas se resuelven en el nivel de ruido. Este valor es el doble del que cabría esperar teniendo en cuenta que sólo está siendo analizada la mitad de la banda inhomogénea correspondiente a las transiciones fundamentales. Sin embargo, en la figura también observamos que las resonancias no se distribuyen de cualquier manera. Ignorando por el momento las líneas horizontales en la figura que persisten por debajo de ~ -0.2 V y que serán tratadas más adelante, vemos que, justo a ese voltaje, el número de líneas individuales aumenta súbitamente. Esto

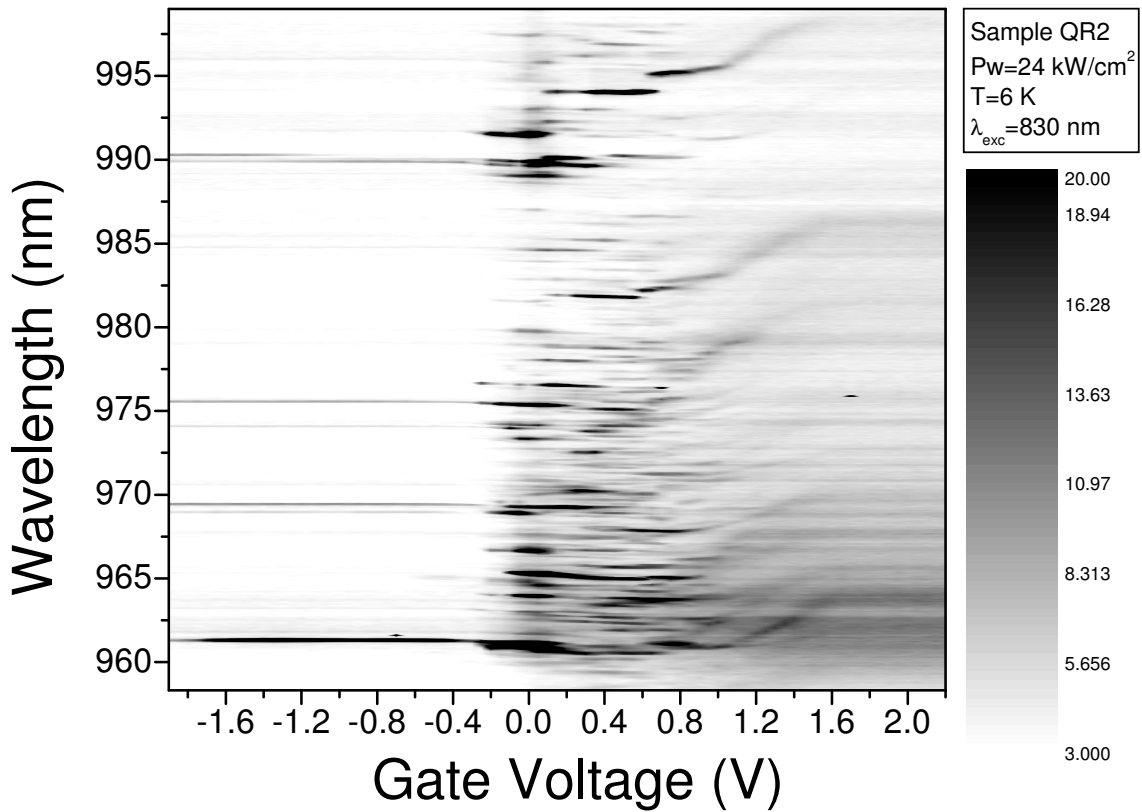


Figura 8.8: Espectros de μ PL obtenidos en la muestra QR2 en función del voltaje aplicado. La parte de baja energía de la banda contiene resonancias individuales asociadas a recombinación excitónica en el estado fundamental.

es lo que se predijo más arriba, contrastando con lo observado en la parte de alta energía de la banda y dejando patente las diferencias entre uno y otro rango. Por otro lado, las líneas tienden a aparecer agrupadas dibujando una serie de escalones. Esto es más evidente allí donde las resonancias se encuentran más aisladas.

En los diferentes paneles de la figura 8.9 se observa claramente lo que queremos decir. Para voltajes inversos elevados, la ecuación (4.9) de la página 76 predice que la probabilidad de que el electrón en el estado fundamental abandone la nanoestructura hacia el contacto óhmico es elevada. Reduciendo el voltaje inverso, la probabilidad de túnel disminuye y, en particular, se hace menor que la probabilidad de que el electrón y el hueco recombinen radiativamente⁵. En estas condiciones,

⁵La fuerza de oscilador de la transición no es independiente del campo aplicado. La variación de

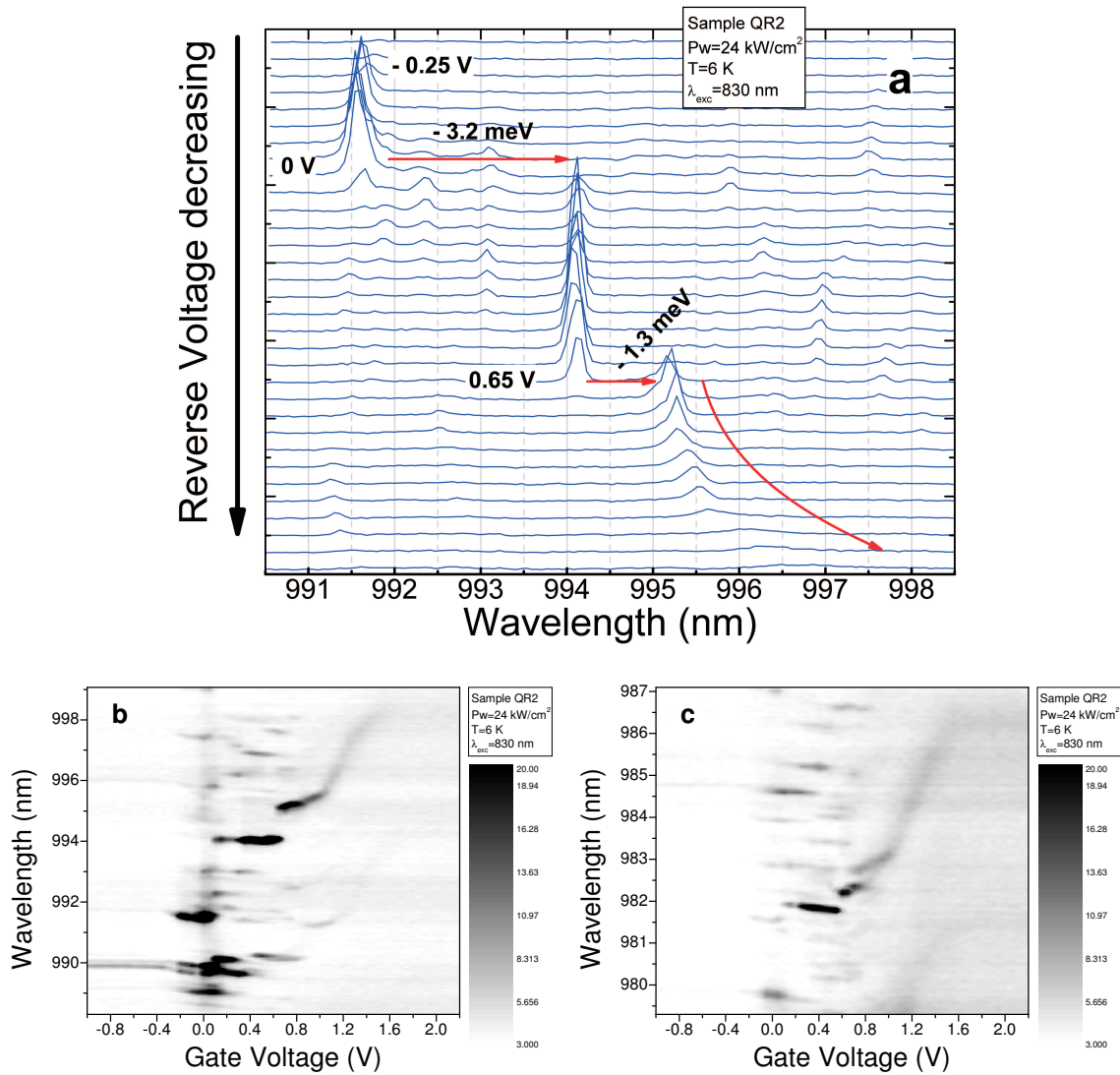


Figura 8.9: Detalle de los espectros de μ PL en la muestra QR2 de la figura 8.8. Las líneas de emisión del espectro no son todas independientes entre sí. Un sólo anillo cuántico da lugar a diferentes resonancias en función del voltaje aplicado. El panel (b) es un gráfico de líneas de contorno de los espectros en (a). El panel (c) corresponde a una nanoestructura diferente en el mismo punto de la muestra.

la línea de emisión correspondiente al excitón neutro comienza a ser visible. En la nanoestructura que da lugar a las líneas de emisión de la figura 8.9(a) esto ocurre para $V_g = -0.25 \text{ V}$. A partir de ahí, tal y como vimos en el capítulo 7, aumentan-

esta última es inversa a la de la probabilidad de efecto túnel. En virtud de ello, es la combinación de ambos efectos la que hay que tener en cuenta [sec. 4.2].

do el voltaje, un segundo electrón no penetrará en la nanoestructura hasta que la energía de repulsión coulombiana sea aportada por el campo electrostático externo. En nuestro caso, esto ocurre para $V_g = 0$ V y en ese momento la línea de emisión se desplaza hacia baja energía ~ 3.2 meV. En este punto, es conveniente que revisemos qué interacciones están presentes y dan lugar a este corrimiento hacia baja energía. En la nanoestructura se encuentran dos electrones y un hueco. La renormalización de la energía de los niveles electrónicos por las interacciones coulombianas impiden que el nuevo electrón abandone la nanoestructura hacia el contacto óhmico. Dichas interacciones son: la directa e_s-e_s , la directa e_s-h_s y la interacción de intercambio e_s-h_s . Esta última no será tenida en cuenta pues su contribución es menor que nuestra resolución espectral [100]. Las otras dos pueden calcularse en el marco del modelo perturbativo descrito en la sección 5.4. Por razones que quedarán claras un poco más tarde, vamos a proceder al cálculo de la energía de la transición en dos etapas, primero calculando la energía del estado inicial y luego la del estado final tras la recombinación radiativa. Para la transición correspondiente al excitón neutro, X^0 :

$$\begin{aligned} E_{X^0}^i &= E_e + E_h - E_{ss}^{eh} \\ E_{X^0}^f &= 0 \\ E^{X^0} &= \hbar\omega_{X^0} = E_g + (E_{X^0}^i - E_{X^0}^f) \end{aligned} \quad (8.4)$$

donde E_g es la energía correspondiente a la transición inter-banda fundamental en ausencia de confinamiento lateral y cargas, y E_i son las energías de adición del potencial armónico bidimensional para huecos y electrones. E_{ss}^{eh} es la energía de enlace entre e y h según se introdujo en el capítulo 5. El fotón que resulta de la desintegración del par electrón hueco porta una energía $E_g + (E^i - E^f)$. Para calcular el desplazamiento que cabe esperar para el excitón cargado con un electrón hemos de escribir:

$$\begin{aligned} E_{X^{1-}}^i &= (E_e + E_e) + E_h + E_{ss}^c - 2E_{ss}^{eh} \\ E_{X^{1-}}^f &= E_e \\ E^{X^{1-}} &= \hbar\omega_{X^{1-}} = E_g + (E_{X^{1-}}^i - E_{X^{1-}}^f) \end{aligned} \quad (8.5)$$

done se ha introducido la energía de repulsión entre los dos electrones del estado fundamental, E_{ss}^c . En estas condiciones, el desplazamiento de la transición interbanda

debido a la presencia del electrón adicional puede calcularse como:

$$\Delta E^{X^{1-}X^0} = E_{ss}^c - E_{ss}^{eh} = \frac{e^2\sqrt{\pi}}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \left[\frac{1}{\sqrt{2}l_e} - \frac{1}{\sqrt{l_e^2 + l_h^2}} \right] \quad (8.6)$$

Para comparar con el resultado experimental necesitamos conocer l_e y l_h . La longitud efectiva del electrón, l_e , puede ser calculada a partir de la frecuencia ω que resulta del confinamiento y la ecuación 5.19 [pág. 91]. En este modelo, los sucesivos estados excitados en ausencia de portadores se hallan separados del estado fundamental en cada banda una energía $E_{e,h} = \hbar\omega_{e,h}$ constante. De los resultados de PL en configuración macro y microscópica ya discutidos, y de los resultados de absorción representados en la figura 7.15 sabemos que esto se ajusta razonablemente a la realidad y $\hbar\omega_e \sim 30$ meV. Si $m_e^* = 0.023m_0$ es la masa efectiva del electrón en InAs, la longitud efectiva para el electrón resulta 10.5 nm. La repulsión coulombiana entre los electrones del estado s resulta así ~ 11.1 meV⁶ [ec. 5.20]. Para los huecos, sin embargo, no disponemos de información experimental suficiente para hacer un cálculo análogo, aunque cabe esperar que éstos se hallen mucho más localizados. No obstante, podemos hallar la relación entre la longitud de localización de electrón y hueco, a partir de la expresión (8.6), introduciendo el valor de l_e recién calculado y el valor experimental para el desplazamiento $\Delta E^{X^{1-}X^0} = -3.2$ meV. Haciéndolo tenemos que $l_e/l_h \sim 2.2$ que corresponde a una extensión para el hueco de unos 4.75 nm. Esta relación es bastante más asimétrica que en el caso de puntos cuánticos de InAs que ha sido estimada en ~ 1.3 [99]. No obstante, valores entre 2 y 4 para dicha magnitud reproducen adecuadamente los resultados obtenidos en puntos cuánticos de InGaAs/GaAs, cuyo grado de confinamiento es más similar al de nuestras nanoestructuras [24]. La mayor localización espacial de los huecos respecto a los electrones es responsable en este sistema de que la atracción entre el electrón adicional y el hueco supere a la repulsión entre ambos electrones. Por el mismo razonamiento, el resultado contrario resulta de la adición de un hueco para formar el excitón X^{1+} . En este caso, se ha obtenido experimentalmente y teóricamente que

⁶Bastante menor que el valor encontrado para puntos cuántico de InAs en el experimento de C-V [pág. 127].

la emisión se desplaza hacia altas energías [126]. Por último, la energía de adición correspondiente a los huecos en este modelo puede ser calculada mediante la ecuación 5.19, utilizando el valor recién hallado para l_h y la masa del hueco pesado de InAs, $m_{hh}^* = 0.41m_0$. El resultado es $E_h \sim 8.2$ meV, similar al obtenido por modelos teóricos más complicados[19].

Vamos a calcular ahora cuál sería el corrimiento de energía esperado entre el excitón X^{1-} y el X^{2-} . En la figura 8.9(a), observamos que cuando el voltaje aplicado alcanza ~ 0.65 V, la línea de emisión correspondiente al excitón cargado con un electrón se desvanece, a la vez que una nueva línea aparece desplazada aproximadamente -1.3 meV respecto a la anterior. En virtud de lo que venimos discutiendo, este desplazamiento se debe a que un nuevo electrón penetra en la nanoestructura para este voltaje. Dicho electrón necesariamente ha de ocupar un estado tipo p , pues los estados s se hayan completamente ocupados. En este caso, por tanto, la interacción directa $s - p$ añade un término repulsivo entre los electrones, E_{sp}^c , que se haya parcialmente compensada por la de atracción entre el nuevo electrón y el hueco, E_{ps}^{eh} . En definitiva, repitiendo el procedimiento anterior:

$$\begin{aligned} E_{X^{2-}}^i &= (E_e + E_e + 2 \times E_e) + E_h + E_{ss}^c - 2E_{ss}^{eh} + 2E_{sp}^c - E_{ps}^{eh} \\ E_{X^{2-}}^f &= (E_e + 2 \times E_e) + E_{sp}^c \pm E_{sp}^x \\ E^{X^{2-}} &= \hbar\omega_{X^{2-}} = E_g + (E_{X^{2-}}^i - E_{X^{2-}}^f) \end{aligned} \quad (8.7)$$

obtenemos las energías finales (\pm) e inicial. Ahora queda más claro porqué seguimos el cálculo detallado. En el estado final resultante de la recombinación radiativa, un electrón en el estado s , y otro en el estado p son capaces de interactuar entre sí. Por un lado, tenemos la energía de repulsión coulombiana entre ambos, pero también un término adicional debido a la interacción de intercambio. En caso de que los spines de estos electrones se hallen alineados, la interacción de intercambio disminuye la energía del estado final en E_{sp}^x . Lo contrario ocurre para la situación en que los spines se encuentren antiparalelos. Esta situación corresponde a los estados triplete (T) y singlete (S) del sistema de dos spines discutido en el capítulo 5, y a la vista del resultado alcanza pleno sentido su inclusión en aquel momento. En definitiva, no una, sino dos líneas de emisión han de ser visibles en el espectro correspondiente al

excitón cargado con dos electrones siendo sus respectivos desplazamientos respecto a X^{1^-} :

$$\Delta E_{T,S}^{(X^{2^-} X^{1^-})} = E_{sp}^c \pm E_{sp}^x - E_{ps}^{eh} = \frac{e^2 \sqrt{\pi}}{4\pi \epsilon_0 \epsilon_r} \left[\frac{3}{4\sqrt{2}l_e} \pm \frac{1}{4\sqrt{2}l_e} - \frac{2l_e^2 + l_h^2}{2(l_e^2 + l_h^2)^{\frac{3}{2}}} \right] \quad (8.8)$$

donde el signo + es para el estado triplete y el - para el singlete. Introduciendo los valores obtenidos para l_e y l_h tenemos que $\Delta E_T^{(X^{2^-} X^{1^-})} = -1.9$ meV que reproduce adecuadamente el signo y orden de magnitud del desplazamiento experimental observado en la figura 8.9(a), y $\Delta E_S^{(X^{2^-} X^{1^-})} = -7.5$ meV. Dichos valores corresponden a una energía de intercambio $E_{sp}^x \sim 2.8$ meV, que nuevamente concuerda con lo reportado en la literatura para este tipo de nanoestructuras [74, 100]. Por otra parte, el acuerdo es más cualitativo que cuantitativo en este caso. Sin embargo, hay que tener en cuenta que no hay parámetros ajustados en este cálculo, sólo constantes como las masas efectivas y resultados experimentales. Por otro lado, como ya se dijo, esto no ha de extrañarnos en el caso de anillos cuánticos, donde el potencial armónico es una aproximación menos fiel al potencial real de confinamiento. El acuerdo entre teoría y experimento es mucho mejor en el caso de puntos cuánticos de InAs o InGaAs, tal y como demuestran diferentes trabajos dedicados a esta concordancia en particular [101, 99, 24].

En la nanoestructura investigada en la figura 8.9(a), el estado singlete no ha podido discriminarse del nivel de fondo. Esto se debe en parte a la ineficiencia de la emisión debida al dopado residual⁷, pero también al hecho de que degeneración del estado triplete es tres veces la del singlete, y por tanto se cumple una relación 1 a 3 en la intensidad [ec. (5.15)].

En la figura 8.10, se han representado los espectros de μ PL de otra nanoestructura, esta vez correspondiente a la zona de más alta energía de las transiciones fundamentales (no excitadas). En la misma se observa claramente la estructura escalonada correspondiente a la carga de un electrón $X^0 \rightarrow X^{1^-}$, y dos electrones $X^{1^-} \rightarrow X_T^{2^-}$. Utilizando las ecuaciones (8.6) y (8.8), disponemos de un sistema de

⁷De hecho, la emisión de esta muestra en este rango de energía es por lo menos un orden de magnitud inferior a la QR1.

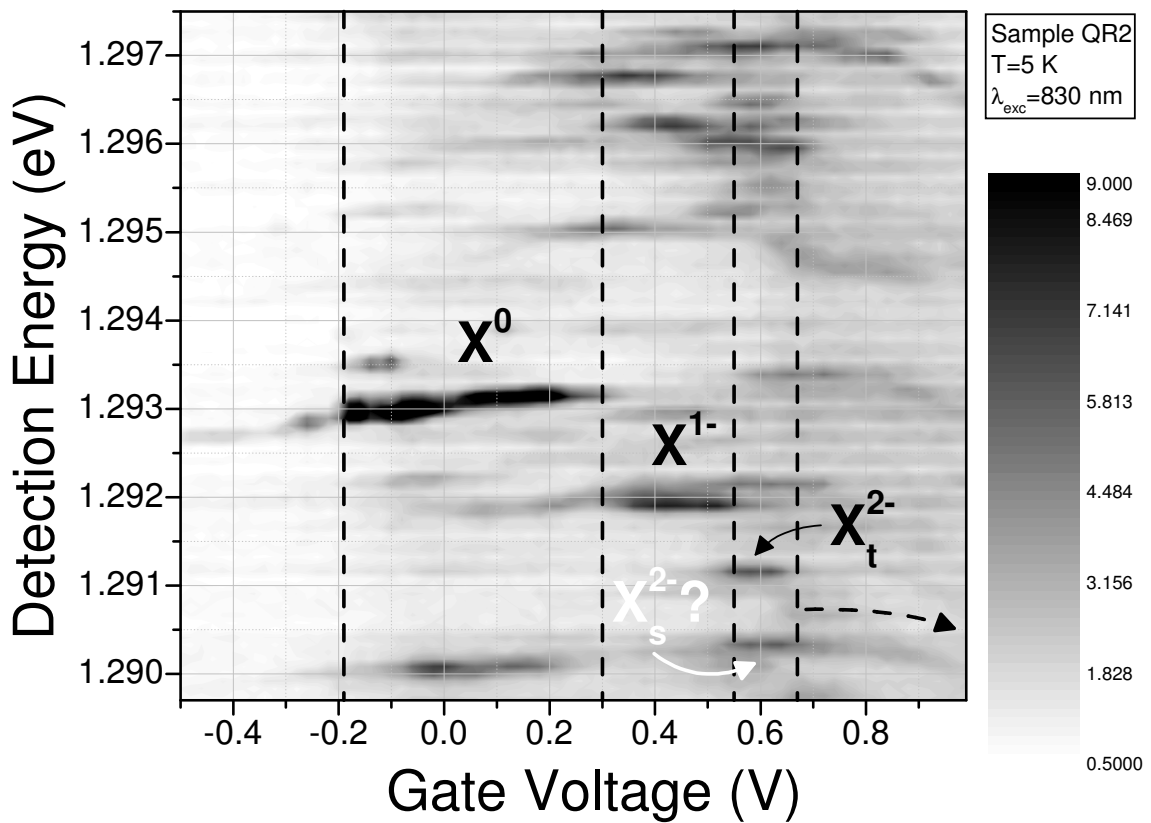


Figura 8.10: Espectros de μ PL obtenidos en la muestra QR2 en función del voltaje aplicado. La nanoestructura investigada corresponde a la parte de alta energía de la banda de emisión fundamental.

dos ecuaciones y dos incógnitas del que se pueden extraer las longitudes efectivas de hueco y electrón. El resultado es $l_e \sim 7.7$ nm y $l_h \sim 6.5$ nm, lo cual puede correlacionarse con un mayor confinamiento para el electrón en este caso. En la misma figura, vemos que una línea de emisión aparece justo por debajo del estado triplete del excitón doblemente cargado y para el mismo voltaje aplicado. Con las longitudes efectivas calculadas, la energía de intercambio entre electrones s y p , resulta de 3.7 meV en esta nanoestructura. Esto descarta, en principio, la posibilidad de que dicha línea pertenezca al estado singlete⁸. El origen exacto de la misma no lo conocemos por el momento, pero existen indicios de que pertenece a la misma nanoestructura.

Más importante que el acuerdo numérico exacto son las consecuencias físicas

⁸Además del hecho de que no se cumpliría la degeneración esperada.

que se derivan. Podemos calcular la extensión aproximada del excitón ponderando las longitudes efectivas de cada portador con sus masas efectivas. Ésta resulta de $a_0 \sim 5$ nm en la primera nanoestructura, y $a_0 \sim 6.5$ nm en la segunda. Ambas se hallan realmente lejos del radio del excitón en el InAs, $a_0 \sim 38$ nm, o $a_0 \sim 12$ nm si consideramos el GaAs. Es interesante notar que el valor hallado es también mucho menor que la extensión lateral de los anillos según se extrae de las imágenes de AFM [fig. 7.1]. Esto concuerda con la existencia de un potencial de confinamiento más intenso en el centro de la nanoestructura provocado por un gradiente radial más o menos abrupto del cociente x_{In}/x_{Ga} producido tras el recubrimiento [pág. 119]. En definitiva, según lo dicho en la sección 5.5 llegamos a que el régimen de confinamiento en nuestros anillos cuánticos es fuerte, y la utilización del método perturbativo está justificada. Esto corrobora una vez más nuestra predicción inicial: las propiedades ópticas de éstas nanoestructuras están gobernadas por un régimen de confinamiento fuerte, en el cual, las interacciones coulombianas perturban, pero no destruyen, los estados de partícula individual. Algunas de las propiedades observadas se deben entonces a la correlación débil entre los portadores mientras que otras se deben a la estructura electrónica no perturbada.

En los paneles (b) y (c) de la figura 8.9 también podemos ver que el desplazamiento Stark de las líneas individuales es mucho más intenso cuando el número de electrones en exceso en la banda de conducción es mayor o igual que 2. Cuando el nivel fundamental se haya completamente ocupado con dos electrones, al tercer electrón no le queda más remedio que ocupar uno de los estados tipo p , y permanecer allí hasta que se produzca una recombinación radiativa en el estado fundamental, o alternativamente una transición inter-banda p_e-s_h . El electrón adicional se encuentra menos localizado que los del estado fundamental y, en consecuencia, la longitud efectiva del excitón X^{2-} debe incrementarse proporcionalmente. De esto se deduce también que el corrimiento Stark debe aumentar tal y como discutimos en la sección 4.2 con la introducción de la polarizabilidad, β . Cuando el área cubierta por el excitón aumenta, la polarizabilidad lo hace proporcionalmente y el corrimiento Stark de la línea de emisión se hace más patente. De hecho, el desplazamiento se hace

extraordinario cuando nuevos electrones penetran en la nanoestructura para formar $X^{3-}, X^{4-} \dots$ para $V_g > 0.75$ V. Los niveles electrónicos correspondientes a dichos electrones se hayan más y más próximos al nivel fundamental de la WL, que forma el continuo de la caja cuántica en la banda de conducción. En estas condiciones, el estado ligado, cuasiresonante con el continuo, penetra profundamente en la barrera dando lugar al elevado desplazamiento Stark observado, y a un ensanchamiento de las líneas de emisión como vamos a ver más adelante.

Zona de alta energía: transiciones excitadas

Veamos ahora que es lo que ocurre en la cola de alta energía de la banda de PL total, magnificando la escala a fin de ver en detalle las resonancias individuales en esa zona⁹. El resultado es el que muestra la figura 8.11. Apreciamos que las características individuales de las resonancias encontradas en este rango difieren de las de la parte de baja energía, como también lo hacían sus características generales. En el apartado anterior, la relación entre el voltaje aplicado y la energía a la que aparecen los primeros picos en el espectro, nos sirvió como base para confirmar el carácter excitado de los mismos. Esto se corrobora ahora atendiendo al pronunciado corrimiento Stark que presentan estas resonancias comparadas con las líneas de emisión del estado fundamental. En las imágenes de las figuras 8.8, 8.9, y 8.10, dentro de la resolución de nuestro espectrómetro y la relación señal-ruido, la energía de transición de las líneas excitónicas neutras permanecen aproximadamente constantes con el campo aplicado. Por el contrario, las resonancias de la figura 8.11 se desplazan notablemente hacia bajas energías al aumentar el campo inverso de derecha a izquierda en las imágenes. Un ajuste parabólico reproduce adecuadamente dichos desplazamientos tal y como se muestra en la figura 8.12(a). Esta anisotropía se ha detectado en experimentos previos, donde diferencias de polarizabilidad en los respectivos rangos se han atribuido a diferentes grados de confinamiento vertical en

⁹Estos espectros corresponden a la muestra QR1 dado que la recombinación electrón-aceptor no permite estudiar adecuadamente esta zona en la muestra QR2. No obstante, la concordancia de los resultados obtenidos en una y otra muestra validan la discusión.

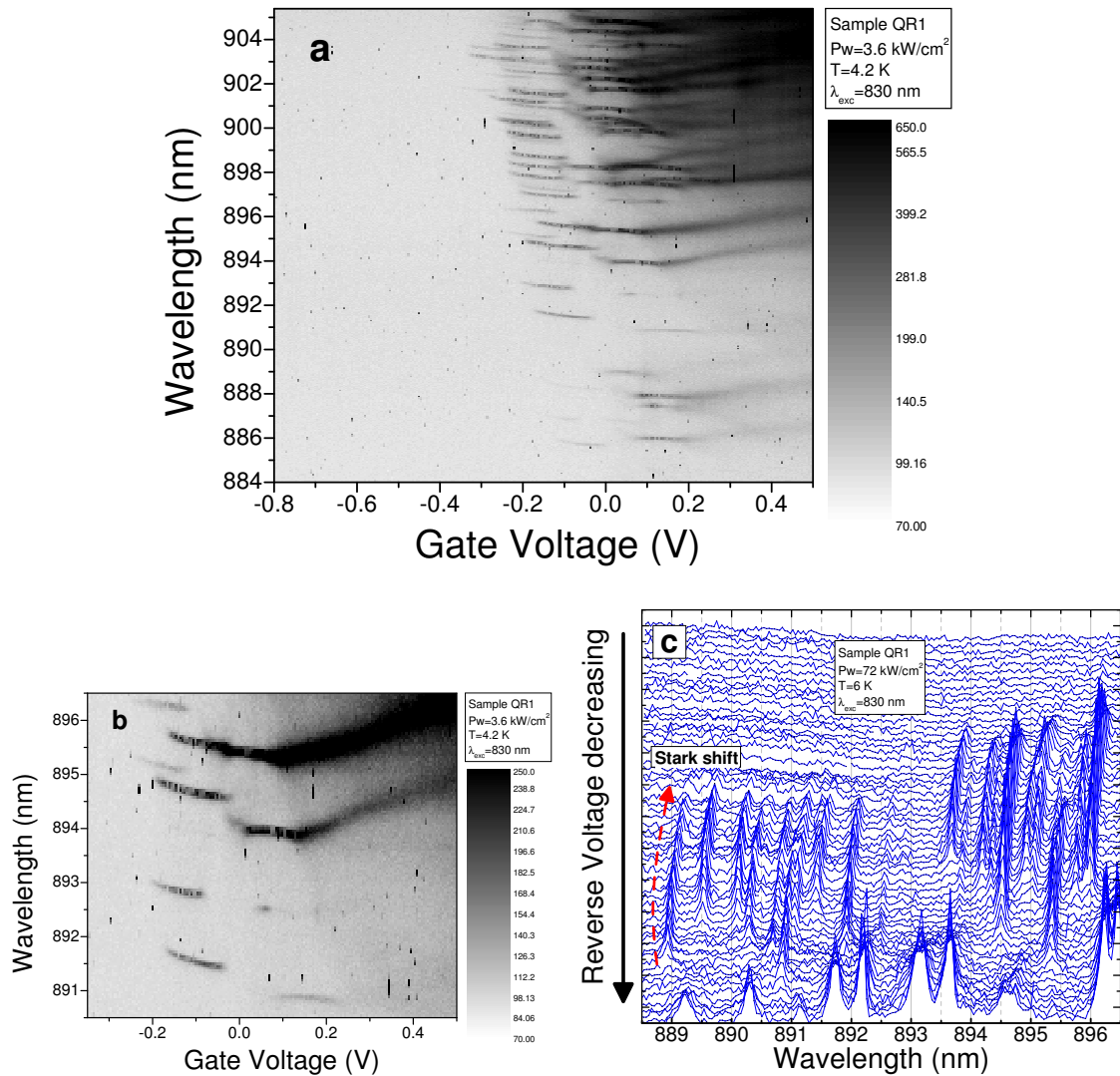


Figura 8.11: Detalle de los espectros de μ PL en la muestra QR1. Las resonancias observadas se caracterizan por un pronunciado corrimiento Stark. El panel (c) muestra sólo dos de las resonancias observadas en (a). El panel (b) corresponde a otro punto de la misma muestra donde los rayos cósmicos se han eliminado para facilitar la observación de las líneas de emisión en este formato.

nanoestructuras de alturas diferentes (emisión multimodal) [79]. En este trabajo, por el contrario, asumimos que se tratan de estados excitados de las resonancias observadas a 1.3 eV y que, además, corresponden a nanoestructuras con un número elevado de electrones en exceso [fig. 8.12(b)]. Es la polarizabilidad de estos electrones adicionales la que contribuye en mayor medida al corrimiento Stark observado. Es significativo en este sentido, que todas las primeras resonancias observadas tengan

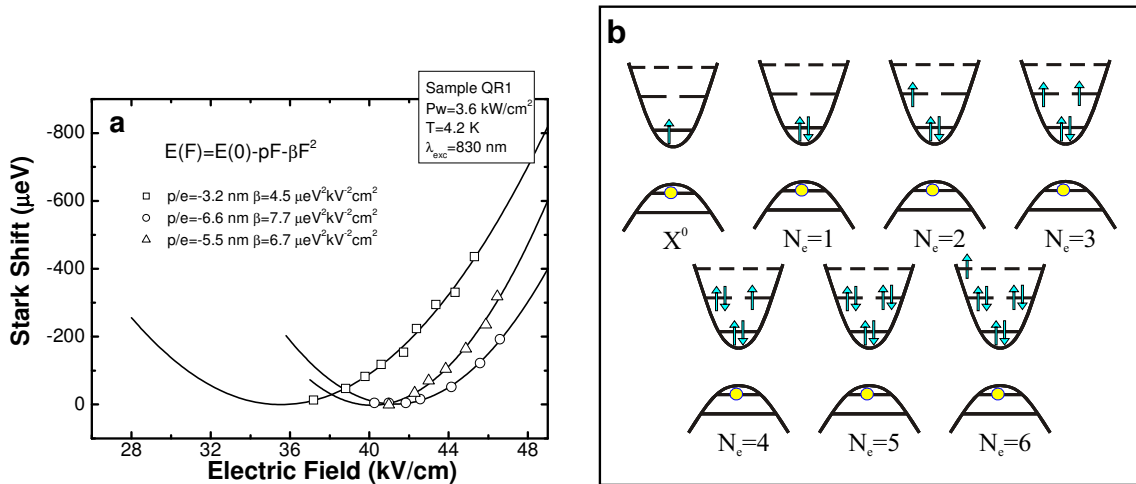


Figura 8.12: a) Efecto Stark de confinamiento cuántico en el rango de alta energía de la banda de μ PL. La polarizabilidad y momento dipolar intrínseco obtenidos son mucho mayores que los que cabría esperar para el estado fundamental [79]. b) Diagrama esquemático de las configuraciones de carga posibles. La fila superior representa estados de carga que dan lugar a resonancias individuales preferentemente en el estado fundamental. Cuando el número de electrones adicionales es mayor que 3, fila inferior, las transiciones asociadas a estados excitados dominan la emisión.

aproximadamente el mismo desplazamiento y que los valores de la polarizabilidad y del momento dipolar intrínseco que resultan del ajuste parabólico sean hasta un orden de magnitud superiores a los encontrados en el estado fundamental de nanoestructuras similares [pág. 75].

Dinámica intra-banda y ensanchamiento homogéneo

Es el momento ahora de dar una explicación para el ensanchamiento de la banda de emisión observado cuando la WL empieza a ser visible en el espectro de fotoluminiscencia ($V_g \sim 1$ V y ~ 0.15 V, en las muestras QR2 y QR1, respectivamente). De las figuras 8.8 y 8.11, el origen de este ensanchamiento es claro que parte de cada línea individual.

Para un número pequeño de electrones en exceso, $N_e \leq 3$, el estado final tras la recombinación radiativa del estado fundamental, es, o bien un estado fundamental de la configuración multielectrónica, caso $N_e = 1$, o bien se trata de un estado

excitado, $N_e = 2, 3$. En este último caso, la relajación no ocurre de igual manera para el estado singlete y triplete puesto que ambos están sometidos a estrictas reglas de selección dadas por el principio de exclusión de Pauli. Hemos visto que el estado singlete no es visible en las imágenes de la muestra QR2 debido a que la relación señal-ruido no era suficiente para ello. Sólo la emisión asociada al estado triplete es visible en este caso¹⁰. Conforme aumentamos el número de electrones, $N_e > 3$, la interacción coulombiana entre los mismos es capaz de proporcionar mecanismos de relajación eficientes que resultan en anchuras de línea más y más elevadas para el estado final [127]. Según explicamos al principio de esta sección, la indeterminación en la energía del estado final es la responsable del ensanchamiento de la línea de emisión correspondiente. En este sentido, cuando la WL empieza a emitir, significa que el nivel de Fermi ya ha dejado atrás todos los niveles electrónicos de la banda de conducción. Todos ellos se encuentran ocupados con electrones en exceso y, por tanto, una desintegración electrón-hueco en el estado fundamental, deja tras de sí una configuración de carga altamente inestable que provoca el ensanchamiento general de la banda observado justo para ese voltaje.

Una explicación similar da cuenta del ensanchamiento de los estados excitados que recombinan radiativamente según hemos visto para la muestra QR1. En la figura 8.11(c), vemos que para $V_g \sim 0.15$ V, las líneas individuales se ensanchan rápidamente e incluso cambian su curvatura respecto al campo aplicado. El electrón que da lugar a una de estas recombinaciones no se halla en el estado fundamental, sino que corresponde a electrones de alta energía como los representados en la fila inferior de la figura 8.12(b). El electrón en el nivel excitado no puede relajar su energía porque todos los estados inferiores se hallan ocupados a la espera de una recombinación en el estado fundamental. Si ésta no ocurre, la anchura de línea de la recombinación radiativa excitada estará determinada por el tiempo radiativo de la misma, que con seguridad es elevado, y por tanto la línea es estrecha. La razón

¹⁰La muestra QR1, en el rango de baja energía, reproduce a la perfección este desdoblamiento para el excitón X^{2-} y de manera similar para el X^{3-} . Ambos han sido investigados por otros autores [74].

última por la cual el tiempo radiativo del estado excitado es menor que el del estado fundamental nos es desconocida hasta ahora, pero queda claro que tiene que ver con el alineamiento de los niveles de la banda de conducción respecto al nivel de Fermi¹¹. Por otro lado, también estas transiciones excitadas sufren desplazamientos en función del voltaje aplicado debido a un cambio en la configuración de carga. No existe nada que prohíba dicho comportamiento pues la energía total del complejo excitónico cambia con la adición de nuevos electrones en los niveles excitados. Así, observamos en la figura 8.11(c) cierta estructura escalonada que puede ser atribuída a efectos coulombianos como los que se observan para la transición fundamental. A partir de un voltaje un poco más elevado, queda claro que cuando la WL comienza a ser ocupada mayoritariamente, las líneas se ensanchan inmediatamente, y esto es debido a la incorporación en este punto de una eficiente dispersión de tipo Auger entre electrones del continuo y electrones debilmente ligados de la nanoestructura. En esta situación, el estado de carga de la nanoestructura ya no está determinado por el efecto túnel desde el contacto óhmico. En presencia de una densidad de electrones elevada en el continuo de la banda de conducción, los estados finales resultantes de una recombinación que aniquila un par electrón-hueco excitado, fluctúa entre un número elevado de posibilidades proporcionadas por la elevada frecuencia de captura desde la WL. En esta situación la línea de emisión se ensanchará tal y como observamos.

Los procesos de captura y relajación entre la WL y los estados ligados son de la mayor importancia en este sistema y a ellos dedicaremos buena parte de la sección 8.2. Un ejemplo de la no trivialidad de los procesos que tienen lugar puede ser encontrada en Karrai *et al* [108], donde se pone de manifiesto que la hibridación coherente entre estados bidimensionales y confinados es posible y tiene importantes consecuencias.

¹¹Un estudio de la fotoluminiscencia resuelta en tiempo (TRPL) de esta muestra ha de clarificar esta situación.

8.1.5. Contribución de (A^0, X) a la μ PL de cajas cuánticas aisladas

En la sección 7.4, la recombinación radiativa electrón-aceptor neutro se demostró que dominaba la emisión de la muestra QR2 en el rango de bajas energías en torno a 1.2 eV. La recombinación asociada a excitones ligados a dichas impurezas no se pudo distinguir de la debida a excitones libres, debido a la pequeña energía de enlace de este complejo y al elevado ensanchamiento inhomogéneo de la emisión. Con una concentración de impurezas residuales en torno a $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, la separación espacial promedio entre aceptores es tan sólo de 35 nm. Vemos por tanto que la probabilidad de que una de tales impurezas coincida en el interior de un anillo cuántico es elevada. La recombinación excitónica en dicho caso, ocurre a una energía $E_{X^{n-}}^B < E_{X^{n-}}^F$ ¹², donde la diferencia de energía es la energía de enlace $E_b^{A^0:X^{n-}}$. Esta energía puede depender del estado de carga del excitón, pero seguro que dependerá de la distancia entre la nanoestructura y la impureza en cuestión, así como del tamaño de la primera. Los estudios teóricos sobre la dependencia de la energía de enlace frente a estos parámetros son escasos en el caso de nanoestructuras cuánticas [128]. Los resultados experimentales aún son menos abundantes y no hemos encontrado ningún resultado representativo. En capas epitaxiales de InAs a 1.4 K, la emisión asociada a recombinación excitón-aceptor neutro consta de cuatro líneas individuales separadas entre sí debido a la interacción spin-órbita entre los dos huecos pesados que forman el complejo.

En la figura 8.13 observamos cuál es el aspecto de dicha emisión en capas epitaxiales de GaAs. En este caso, el único parámetro que varía de un espectro a otro es la tensión biaxial existente entre la capa y el sustrato, bien intrínsecamente, usando diferentes sustratos, o de manera externa. El eje de energías apenas cubre 1 meV en dicha figura, lo que significa que estamos hablando de estructura fina del excitón ligado en el rango de decenas o centenas de μeV .

Con esto pretendemos dejar claro que las propiedades de un excitón ligado a una

¹²B: *Bound* y F: *Free* de la nomenclatura usual en inglés.

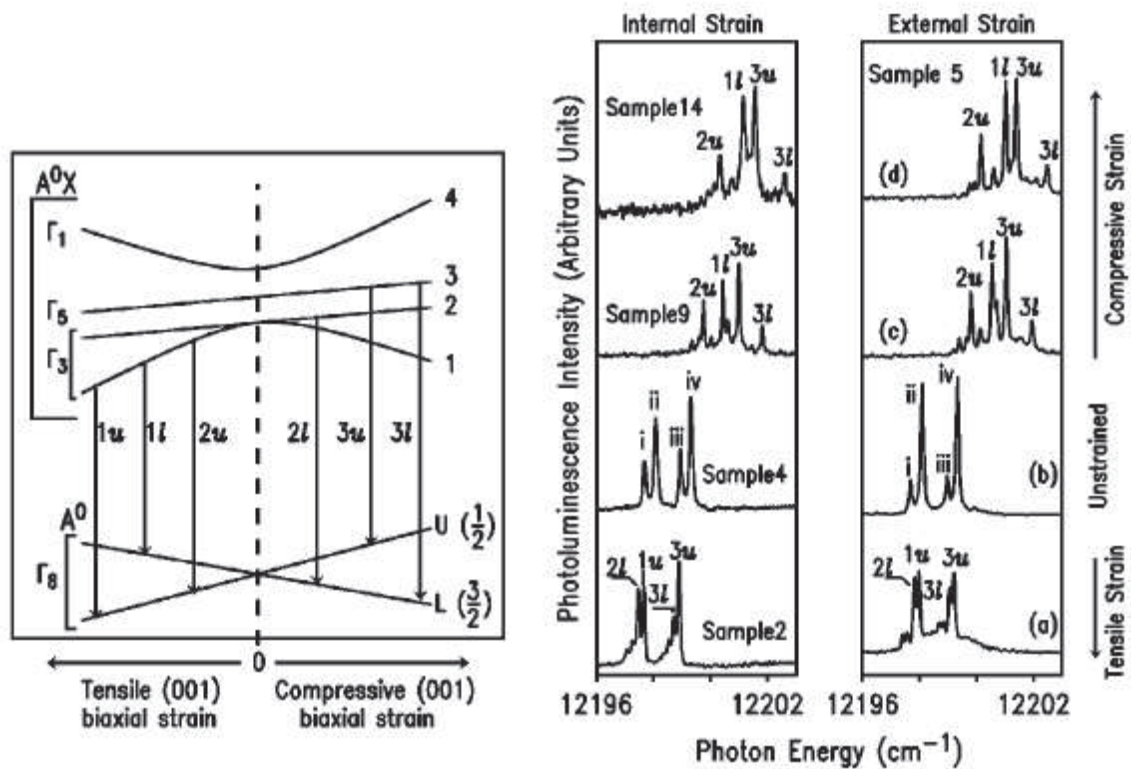


Figura 8.13: A la izquierda, diagrama de bandas en el centro de zona para un excitón ligado a una impureza neutra. Los estados finales e iniciales de una transición inter-banda asociada a este complejo da lugar a cuatro líneas individuales. Dichas líneas han sido investigadas en capas epitaxiales de GaAs frente a la deformación biaxial a la derecha. Reproducidas de Hu *et al* [129].

impureza aceptora neutra en una caja cuántica va a depender de la morfología (deformación) y confinamiento en la misma, lo cual nos proporciona una herramienta para investigar éstas, suponiendo que tal excitón pueda ser claramente identificado. A tal fin, en la figura 8.14 se han representado los espectros de emisión correspondientes a dos nanoestructuras cuánticas aisladas obtenidos en puntos diferentes de la muestra QR2 variando el voltaje aplicado.

Lo primero que se observa es la estructura escalonada característica de la recombinación de excitones cargados en cada nanoestructura. Los voltajes característicos para cada salto son prácticamente iguales en ambas figuras a pesar de la diferencia en la energía a que aparece una y otra. La magnitud de los desplazamientos con la adición de un nuevo electrón concuerdan aproximadamente con los valores dados

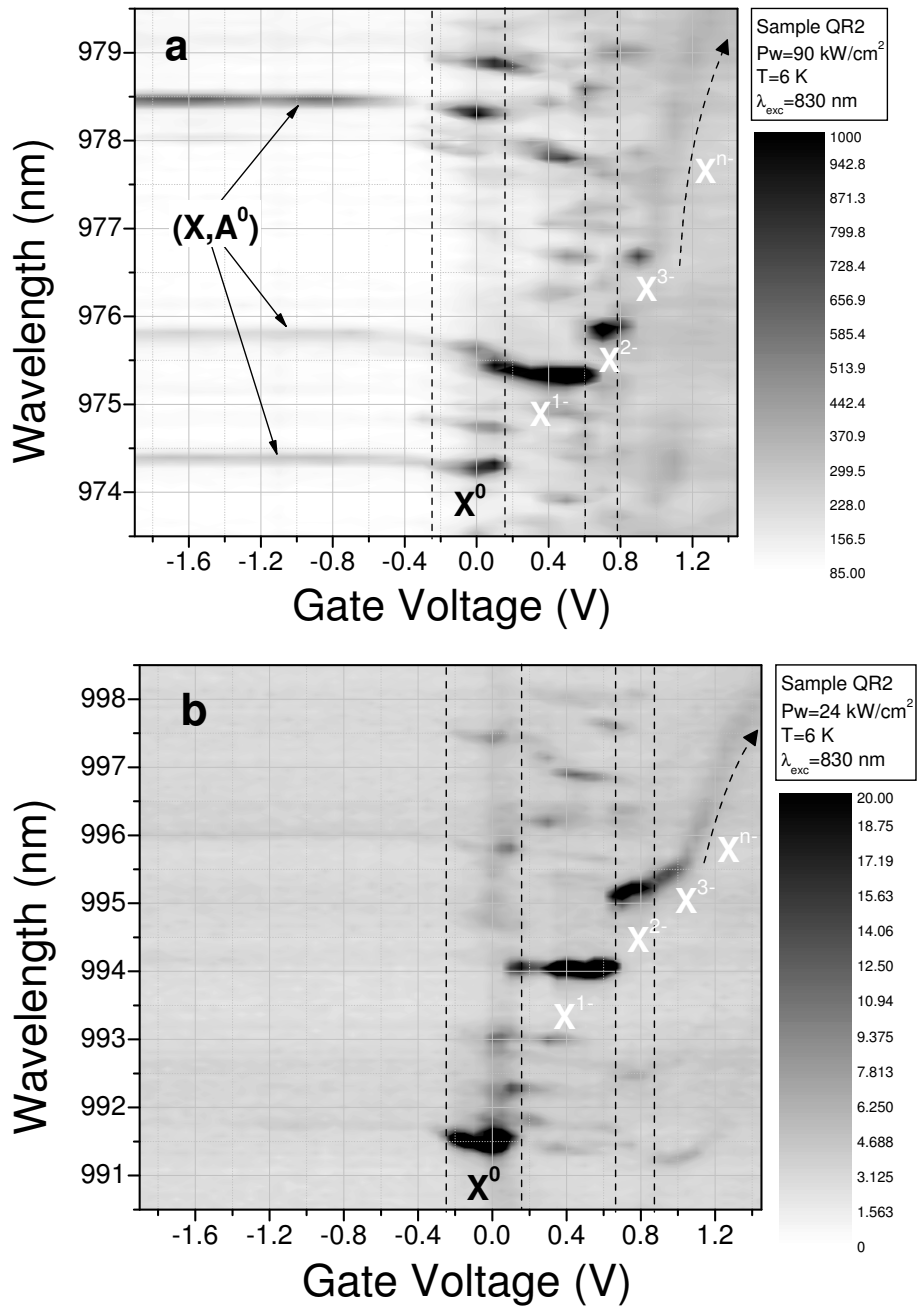


Figura 8.14: Espectros de μ PL de la muestra QR2 en dos puntos diferentes. La emisión característica de excitones individuales cargados con uno o varios electrones son visibles a partir de -0.2 V. Por debajo de dicho voltaje, la emisión consiste en líneas tenues, pero visibles, que se extienden hasta voltajes inversos elevados.

en el apartado anterior. El cambio más significativo entre las dos figuras ocurre por debajo de -0.2 V. Mientras que en el panel superior se observan claramente tres líneas intensas, la emisión es cero en ese mismo rango de voltajes para la nanoestructura examinada en el panel inferior. Además, allí donde una línea de emisión aparece a voltajes inversos elevados, una resonancia asociada a un excitón neutro o cargado aparece a una energía ligeramente mayor cuando $V_g \geq -0.2$ V. En la muestra QR1, investigada intensivamente en este mismo rango de longitudes de onda, la desaparición de la emisión del excitón neutro con el voltaje inverso, se explica como ya sabemos por la ionización hacia el contacto óhmico del electrón en la banda de conducción. El rango de voltajes en el que la línea es visible corresponde a un desplazamiento del nivel de Fermi de aproximadamente 30 meV. Si suponemos que la ley de la palanca (ec. (7.1)) es cierta en el rango de voltajes cercano a 0 V, e introducimos los datos de la tabla 7.1, las líneas de emisión en la muestra QR2 deberían desaparecer aproximadamente a -0.2 V. Si esto no ocurre en algunas de las nanoestructuras de la muestra QR2 la razón habrá que buscarla en la diferencia entre ambas muestras.

A priori, uno ha de ser cauto al buscar el origen de dichas líneas de emisión. En esta muestra, sabemos que la relación entre la energía electrostática en la zona activa y el voltaje aplicado es una función complicada que depende entre otras de la densidad de iluminación [sec. 7.3]. Las dos imágenes representadas en la figura 8.14 están realizadas a diferente potencia, pero se ha comprobado que las líneas observadas en la figura no desaparecen al disminuir la potencia de excitación. Por otro lado, si la persistencia de las líneas se debiese a un artefacto del potencial electrostático, éste sólo podría consistir en la inhibición de la ionización del excitón debido a un campo eléctrico constante a lo largo de todo el rango $-0.3 \rightarrow -1.7$ V. Esto es improbable, teniendo en cuenta que la conducción inversa en esta muestra sólo es significativa a partir de -1.4 V tal y como se aprecia en la figura 7.10. Aún más, dicha anomalía del potencial debería explicar el salto sistemático hacia altas energías que sufre la emisión en ese rango sufre cuando el voltaje es ~ -0.2 V. Por si fuera poco, dicho artefacto no actuaría igual en todas las nanoestructuras.

Dicho esto, descartamos un efecto electrostático como origen de la fenomenología observada y, en su lugar, la atribuimos a la recombinación de excitones ligados a impurezas neutras presentes en las nanoestructuras o en sus cercanías. Así, el hecho de que el número de líneas observado en el rango de polarización inversa elevada sea mucho menor que las que existen para voltajes cercanos a cero (ver fig. 8.8, por ejemplo), se debe simplemente a que no todas las nanoestructuras tienen una impureza neutra en sus inmediaciones. En estas condiciones, la aparición de la línea X^0 a -0.2 V, corresponde a la ionización del excitón neutro del potencial atractivo de la impureza. Dado que esto ocurre aproximadamente cuando el nivel de Fermi atraviesa el estado fundamental del electrón, la energía necesaria para dicha ionización estaría aportada por el campo electrostático. El reducido valor de la energía de enlace observada no concuerda sin embargo con lo que cabría esperar en un principio. Dicha magnitud se encuentra entre 100 y 500 μ eV para todas las nanoestructuras investigadas y es, por tanto, menor que el valor reportado en capas epitaxiales de InAs, ~ 2 meV [124]. Dicha dispersión ha de estar relacionada con variaciones del potencial de confinamiento de una nanoestructura a otra y en la distancia entre la nanoestructura y la impureza. Dicha dependencia debería explicar también el reducido valor de $E_b^{A^0:X^0}$, si bien por ahora no nos es posible cuantificar la magnitud de este efecto [128]. Lo que sí es predecible, es que pese a que la energía de enlace es reducida, la fuerza de oscilador del excitón ligado puede ser mucho mayor que la del excitón libre. De otra manera, la emisión no sería observada dado que la probabilidad de túnel del electrón aumenta rápidamente al incrementar el voltaje inverso aplicado. Si dicha emisión es visible puede ser debido a la reducción drástica del tiempo de vida radiativo en el estado ligado del excitón. Esto ha de ser confirmado por experimentos de micro-fotoluminiscencia resuelta en tiempo a realizar próximamente.

Podemos extraer más información sobre las propiedades de estos excitones ligados estudiando su evolución con la potencia de excitación. Dos son los efectos posibles al aumentar el número de pares electrón-hueco fotogenerados. En primer lugar, tenemos un efecto electrostático debido al elevado número de huecos que se quedan

atrapados en las inmediaciones de la intercara SL-SPSL de la zona activa [fig. 7.11]. Estos huecos apantallan el potencial electrostático entre el contacto óhmico y el metal, disminuyendo el campo eléctrico efectivo. En la figura 8.15, vemos que para potencias elevadas, es necesario aplicar un voltaje inverso más elevado que compense la caída de potencial debida a dicho apantallamiento. En este caso particular, $\Delta V \sim -40$ mV corresponde a un campo de apantallamiento de $F_0 = -\Delta V/t_a \sim 0.8$ kV/cm, donde t_a es la anchura de la capa activa que separa ambos gases bidimensionales.

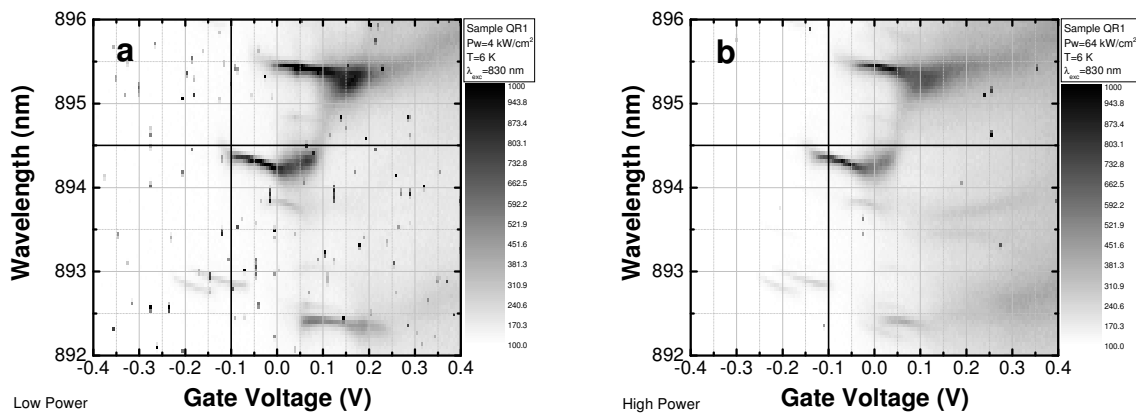


Figura 8.15: Espectros de μ PL de la muestra QR1 en función del voltaje para dos potencias de excitación diferentes. La emisión se desplaza hacia voltajes más negativos cuando la potencia de excitación aumenta.

El segundo efecto del aumento de la densidad de excitación es una mayor probabilidad de captura de múltiples electrones y huecos en una misma nanoestructura. Un ejemplo típico es el de formación de complejos biexcitónicos. Como hemos dicho, en las condiciones de voltajes inversos elevados donde los excitones ligados aparecen en nuestros espectros, dichos portadores adicionales no permanecen indefinidamente en la nanoestructura pues su probabilidad de túnel es elevada. No obstante a potencias suficientemente altas, la frecuencia de captura es tan alta que la emisión de estos complejos puede no ser despreciable.

En la figura 8.16 se ha representado la evolución con la potencia de diversas líneas de emisión presentes en el espectro de μ PL para $V_g = -1.3$ V. De la discusión que estamos realizando, dichas líneas proceden de la recombinación radiativa de excito-

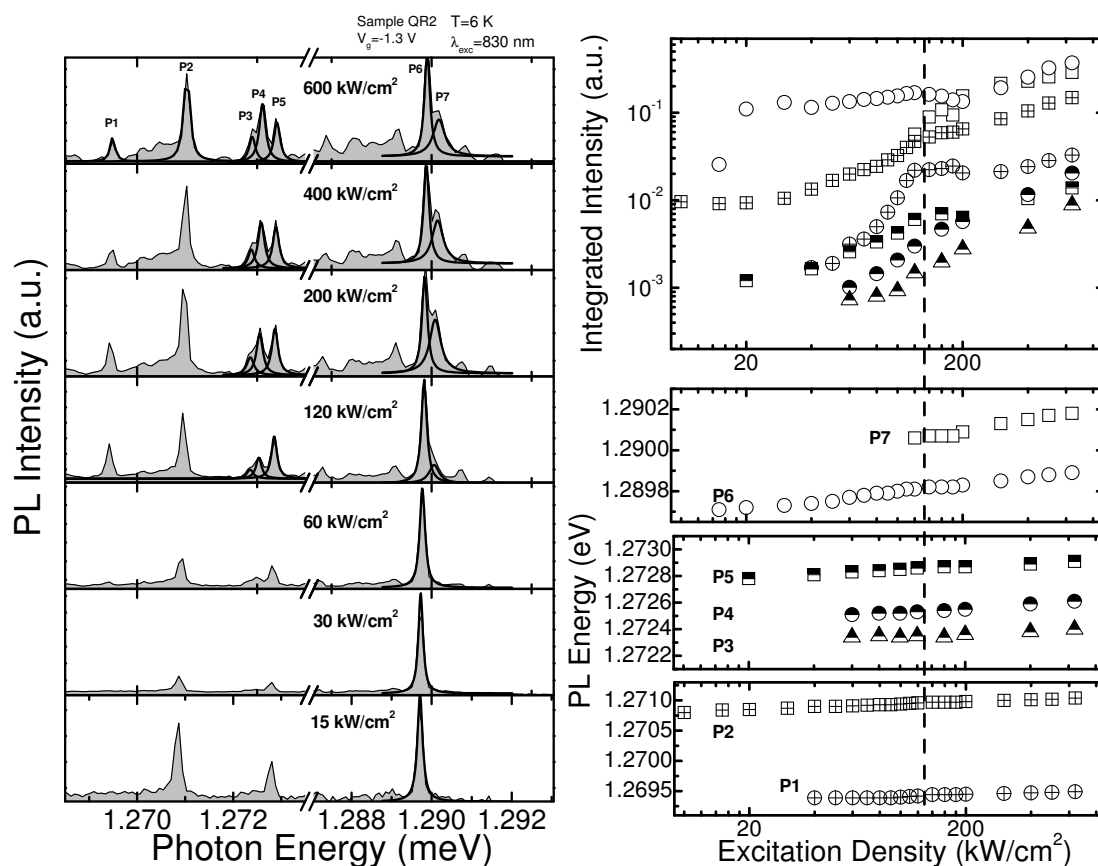


Figura 8.16: Efecto del aumento de la densidad de potencia sobre la emisión de excitones ligados a impurezas aceptoras neutras. Tres tipos de comportamiento son observados en el panel izquierdo para diferentes líneas de emisión a $V_g = -1.3$ V. A la derecha se resumen los resultados del ajuste lorentziano realizado en las resonancias presentes en la μ PL de la izquierda. Los símbolos que representan a cada pico son los mismos en el panel superior (intensidad integrada) y los paneles inferiores (energía).

nes ligados a impurezas aceptoras neutras. Al aumentar la potencia, observamos tres tipos de comportamiento. Los picos etiquetados P1 y P2 ofrecen un comportamiento típico de par excitón-biexcitón. Partiendo de muy baja potencia, sólo la línea P2 es visible en el espectro. Cuando la densidad de excitación supera $50 \text{ kW}/\text{cm}^2$, una línea tenue aparece desplazada 1.5 meV hacia bajas energías respecto a P2. Dicha resonancia aumenta superlinealmente su intensidad en el rango 50 a $130 \text{ kW}/\text{cm}^2$. La pendiente de dicho aumento es ~ 2.4 , extraída de la evolución de la intensidad integrada en ejes doble-logarítmicos del panel de la derecha. Ambas características,

la energía de enlace de ~ 1.5 meV y el comportamiento superlineal, concuerdan con la creación de un biexcitón en la nanoestructura que da origen a ambas líneas. Es interesante comprobar que la energía de enlace encontrada es un 25 % menor que la reportada por Urbaszek *et al* para excitones libres en muestras similares con $E_b^{2X^0} \sim 2$ meV [100] o hasta un 50 % menor que la reportada en puntos cuánticos de InGaAs investigados por Finley *et al* [24]. Aunque la estadística es claramente insuficiente, esto podría estar relacionado con el hecho de que nuestros excitones se hallan ligados y, por tanto, las interacciones coulombianas pueden encontrarse parcialmente apantalladas respecto al caso libre.

Más extraño, o al menos inédito en estas nanoestructuras, es el comportamiento de los multipletes P3-P5 y P6-P7. A voltaje aplicado constante, el número de electrones y huecos en la nanoestructura que participan en una transición inter-banda depende del tiempo de captura y del tiempo de vida. Diferentes transiciones pueden ser detectadas simultáneamente, dado el carácter estadístico de la emisión cuya energía refleja la configuración instantánea de carga en el momento de la recombinación radiativa. Identificado el complejo biexcitónico, la separación de los picos que forman parte de estos multipletes es demasiado pequeña para estar asociada a dos pares electrón-hueco. Las líneas P3 y P4 aparecen a 510 y 320 μ eV, respectivamente, por debajo de la línea P5 que domina el espectro a baja potencia. La línea P7 aparece en el mismo rango de potencia pero a 260 μ eV por encima de P6, que en este caso es la línea dominante. Como vemos ambos desplazamientos ocurren en sentidos contrarios y a energías muy pequeñas comparadas con todos los efectos discutidos hasta ahora¹³. Un resultado similar ha sido reportado por Lemaître *et al* [130] en cajas cuánticas de InGaAs/GaAs. En dicho trabajo, la presencia de líneas de emisión cercanas a la recombinación excitónica fundamental correspondiente a excitones neutros, ha sido atribuida a la presencia de defectos cargados en las inmediaciones de la caja cuántica donde tiene lugar la recombinación. Sin embargo, al contrario que aquí, en dicho trabajo, no existen evidencias adicionales de la presencia de dichas

¹³Aquí no tenemos en cuenta los complejos excitónicos altamente cargados que dan lugar al ensanchamiento de las líneas de emisión para voltajes positivos elevados.

impurezas o de la correlación de esta emisión con el voltaje aplicado. Lo más significativo es que las distancias entre dichas líneas son de varios meV, lejos de los valores aquí encontrados. La magnitud de nuestros desplazamientos se encuentran más bien en el rango de la estructura fina de impurezas aceptoras neutras encontrada en la investigación de capas epitaxiales de InAs y GaAs [fig. 8.13][129, 124]. Por tanto, la existencia y comportamiento de estas resonancias, tentativamente la atribuimos a dicha estructura hiperfina, siendo ésta la primera vez¹⁴ que la misma se detecta en nanoestructuras cuánticas autoensambladas. Adicionalmente, en el panel de la derecha, observamos que existe un cambio apreciable en las propiedades de todas las líneas detectadas cuando la potencia supera el umbral de 130 kW/cm. La existencia de dicho umbral podría estar relacionada con la saturación de los respectivos niveles, aunque esto implica que todos ellos comparten la misma vía de relajación al estado fundamental. Alternativamente, puede deberse a la interacción entre los gases bidimensionales presentes en las capas adyacentes y el entorno local de carga de la nanoestructura. Es necesaria más investigación para justificar este hecho.

Lo que sí podemos explicar es el corrimiento hacia altas energías de las resonancias detectadas al aumentar la densidad de excitación (panel derecho de la figura 8.14). Este desplazamiento es consecuencia del apantallamiento electrostático discutido anteriormente, en conjunción con el desplazamiento Stark de las líneas de emisión. Pese a que la experiencia se ha realizado a voltaje inverso constante y elevado ($V_g = -1.3$ V), el aumento de potencia provoca variaciones del potencial electrostático al que están sometidas las nanoestructuras y su entorno de impurezas [fig. 8.15]. Este aumento provoca una disminución del campo eléctrico efectivo, aumentando, por tanto, la energía de las resonancias detectadas. Ésta es una nueva prueba de que el campo eléctrico no se haya saturado por fenómenos de conducción inversa en este rango de voltajes.

En principio, calcular la energía de enlace en función del tamaño de la nanoestructura, su ocupación, y/o la distancia que la separa de la impureza es posible

¹⁴Con la precaución que dicha aseveración implica, y a falta de un estudio más pormenorizado de la literatura existente.

haciendo ciertas aproximaciones. Baskoutas *et al* han llevado a cabo dicho cálculo para impurezas dadoras ionizadas suponiendo un potencial armónico bidimensional, similar al descrito en la sección 5.4, para describir a la nanoestructura. La ecuación de Hartree es resuelta de manera autoconsistente minimizando la energía de enlace por un método variacional. En nuestro caso, si queremos incluir el carácter fermiónico de los portadores, la aproximación de Hartree-Fock tendría que ser utilizada. No obstante, dicho cálculo está lejos de los objetivos de nuestra investigación actual.

Para concluir esta sección, recapitularemos brevemente los resultados obtenidos. Se han identificado y cuantificado las interacciones coulombianas relevantes en nanoestructuras cuánticas autoensambladas aisladas de InAs. Se ha demostrado que mediante dichas interacciones, el número de electrones que contribuyen a la emisión de una nanoestructura dada se puede controlar de manera externa. Hemos identificado el origen de las bandas de emisión a baja y alta energía y la diferente dinámica de relajación-recombinación que tiene lugar en cada rango. Finalmente, se han investigado las propiedades de excitones ligados a impurezas aceptoras neutras en cajas cuánticas aisladas de InAs. En los resultados que discutiremos a continuación, veremos que aún pueden investigarse muchas propiedades mediante otras técnicas de espectroscopía confocal a baja temperatura.

8.2. Fotoluminiscencia de excitación de cajas cuánticas aisladas de InAs

En la sección anterior hemos investigado las propiedades del estado fundamental y algunas propiedades de los estados excitados de cajas cuánticas de InAs. La investigación de los estados excitados de un sistema electrónico cualquiera mediante espectroscopías de emisión es siempre un estudio indirecto. Las leyes de Maxwell-Boltzmann o de Fermi-Dirac nos dicen que los estados electrónicos de alta energía sólo van a estar ocupados en equilibrio térmico si la temperatura de la muestra es elevada. Mucho antes de que esto ocurra, cualquier línea individual correspondiente a la emisión de una caja cuántica aislada se habrá ensanchado tanto que no

será posible identificarla por los métodos descritos aquí. Fuera del equilibrio, como hemos visto, los estados excitados pueden contribuir a la emisión en el caso en que los niveles de más baja energía se hallen totalmente ocupados por acción del campo eléctrico, y además sus tiempos de vida radiativos sean comparables a los del estado fundamental. Estas dos condiciones son un caso particular, y por tanto las propiedades intrínsecas de los estados excitados no nos son accesibles en este caso. Una alternativa al estudio mediante fotoluminiscencia de dichos estados, es la investigación por medio de fotoluminiscencia de excitación o PLE¹⁵. En este caso, la energía de excitación del láser no es fija, sino que es sintonizada de manera continua desde el estado fundamental hacia altas energías de manera resonante con los estados excitados de la estructura electrónica que queremos estudiar. Sin considerar reglas de selección por el momento, toda vez que el láser sea resonante con uno de dichos estados, la absorción inter-banda de fotones a dicha energía será posible. La relajación de los pares electrón-hueco generados de esta manera, provocará un excitón en el estado fundamental, que ulteriormente dará lugar a un fotón de más baja energía que puede ser detectado como PL [fig. 8.17]. Una curva de la intensidad de dicha PL en función de la energía de excitación (o la energía de exceso respecto al estado fundamental que detectamos), es lo que se conoce como espectro de PLE. De esta manera, la posición de los niveles excitados nos es revelada, *i.e.* allí donde la señal de PLE alcanza un máximo, aunque hemos de ser cautos con la evaluación de la anchura de estas resonancias.

La anchura de línea de la resonancia en cuestión va a depender de varios factores. Desde el punto de vista experimental, ésta va a depender de la convolución entre la resolución espectral del espectrómetro utilizado y la anchura de línea de nuestro láser. Sin embargo, dado que la anchura del estado fundamental de nuestras cajas cuánticas es mucho menor que la resolución del espectrómetro, la señal caerá a cero cuando la excitación no sea exactamente resonante con el estado excitado, siendo por tanto el láser el que determina la resolución del experimento de μ PLE en este

¹⁵Esta técnica ha sido ya empleada en la sección 4.1 para el estudio de muestras con cajas cuánticas apiladas de InAs en configuración macro.

caso. En estas condiciones, si el láser es monomodo y de suficiente calidad, la anchura del estado excitado puede estudiarse limitada sólo por los procesos de relajación recombinación en la nanoestructura.

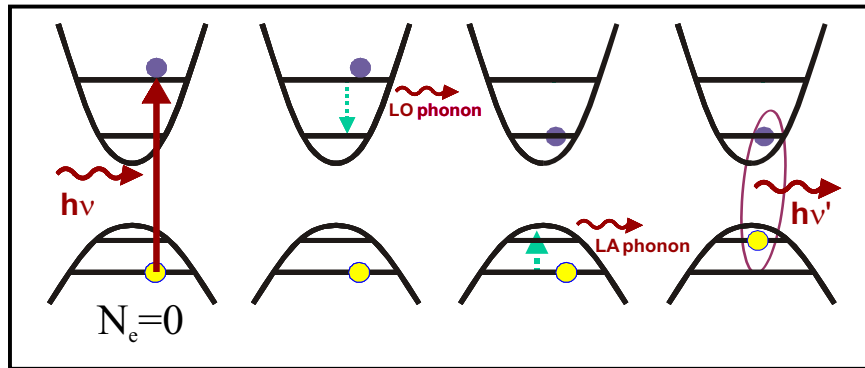


Figura 8.17: Un ejemplo típico de los procesos de absorción, relajación y recombinación en una caja cuántica aislada en ausencia de electrones en exceso $N_e=0$.

Aún así, hay que tener en cuenta que la anchura extraída de esta manera del espectro de μ PLE, no tiene porque ser igual en general a la anchura de línea homogénea real del estado excitado. Esto es debido a que la medida de PLE es una medida indirecta en la que intervienen como hemos dicho tres procesos: absorción, relajación y emisión. La anchura de línea homogénea es la que corresponde a la absorción y posterior relajación del estado excitado. Si el tiempo de vida radiativo es mucho mayor que el tiempo de relajación, entonces la contribución del tercer proceso se puede despreciar. Aunque esto es válido en la mayoría de las situaciones que involucran cajas cuánticas de InAs, no tiene porque ser cierto en general. Por último, y por las mismas razones, tampoco se puede evaluar la fuerza de oscilador de una transición excitada dada a través del experimento de μ PLE. Por ejemplo, puede ocurrir que el estado excitado en cuestión no pueda relajar su energía hacia el estado fundamental (por el principio de exclusión de Pauli, por ejemplo), o simplemente que el excitón se pierda por recombinación no radiativa durante su relajación (por efecto túnel, por ejemplo). En estos dos casos, la sección transversal de absorción sería aparentemente nula para dicho estado. Queda claro, por tanto, que para medir

la anchura de línea homogénea y la fuerza de oscilador de una transición dada, uno ha de medir la absorción óptica de las transiciones inter-banda de una caja cuántica aislada. A ello dedicaremos el próximo capítulo.

Por ahora, estudiaremos los resultados de μ PLE obtenidos en la muestra QR2 para diferentes voltajes aplicados. El procedimiento experimental es similar al descrito al comienzo de este capítulo, pues se trata básicamente de una experiencia de emisión. Sin embargo, habrá que tener mayor precaución debido a la variación del tamaño lateral de la PSF de excitación en función de la longitud de onda. Esta variación puede ser hasta del 100 % en el diámetro del mismo de un extremo a otro del rango de energías examinado. La consiguiente variación de la densidad de excitación con la longitud de onda habrá de ser tenida en cuenta al comparar intensidades relativas. Por último, tal y como venimos haciendo, la utilización de un dispositivo de detección multicanal nos permitirá construir gráficos de contorno, componiendo espectros obtenidos a diferentes energías de excitación. De esta manera, la variación de la intensidad de la emisión en función de la energía de exceso de la excitación se podrá interpretar más fácilmente. Al igual que en la sección anterior, hemos dividido los resultados en dos apartados, correspondientes al estudio general y al estudio detallado de la μ PLE. Al final de la sección, se estudiarán brevemente los efectos del campo eléctrico aplicado a la muestra.

8.2.1. Estudio general de la μ PLE

En la figura 8.18 se hayan representados los espectros de μ PLE obtenidos en la muestra QR2 para un voltaje $V_g = 0.1$ V. Como hemos dicho, para cada longitud de onda de excitación entre 810 y 948.5 nm, obtenemos un espectro de μ PL para longitudes de onda > 948.5 nm. El resultado de la composición de estos espectros es el que muestra dicha figura. Lo primero que cabe decir es que, cuanto menos, el experimento da lugar a señales detectables de intensidad significativa. No obstante, como vamos a ver, no todas estas señales están relacionadas con la relajación excitónica en nuestras cajas cuánticas.

Atendiendo a la forma general de la modulación de intensidad observada, las

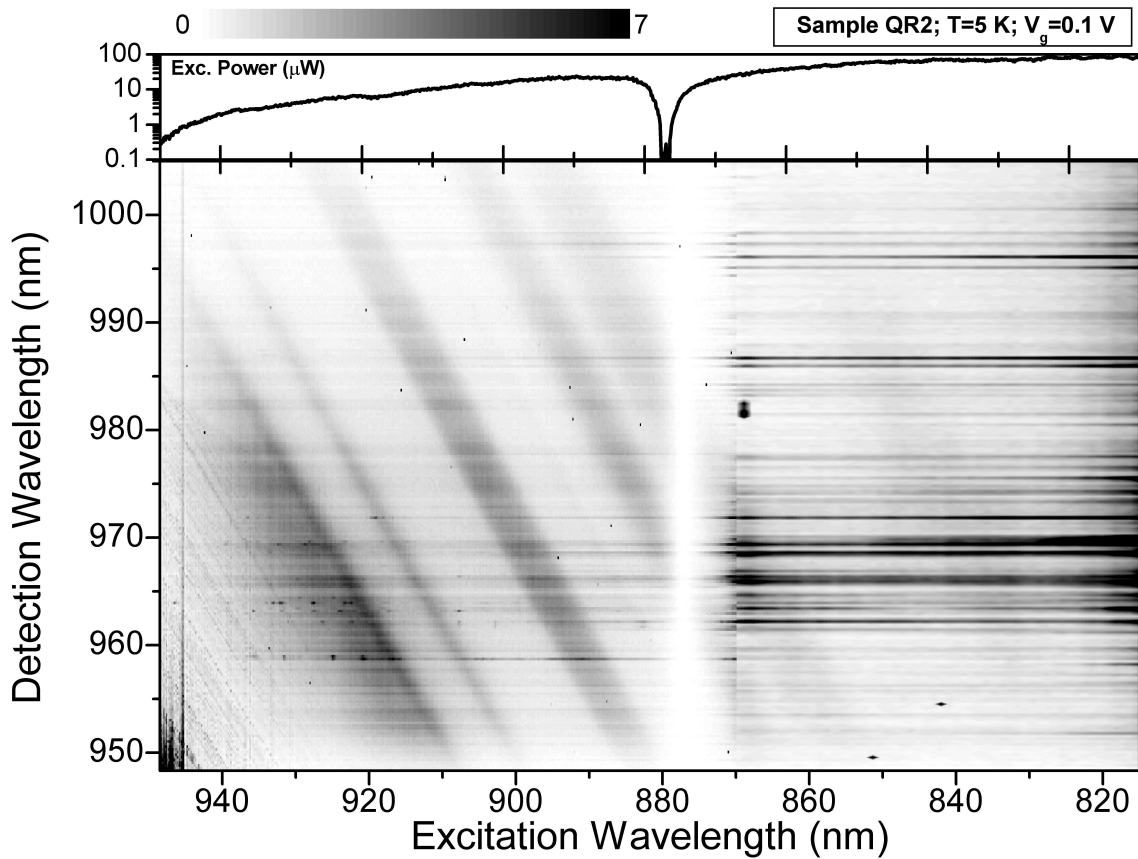


Figura 8.18: Espectros de μ PLE obtenidos en la muestra QR2 para $V_g = 0.1V$. No todas las señales detectadas provienen de la emisión de cajas cuánticas (ver texto y apéndice B). La intensidad de excitación a la entrada de la fibra que se acopla al microscopio se representa en la misma escala en el panel superior.

señales se pueden dividir en varios tipos. En primer lugar, observamos líneas de intensidad horizontales que parten del extremo derecho a 810 nm y continúan hasta aproximadamente 870 nm, donde súbitamente la intensidad es cero. Este corte está perfectamente correlacionado con la variación de la intensidad del láser de excitación representada en función de la longitud de onda en el panel superior de la misma figura. Justo a 877 nm la potencia de excitación acoplada cae a cero y con ella, por tanto, todas las señales detectadas. Dichas líneas horizontales continúan una vez que el láser se ha repuesto, pero en dicha zona observamos también líneas de intensidad diagonales, bandas más bien, que prácticamente dominan el espectro.

Por último, en la zona en que λ_{exc} y λ_{det} son prácticamente iguales (extremo inferior izquierdo), la intensidad es muy alta debido a la penetración de parte de la cola del láser de excitación en la región sensible de la CCD. En esta zona de la imagen, se observan líneas diagonales mucho más estrechas junto a una línea vertical intensa justo a $\lambda_{exc} = 945$ nm. De todas ellas, la única contribución que procede de la emisión de cajas cuánticas aisladas presentes en el punto de focalización sobre la muestra son las líneas paralelas al eje horizontal de esta figura. Éstas corresponden a variaciones de la intensidad de la emisión asociada al estado fundamental, cuando la longitud de onda de excitación recorre estados de mayor energía. En este punto referimos al lector al apéndice B donde el origen del resto de señales se identifica y se descarta su relación con las nanoestructuras cuánticas objeto de la presente investigación. La figura 8.19 contiene una imagen ampliada en torno a una de las líneas horizontales observadas en la figura 8.18. En la misma se observa claramente que a lo largo de la misma, la intensidad no es constante y alcanza varios máximos pronunciados señalados con sendas flechas verticales. Por el contrario, en el entorno cercano de dichas resonancias, la intensidad del resto de señales es prácticamente constante a energía de excitación fija. Esto permite eliminar la señal de fondo substrayendo a toda la imagen una de las filas correspondientes a la variación de la intensidad a energía de detección fija pero fuera de resonancia. Este proceso resulta más claro al observar su resultado en la figura 8.20. En ella, los ejes de coordenadas se han transformado previamente a energía de detección (vertical) y energía de exceso respecto a la detección (horizontal), para después realizar la mencionada substracción, que da lugar a la imagen representada en el panel (b).

Por este procedimiento, la señal de μ PLE de nuestras cajas cuánticas aisladas puede ser discriminada del ruido de fondo no deseado que procede del sistema de adquisición. En el rango de voltajes cercanos a cero empleados en este estudio, lejos de la zona donde el llenado de la WL provoca el ensanchamiento de las líneas de μ PL, para cada energía de excitación, la anchura de línea de la emisión está determinada por la resolución de nuestro espectrómetro. En la imagen correspondiente, esto se traduce en líneas horizontales de aproximadamente $150 \mu\text{eV}$ de ancho tal y como se

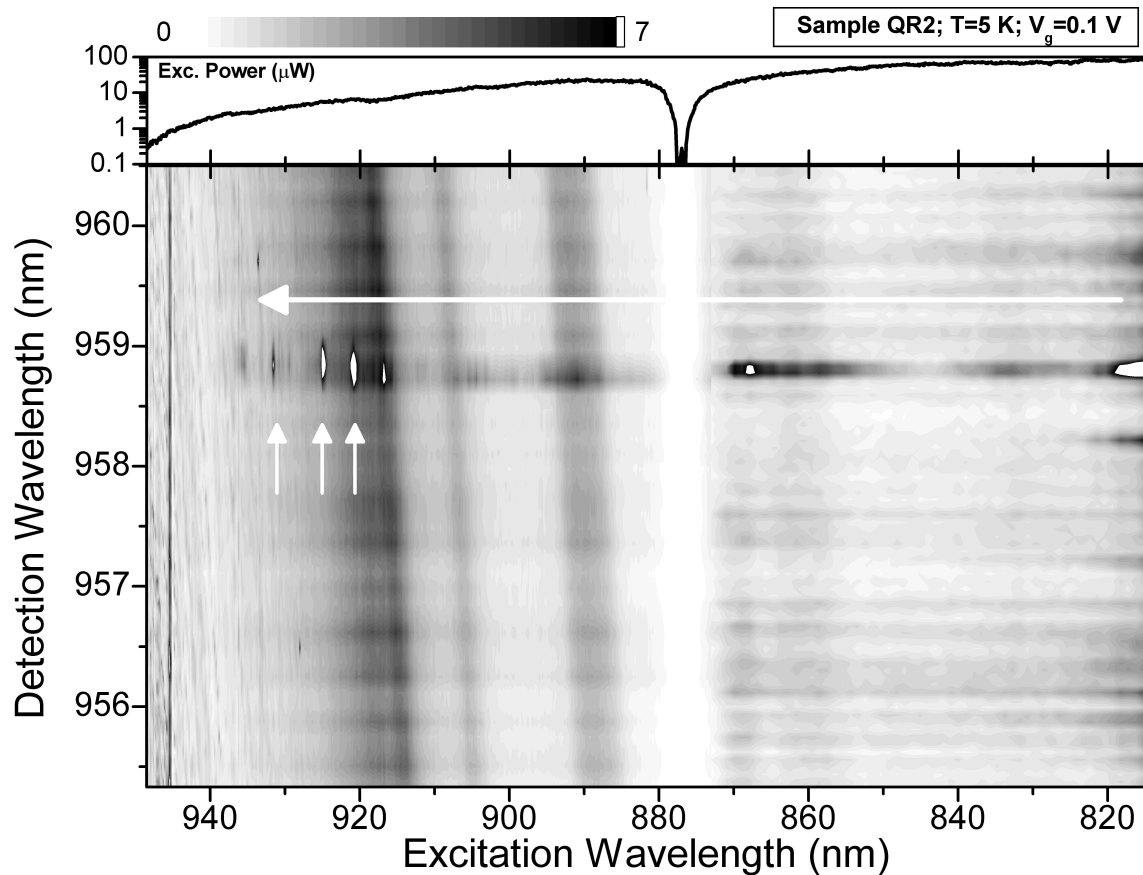


Figura 8.19: Imagen ampliada en torno a una de las líneas de intensidad horizontales presentes en la figura 8.18. Superpuestos a la señal de fondo se observan máximos de intensidad muy estrechos y señales que se extienden en todo el rango de excitación. Dichos máximos aparecen blancos en esta figura porque saturan el nivel máximo de 7 cps utilizado en la imagen para poder apreciar toda la estructura de la señal.

indica en la figura 8.20(b).

Por último, a fin de obtener el espectro de μ PLE en función de la energía de exceso correspondiente a una sola línea de emisión, promediamos la intensidad de la imagen de μ PLE en un entorno ΔE_{det} del orden de la anchura de la emisión. Esto permite obtener espectros de μ PLE con una relación señal-ruido mejorada respecto a tomar una sola fila en la matriz original, además de eliminar prácticamente cualquier residuo, mínimo por otro lado, del proceso de substracción del fondo ya comentado. El resultado final se muestra en el panel superior de la figura 8.21, correspondiente a

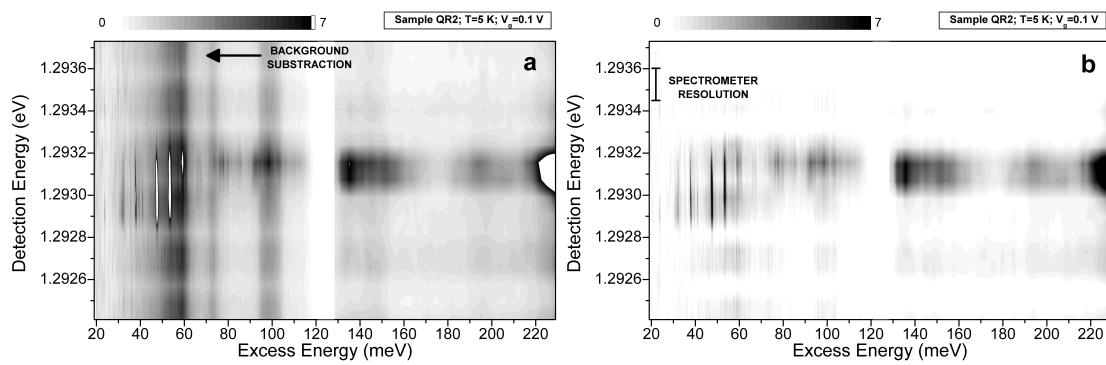


Figura 8.20: Ejemplo de substracción de la señal de fondo en las inmediaciones de la señal correspondiente a la μ PLE de una caja cuántica aislada. La energía a la cual se toma el espectro de normalización se señala por una flecha en (a). A la derecha se muestra el resultado tras la substracción. La resolución de nuestro espectrómetro ($\sim 150 \mu\text{eV}$) está indicada junto al eje vertical de este panel demostrando que la anchura de la señal de μ PLE se encuentra limitada por la misma.

la imagen del panel inferior. Es obvio que en el proceso de promediado hay información que se pierde, según se observa en la figura 8.21. La línea de emisión que da lugar a la señal de μ PLE, se desplaza de manera aparente hacia bajas energías a la vez que se ensancha a medida que la excitación se hace más y más resonante¹⁶. Debido al desplazamiento del estado fundamental por el efecto Stark, tales desplazamientos son de esperar, y serán observados, cuando el mismo espectro de PLE se realice a diferentes voltajes. Sin embargo, en esta ocasión el voltaje aplicado es constante y lo único que cambia es la energía de excitación. Dada nuestra experiencia con los efectos de apantallamiento del campo eléctrico aplicado al cambiar la potencia de excitación, podemos suponer que el corrimiento observado se debe a la reducción drástica de portadores fotogenerados al atravesar el láser el borde de absorción del continuo de la WL hacia bajas energías. El signo del desplazamiento concuerda con el que cabría esperar por este efecto, esto es, contrario al observado al aumentar la potencia en la figura 8.16. Cabe decir, sin embargo, que también se ha valorado que dicho comportamiento tuviese un origen intrínseco. A potencias de excitación elevadas y resonantes con un sistema de dos niveles como el que describe la transición

¹⁶Este efecto es visible en la imagen original 8.19 sin tratamiento alguno.

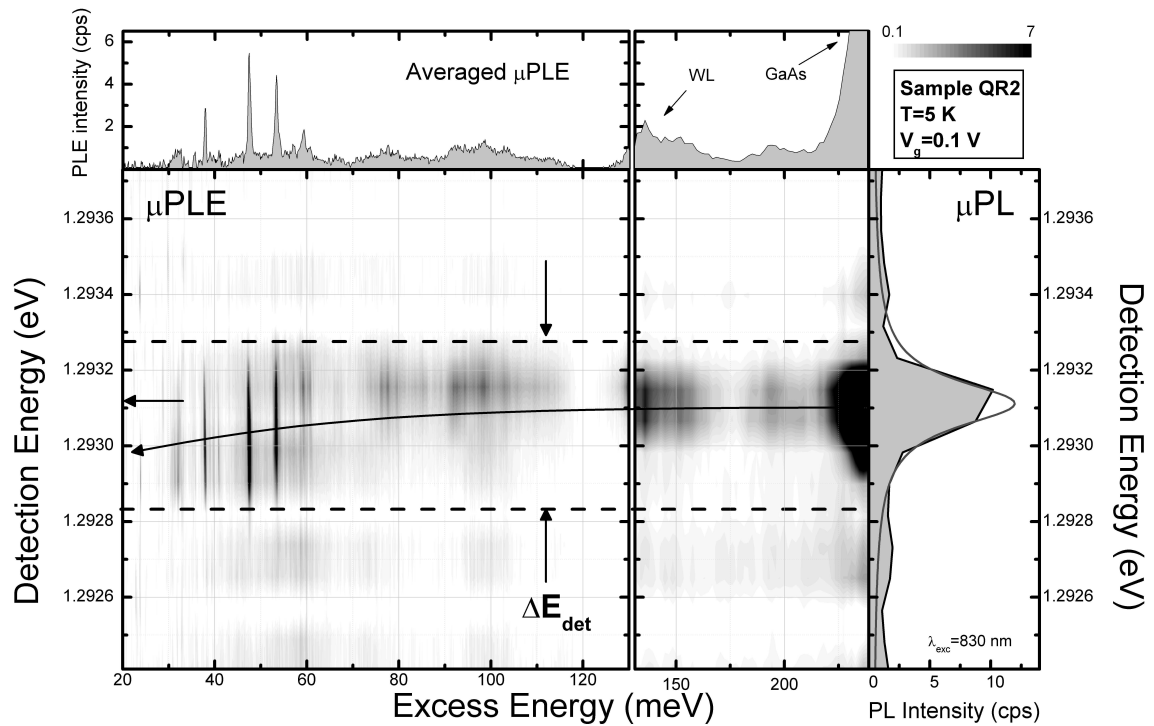


Figura 8.21: μ PLE de un sólo anillo cuántico aislado obtenido en la muestra QR2 para $V_g = 0.1$ V. El espectro de μ PLE correspondiente se obtiene a partir de la imagen promediando las intensidades en un rango de energías del orden de la anchura de línea de la emisión. Dicho espectro se muestra en el panel superior y presenta claramente máximos pronunciados por debajo del borde de absorción de la WL. El eje horizontal se haya dividido en dos a fin de ampliar la zona correspondiente a excitación resonante. A la derecha se muestra el espectro de μ PL de la resonancia investigada en este caso.

inter-banda que da lugar a los picos del espectro de μ PLE (ver más adelante), el acoplamiento entre el campo electromagnético y los niveles electrónicos da lugar a efectos diversos que se explican dentro del llamado *régimen de acoplamiento fuerte radiación-materia* [131]. El desdoblamiento del nivel electrónico excitado resonantemente, en dos niveles separados por la *frecuencia de Rabi*, es característico de este régimen. Este efecto ha sido investigado en cajas cuánticas autoensambladas de InAs y es la base de la manipulación coherente de estados electrónicos en el campo de la espectroscopía de semiconductores o atómica [132]. Su observación requiere, no obstante, densidades de potencia elevadas o un confinamiento óptico adicional

como el que puede provocar una microcavidad [131]. En nuestro caso, un aumento de la densidad de potencia al disminuir la longitud de onda de excitación es compatible con la mejor focalización del haz láser cuando $\lambda_{exc} \rightarrow \lambda_{det}$, dado que el foco se optimiza para esta última. No obstante, para caracterizar este efecto es necesario un estudio sistemático en función de la densidad de potencia, que es difícil dada la cromaticidad del objetivo.

8.2.2. Estudio detallado de la μ PLe

El estudio mediante fotoluminiscencia de excitación de cajas cuánticas aisladas de InAs, proporciona, como vamos a ver, información valiosa sobre los mecanismos de relajación y estructura electrónica de estas nanoestructuras. Por ello, antes de analizar dichos resultados, conviene repasar brevemente algunos conceptos relativos a ambas materias.

Dinámica de relajación y estructura electrónica

En primer lugar, a temperaturas reducidas como las empleadas aquí, el principal mecanismo intra-banda de relajación de la energía de exceso del excitón es la emisión de fonones ópticos longitudinales, LO¹⁷. En el régimen de confinamiento fuerte en el que, como sabemos, se hallan estas nanoestructuras, la relajación depende esencialmente de las propiedades individuales de electrón y hueco en sus respectivas bandas. Para energías de excitación por encima del borde de absorción del GaAs, la longitud de difusión de electrones y huecos depende de la energía de exceso de ambos, $\Delta E_{h,e} = E_{v,c} + n_{1,2}\hbar\omega_{LO}$, que, en general, es diferente debido a las diferencias en la estructura electrónica profunda de la banda de conducción y de valencia. Gracias a esta diferencia es posible generar excitones cargados en cajas cuánticas de InAs en muestras convencionales no basadas en efecto campo como las de este trabajo¹⁸[13]. Una vez que el electrón y el hueco son capturados en una nanoes-

¹⁷En ausencia de otros impedimentos (ver más abajo).

¹⁸Sin embargo, en esas condiciones el número de electrones o huecos no se puede controlar a voluntad como en nuestro caso.

estructura, la estructura discreta de los niveles electrónicos determina los procesos de relajación posibles. Estrictamente, para un nivel excitado discreto separado del nivel fundamental por una energía de exceso ΔE , la emisión de fonones ópticos sólo es posible si dicha separación es múltiplo entero de $\hbar\omega_{LO}$. Esto constituye la base del llamado cuello de botella o *phonon bottleneck* predicho por U. Bockelmann en 1993 [73], y que nos dice que en el sistema InAs/GaAs la relajación estaría prohibida a no ser que la separación sea exactamente de ~ 29 o ~ 36 meV, según se considere el fonón LO del InAs o del GaAs [133]. Pequeñas tolerancias respecto a este valor podrían mejorar la situación debido al ensanchamiento de los estados fonónicos por la deformación triaxial presente en las nanoestructuras. Sin embargo, la elevada eficiencia cuántica de dispositivos basados en las mismas indica que tal cuello de botella no es tan restrictivo y que otros mecanismos pueden participar de manera activa en la relajación intra-banda. Cuando el número de portadores confinados en la nanoestructura aumenta, la interacción coulombiana da lugar a procesos de dispersión tipo Auger capaces de relajar eficientemente la energía y que resultan en ensanchamientos de línea independientes de la temperatura [127]. En la banda de valencia, la emisión de fonones longitudinales acústicos de centro de zona, LA, es responsable de la relajación de energía de los huecos hacia el estado fundamental. Los fonones ópticos no participan en este caso debido a la reducida separación entre los niveles de energía en esta banda (~ 10 meV según determinamos en la sección anterior). Recientemente, la interacción con fonones acústicos en estados excitados de cajas cuánticas de InAs ha sido propuesta para explicar la dependencia lineal de la anchura de línea de emisión con el aumento de temperatura entre 4 y 30 K [134, 135]. Más aún, se ha encontrado que dicha interacción es mucho más intensa de lo que cabría esperar en la imagen comúnmente aceptada de la caja cuántica como un super-átomo. Para explicar la pronunciada pendiente de dicho ensanchamiento con la temperatura, es necesario considerar que los estados electrónicos de energía superior de estas nanoestructuras no se encuentran tan aislados como pensábamos, según han remarcado recientemente y de manera brillante A. Vasanelli *et al* [67]. La presencia de estados deslocalizados resonantes con los estados discretos de nuestras

cajas cuánticas es necesaria para explicar este comportamiento, así como algunos resultados de fotoluminiscencia de excitación en cajas cuánticas aisladas de InAs, no comprendidos hasta hace poco, y que describiremos más adelante.

En segundo lugar, es necesario discutir cuál es la estructura electrónica accesible en el experimento de μ PLE que estamos considerando. En el modelo perturbativo que venimos manejando en la discusión de nuestros resultados, los niveles electrónicos en cada banda quedan descritos por las energías de adición de un potencial armónico bidimensional. Los estados de este sistema se hallan completamente determinados, a falta del spin, por los números cuánticos $|n, m\rangle$ según fueron introducidos en la sección 5.4. Las transiciones inter-banda capaces de producir la absorción de un fotón, y, por tanto, dar lugar a un pico en el espectro de μ PLE son aquellas en las que el fotón crea un par electrón-hueco con momento angular total nulo, es decir, $m_e + m_h = 0$ [136]¹⁹. Para un sistema con tres subbandas s , p y d como el nuestro, la regla de selección descrita permite 6 transiciones en el espectro de absorción a saber: $|0, 0\rangle_e |0, 0\rangle_h$, $(|1, -1\rangle_e |1, 1\rangle_h, |1, 1\rangle_e |1, -1\rangle_h)$ doblemente degeneradas, $(|2, -2\rangle_e |2, 2\rangle_h, |2, 2\rangle_e |2, -2\rangle_h, |2, 0\rangle_e |2, 0\rangle_h)$ triplemente degeneradas, a las que hay que añadir transiciones en las que intervienen diferentes subbandas como $(|0, 0\rangle_e |2, 0\rangle_h, |2, 0\rangle_e |0, 0\rangle_h)$. En presencia de interacciones coulombianas, o si el potencial de confinamiento es asimétrico, las degeneraciones propias del potencial armónico pueden romperse. Valores típicos para el desdoblamiento entre transiciones que involucran estados p - p es de 5-7 meV en puntos cuánticos de InAs, dependiendo del grado de asimetría p_x y p_y [126]. Este modelo de partícula individual no es válido para describir sistemas donde las correlaciones coulombianas sean importantes, no obstante, las consideraciones generales son válidas y se adaptan bien a nuestra situación [136].

Tras esta introducción, podemos analizar los espectros de μ PLE de anillos cuánticos

¹⁹Recordar que aquí, la regla de selección procede del elemento de matriz entre las funciones de onda envolventes. Las habituales reglas de selección dipolares están gobernadas por la parte factorizada de la función de onda que ya no interviene en esta descripción (f.o. Bloch) [cap. 5].

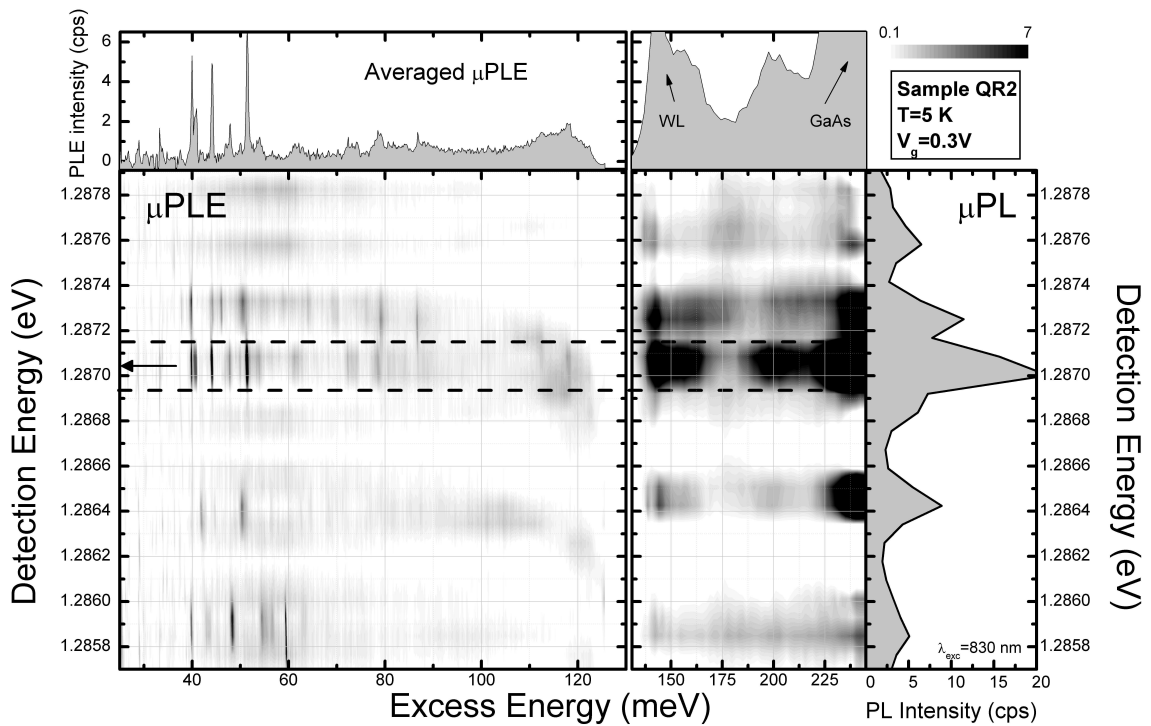


Figura 8.22: Imagen de μ PLE obtenida en la muestra QR2 a $V_g = 0.3$ V. Varias resonancias contribuyen a la señal dando lugar a diferentes espectros. En el panel superior se muestra el espectro correspondiente a la resonancia señalada con una flecha horizontal en la imagen obtenido promediando la intensidad en el rango delimitado por líneas punteadas gruesas.

cos aislados obtenidos en la muestra QR2 según se ha explicado en el apartado anterior. La figura 8.22 es similar a la 8.21 pero se haya centrada en otro rango de energías de detección (otras nanoestructuras) y ha sido obtenida a diferente voltaje. Diversas resonancias son visibles en este rango dando lugar a diferentes espectros promediados de μ PLE.

Zona no resonante: espectro continuo

En la figura 8.23 se han reunido varios espectros de este tipo correspondientes a líneas de emisión que cubren un rango de ~ 10 meV en la cola de baja energía de la banda de μ PL. El panel superior contiene espectros obtenidos para un voltaje aplicado $V_g = 0.1$ V, mientras que en el inferior los espectros corresponden a $V_g = 0.3$ V. La dependencia frente al voltaje será estudiada más adelante y no afecta a la

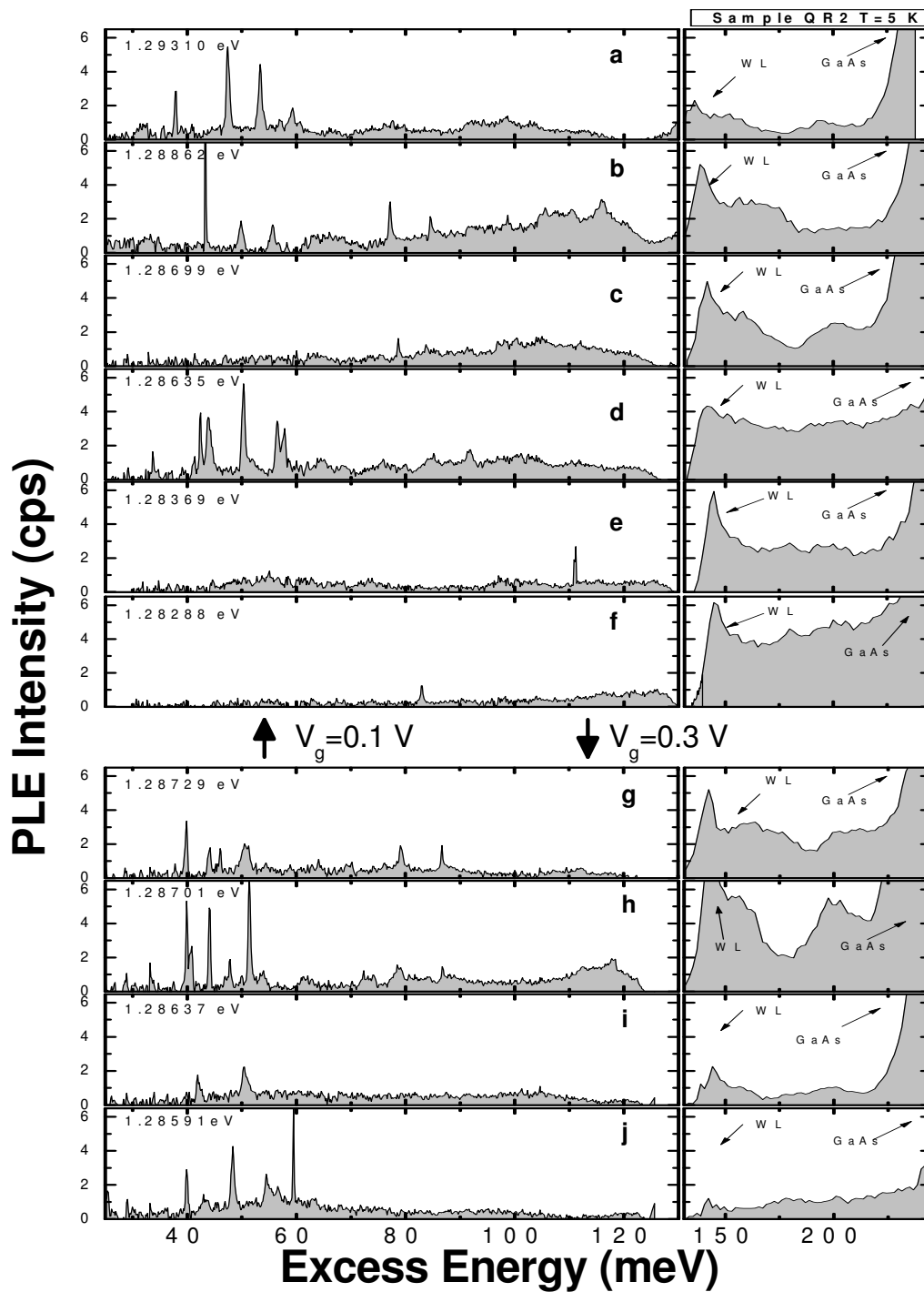


Figura 8.23: Espectros de μ PLe de anillos cuánticos aislados de InAs que emiten a las energías de detección, E_{det} , señaladas en cada caso. El panel superior corresponde a un voltaje aplicado de 0.1 V, siendo 0.3 V para los espectros del panel inferior.

discusión que vamos a realizar. Por ahora, nos concentraremos en la distribución, número y anchura de las resonancias observadas en los diferentes espectros de μ PLE realizados. En la región correspondiente a energías de exceso elevadas, $\Delta E > 130$ meV, la señal de μ PLE está dominada por los bordes de absorción continuos de la barrera de GaAs y la WL. Tomando las posiciones del máximo de la WL y del punto medio de la cola correspondiente a la barrera, estas aparecen respectivamente a 1.428 eV y 1.519 eV en el espectro de la figura 8.23(a). Entre ambos, la intensidad de la señal no cae a cero sino que se distinguen claramente al menos dos máximos en la mayoría de los espectros de esta figura. El primero de estos máximos ocurre en promedio a ~ -30 meV por debajo del GaAs y el segundo a unos pocos meV por encima de la WL.

En primer lugar, por debajo del borde de absorción de GaAs, y aproximadamente a -30 meV, sabemos que la fotocorriente de esta muestra alcanza un máximo, tal y como quedo demostrado en el capítulo 7 [fig. 7.12]. Dicho máximo corresponde a transiciones inter-banda electrón-aceptor neutro también visibles en PL. El hecho de que dicha resonancia sea observada también en el experimento de PLE nos indica que los fenómenos de transferencia de huecos desde las impurezas neutras hacia las nanoestructuras son tan eficientes como desde la WL. Esto contrasta con la idea generalmente aceptada de cajas cuánticas acopladas a un continuo, la WL, del que se alimentan invariablemente. En nuestro caso, las impurezas aceptoras neutras compiten con las nanoestructuras por los huecos fotogenerados por el láser de excitación²⁰. Una vez que un hueco ha sido atrapado en una impureza, el acoplamiento entre ésta y el nivel electrónico de la nanoestructura dependerá fuertemente de la distancia entre ambas y su estado de ocupación, es decir, dependerá fuertemente del entorno de carga de la caja cuántica particular. En la figura 8.23 este extremo queda confirmado al constatar que no todas las cajas cuánticas investigadas resultan en un acoplamiento equivalente con las impurezas aceptoras neutras. En el caso de los

²⁰Al fin y al cabo, en el experimento de PL mostrado en el capítulo 7, más del 66 % de la emisión es colectada en transiciones electrón-aceptor en condiciones de excitación justo por debajo del borde de absorción del GaAs.

espectros (a), (c), (g) y (h) esta resonancia se observa claramente sobre el fondo. En el resto, dicho máximo se intuye o queda enmascarado en un continuo que se extiende entre el borde del GaAs y la WL. Esto corrobora los resultados de μ PL, donde no todas las nanoestructuras daban lugar a excitones ligados.

Es interesante notar también que, a la vista de los resultados mostrados, no sólo el acoplamiento con el continuo por encima de la WL cambia de una a otras nanoestructuras, sino que la propia intensidad correspondiente a la WL varía de manera importante. En los espectros (a), y (j), la contribución del continuo se encuentra muy reducida, aunque la absorción es intensa para los estados discretos que se observan a energías más resonantes. Por otro lado, espectros como el (c) o el (e), muestran justo el comportamiento contrario, alta contribución de la WL y casi nula presencia de estados discretos. El resto tienen un comportamiento más parecido a lo que se encuentra en la literatura para puntos cuánticos aislados de InGaAs [137, 138, 135]. Esta fenomenología no ha de parecerse extraña, después de la discusión anterior relativa a los fenómenos de captura desde las impurezas. Sin embargo, hemos considerado la posibilidad de que la ausencia de señal proceda de una inadecuada eficiencia de la excitación-colección debida a la cromaticidad del objetivo. Esto queda descartado al ver que aparecen diferentes comportamientos de forma aleatoria en el rango de energías de detección cubierto. Otra posibilidad, al igual que antes, podría ser la de un efecto electrostático debido a la variación de potencia, y consiguiente desplazamiento de las líneas de emisión. Este punto se discutirá al final del capítulo, al estudiar la variación con el campo eléctrico.

Zona resonante: espectro discreto

En la región resonante del espectro de μ PLE, la aparición de múltiples máximos, estrechos e intensos, desbarata la hipótesis del cuello de botella e indica que existen procesos de relajación eficientes para que el excitón pierda su energía hacia el estado fundamental. En principio, dichos picos han de tener su origen en estados reales de la estructura electrónica de nuestras cajas cuánticas. Los procesos que involucren estados virtuales, como en el caso del Raman resonante, aunque pro-

puestos primigeniamente para explicar la intensa señal de PLE [138, 130], hoy se sabe que no tienen una eficiencia suficiente como para contribuir a la absorción de manera significativa [134, 137]. Las resonancias detectadas consisten, en definitiva, en transiciones reales entre estados de hueco y electrón de ambas bandas. En el marco del modelo perturbativo armónico, podemos suponer que $\hbar\omega_e \sim 30$ meV y $\hbar\omega_h \sim 10$ meV. Esto está respaldado por los resultados de PC, PL y μ PL mostrados aquí hasta ahora, y resultados de CV, absorción y μ PL llevados a cabo en muestras similares por Warburton *et al.* En total, esperamos que hayan tres subbandas confinadas y 8 transiciones ópticas posibles que cumplen la regla de selección dipolar, como hemos visto. Las energías del espectro de absorción correspondiente serían: $(\hbar\omega_e + \hbar\omega_h)$, $(2\hbar\omega_e + 2\hbar\omega_h)$ doblemente degenerada, $(3\hbar\omega_e + 3\hbar\omega_h)$ triplemente degenerada, $(3\hbar\omega_e + \hbar\omega_h)$, y $(\hbar\omega_e + 3\hbar\omega_h)$. Estas dos últimas asociadas a estados de subbandas diferentes. Para obtener el espectro de PLE, hay que restar la energía del estado fundamental $(\hbar\omega_e + \hbar\omega_h)$, y las energías correspondientes serían: 40 meV ($\times 2$), 80 meV ($\times 3$), 60 y 20 meV, respectivamente. Todas ellas se encuentran degeneradas en spin 2 veces, aunque en ausencia de campo magnético no cabe esperar desdoblamiento entre ellas. La degeneración en l puede romperse, no obstante, si la caja no tiene simetría de revolución respecto a la dirección de crecimiento (desdoblamiento x - y).

Ahora nos hallamos en condiciones de comparar directamente con los espectros de la figura 8.24. En la misma, se han representado ampliados aquellos espectros de las figuras anteriores que presentaban resonancias individuales más pronunciadas. Sólo se pueden considerar resonancias con energías de exceso de más de 30 meV debido a la fuerte dispersión del láser para energías más resonantes [apéndice B]. A partir de esa energía, la mayor parte de las resonancias individuales aparecen en el rango de 35 a 70 meV. En algunos espectros observamos resonancias aisladas y más débiles a más altas energías, y casi invariablemente la señal de μ PLE muestra un fondo continuo por encima de cero que no podemos atribuir al proceso de tratamiento de datos²¹.

²¹Ver por ejemplo la imagen original 8.19.

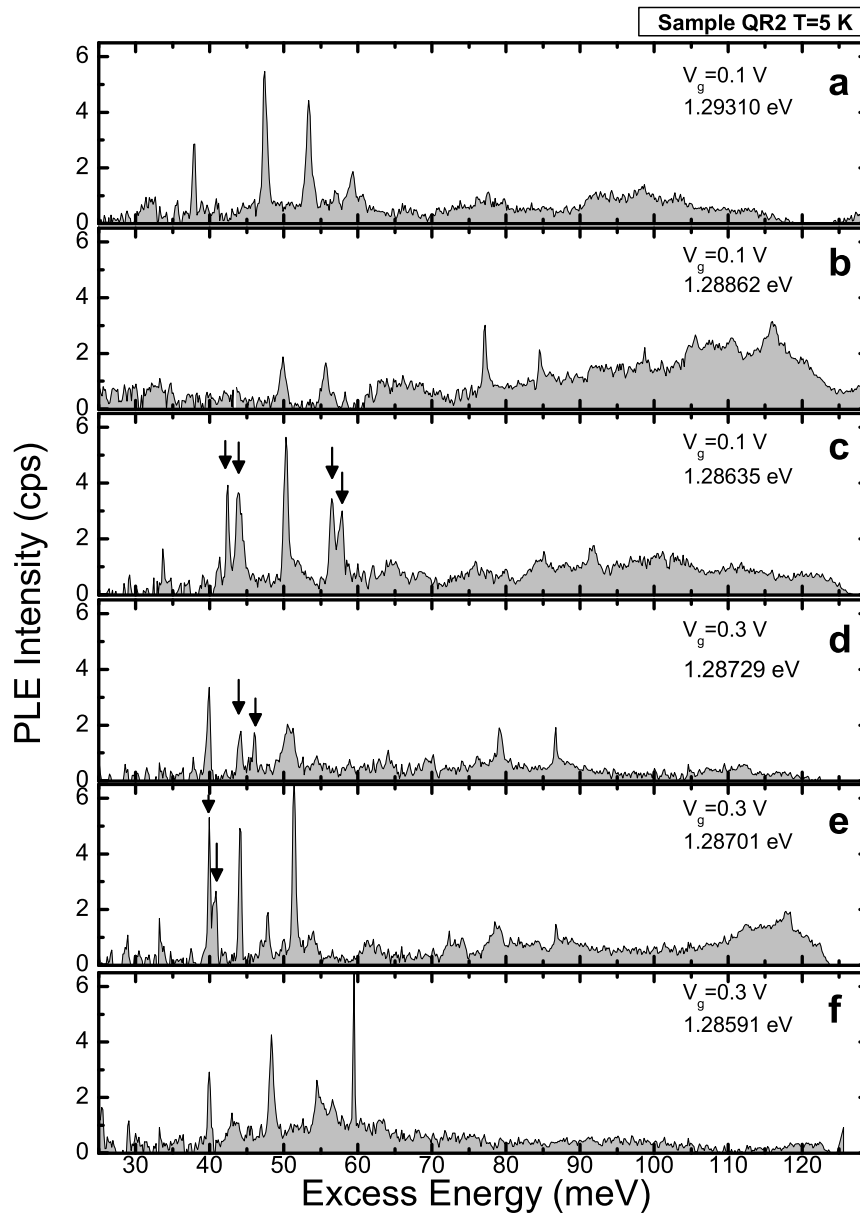


Figura 8.24: Región resonante de varios espectros de μ PLe obtenidos en la muestra QR2. Los voltajes aplicados y energías de detección se encuentran indicados. Las resonancias se agrupan por dobletes allí donde el número de picos es más elevado.

El número de resonancias observadas en el rango de 35 a 75 meV, así como su energía, concuerda de manera satisfactoria con lo predicho a partir del modelo perturbativo sencillo que hemos considerado. Por ejemplo, en aquellas nanoestructuras que presentan un número de resonancias más reducido, éstas aparecen separadas

entre si varios meV cubriendo todo el rango. Por el contrario, observamos que en aquellas que tienen el número de picos más elevado (hasta 6), estructuras doblete aportan los picos adicionales. Dicho desdoblamiento es en promedio de ~ 1.5 meV y nunca mayor que 2 meV, lo cual indica una asimetría en el plano reducida. Esto concuerda con la morfología observada en las imágenes de AFM de estos anillos y corrobora resultados de experimentos de μ PL en este tipo de nanoestructuras [74, 100]. Este grado reducido de asimetría es necesario para poder observar la emisión correspondiente al estado singlete y triplete del excitón X^{3-} . Para que ambos sean visibles debe ocurrir que $\Delta E_{p_y-p_x} < E_{pp}^X$, la energía de intercambio entre los electrones p . Esta energía de intercambio se puede medir directamente o calcular a partir del valor teórico para el modelo armónico $E_{pp}^X = \frac{3}{2}E_{sp}^X$. Introduciendo el valor de $E_{sp}^X = 1.8$ meV de la referencia [74], tenemos que se ha de cumplir $\Delta E_{p_y-p_x} < 2.7$ meV, que es precisamente lo que encontramos en nuestros espectros de μ PLE. Esto no ocurre, por ejemplo, en puntos cuánticos de InGaAs, donde sólo una resonancia correspondiente a X^{3-} es observada debido a que $\Delta E_{p_y-p_x} > E_{pp}^X$ [24]. Ésta es una diferencia importante y puede tener implicaciones en aplicaciones que necesiten de una manipulación coherente del spin. Los tiempos de relajación intra-banda en esta configuración de carga (tres electrones en exceso tras la recombinación), dependen fuertemente de la alineación de los spines electrónicos que según acabamos de corroborar será diferente en unas y otras (spin total del estado inicial $S=1$ en anillos, mientras que $S=0$ para puntos cuánticos de confinamiento similar).

A fin de corroborar estos resultados se han realizado ajustes lorentzianos en más de 50 resonancias individuales en el rango de 35 a 70 meV. Sólo se han tenido en cuenta aquellas resonancias que, por su intensidad, claramente se podían atribuir a un estado excitado. En la figura 8.25, se muestra un gráfico de barras que representa el número de picos hallados por intervalo $\Delta E = 2$ meV entre 35 y 70 meV. En la misma figura se ha representado el espectro de absorción de la muestra QR1, ya mostrado en el capítulo 7, al que se le ha sustraído la energía correspondiente al estado fundamental ~ 1.312 eV.

Podemos observar que el acuerdo entre ambos experimentos, llevados a cabo por

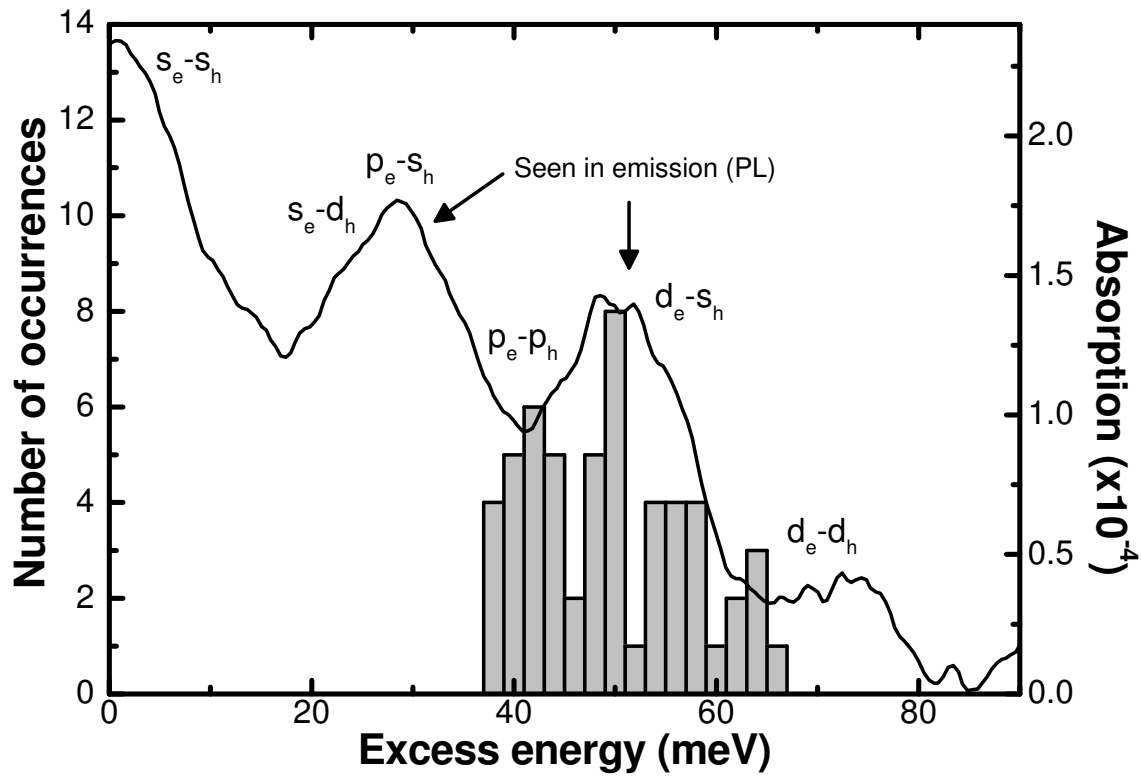


Figura 8.25: Estadística de estados excitados detectados en la μ PLe de la muestra QR2 comparada con el experimento de absorción en áreas macroscópicas de la muestra QR1. Datos de absorción por cortesía del Dr. Khaled Karrai (LMU, München).

grupos distintos en muestras que contienen el mismo tipo de nanoestructuras, es altamente satisfactorio. Según el modelo armónico, podemos asignar el orden correcto de las transiciones excitadas y así se han etiquetado en la figura. El primer estado excitado del espectro de absorción corresponde a transiciones entre subbandas distintas de la banda de valencia y conducción, $s_e - d_h$ a 20 meV y $p_e - s_h$ a 30 meV. Esta última fue propuesta para explicar la intensa luminiscencia en dicho rango cuando el nivel de Fermi atraviesa los estados p de la banda de conducción [fig. 7.14]. No obstante, ni una ni otra pueden ser investigadas en nuestro experimento de μ PLe dada la fuerte dispersión del láser para $\Delta E < 30$ meV. La primera transición que contribuye a la señal de μ PLe es la correspondiente a los estados tipo p de cada banda a 40 meV. En un rango de ~ 10 meV, el 40% de las resonancias detectadas se agrupan formando un máximo a unos 42 meV. A continuación, en

otros 15 meV, aparecen el 45 % de las resonancias restantes centradas a unos 50 y 56 meV. Según nuestros cálculos, éstas deben corresponder a transiciones $d_e - s_h$. Estas transiciones pueden ser las responsables de la banda de alta energía detectada en los experimentos de PL realizados en esta muestra. La distribución alcanza un máximo aproximadamente a esta energía igual que lo hace el espectro de absorción mostrado en la misma figura. Cuando la señal de absorción decae, también lo hace nuestra distribución y el 15 % de las resonancias restantes forman la cola de alta energía. Estas corresponderían a transiciones de más alta energía entre subniveles d cuyo máximo es visible en el espectro de absorción a 72 meV, y que han sido observadas en algunos de los espectros de μ PLE pero no han sido contabilizadas. El acuerdo entre teoría y los dos experimentos es considerable si tenemos en cuenta las simplificaciones realizadas. Más aún, la asignación de los estados que contribuyen a cada rango del espectro excitado, corrobora las hipótesis hechas en el capítulo 7 a la vista de los espectros de macro PL, y también en el estudio por μ PL de la cola de alta energía de la muestra QR1 [fig. 8.5]. El hecho que estos estados tengan de por sí una absorción elevada, ratifica el que sean observados en emisión cuando el nivel de Fermi inyecta resonantemente electrones en cada subbanda. Por último, cabe destacar que se observa una modulación de la distribución de picos μ PLE de aproximadamente 7 meV. En principio, investigando un conjunto suficientemente amplio de nanoestructuras deberíamos obtener una distribución capaz de reproducir adecuadamente el espectro de absorción. En nuestro caso, el número de nanoestructuras investigadas no es suficiente para determinar si dicha modulación se debe a un efecto intrínseco o no, aunque se están investigando varias posibilidades que no comentaremos aquí. Por ello, y hasta confirmar estos resultados, concluimos que es la envolvente de la distribución de picos de μ PLE la que mejor se ajusta al espectro de absorción macroscópico.

Transición del espectro discreto al continuo

Con todo lo dicho, el origen de las resonancias individuales queda suficientemente explicado. Sin embargo, aún tenemos que explicar por qué la señal no es

exactamente cero allí donde no existen estados excitados correspondientes a la estructura discreta de nuestras cajas cuánticas. Vemos que en este sentido, la idea de una caja cuántica ideal con niveles discretos y aislados falla en la descripción de una situación real más compleja. Para demostrarlo, es suficiente con hacer un balance de energías sobre la estructura electrónica de cada banda. Según el experimento de μ PLE para una energía de detección de 1.293 eV, el máximo correspondiente a la WL ocurre a 135 meV sobre el estado fundamental excitónico [fig. 8.24(a)]. En la aproximación más sencilla que podemos realizar, los estados electrónicos en la banda de conducción y valencia se hallan equiespaciados, como hemos visto, 30 meV y 10 meV, respectivamente. Esto nos dejaría con aproximadamente 2-3 sub-bandas excitadas para electrones, y quizás una más para huecos, antes de que los niveles electrónicos fuesen resonantes con el continuo de la WL, según deducimos de la energía de exceso de ésta. Consideremos ahora la transición inter-banda $p_e - p_h$ a $(1.293 + 30 + 10) = 1.333$ meV que daría lugar a una resonancia discreta en el espectro de μ PLE, y la transición inter-banda entre el estado s_e y el borde de la WL en la banda de valencia $(1.293 + 4 \times 10) = 1.333$ meV que promocionaría un electrón, ya en el continuo de la banda de valencia, al estado fundamental de la banda de conducción. Como vemos, llegamos a la notable conclusión de que ambas transiciones son degeneradas [fig. 8.26]. Es decir, cuando la energía de excitación es superior a la suma de la transición fundamental más la energía de escape del hueco, $E_{X^0} + \Delta E_{s_h}$, las transiciones que involucran estados excitados discretos de nuestras cajas cuánticas, se hayan degeneradas con transiciones entre estados discretos de la banda de conducción y estados del continuo de la banda de valencia. Esto genera pares electrón-hueco, a partir de dicha energía, que contribuyen a la emisión posterior del estado fundamental. Habida cuenta de que la densidad de estados de los niveles deslocalizados es continua, también lo es la señal de PLE correspondiente como se observa en el experimento. En nuestro caso, dado que $\hbar\omega_h \sim 10$ meV estas transiciones continuas deben aparecer paulatinamente a partir de unos 40 meV que concuerda con lo observado, si bien es cierto que no se ha podido investigar la zona más resonante del espectro.

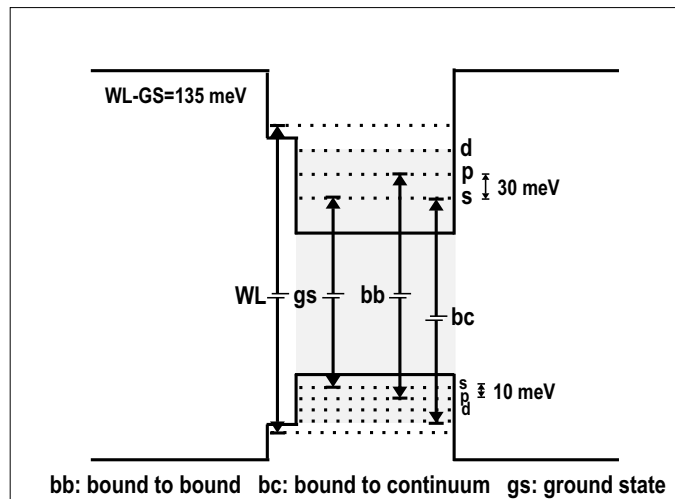


Figura 8.26: Diagrama de niveles energéticos que intervienen en los espectros de μ PLe. Sólo tres subbandas de electrones y cuatro de huecos son posibles para el potencial de confinamiento de nuestros anillos cuánticos. Las transiciones inter-banda no sólo involucran estados ligados, sino también transiciones entre el continuo de una banda, y los estados discretos de la otra, pueden aparecer mucho antes de que la WL intervenga directamente en el espectro.

En la figura 8.27 se encuentran reflejados los espectros de μ PL y μ PLe de un anillo cuántico aislado. Las transiciones entre estados discretos (b-b), discreto-continuo (b-c), y continuo-continuo (WL, e^- - A^0 y GaAs) se han señalado en la figura, así como en el diagrama de los niveles de energía involucrados. Tan sólo nos resta discutir que mecanismos de relajación y que anchuras de línea cabe esperar en la estructura electrónica que acabamos de determinar. Aquí el papel de los estados cuasi-continuos es determinante. En ausencia de dicho continuo, los mecanismos de relajación disponibles para el par electrón-hueco se reducen a procesos capaces de conectar entre sí los niveles de una densidad de estados discreta. Esto reduce las posibilidades a la relajación por emisión de fonones ópticos desde un conjunto discreto de energías de exceso, o, tal y como vimos en la sección anterior al examinar la anchura de línea de la μ PL, a la interacción coulombiana entre portadores (Auger) cuando la ocupación de la caja cuántica es elevada o la transición examinada se encuentra cerca del continuo de la WL. Sin embargo, incluso para estados que se hayan fuer-

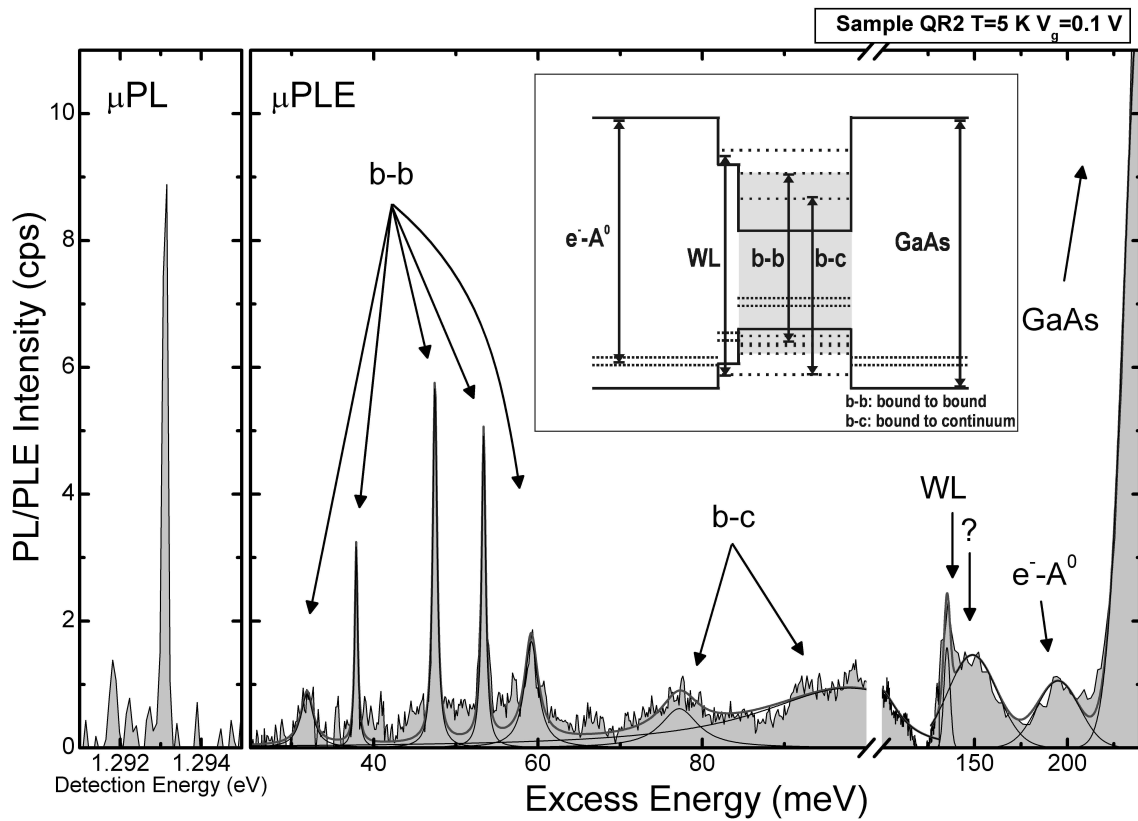


Figura 8.27: Espectros de μ PL y μ PLe de un anillo cuántico aislado de InAs. Las diferentes contribuciones al espectro se señalan en el diagrama insertado.

temente ligados, como por ejemplo los estados tipo p , la presencia de un continuo resonante a la misma energía acaba de ser demostrada. El excitón que ocupa uno de estos estados es degenerado con el par electrón-hueco correspondiente a la transición b-c, y cualquier potencial que conecte ambos lleva ineludiblemente a un mecanismo de relajación y, consecuentemente, a un ensanchamiento de la línea discreta. A baja temperatura, la dispersión entre ambos ocurre por fonones acústicos de baja energía, lo cual explica el comportamiento lineal de la anchura de línea entre 4 y 60 K [67, 134]. Adicionalmente, la degeneración de ambos niveles lleva a una eficiencia superior de mecanismos Auger entre estados discretos y el continuo, incluso cuando el estado excitado está ocupado con un sólo portador [24, 127]. A la vista de nuestro resultado experimental, otra consecuencia se extrae de dicho ensanchamiento, y es que la captura de electrones dará lugar a una banda en el espectro de μ PLe, casi

resonante con el máximo de la WL, y cuya anchura refleja el ensanchamiento, y posible desdoblamiento, de los estados tipo d que pueden participar de la captura de un electrón por emisión de un fonón LO. Esto explicaría el sistemático máximo que aparece en nuestros espectros de μ PLE alrededor de la WL, y que había quedado pendiente en la discusión.

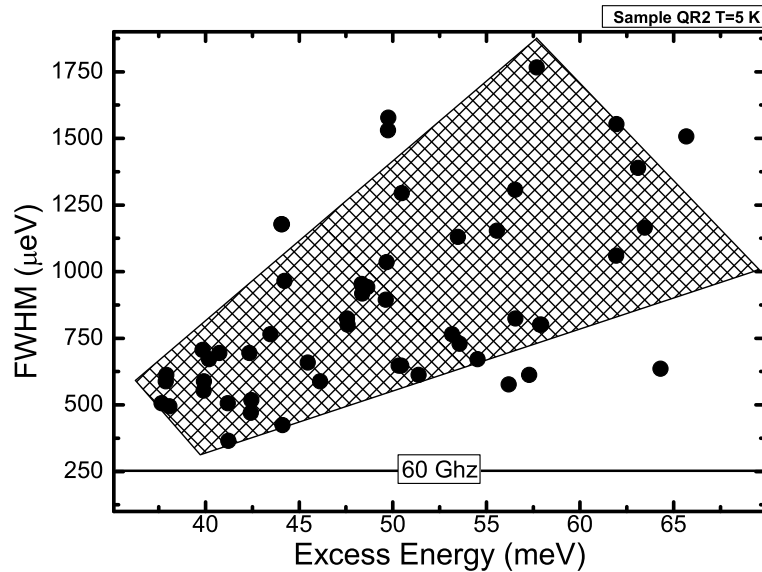


Figura 8.28: Anchura de línea de las resonancias detectadas en los espectros de μ PLE frente a su energía de exceso. Un ensanchamiento paulatino y creciente con la energía de exceso se extrae de la correlación de los datos experimentales.

Para confirmar este ensanchamiento de los estados excitados, podemos representar la anchura de los picos individuales detectados en los diferentes espectros de μ PLE en función de su energía de exceso. El resultado se representa en la figura 8.28. En la misma, se ha representado en línea horizontal la resolución espectral del experimento de μ PLE que corresponde como se ha dicho anteriormente a la anchura de nuestro láser de Ti-Zafiro y que es de ~ 30 GHz, según el fabricante. Nosotros hemos tomado una estimación más conservadora, dado que la cavidad se haya sólo optimizada para longitudes de onda resonantes con la emisión. Las resonancias asociadas a los estados excitados detectados en el rango entre 35 y 70 meV, vemos que tienen anchuras entre 350 y 1600 μ eV, con una clara correlación entre la anchura

y la energía de exceso. Despreciando fenómenos de desfase puro, o asociados a la recombinación radiativa del estado fundamental y/o excitado, que juegan un papel poco importante y contribuyen a un tanto por ciento pequeño de la anchura de línea, el tiempo de relajación puede ser estimado directamente de ésta. De esta manera, según hemos visto en la sección 8.1.2, tenemos que $\tau \sim \hbar/\Gamma$, siendo Γ la anchura total a media altura de la transición. Esto nos proporciona tiempos de vida entre ~ 0.3 ps y ~ 2 ps, que son del orden de lo encontrado en nanoestructuras similares, y en el mismo rango, por métodos de resolución temporal no lineales y μ PLE [139, 24]. Vemos que incluso en este rango de energías reducido, y sólo considerando las resonancias individuales claramente visibles sobre el fondo, se aprecia un ensanchamiento de las mismas al aumentar el acoplamiento con el continuo de la energía de excitación. El ensanchamiento, *grosso modo*, es aproximadamente lineal con la energía de exceso, aunque la dispersión obtenida previene de sacar conclusiones al respecto por el momento. Este ensanchamiento está de acuerdo con los resultados que hemos discutido, y corrobora los resultados en función de la temperatura de otros autores tal y como habíamos anunciado.

8.2.3. μ PLE en función del campo eléctrico aplicado

Finalizaremos este capítulo mostrando brevemente los resultados obtenidos repitiendo el experimento de μ PLE para diferentes voltajes aplicados. Un estudio detallado no es posible pues no se dispone de datos experimentales en un rango lo bastante amplio de voltajes. Parte de los mismos han sido presentados en el apartado anterior, donde habíamos aplazado algunas discusiones atribuyéndolas a posibles efectos electrostáticos. Nos centraremos en el estudio de la zona de energías de exceso entre 35 y 70 meV, pues es allí donde la mayoría de las resonancias individuales pueden ser detectadas. Los espectros se han realizado en la región de voltajes entre $V_g = -0.1$ V y $V_g = 0.3$ V, por tanto, y según sabemos del estudio de la μ PL, las resonancias observadas corresponden a nanoestructuras vacías, o que tienen un único electrón en exceso antes de que el par electrón-hueco sea generado por el láser de excitación. Tal situación, sin embargo, no es relevante en este estudio pues las

transiciones detectadas en el espectro de μ PLE corresponden a niveles superiores al fundamental, y por tanto hay que descartar un posible bloqueo de las mismas por el principio de exclusión de Pauli [fig. 8.29] [101]. Por otro lado, la interacción coulombiana entre el electrón adicional y el excitón es como sabemos de ~ 3 meV, mucho menor que las energías de exceso consideradas.

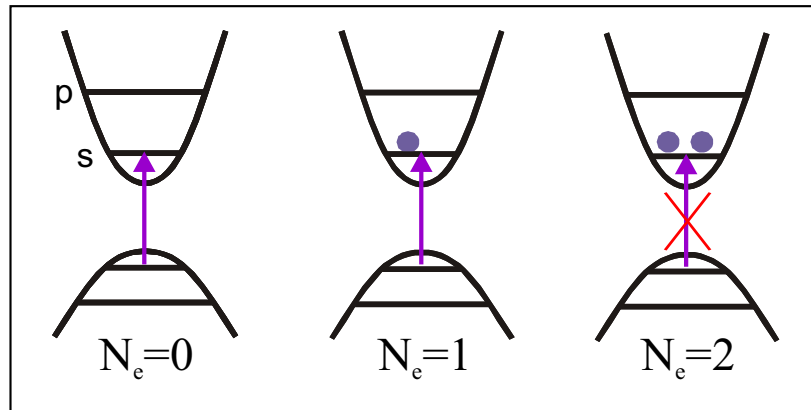


Figura 8.29: Bloqueo de la absorción del estado fundamental por el principio de exclusión de Pauli.

Dicho esto, en las figuras 8.30 y 8.31 se han representado los espectros de μ PLE y μ PL obtenidos para dos energías de detección diferentes y varios voltajes aplicados en el rango indicado.

Para una energía de detección en torno a 1.2931 eV, una sola nanoestructura contribuye a los espectros en el rango de voltajes cubierto. En el panel de la derecha, la dependencia frente al voltaje de la μ PL refleja un pronunciado corrimiento hacia bajas energías, y una persistencia de la línea de emisión entre -0.1 y 0.25 V. Los espectros de μ PLE obtenidos para esta línea de emisión se encuentran representados en los paneles de la izquierda. En ellos vemos, que los picos correspondientes a los estados excitados reproducen el corrimiento hacia bajas energías del estado fundamental.

En la figura 8.31, se representa la misma información en otro rango de energías de detección. En este caso, varias resonancias son detectadas en μ PL, dando lugar a varios espectros de μ PLE en los paneles de la izquierda. El comportamiento de estas líneas es diferente del observado en la anterior. Sólo la línea B a 1.2870 eV,

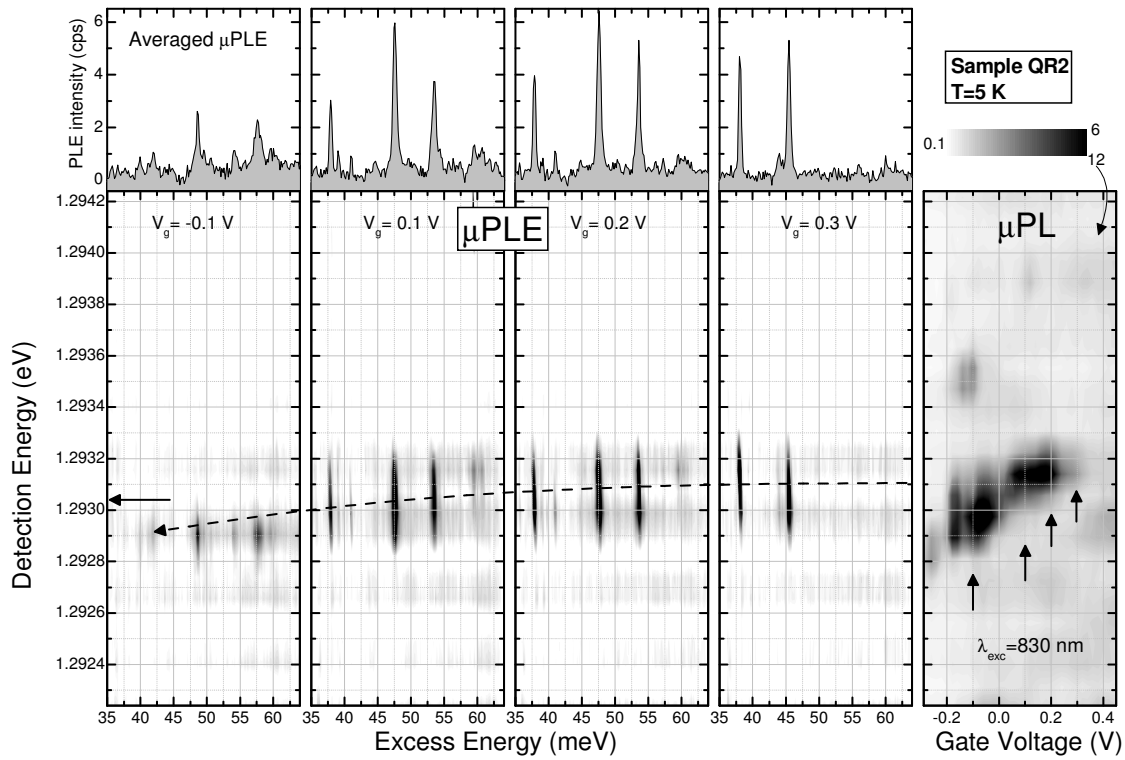


Figura 8.30: Espectros de μ PLe en el rango de energías de exceso asociado a las transiciones p_e - p_e y d_e - s_h , obtenidos alrededor de $E_{det} = 1.2931$ eV. Cada panel vertical de izquierda a derecha corresponde a un voltaje aplicado de -0.1, 0.1, 0.2 y 0.0 V, respectivamente. A la derecha, se muestra la correspondiente μ PL en función del voltaje, obtenida en el mismo rango.

muestra un corrimiento Stark discernible con la resolución de nuestro espectrómetro. Además, justo para $V_g = 0.1$ V las líneas de μ PLe desaparecen para esta energía de detección y da la impresión de que reaparecen a -0.1 V (B³). El resto de las resonancias sólo contribuyen a la PLe para voltajes superiores o iguales a 0.1 V. Esto se encuentra, no obstante, correlacionado con los voltajes para los cuales las resonancias respectivas aparecen en el panel de la derecha.

La principal conclusión que se puede extraer de los espectros presentados²² es

²²Dejando aparte la energía, número, y anchura de los picos, que han sido analizadas en detalle en el apartado anterior, y considerando que el rango de voltajes estudiado no permite analizar fenómenos tales como el principio de exclusión, y sus consecuencias sobre la dinámica de absorción-relajación.

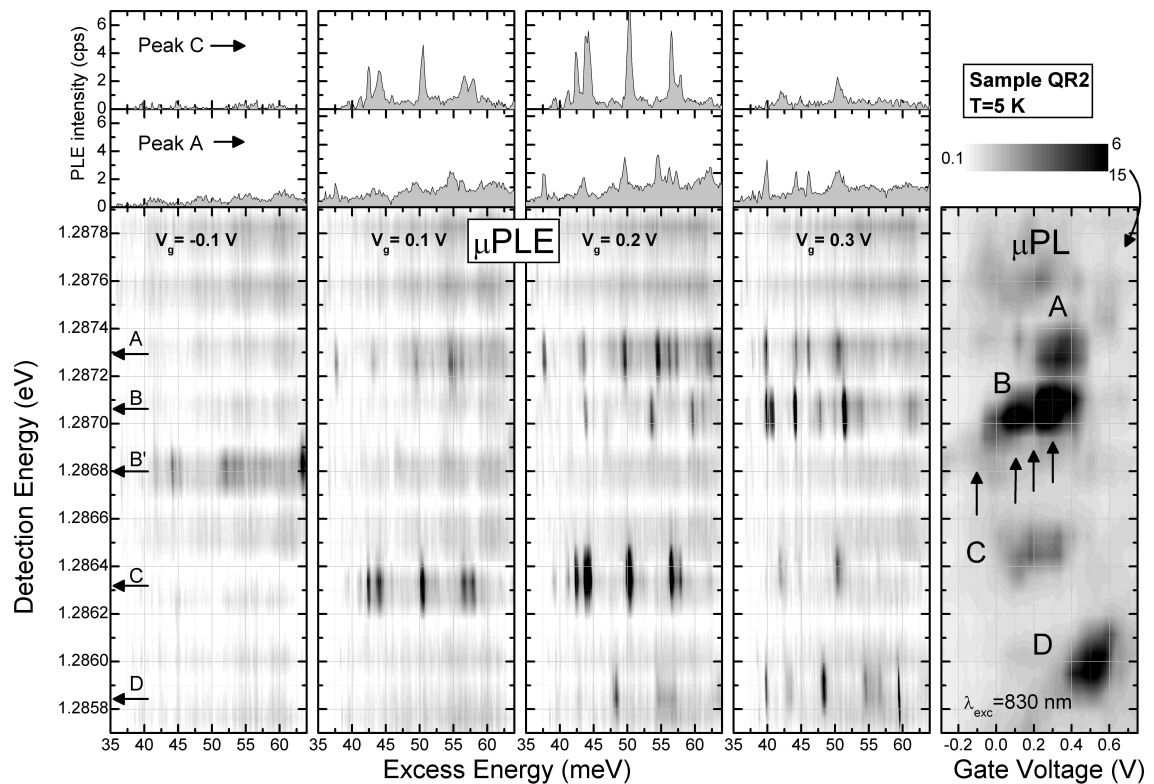


Figura 8.31: Espectros de μ PLE en el rango de energías de exceso asociado a las transiciones p_e - p_e y d_e - s_h , obtenidos alrededor de $E_{det} = 1.2868$ eV. Cada panel vertical de izquierda a derecha corresponde a un voltaje aplicado de -0.1, 0.1, 0.2 y 0.0 V, respectivamente. A la derecha, se muestra la correspondiente μ PL en función del voltaje, obtenida en el mismo rango.

la correlación existente entre los espectros de μ PLE y μ PL en función del voltaje. Tanto el corrimiento Stark, como la aparición y desaparición de los picos correspondientes a los estados excitados, ocurren a los voltajes en que la línea de μ PL tiene un comportamiento análogo. Sin embargo, una mirada más atenta revelaría ciertas desviaciones sistemáticas. Por ejemplo, el pico D de la figura 8.31 aparece en el espectro de μ PL a partir de 0.4 V y, sin embargo, los estados excitados correspondientes son ya visibles cuando $V_g = 0.3$ V. Lo contrario ocurre para la resonancia aislada de la figura 8.30. La intensidad de la emisión cae a cero a 0.25 V, mientras que la intensidad de los estados excitados es aún muy intensa a 0.3 V. Mención aparte, merece el comportamiento de la línea B en la figura 8.31. Como vemos, la

línea de emisión es claramente visible para $V_g = 0.1$ V y sin embargo las líneas de μ PLE han desaparecido por completo. No está claro en esta situación si la línea B' puede atribuirse a su reaparición.

Desafortunadamente, la magnitud y aparente disparidad de las diferencias observadas no es suficiente para probar de manera definitiva, como pretendíamos, si existe una diferencia entre el campo efectivo en la zona intrínseca cuando la excitación es resonante respecto a la situación de excitación cercana a la barrera. Por tanto, no podemos concluir si los efectos observados en el apartado anterior pueden ser intrínsecos [págs. 190 y 198]. Para ello un estudio más sistemático, muestreando el rango de voltajes de manera más fina es necesario. Por razones históricas, ese estudio no se pudo completar en su momento. Por lo tanto, hemos de dejar abiertas las cuestiones relativas a este respecto, o tentativamente atribuir las a los fenómenos intrínsecos allí comentados.

Para acabar, recapitulemos lo que hemos visto en esta sección. Hemos investigado la estructura electrónica de anillos cuánticos aislados de InAs mediante experimentos de μ PLE. Con este estudio, hemos obtenido información sobre los fenómenos de captura y acoplamiento electrónico entre impurezas aceptoras y las nanoestructuras cuánticas, confirmando algunos resultados obtenidos con técnicas discutidas anteriormente. Igualmente, tanto la distribución como el número de las resonancias observadas en los espectros de μ PLE, se hallan en perfecto acuerdo con experimentos de absorción de otros autores, y con el modelo parabólico que mejor describe el potencial de confinamiento de estos anillos. También hemos investigado los procesos de relajación intra-banda desde los estados excitados hacia el estado fundamental, así como los procesos de captura de portadores desde la WL. Ambos se han dominado por la existencia de un continuo degenerado con las transiciones discretas para energías de exceso ≥ 40 meV. Finalmente, se ha encontrado que algunos efectos observados pueden deberse a fenómenos de interacción fuerte entre el campo electromagnético y la materia, si bien es necesaria más investigación a este respecto.

Capítulo 9

Espectroscopía óptica de modulación de nanoestructuras cuánticas aisladas: $\mu\Delta\mathbf{T}$ y $\mu\Delta\mathbf{R}$

En el capítulo anterior hemos estudiado las propiedades individuales de cajas cuánticas aisladas mediante experimentos de espectroscopía de emisión. La resolución espectral alcanzada se hallaba limitada por nuestro espectrómetro o nuestro láser de Ti-Zafiro. En este capítulo vamos a demostrar cómo es posible medir la absorción óptica de una sola caja cuántica aislada utilizando para ello una nueva técnica de modulación de alta resolución espacial y espectral.

En la sección 5.5 vimos una expresión que nos permitía calcular la fuerza de oscilador a partir de la intensidad integrada de absorción de una transición inter-banda dada en un material en volumen [ec. (5.21)]. En el caso de nanoestructuras cuánticas aisladas, sólo una fina capa del material contribuye a la absorción a una longitud de onda resonante con los estados electrónicos de las cajas cuánticas. Si N_D es la densidad superficial de aquellas, el número de niveles que contribuyen a una transición inter-banda dada depende de la degeneración de la subbanda en particular. Si la transición es la fundamental entonces $N = N_D \times 2$ es el número de osciladores por unidad de área que contribuyen a la absorción en el rango $E_{ss} \pm \Delta E$. Esto nos permite calcular la fuerza de oscilador correspondiente a una sola de estas

transiciones integrando la absorción sobre la banda inhomogénea correspondiente al estado fundamental. De esta manera, reescribiendo la ecuación (5.21), tenemos:

$$Nf = \frac{2m_0\epsilon_0cn}{\hbar e^2\pi} I_{Abs} \quad (9.1)$$

donde I_{Abs} viene dada en eV y el resto de magnitudes tienen su significado habitual. Por otro lado, en la figura 7.15 se mostraron los espectros de absorción correspondientes a las muestras QD1 y QR1, las cuáles, como sabemos, contienen puntos cuánticos y anillos cuánticos de InAs, respectivamente. Ahora podemos utilizar el método recién descrito y calcular la fuerza de oscilador correspondiente a la transición fundamental en ambas nanoestructuras. Integrando el pico de más baja energía de cada espectro resulta $I_{ss}^{QD1} = 5.7 \pm 0.2$ eV y $I_{ss}^{QR1} = 6.0 \pm 0.2$ eV, respectivamente. Dado que ambas muestras tienen una densidad superficial similar (5×10^9 cm⁻²) podemos calcular las fuerzas de oscilador correspondientes a dichos valores de la intensidad integrada. El resultado es obviamente similar para ambas e igual a $f_{QD}^{exp} \sim 12$ y $f_{QR}^{exp} \sim 12.5$ ¹. Por otro lado, la fuerza de oscilador de una transición dada puede calcularse a partir de su definición en la ecuación 5.23. Como ya se dijo entonces, la fuerza de oscilador es proporcional al solapamiento de las funciones de onda envolventes de hueco y electrón en sus respectivos estados. En nuestro caso:

$$f = \frac{|\langle s_h | s_e \rangle|^2 E_p}{2\hbar\omega} \quad (9.2)$$

donde E_p da cuenta del solapamiento de las funciones de Bloch y vale 25.7 eV en GaAs², y:

$$|\langle s_h | s_e \rangle| = \frac{2l_e l_h}{l_e^2 + l_h^2} \quad (9.3)$$

puede calcularse a partir de las funciones de onda del oscilador armónico bidimensional que ya conocemos [99]. Introduciendo los valores que se extraen del experimento de absorción: $\hbar\omega_{QD} = 1.1$ eV y $\hbar\omega_{QR} = 1.3$ eV. Y sustituyendo los valores de las longitudes efectivas de la referencia [101] para la muestra QD1, y de la sección 8.1.4

¹El índice de refracción utilizado es $n = \frac{\sqrt{\epsilon_r^{GaAs} + 1}}{2}$, como en la referencia [101], y trata de reflejar la proximidad de la superficie de la muestra.

²El valor correspondiente del InAs es de 19 a 21 eV según diversos autores [133].

para la muestra QR2 (\sim QR1), obtenemos que $f_{QD}^{teo} = 10.8$ y $f_{QR}^{teo} = 5.5$. Estos valores reproducen razonablemente bien los resultados experimentales, demostrando una vez más que los puntos cuánticos de InAs se ajustan mejor al modelo parabólico.

Vemos por tanto que a partir de la intensidad integrada de absorción de un experimento macroscópico, es posible obtener información microscópica de nuestro sistema electrónico. No obstante, no cabe duda que mucha más información se podría obtener midiendo directamente la absorción de una sola de estas cajas cuánticas.

9.1. Espectroscopía de absorción de cajas cuánticas aisladas de InAs

Para ello disponemos de un láser de diodo de cavidad externa, que es sintonizable en un rango de 20 nm centrado en 1060 nm³. Tal y como se dijo en el capítulo 3, estos láseres ofrecen unas características inmejorables en términos de anchura de línea. En el caso que nos ocupa, el fabricante garantiza una estabilidad de la emisión dentro de un ancho de banda de 2 MHz en períodos de varios días de funcionamiento continuo a λ fija. Dicho valor corresponde a una anchura de línea menor de 0.01 μ eV y es mucho menor que lo que razonablemente cabe esperar de nuestras nanoestructuras. En segundo lugar disponemos de un microscopio confocal a baja temperatura similar al utilizado en las experiencias de emisión de los capítulos anteriores⁴. Como vamos a ver un poco más adelante, para calcular las magnitudes relevantes a partir del experimento de absorción, es necesario conocer el área iluminada sobre la muestra. Por ello, en este caso se ha medido directamente a esa longitud de onda el área de la PSF de iluminación suponiendo una distribución gaussiana de la intensidad. El procedimiento se basa en el método del *filo de cuchillo*⁵, y el resultado es $A = 1.91 \mu\text{m}^2$. Por último, nuestra muestra es colocada en el interior de dicho microscopio a 4.2 K de temperatura y justo en la vertical del área activa de un fotodiodo p-i-

³EOSI 2010, *External cavity diode laser*.

⁴Esta experiencia se llevó a cabo por el autor en el CENS (München).

⁵*Knife-edge*.

n de germanio de 2 mm de diámetro. El procedimiento general de alineamiento y búsqueda de foco ya se ha descrito anteriormente, así como el método utilizado para aplicar un campo eléctrico en la dirección de crecimiento de las nanoestructuras.

9.1.1. Consecuencias del *principio de exclusión de Pauli* en la absorción de cajas cuánticas de InAs

Antes de continuar, es necesario describir brevemente que es lo que ocurre con el espectro de absorción cuando variamos el voltaje aplicado a la muestra QD1.

En la figura 9.1, se han representado los espectros de absorción obtenidos en dicha muestra a partir de un número elevado de puntos cuánticos (configuración macro)[101]. En la misma, podemos observar cuales son las consecuencias de las interacciones coulombianas al variar el voltaje aplicado a la muestra. Cuando el voltaje inverso es elevado, en el espectro de absorción se observan claramente las transiciones entre las diferentes subbandas de la banda de valencia y conducción. Hasta tres subbandas contribuyen a la absorción en este caso. En la banda de conducción, tal y como ya sabemos, dichas subbandas pueden ser ocupadas con electrones procedentes del contacto óhmico, que son capaces de atravesar la barrera de potencial por efecto túnel a ciertos voltajes que son determinados de la curva de capacitancia-voltaje [fig. 7.7(d)]. En estas condiciones, los resultados de absorción de la figura 9.1 pueden ser explicados completamente. A -0.75 V, un electrón en exceso está presente en el nivel fundamental cuando la transición óptica inter-banda tiene lugar. El resultado es un desplazamiento hacia bajas energías de la resonancia (sec. 8.1.4), y una disminución en un factor dos de la intensidad integrada I_{s-s} . Si continuamos aumentando el voltaje, un nuevo electrón ocupará el estado fundamental cuando $V_g = -0.5$ V. En estas condiciones, además de un nuevo desplazamiento hacia bajas energías, la transición correspondiente al estado fundamental desaparece completamente. Ésta es la consecuencia del *principio de exclusión de Pauli* que pretendíamos mostrar.

En nuestra experiencia de micro-absorción, el láser disponible es resonante con las transiciones entre subbandas tipo p del espectro de absorción ($\lambda = 1.17$ eV). Por ello,

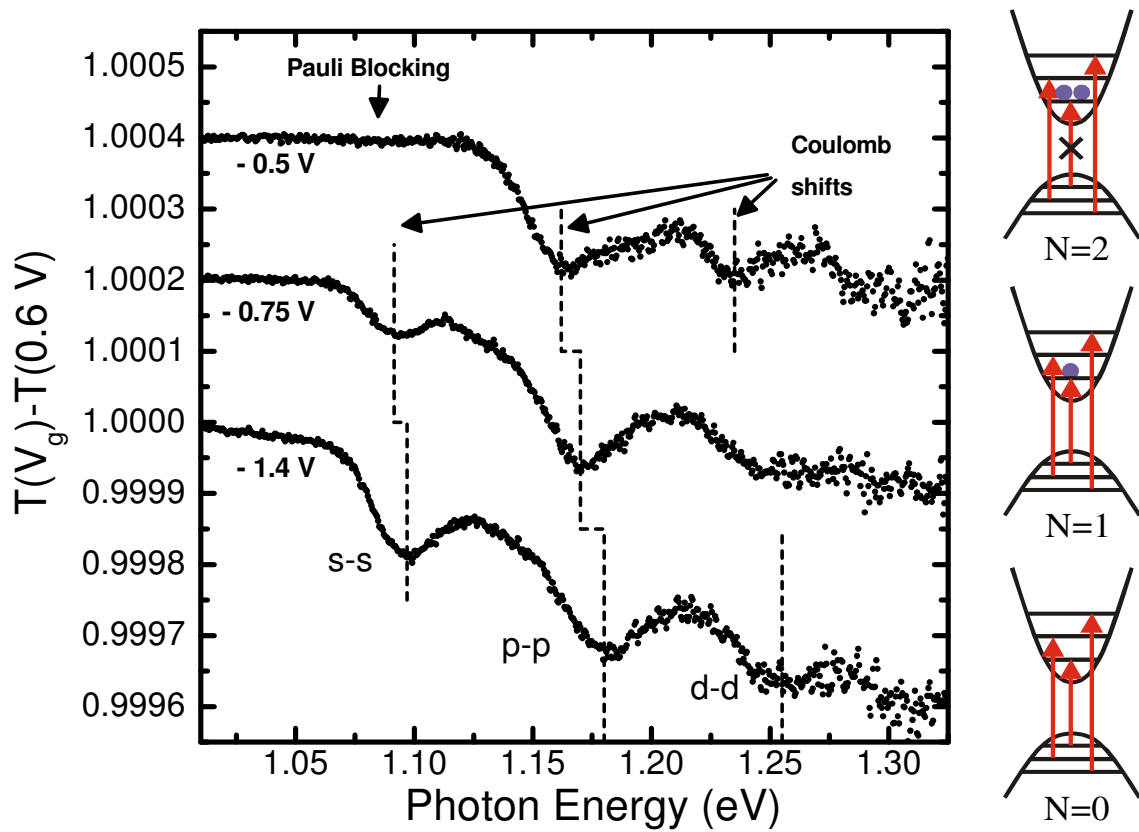


Figura 9.1: Espectros de absorción en función del voltaje obtenidos en un área macroscópica de la muestra QD1 a 4.2 K. A voltajes elevados todos los estados de la banda de conducción se hayan ocupados y las transiciones inter-banda no son posibles en absorción. El espectro obtenido para dicho voltaje se utiliza para normalizar los espectros de esta figura. Se observa claramente cómo, cuando el estado fundamental está totalmente ocupado por electrones en exceso, la transición correspondiente desaparece del espectro de absorción. Los espectros han sido desplazados verticalmente a fin de resaltar las diferencias entre ellos. Datos experimentales por cortesía del Dr. Khaled Karrai (München).

especial atención habrá que prestar al efecto recién descrito en la interpretación de los resultados. Como vamos a ver, información valiosa de los mecanismos de relajación intra-banda y de la interacción radiación-materia en estas nanoestructuras puede ser extraída del espectro de micro-absorción cuando el nivel fundamental se haya bloqueado por el principio de exclusión.

9.1.2. Conceptos básicos

Fuerza de oscilador y absorción de una caja cuántica aislada. Teoría

La expresión (9.1) corresponde a la fuerza de oscilador efectiva de N osciladores idénticos por unidad de área y nos ha servido para calcular la fuerza de oscilador de cada uno a partir de la intensidad integrada de absorción. Consideremos ahora la intensidad integrada reescribiendo la ecuación (5.21):

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_N(E) dE = \frac{\hbar e^2 N f}{m_0 \epsilon_0 c n_{eff}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Gamma}{4(E - E_0)^2 + \Gamma^2} dE \quad (9.4)$$

donde Γ es la anchura total a media altura de la curva de absorción correspondiente a cada oscilador individual. Con esto estamos suponiendo que cada resonancia queda descrita por dos niveles discretos, sometidos a la acción de un campo electromagnético de baja intensidad, monocromático y de frecuencia $\omega = E/\hbar$, y que se cumple que $\omega_0 \gg \Gamma$ [140, 141]. En estas condiciones, la respuesta del oscilador es armónica y viene dada por la lorentziana introducida en la ecuación (8.1), donde la constante C puede evaluarse por comparación con (9.4). Con esto la sección transversal de absorción por cada nanoestructura presente en un área de nivel de iluminación constante A vendrá dada por:

$$s(E) = \frac{\alpha_N(E)}{AN_D} = \frac{g}{A} \frac{\hbar e^2 f}{m_0 \epsilon_0 c n_{eff}} \frac{\Gamma}{4(E - E_0)^2 + \Gamma^2} \quad (9.5)$$

donde $g = N/N_D$ es el número de estados degenerados a frecuencia ω_0 ⁶.

Dado que estamos interesados en las transiciones p - p de la muestra QD1, podemos utilizar la expresión (9.1) para calcular su fuerza de oscilador, integrando la absorción para dichos estados cuádruplemente degenerados. El resultado es que $I_{pp} = 1.36 \times 10^{-5}$ eV, con lo que tenemos para la fuerza de oscilador $f \sim 14.2$. Con este valor, y suponiendo una anchura de línea para el estado excitado de $\Gamma = 200$ μ eV, como las que hemos encontrado en el capítulo 8, tenemos que la máxima absorción en resonancia de una sola transición entre estas subbandas es de $\sim 1.1 \times 10^{-4}$,

⁶Hay que notar que en el experimento de micro-absorción la degeneración va a ser poco probable, dado que, en general, cualquier desdoblamiento de dichos estados mayor que la anchura de línea homogénea va a provocar que $g = 1$ (ver más adelante).

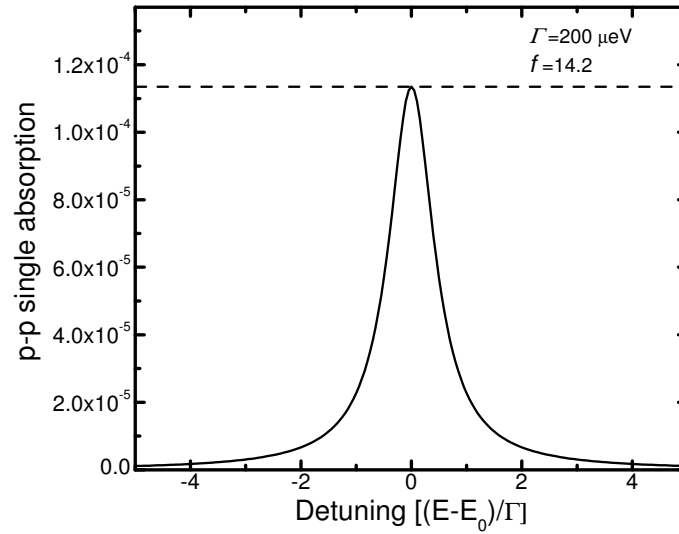


Figura 9.2: Curva de absorción de una sola transición inter-banda entre subestados tipo p en cajas cuánticas de InAs.

que concuerda con el valor anunciado en 6.5. La lorentziana correspondiente se ha representado en la figura 9.2.

Fuerza de oscilador y absorción de una caja cuántica aislada. Experimento I

Con lo dicho hasta ahora tenemos los ingredientes necesarios para intentar medir la absorción de una sola caja cuántica presente en nuestra muestra QD1. A tal fin y dado que nuestro láser es sintonizable, podemos proceder de la manera habitual sintonizando el mismo de manera continua en el rango de energías correspondiente a la absorción p-p de la figura 9.1. Para ello, el láser utilizado dispone de dos métodos de operación de diferente ancho de banda, $\Delta\lambda$. Ambos métodos permiten sintonizar la longitud de onda cambiando la longitud de la cavidad externa según la configuración dada en el diagrama 3.8. En el primero se cambia el ángulo β del espejo M2 mediante un motor paso a paso ($\Delta\lambda \sim 20$ nm), mientras que en el segundo se realiza un ajuste hiperfino mediante un piezoeléctrico alrededor de un ángulo dado ($\Delta\lambda \sim 0.06$ nm).

En la figura 9.3, se muestra la intensidad de la corriente generada en el fotodiodo

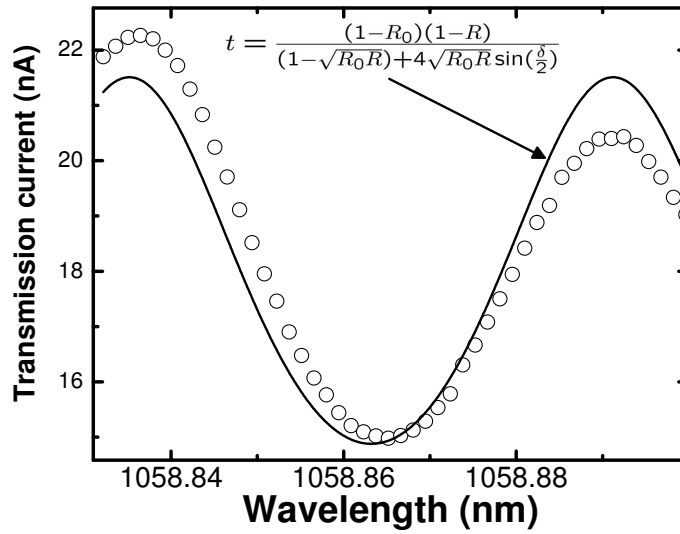


Figura 9.3: Modulación de la intensidad transmitida a través de la muestra variando la longitud de onda del láser (círculos). Coeficiente de transmisión de un *etalon* de 10.015 mm de espesor y reflectividades dadas por los materiales del objetivo y de la muestra (línea sólida).

colocado bajo la muestra en función de la longitud de onda del láser sintonizada por el segundo método. El microscopio se haya en las condiciones óptimas de foco y la longitud de onda central coincide con el máximo de las transiciones p-p de la figura 9.1. Además, esto se realiza aplicando un voltaje para el cual los estados p de la banda de conducción se hayan desocupados en ausencia de luz. Como vemos en la figura, la señal detectada de esta manera sufre variaciones periódicas respecto a la longitud de onda del láser. Este comportamiento es característico de experimentos de transmisión donde el haz de prueba ha de atravesar láminas delgadas. Sin embargo, el período de las oscilaciones es ~ 0.055 nm, lo cual implica de hecho una lámina extremadamente gruesa. Efectivamente, si λ_1 y λ_2 son las longitudes de onda correspondientes a los máximos de intensidad, tenemos que $\Delta\phi = 4\pi D \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right)$ ha de ser igual a 2π . Esto nos arroja un valor para el espesor de la lámina de $D \sim 10$ mm, que, como vemos, es mucho mayor que el espesor de la muestra o de cualquier filtro utilizado. De hecho, dicha distancia es, por construcción, la que separa el plano focal sobre la muestra del extremo pulido de la fibra de excitación-colección [fig. 6.4]. La presencia de tales interferencias es una consecuencia directa de la elevada longi-

tud de coherencia del láser utilizado y del alineamiento inherente a la microscopía confocal.

A fin de comprobar este extremo, podemos calcular el coeficiente de transmisión de un *etalon* formado por dos superficies, una de sílice y $n_0 = 3.4$, y otra de GaAs y $n = 2.6^7$, separadas por una columna de aire de 10.015 mm de espesor.

$$\begin{aligned}
 R_0 &= \left(\frac{1 - n_0}{1 + n_0} \right)^2 \\
 R &= \left(\frac{n - 1}{n + 1} \right)^2 \\
 \delta &= \frac{4\pi D}{\lambda} \\
 t &= \frac{I_T}{I_0} = \frac{(1 - R_0)(1 - R)}{(1 - \sqrt{R_0 R}) + 4\sqrt{R_0 R} \sin(\frac{\delta}{2})}
 \end{aligned} \tag{9.6}$$

El resultado se muestra en línea sólida en la figura 9.3 reproduciendo adecuadamente la modulación de intensidad observada. Este efecto interferencial tendrá consecuencias importantes más adelante, pero por ahora hemos de llegar a la conclusión que variar la longitud de onda no va a ser un buen método para medir la absorción de nuestras cajas cuánticas individuales. Efectivamente, las interferencias aparecen espaciadas entre sí una distancia que es del orden de las anchuras de línea que pretendemos medir y, por ello, es de esperar una distorsión de las mismas. Por otro lado, cambiar la longitud de onda del láser lleva consigo una inestabilidad modal de la cavidad, que aunque reducida en este tipo de láseres (cap. 3), puede ser importante en el límite de señales extremadamente bajas que pretendemos medir.

Fuerza de oscilador y absorción de una caja cuántica aislada. Experimento II

El problema que acabamos de describir no es exclusivo del estudio de nanoestructuras cuánticas y suele aparecer, en mayor o menor grado, en todos los experimentos de transmisión. Cuando esto ocurre, lo habitual es proceder a desconvolucionar numéricamente ambos efectos y así extraer la información de absorción requerida.

⁷ $\frac{n_{GaAs} + 1}{2}$

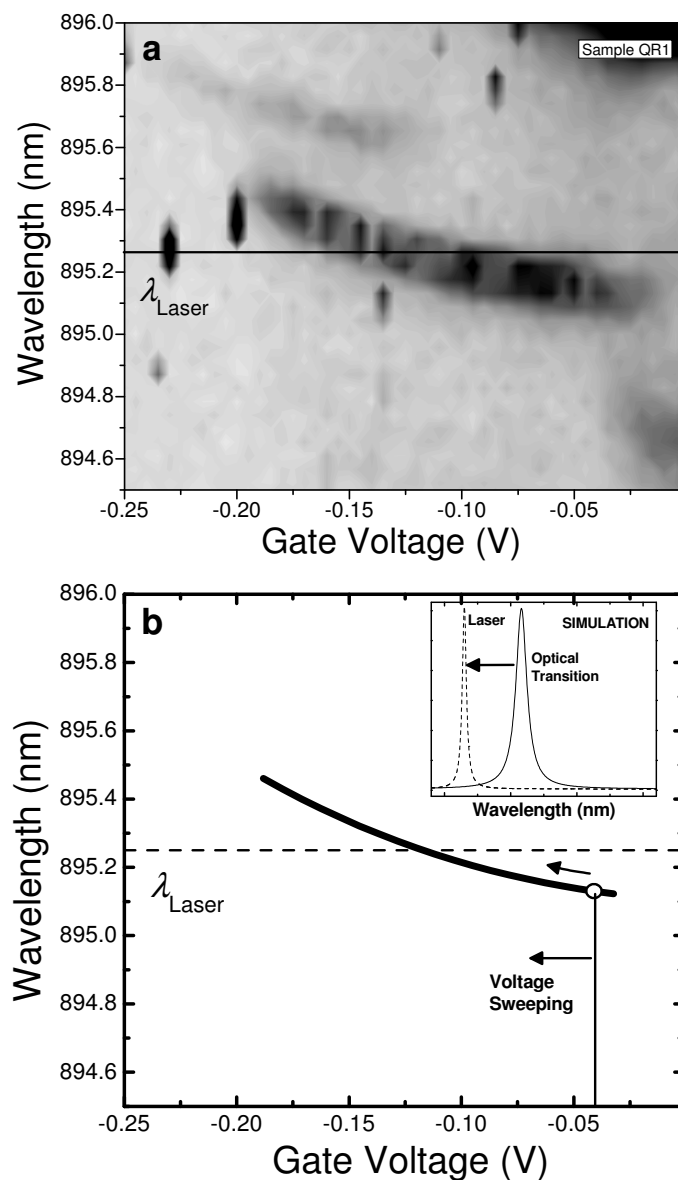


Figura 9.4: Espectros de μPL en función del voltaje aplicado en la muestra QR2 (a) y diagrama explicativo del experimento de absorción (b). El corrimiento Stark de confinamiento cuántico permite sintonizar la resonancia óptica y la longitud de onda fija del láser.

Sin embargo, en nuestro caso, podemos proceder de una manera más adecuada con objeto de evitar la desconvolución numérica.

Hemos visto a lo largo de los capítulos anteriores que la aplicación de un campo eléctrico externo produce diversos efectos sobre la estructura electrónica de nuestras cajas cuánticas individuales. En la discusión, hemos encontrado que estos estados

electrónicos, sometidos a un voltaje inverso, son modificados por el efecto Stark de confinamiento cuántico (cap. 6 y 8). En nuestras muestras dicho efecto da lugar invariablemente a un desplazamiento hacia bajas energías de la emisión de tipo parabólico. Podemos, por tanto, diseñar un experimento que explote este efecto cuántico. En la figura 9.4(a) se muestra la dependencia frente al voltaje aplicado de la μ PL de una sola línea de emisión detectada en la muestra QR1⁸. El corrimiento Stark es aparente y sobre la emisión podemos dibujar una línea correspondiente al láser de prueba. En este caso, la anchura de línea de la emisión corresponde a la del espectrómetro, aunque se cumple que la anchura real siempre va a ser mayor que la del láser empleado.

La idea del experimento es entonces sencilla. Para una longitud de onda de prueba fija, y una anchura de línea del láser mucho menor que la de la resonancia que pretendemos investigar, podemos cambiar externamente el campo eléctrico, de manera que la transición óptica entre en resonancia con el láser. En ese momento, se producirá una absorción de α_0 fotones, que virtualmente podremos detectar como una variación de la fotocorriente de nuestro fotodiodo. Dado que la longitud de onda se mantiene constante, con este método evitamos, como pretendíamos, los mencionados efectos interferenciales.

Otra ventaja del método es que permite medir $\Delta T/T$ inequívocamente, sin más que aplicar un voltaje $V = V_{g0} + \Delta V \sin(\omega_{mod}t)$, modulado a una frecuencia ω_{mod} . En este caso, la corriente generada en el fotodiodo tendrá dos componentes, una continua dada por el nivel de iluminación I_T constante⁹ que atraviesa la muestra fuera de resonancia, y otra alterna de valor $\Delta I \sin(\omega_{mod}t)$. Dado que ésta sólo será distinta de cero cuando la transición óptica y el láser se encuentren en resonancia, medir el coeficiente de absorción¹⁰ a energía fija consistirá en medir $\Delta I_{max}/I_T$. Y, dado que conocemos la relación $V_g(\omega)$ a través del efecto Stark, hallar la curva de absorción en función de la energía, $\alpha(\omega)$, será posible hallando $\Delta I_{max}(V_g)/I_T$. Además, de

⁸Se elige esta muestra para ejemplificar el concepto pero es irrelevante el que sea una u otra.

⁹Pues es obviamente independiente del voltaje aplicado.

¹⁰En el caso de un sólo oscilador localizado, esta magnitud corresponde a la *sección transversal de absorción*. Por ello utilizaremos ambos términos indistintamente.

manera natural, la amplitud de la corriente modulada de esta manera puede ser detectada mediante un amplificador (lock-in) sintonizado a la frecuencia ω_{mod} , con los beneficios que de ello se deriva en la relación señal-ruido.

Sin embargo, hemos de notar que por el método descrito, una curva de absorción $\alpha(\omega)$ de tipo lorentziano, no va a proporcionar una curva $\Delta I_{max}(\omega)/I_T$ que también lo sea [142]. En el caso más sencillo, si la anchura de línea es mayor que la modulación de la energía de la transición provocada por el voltaje variable, la curva resultante será la derivada de una lorentziana de amplitud pico a pico proporcional a la amplitud de la modulación. En el caso más general, la dependencia entre la amplitud de modulación utilizada y la curva resultante del experimento de absorción es más complicada. En el apéndice C se recoge una discusión detallada.

Modulación cuadrada en los límites $\Delta E_{mod} \gg \gamma$ y $\Delta E_{mod} \ll \gamma$

La ecuación (C.2) fue introducida en el apéndice C para describir el caso habitual de modulación de voltaje sinusoidal. En lugar de ella, podemos utilizar una modulación de tipo cuadrado y analizar que es lo que cabe esperar a la salida del amplificador sincronizado. En las figuras 9.5(a) y (b) se ha esquematizado la situación experimental que venimos describiendo en el caso en que la modulación de voltaje aplicada sea cuadrada.

Si V_g es el voltaje aplicado a la muestra, y ΔV es la amplitud pico a pico de la modulación cuadrada que estamos utilizando, cuando disminuamos paulatinamente V_g , llegará un momento en que la situación será como la descrita en la figura 9.5(a). En la misma, el láser de prueba y la transición inter-banda se encuentran en resonancia justo cuando el voltaje es $V_{g0} - \Delta V/2$. Dado que la modulación es cuadrada, esto ocurre exactamente durante la mitad del tiempo que dura un período de la modulación, $2\pi/\omega_{mod}$, mientras que en la otra mitad la absorción es exactamente cero. Esto significa que la fotocorriente detectada pasa en cada semiperíodo de un valor constante I_{OFF} , a un valor menor, I_{ON} , que da cuenta del flujo de fotones absorbidos por la resonancia a frecuencia $\hbar\omega$. Dado que el amplificador sincronizado sólo es sensible a cambios de fotocorriente a frecuencia ω_{mod} , la señal del mismo es

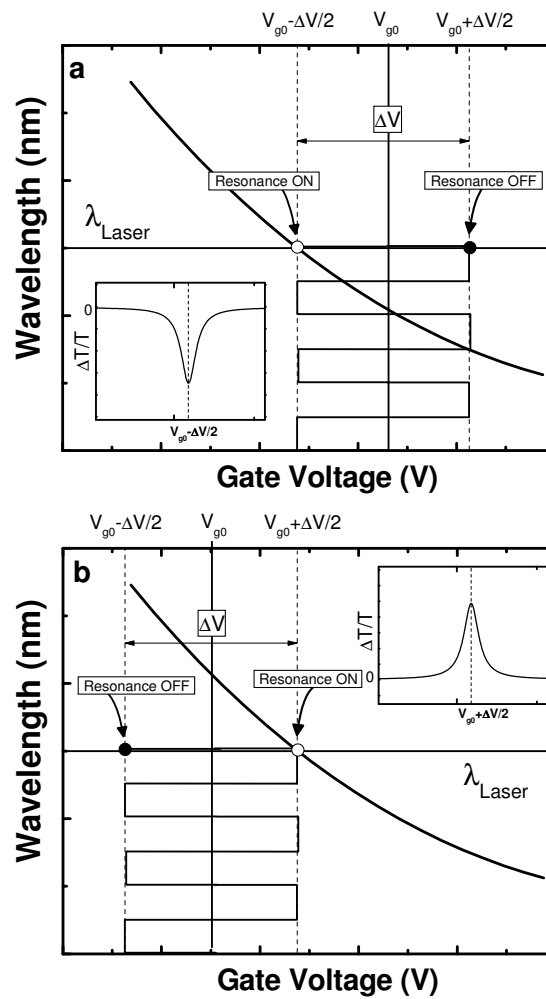


Figura 9.5: Efecto de la aplicación de una modulación cuadrada de voltaje en el espectro de absorción de una caja cuántica aislada. Los recuadros pequeños muestran una simulación de la señal que se obtiene a la salida del amplificador por este método.

proporcional a dicha potencia absorbida. El valor de pico de dicha corriente, proporcionada por el amplificador, junto con la componente continua I_{OFF} medida a la entrada del mismo, nos permiten calcular el coeficiente de absorción directamente como $\Delta T/T(\omega) = \Delta I/I_{OFF}$. Una situación similar ocurre cuando $V_g = V_{g0} + \Delta V/2$ con la única salvedad que tiene lugar un cambio de fase en la corriente modulada, respecto al voltaje de referencia, y, por ello, la señal aparecerá invertida [fig. 9.5(b)]. Según esto, realizando el experimento en un rango de voltajes lo bastante amplio, deben aparecer dos máximos, invertidos uno respecto al otro y separados una distancia ΔV .

Si la amplitud de modulación se reduce gradualmente ambos máximos se acercarán entre si hasta eventualmente colapsar cuando $\Delta E_{mod} \propto \Delta V \sim \gamma$. En esta situación, la absorción es diferente de cero durante todo el período T_{mod} y la corriente del amplificador sintonizado será proporcional a la diferencia entre la transmisión de la muestra a $\omega - \delta\omega$ y $\omega + \delta\omega$, siendo $2\hbar\delta\omega = \Delta E_{mod}$. En estas condiciones tenemos que $T(\omega) = 1 - \alpha(\omega)$ y:

$$\Delta T(\omega) = T(\omega - \delta\omega) - T(\omega + \delta\omega) = \alpha_0 \gamma^2 \left(\frac{1}{(\omega - \omega_0 - \delta\omega)^2 + \gamma^2} - \frac{1}{(\omega - \omega_0 + \delta\omega)^2 + \gamma^2} \right) \quad (9.7)$$

que en el límite $\delta\omega \ll \gamma$ se simplifica a:

$$\Delta T(\omega) \approx \frac{4\alpha_0 \gamma^2 (\omega - \omega_0)}{((\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2)^2} \delta\omega \quad (9.8)$$

que no es más que la ecuación (C.5), escrita de manera más conveniente.

9.1.3. Resultados experimentales

La sección anterior nos ha servido para establecer un marco teórico y experimental con el que interpretar nuestros resultados en cajas cuánticas aisladas de InAs. Ello nos permite ahora focalizar los esfuerzos en su interpretación y consecuencias físicas. La figura 9.6 ejemplifica a la perfección el comportamiento descrito en el apartado anterior. Los espectros recogidos en la misma han sido obtenidos para una longitud de onda del láser fija y resonante con transiciones entre subbandas p de la muestra QD1. El voltaje aplicado es modulado a baja frecuencia con una señal cuadrada de amplitud pico a pico, $2\delta V$, variable en cada caso. La corriente resultante en el fotodiodo es pre-amplificada y dirigida al amplificador sincronizado donde es demodulada hallando la corriente de pico correspondiente. Dicha corriente de pico es proporcional a ΔT y la componente continua de la corriente, amplificada y medida simultáneamente, es utilizada para hallar $\Delta T/T$.

A fin de confirmar que la señal registrada responde a las características predichas, analicemos las propiedades generales de los espectros obtenidos en la figura 9.6. Para una amplitud de modulación lo bastante grande, se observan dos picos en el espectro

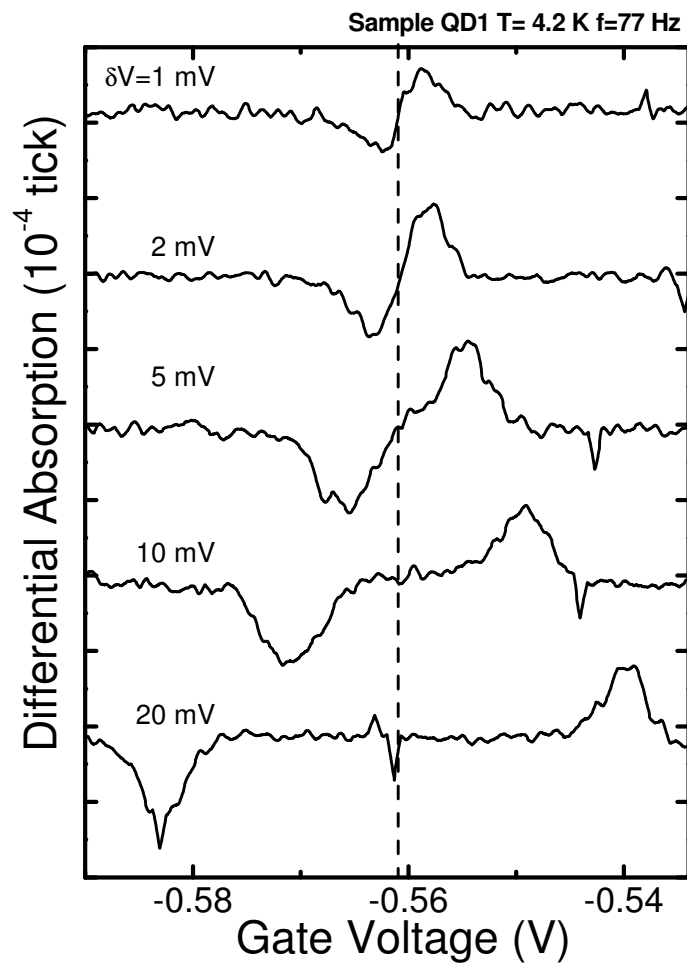


Figura 9.6: Espectros de absorción de una caja cuántica aislada obtenidos en diferentes regímenes de modulación.

de absorción. Ambos reproducen adecuadamente la forma de una lorentziana. Dichos picos se hallan en contrafase respecto al voltaje de modulación y son una medida directa de la sección transversal de absorción de la transición inter-banda. Su anchura o amplitud no depende de la modulación aplicada, como lo demuestran los tres espectros inferiores de la figura. Sólo cambia la distancia entre los mismos, tal y como se predijo. Cuando la amplitud de modulación disminuye, la señal se transforma de manera progresiva de una doble lorentziana a una curva que cada vez se parece más a la función derivada dada en la ecuación (9.8). En este régimen, la amplitud de la señal depende de la amplitud de modulación utilizada, como demuestran los dos espectros de la parte superior de la figura. En lo que queda de sección nos

centraremos en este último régimen. En la sección siguiente analizaremos con más profundidad el caso $\Delta V \gg \gamma$.

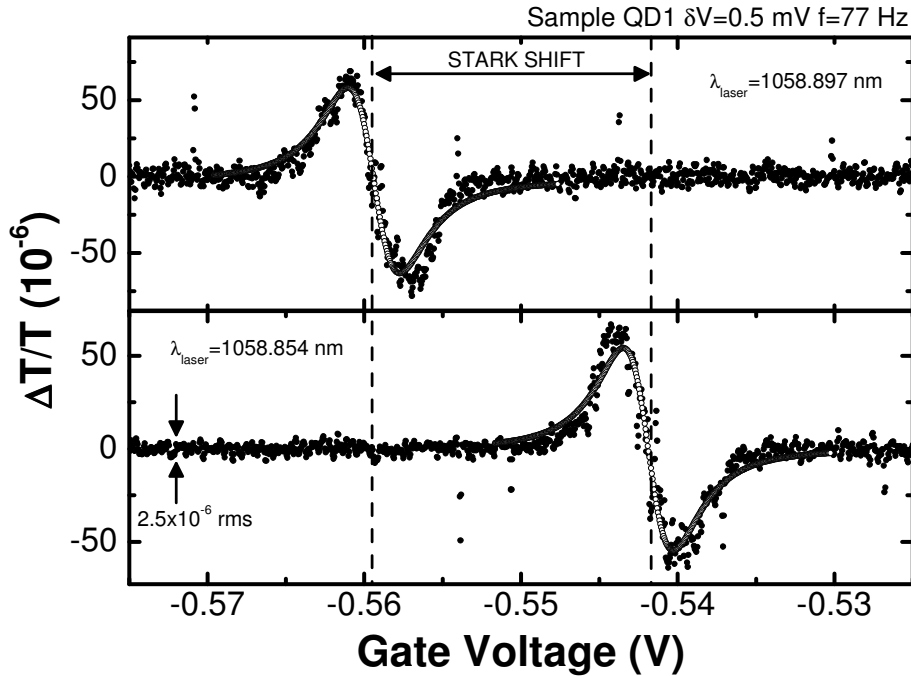


Figura 9.7: Espectros de absorción de una caja cuántica aislada obtenidos para diferente longitud de onda del láser. El desplazamiento es producido por el efecto Stark de confinamiento cuántico en el que se basa el método experimental.

Demostrada la validez del método, es necesario realizar una conversión entre las diferencias de voltaje y las diferencias de energía correspondientes. Esto nos permitirá deducir la anchura de línea de las resonancias detectadas. Para ello, basta con repetir el mismo espectro en función del voltaje aplicado, pero para longitudes de onda de prueba ligeramente diferentes. El resultado de dicho experimento es el que muestra la figura 9.7. Lo primero que hay que notar es que un cambio $\Delta\lambda \sim 0.049$ Å en la longitud de onda del láser produce un desplazamiento notable de la línea de absorción en el eje de voltajes. Además, el desplazamiento ocurre en el sentido que corresponde al efecto Stark, es decir, a voltajes inversos más elevados, la resonancia aparece a más baja energía. Por otro lado, las resonancias encontradas se describen razonablemente bien con la ecuación (9.8).

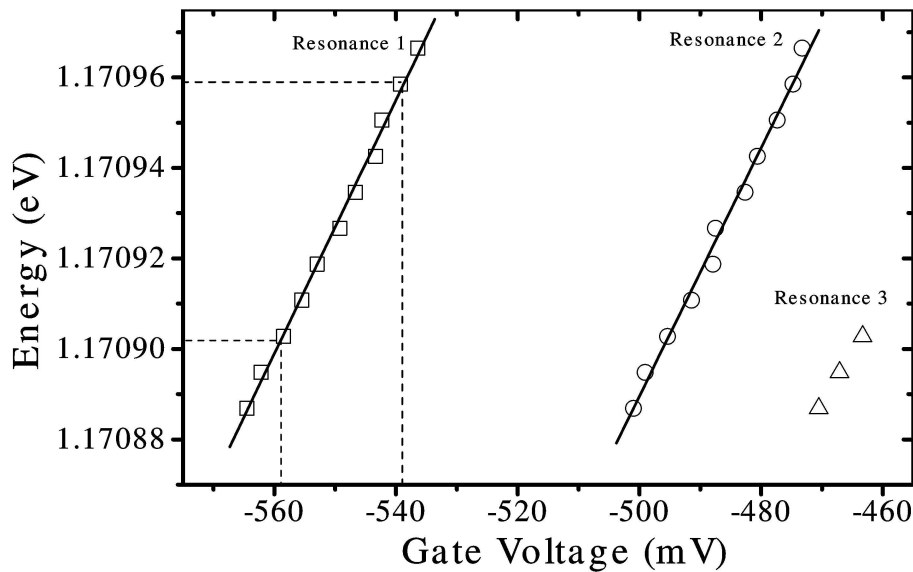


Figura 9.8: La relación entre el voltaje aplicado y el desplazamiento Stark inducido es determinada mediante el ajuste lineal de varias resonancias obtenidas a longitudes de onda de prueba diferentes. El eje vertical apenas cubre $100 \mu\text{eV}$ y las líneas punteadas delgadas corresponden a los espectros de la figura 9.7.

A fin de realizar la calibración, el experimento se ha repetido para varias longitudes de onda y diferentes resonancias. El voltaje V_{g0} para el que aparece cada resonancia en el espectro puede representarse en función de la energía del láser y de ahí extraer la relación deseada. Dichos puntos experimentales se recogen en la figura 9.8 junto a las rectas que mejor los ajustan. La pendiente de dichas rectas resulta ser de $2.78 \pm 0.02 \mu\text{eV}/\text{mV}$, que indica la enorme resolución espectral que permite el método. El rango de voltajes cubierto por el eje de abscisas, en el cual aparecen tres resonancias, corresponde a un rango de energías de apenas $100 \mu\text{eV}$. Sólo este valor es de un 50 % a un 100 % menor que las resoluciones respectivas del espectrómetro doble y el láser de Ti-Zafiro utilizados en las experiencias de emisión descritas en el capítulo 8. Esto significa simplemente que estas tres resonancias hubiesen contribuido con un sólo pico en cualquiera de los espectros descritos allí. La resolución espectral del experimento de micro-absorción es, de hecho, hasta dos ordenes de magnitud más elevada. Los espectros de absorción obtenidos por este

método nos van a permitir determinar la anchura de línea homogénea y las distancias energéticas entre las resonancias observadas con una resolución espectral $< 2 \mu\text{eV}$. Esto quiere decir que se podrá medir el desdoblamiento entre los estados electrónicos inaccesibles por otros medios, como el producido por la interacción de intercambio electrón-hueco ($40\text{-}50 \mu\text{eV}$) [100], o el desdoblamiento en el estado fundamental debido a la mínima asimetría del confinamiento ($15\text{-}25 \mu\text{eV}$). Esto, además, significa que cada resonancia detectada en el espectro corresponde a una sola transición no degenerada, ni siquiera en spin, del espectro de absorción de la nanoestructura¹¹. Todo esto es posible gracias al diseño y optimización de un experimento capaz de detectar las débiles señales de absorción producidas en este caso. Con nuestro sistema de detección, a una frecuencia de modulación de 77 Hz y un tiempo de integración¹² en el amplificador igual a 5 s, obtenemos un ruido rms de la señal de absorción de 2.5×10^{-6} . Esto implica una relación señal-ruido de $5.5 \times 10^{-6} \text{ Hz}^{-1/2}$, y es el factor determinante que ha permitido medir por primera vez¹³ la absorción óptica asociada a las transiciones ópticas fundamental y excitada de cajas cuánticas autoensambladas y aisladas de InAs [109, 146, 147].

En estas condiciones nos hayamos listos para investigar la anchura de línea de nuestros estados excitados. Como sabemos de los capítulos anteriores, dicha anchura de línea es una medida del tiempo de vida o relajación del estado electrónico considerado. En este caso, además, por tratarse de un experimento de absorción la medida

¹¹De ahí que $g = 1$ en la ecuación (9.5).

¹²El tiempo de integración se vería drásticamente reducido empleando una frecuencia de modulación más elevada. Sin embargo, las corrientes inducidas entre cables y conexiones aumentan su valor de pico con la frecuencia. Dado que las corrientes que portan nuestra señal son del orden de 0.5 pA, hemos de reducir la frecuencia adecuadamente. Este efecto de "cross-talk" ha de evitarse con un rediseño de tales conexiones y cables para reducir los tiempos de adquisición (~ 12 horas/espec.).

¹³Una fuerza de oscilador más de un orden de magnitud superior en las islas cuánticas naturales de GaAs/AlGaAs, es la razón por la que dicho sistema era el único estudiado por micro-espectroscopía de absorción hasta el momento [16, 17, 4, 27, 18]. La misma razón explica los excelentes resultados encontrados en moléculas aisladas en sólidos desde hace más de 14 años [143, 144, 145].

de esta magnitud es directa y no intervienen otros procesos. En la figura 9.9(a) se ha representado el espectro de absorción obtenido al variar el voltaje aplicado en un rango de voltajes entre -0.74 V y -0.3 V. Según lo que acabamos de ver, esto corresponde a un intervalo de energías de ~ 1.22 meV. En este pequeño intervalo, se detectan hasta 11 resonancias en el experimento de absorción. A la izquierda del espectro se observa un multiplete formado por líneas de absorción separadas entre sí decenas de μeV . En el otro extremo se resuelve sobre el ruido de fondo una sola resonancia considerablemente más ancha que las demás. En el centro del espectro se pueden investigar cuatro resonancias de manera individual. Centrémonos en una de ellas y convirtamos el eje de abscisas a energías, según la relación hallada en la figura 9.8. El resultado es el que se presenta en la figura 9.9(b). Introduciendo el valor de la amplitud de modulación empleada y realizando un ajuste a la ecuación (9.8), obtenemos los parámetros de la lorentziana $\alpha_0 = (2.1 \pm 0.1) \times 10^{-4}$ y $\Gamma = 2\gamma = (16.2 \pm 0.4) \mu\text{eV}$. Un estudio estadístico realizado en más de 100 resonancias detectadas en diferentes puntos de la muestra QD1 nos indica que estos valores son representativos de la mayoría de dichas resonancias. Veamos por tanto qué implica el valor de la anchura encontrado.

Dado que estamos investigando una transición entre estados excitados, el tiempo de vida del par electrón-hueco fotogenerado corresponde al tiempo de relajación hacia el estado fundamental, $\tau = \hbar/\Gamma$. Sin embargo, el resultado obtenido es, al menos, un orden de magnitud inferior al de los estados excitados investigados mediante μPLE en dicho capítulo [fig. 8.28]. Los estados excitados investigados aquí están caracterizados por tiempos de relajación de 45 ± 10 ps. Un tiempo de relajación tan elevado hemos de pensar que está asociado a una inhibición de los mecanismos de relajación responsables de la decoherencia del par electrón hueco generado por absorción. En este punto, y tal como hicimos en la discusión de la figura 9.1, conviene recordar que nuestras nanoestructuras no tienen que ser necesariamente neutras cuando el par electrón-hueco es generado por el fotón incidente. De hecho, podemos recurrir nuevamente al espectro de capacitancia-voltaje medido en esta muestra y recogido en la figura 7.7. En la misma observamos que para un rango de voltajes

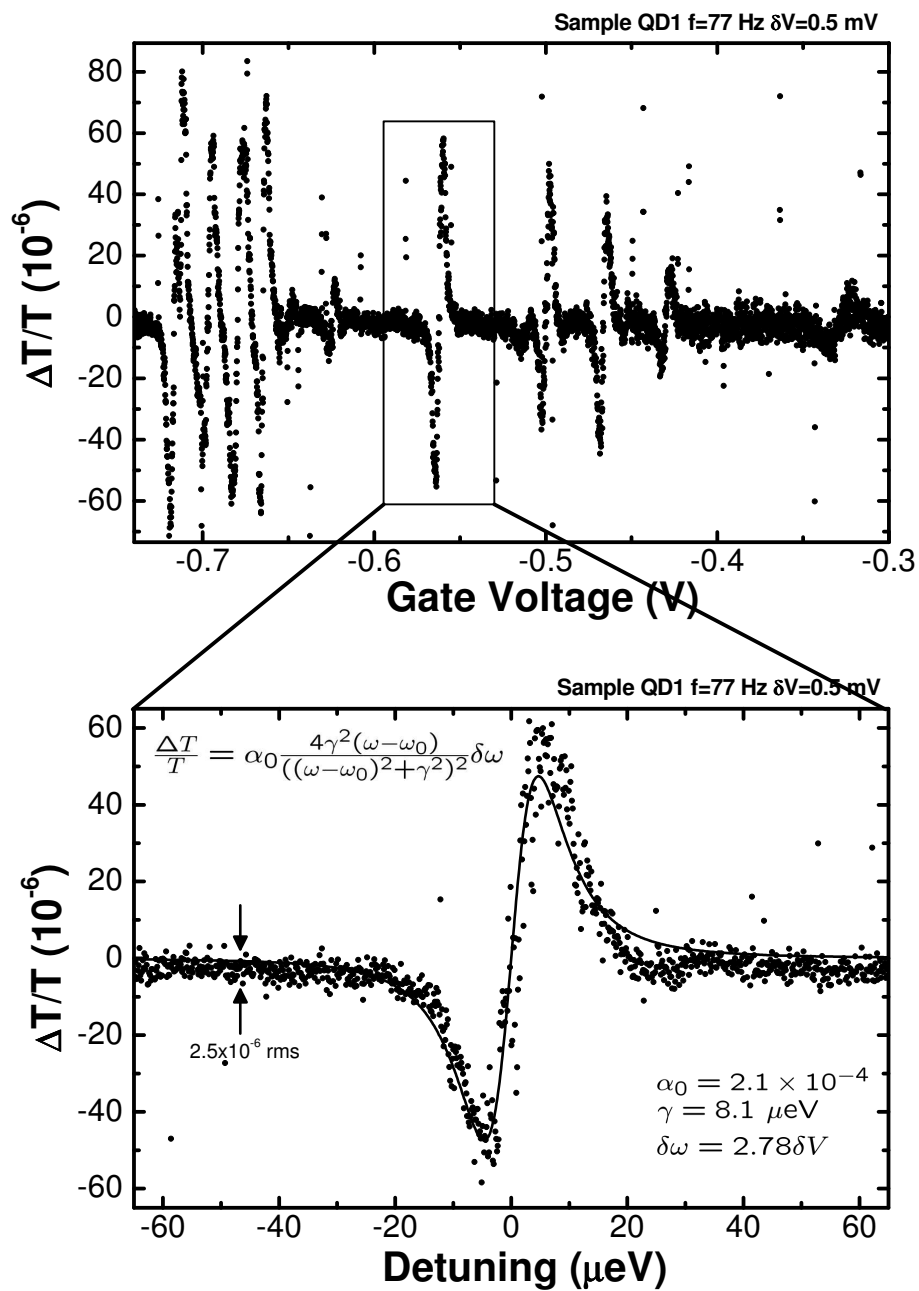


Figura 9.9: Arriba, espectro de absorción obtenido variando el voltaje en un rango de ~ 450 mV. Esto corresponde a un intervalo de energías de transición de 1.25 meV donde se pueden distinguir hasta 11 resonancias excitónicas. En el panel inferior, una de ellas se ajusta a la función derivada de una lorentziana sometida a una modulación δV .

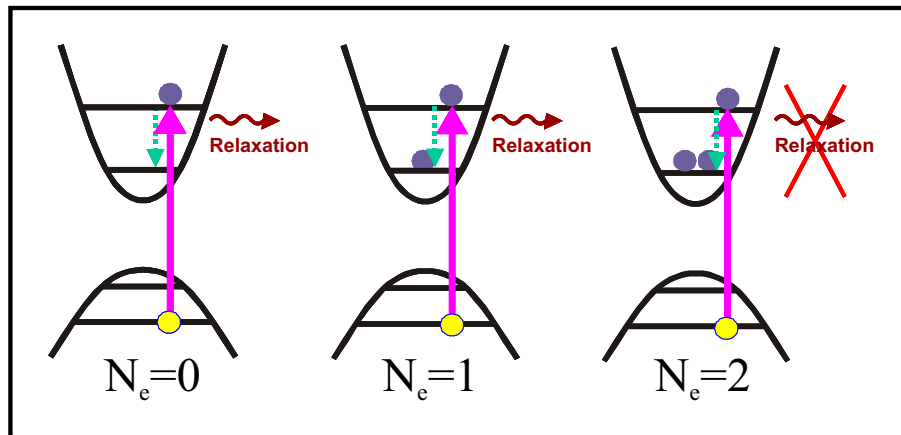


Figura 9.10: En presencia de dos electrones en exceso, la relajación del par electrón-hueco, fotogenerado en el proceso de absorción, ocurre por emisión de fonones acústicos en la banda de valencia.

como el que cubre el espectro de absorción de la figura 9.9(a), el estado de ocupación más probable del estado fundamental en la banda de conducción es de al menos un electrón para $V_g > -0.81$ V, y de dos electrones para $V_g > -0.64$ V. En conclusión, existe una alta probabilidad de que las nanoestructuras que dan lugar a dicho espectro se hallen doblemente ocupadas en su banda de conducción en el momento en que la absorción tiene lugar. Esto explicaría evidentemente, el tiempo de relajación tan elevado que estamos midiendo en comparación con los valores obtenidos en el capítulo 8, u otros valores publicados en la literatura para nanoestructuras similares [137, 139]. En el caso de que el estado fundamental de la banda de conducción sea inaccesible por el principio de exclusión de Pauli, el tiempo de vida no estará determinado por la relajación en la banda de conducción. Tras la absorción del fotón, el electrón permanece en su estado excitado al menos durante el tiempo en que el estado fundamental se halle doblemente ocupado. Un tiempo de relajación de 45 ps como el que medimos aquí, tentativamente asumiremos que corresponde por tanto al tiempo empleado por el hueco en relajar su energía hacia el estado fundamental por emisión de fonones acústicos de baja energía. Este tiempo es mucho mayor que los rápidos procesos que acaecen en la banda de conducción (< 10 ps) según he-

mos visto en el capítulo anterior. En breve, veremos cómo mediante el estudio del comportamiento de saturación de la absorción, podemos investigar la dinámica de relajación intra-banda en una caja cuántica aislada. En dicha dinámica, el paso que acabamos de describir es sólo el primero y determina la anchura de línea detectada¹⁴.

Antes de ello, vamos a mostrar los espectros de absorción obtenidos en diferentes puntos de la muestra, a fin de demostrar que los resultados obtenidos son generales. La figura 9.11 contiene diferentes espectros de absorción obtenidos en 6 puntos distintos. El número de picos y su posición depende de la posición, como cabría esperar. No depende apreciablemente, sin embargo, la anchura típica de las resonancias detectadas tal y como hemos dicho y se muestra más adelante en la figura 9.12(a). Respecto a la intensidad máxima de absorción, en los espectros de esta figura observamos que en general existe una mayor variación. Dicha variación ocurre en ambos sentidos respecto al valor encontrado para la resonancia analizada anteriormente. En principio, para una anchura de línea constante, un cambio en el valor máximo de la absorción, α_0 , significaría una fuerza de oscilador que depende de la nanoestructura particular [ec. (9.5)]. Esto implicaría hasta un factor cuatro de variación entre las líneas más intensas y las más débiles de los espectros de la figura 9.11. Aunque esto puede ser debido en parte a una diferencia en el confinamiento, no es probable que éste sea muy diferente en un rango de energías investigado de ~ 1.3 meV. En lugar de ello podemos tener en cuenta que la ecuación (9.5) es válida para un nivel de iluminación constante, en el que cada caja cuántica recibe el mismo número de fotones incidentes, independientemente de su posición. Obviamente, ésta no es una condición que se cumpla en la PSF de un microscopio confocal como el empleado. La hipótesis más razonable, por tanto, consiste en asumir que no todos los picos de absorción detectados provienen de cajas sometidas al mismo nivel de iluminación. En dicho caso, dividir como hemos hecho el espectro total por el nivel de iluminación constante que incide en el fotodiodo, subestima la absorción de aquellas cajas

¹⁴Aquí hemos de tener en cuenta la posibilidad de una recombinación radiativa excitada según hemos visto en el capítulo 8. Sin embargo, en ese caso, la anchura de línea homogénea sería de ~ 1 μ eV, y por tanto su contribución es despreciable frente a otros mecanismos no radiativos.

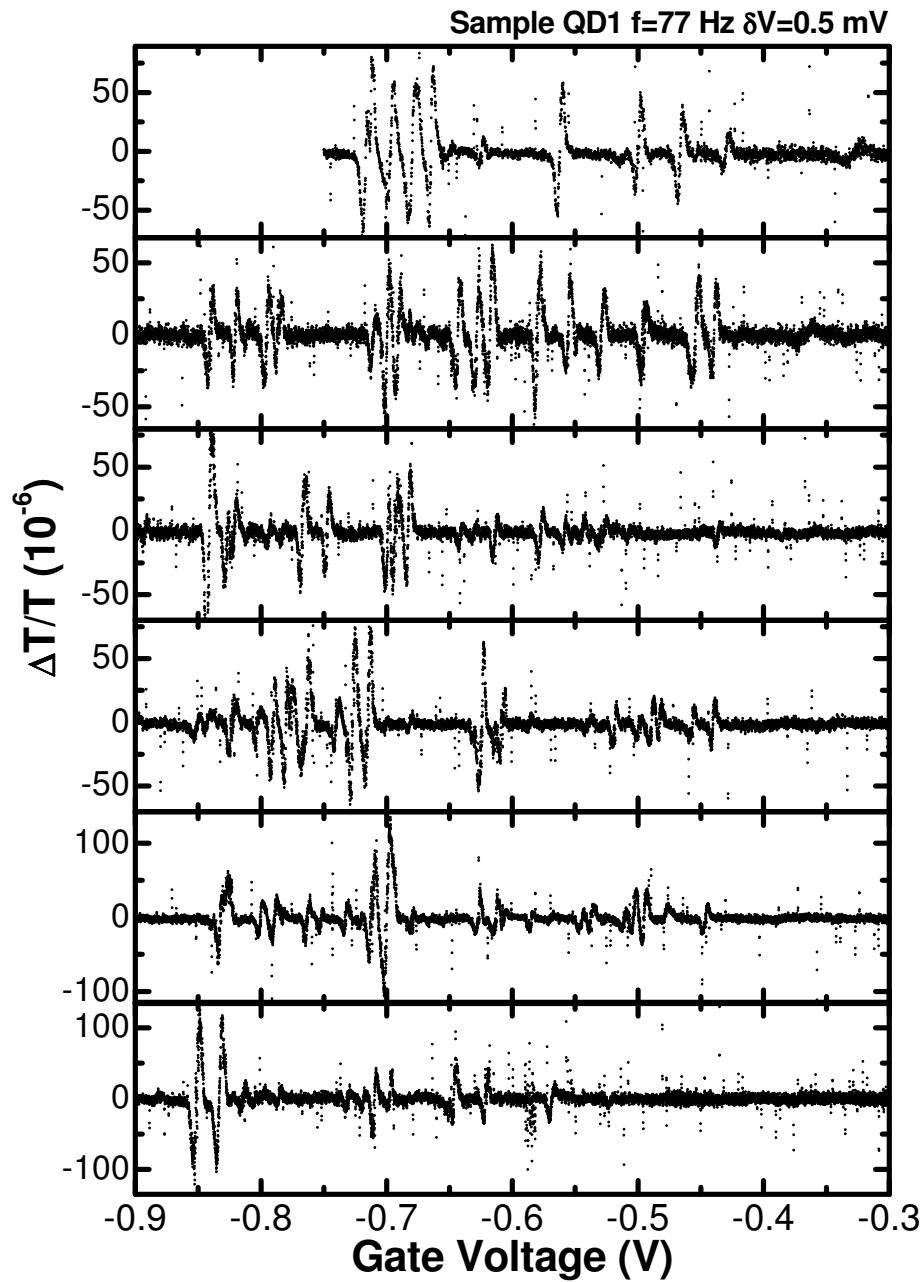


Figura 9.11: Espectros de absorción obtenidos en seis puntos diferentes de la muestra QD1.

cuánticas que se encuentran en la periferia de la PSF. Lo mismo ocurre con aquellos situados en el centro de la PSF, puesto que para ellos el número de fotones incidentes es mucho mayor que el promedio. Por esto, y ante la imposibilidad de determinar la posición de cada nanoestructura sobre la muestra¹⁵, un valor de $\alpha_0 \sim 2 \times 10^{-4}$

¹⁵Un experimento que sí se podría realizar mediante barrido espacial si los tiempos de integración

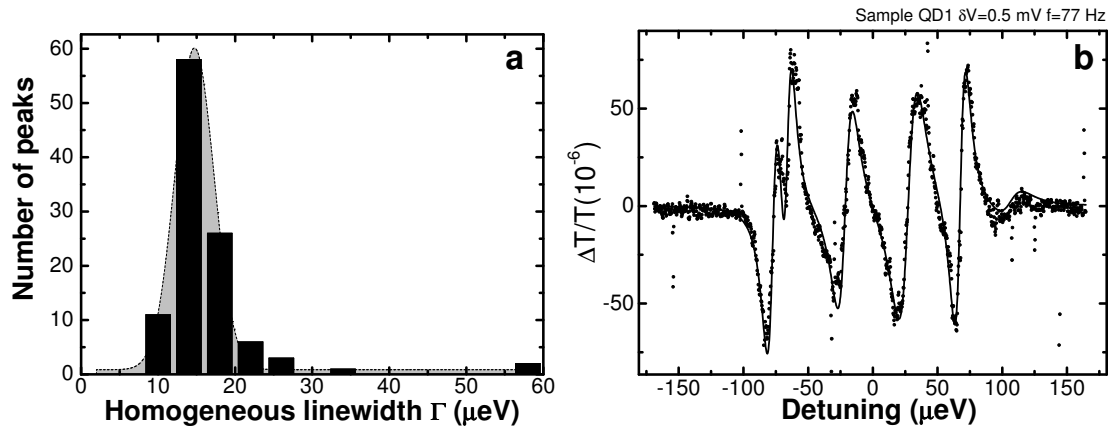


Figura 9.12: a) Número de resonancias con anchura de línea entre 0 y 60 μeV detectadas en diferentes puntos de la muestra. La distribución se encuentra fuertemente picada a $\Gamma = 14.5 \mu\text{eV}$ con una FWHM de 6 μeV . b) Incluso los multipletes se ajustan adecuadamente a una suma de funciones derivadas del tipo (9.8).

como el encontrado para la resonancia de la figura 9.9 representa adecuadamente el valor promedio de la absorción máxima en resonancia por oscilador.

Dicho esto podemos calcular la fuerza de oscilador correspondiente a la transición dipolar entre subbandas tipo p , que como sabemos se estimó anteriormente en $f_{QD}^{exp} \sim 14.2$ [pág. 218]. Si tomamos los valores, $\alpha_0 = 2 \times 10^{-4}$ y $\Gamma = 14.5 \mu\text{eV}$, la ecuación (9.5) ofrece $f^\mu \sim 3$ con $s(0) = \alpha_0$, $g = 1$ y $A = 1.9 \mu\text{m}^2$. Este valor es casi un factor cinco menor que el resultado experimental previo. La razón para esta discrepancia es doble, una de tipo instrumental y otra que se deriva de las propiedades electrónicas de nuestras cajas cuánticas.

En primer lugar, a la vista del resultado, uno tiene que preguntarse si existe algún factor que pueda producir una subestimación del coeficiente de absorción máximo obtenido. La respuesta se halla en la distribución de la intensidad integrada del láser de prueba utilizado. Aunque este láser se caracteriza por una anchura mitad a media altura inmejorable, se ha comprobado que hasta un 63.5 % de la intensidad integrada se emite en una banda extensa que constituye la cola del mismo. En la figura 9.13 se ha representado en escala logarítmica la intensidad del láser en las condiciones

fueran mucho menores.

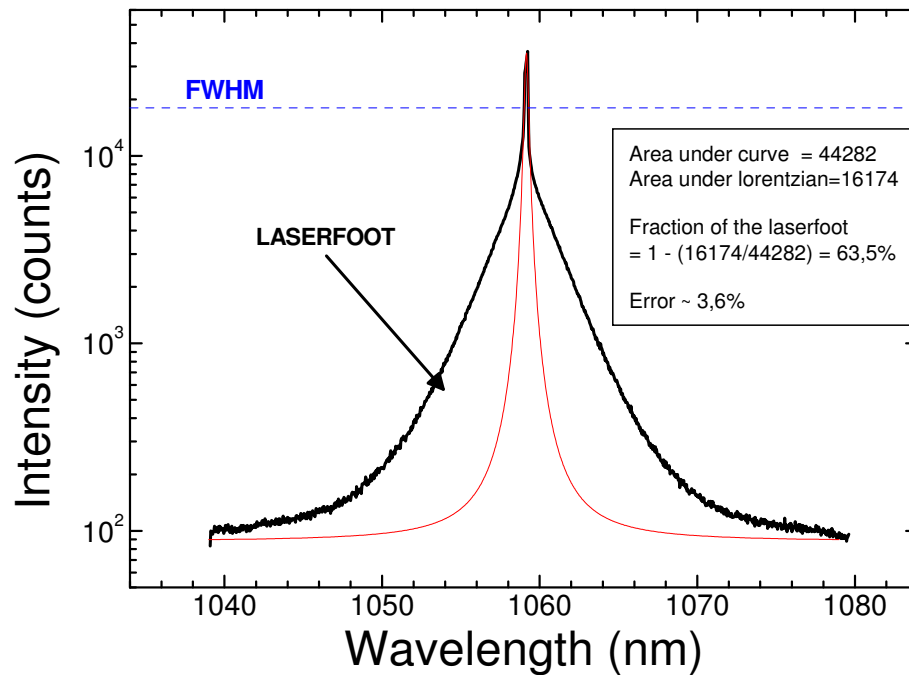


Figura 9.13: Espectro de emisión del láser en escala logarítmica. Hasta un 63.5% de la emisión no contribuye a ΔT aunque si que lo hace a T . Datos por cortesía de Florian Bickel (Munich).

utilizadas en el experimento. Como se ve, el efecto no es despreciable. Puesto que el método de modulación empleado sólo es sensible a cambios en la intensidad de corriente producidos por la fracción del láser que es exactamente resonante con la transición óptica¹⁶. La fracción de la emisión del láser producida en la cola sólo contribuye al valor constante I_0 , que utilizamos para normalizar nuestros espectros. En ese sentido, el coeficiente de absorción máxima se ha subestimado en un factor $\sim (1 - 0.63)^{-1}$. Esto nos arroja un nuevo valor para la fuerza de oscilador de $f^\mu \sim 8.1$.

En segundo lugar, si tal y como sabemos, las resonancias observadas en el experimento son no degeneradas, esto significa que en principio es posible estudiar la dependencia frente al estado de polarización de la luz de manera sencilla. Si la regla de selección dipolar viene dada por la anisotropía lineal de los estados electrónicos, la utilización de luz polarizada linealmente o perpendicularmente a una dirección

¹⁶La condición es estricta pues de otra manera no podríamos medir anchuras de línea como las encontradas.

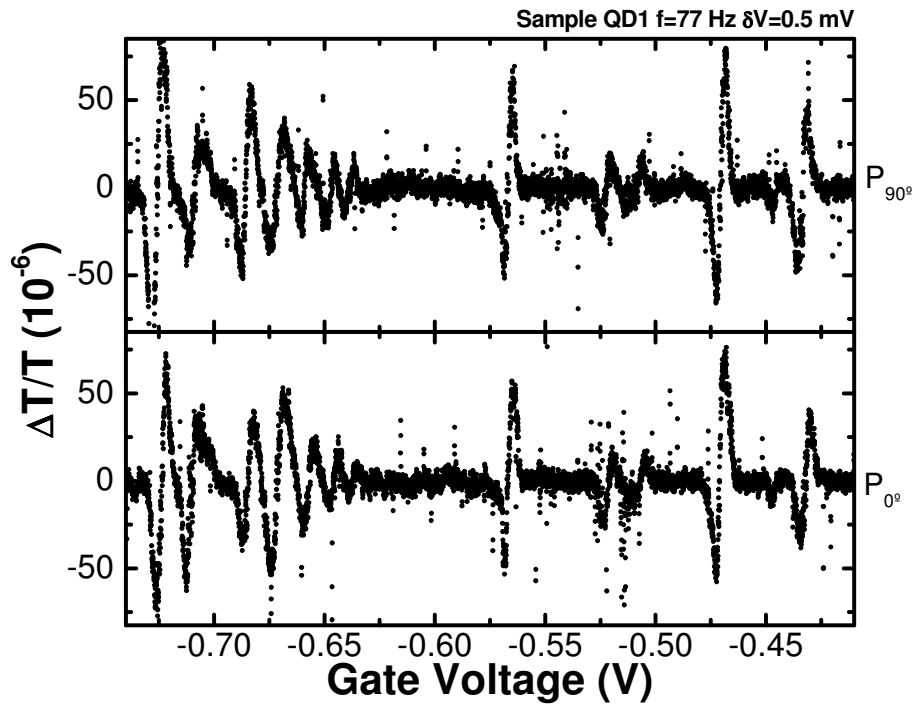


Figura 9.14: Espectros de absorción obtenidos para dos estados de polarización perpendiculares. No se observa ninguna extinción sistemática de los picos de absorción.

arbitraria debe cancelar alternativamente las líneas de absorción. Dado que el estado de polarización del láser a la salida de la cavidad es lineal, dicho experimento es fácil de llevar a cabo interponiendo una lámina $\lambda/4$ y un polarizador lineal, P_x , en el camino óptico [fig. 6.7]. De esta manera, en primer lugar se ajusta la lámina retardadora para que tras ella el estado de polarización sea circular¹⁷. Y a continuación se hacen dos espectros de absorción para dos estados de polarización P_x y P_{x+90} ¹⁸. El resultado se muestra en la figura 9.14.

Los espectros obtenidos de esta manera son similares y no existen, como se esperaba, extinciones sistemáticas de los picos de absorción. Esto contrasta con lo observado en el estado fundamental de anillos cuánticos de InAs, que han sido investigados por el mismo método y dispositivo experimental [147]. A la vista del

¹⁷Intensidad independiente de P_x .

¹⁸El coeficiente de extinción puede medirse con un polarizador lineal adicional y resulta del $\sim 5\%$.

resultado, hemos de concluir que la regla de selección que determina la probabilidad de absorción de las transiciones inter-banda investigadas no es lineal sino circular. Esto significa que la luz del láser, que se haya polarizada linealmente, es absorbida con probabilidad $1/2$, o lo que es lo mismo, sólo uno de cada dos fotones contribuyen a ΔT , mientras que todos ellos contribuyen a T . En virtud de esto la fuerza de oscilador ha de ser nuevamente corregida por este factor 2 siendo en tal caso de $f^\mu \sim 16$. Finalmente, confirmando el método empleado, vemos que la determinación experimental de la fuerza de oscilador concuerda aproximadamente con el valor encontrado de manera independiente a partir del experimento de absorción macroscópica descrito al comienzo de este capítulo.

9.1.4. Espectroscopía de saturación de cajas cuánticas aisladas

Para un colectivo macroscópico de cajas cuánticas o en general un sistema de N osciladores dipolares cualesquiera, el aumento de la densidad de iluminación a partir de un determinado nivel, provoca la saturación de la curva de absorción inhomógena que caracteriza a dichos estados. La potencia para la cual este comportamiento comienza a ser visible depende del tiempo empleado por el sistema de osciladores en vaciar sus estados electrónicos resonantes con el laser de frecuencia ω . Por otro lado, es bien sabido de la Física Atómica, que el acoplamiento entre un sistema de dos niveles y un campo electromagnético intenso da lugar a numerosos efectos recogidos genéricamente bajo el nombre de régimen de interacción fuerte radiación-materia [141]. En el caso que nos ocupa, en lugar de un sistema de $N \gg 1$ osciladores, tenemos un sólo oscilador resonante con el láser a frecuencia ω y voltaje V_g . Además, de los estudios realizados en la sección anterior conocemos con detalle su fuerza de oscilador y anchura homogénea. Vamos a ver cómo, con estos dos parámetros, podemos describir en detalle la interacción entre el campo electromagnético y un sólo nivel electrónico de una caja cuántica aislada y, además, describir la dinámica de relajación asociada.

El procedimiento experimental es sencillo, hemos de aumentar la potencia de excitación y monitorizar el espectro de absorción obtenido. Sin embargo, a fin de cuantificar adecuadamente el resultado, hemos de calibrar dicha potencia en términos absolutos, y no relativos como era suficiente hasta ahora. Para un nivel de corriente constante, I_{PD} , generada en el fotodiodo, hemos de calcular el nivel de iluminación al que se encuentran sometidas las cajas cuánticas en la muestra. Para ello, basta con realizar tres sencillas operaciones, aunque fundamentales para una correcta interpretación de los resultados. En primer lugar, la sensibilidad espectral del fotodiodo es de 0.42 A/W a la longitud de onda empleada, lo que nos permite calcular la potencia en el fotodiodo. En segundo lugar, la transmisión a través de la intercara substrato-aire viene dada por $\left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2$, con $n=3.6$. Por último, la fracción de la luz que se transmite a través de la muestra incidiendo en el área activa del detector ha de ser extraída del ángulo sólido que éste abarca. En nuestra geometría, la eficiencia de colección del fotodetector es de $\frac{R}{d} \frac{1-N A_{obj}^2}{N A_{obj}}$, con R el radio del área activa y d la distancia que lo separa de la muestra. Con esto disponemos de los datos necesarios para calcular la potencia sobre la muestra, P , de la cual sabemos que sólo un factor $\sim (1 - 0.63)/2$ es efectiva de cara al cómputo de la absorción máxima.

Efecto Stark Óptico en cajas cuánticas aisladas

En la figura 9.15 se han representado los espectros de absorción obtenidos variando la potencia de excitación entre 2 nW y 1.22 μ W. El régimen de modulación empleado nos permite observar directamente la lorentziana correspondiente a la curva de absorción. Para potencias reducidas, vemos que el espectro reproduce los resultados obtenidos hasta ahora, es decir, una absorción en el máximo de $\sim 2 \times 10^{-4}$ y una anchura de línea de 15 μ eV. Cada espectro ha sido magnificado por el factor que se indica a su izquierda. Al aumentar la potencia, tres son los efectos que se observan en los espectros. Por un lado, la absorción disminuye drásticamente, desapareciendo prácticamente en el nivel de cero para el espectro de mayor densidad de excitación. En segundo lugar, la línea aparece desplazada a la vez que se distorsiona de manera aparente.

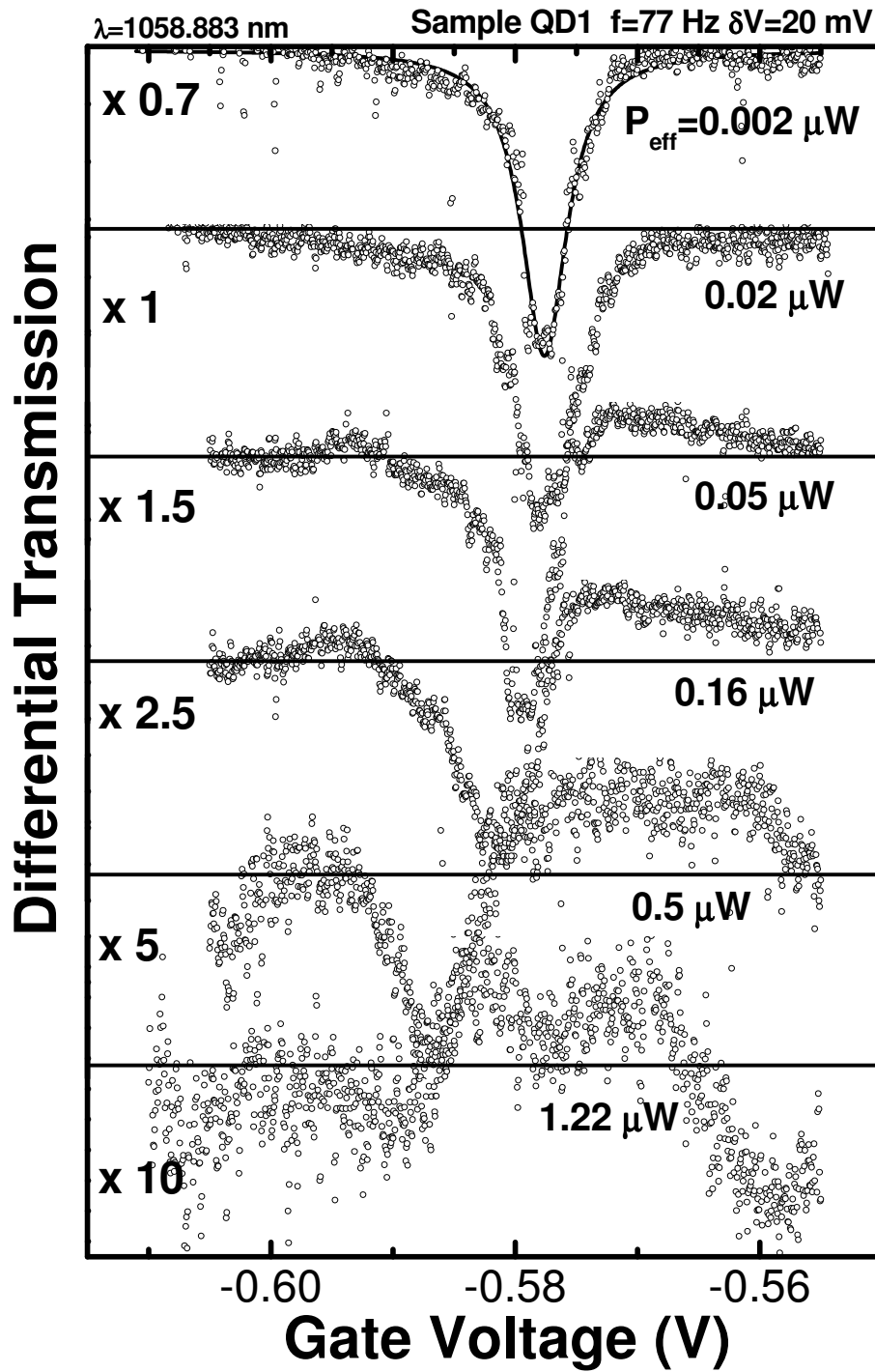


Figura 9.15: Espectros de absorción obtenidos para las potencias de excitación indicadas. Los factores de magnificación se indican a la izquierda de los espectros.

En la figura 9.15 vemos un ejemplo de corrimiento hacia bajas energías de un estado excitado al aumentar la densidad de excitación resonante¹⁹. Asumiendo que el medio es totalmente transparente excepto para la transición inter-banda que tiene lugar a esa frecuencia, este efecto es intrínseco y tiene que deberse al acoplamiento fuerte entre la transición óptica investigada y el campo electromagnético [148, 149]. Por el contrario si el medio no es transparente, un aumento de la potencia puede provocar un calentamiento local o algún efecto electrostático debido a la variación de la carga libre en el dispositivo. El efecto no sería notorio en ninguno de los dos casos en un experimento convencional. Pero con nuestra resolución, un desplazamiento de $\sim 5 \mu\text{eV}$ como el que separa los espectros a 2 nW y 50 nW ($1 \text{ mV} = 2.78 \mu\text{eV}$), puede ser detectado facilmente. Sin embargo, al contrario que antes, disponemos de una calibración exacta de la potencia sobre la muestra, y en principio, es posible calcular la frecuencia de Rabi asociada. Todos los efectos de acoplamiento fuerte entre radiación y materia disminuyen con el cociente entre esta magnitud y la anchura de línea de la transición, por ello, éste es el primer paso que debemos dar en este estudio. La fuerza de oscilador ha sido definida anteriormente y es igual a:

$$f = \frac{2|\langle p \rangle|^2}{m_0 \hbar \omega} = \frac{2m_0 \omega |\langle r \rangle|^2}{\hbar} \quad (9.9)$$

De aquí, introduciendo el valor experimental para la fuerza de oscilador de nuestras transiciones, podemos calcular el momento dipolar $\mu_p = e|\langle r \rangle|$ correspondiente. Por otro lado, la densidad de potencia del campo electromagnético viene dada por el vector de Poynting $\langle S \rangle = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n_{eff} |E|^2$. Dado que conocemos la potencia aplicada y hemos medido el diámetro de la PSF, la amplitud correspondiente del campo eléctrico, $|E|$, puede ser calculada. En estas condiciones, la frecuencia de Rabi, Ω_R , puede obtenerse a partir de $\hbar \Omega_R = \mu_p E$. Para una potencia de $1.22 \mu\text{W}$ y $f^\mu = 16$ tenemos que $\hbar \Omega_R = 33 \mu\text{eV}$. Vemos que su valor es comparable e incluso superior a la anchura de línea de nuestras resonancias, y es de esperar, por tanto, que el acoplamiento intenso entre el campo y la transición explique los efectos observados.

¹⁹Recordemos que este efecto fué observado en algunas de las resonancias investigadas en el capítulo anterior aunque no pudo ser determinado su origen [fig. 8.21].

Los efectos de dicho acoplamiento son diversos y numerosos experimentos exhiben una u otra faceta de los mismos [141]. Sin embargo, el origen de todos ellos se halla en un concepto simple. Si $|0, n + 1\rangle$ y $|1, n\rangle$ describen el estado del cristal con 0 excitones y $n+1$ fotones, y el estado con 1 excitón y n fotones, respectivamente, dichos estados son degenerados si el láser se haya sintonizado a la frecuencia ω_{01} y el campo es débil. Sin embargo, cuando la intensidad aumenta, la interacción dipolar provoca un desdoblamiento de los mismos en sendos dobletes cuya separación es justo la frecuencia de Rabi en resonancia [fig. 9.16]. Lógicamente si los estados de partida son de por sí muy anchos, es decir $\Gamma \gg \Omega_R$, los efectos debidos a dicho desdoblamiento son despreciables.

En estas condiciones conviene observar los resultados de la figura 9.16. En la misma se han reproducido los resultados de espectroscopía de absorción realizados en un haz colimado de átomos de Sodio. Las transiciones atómicas se ajustan a la perfección a un sistema de dos niveles sometido a la acción de un campo electromagnético. En esas condiciones, todas las ventajas del espectro electrónico discreto y los largos tiempos de coherencia pueden utilizarse para investigar el régimen de acoplamiento fuerte. En nuestro caso, hemos visto que nuestras transiciones disfrutaban de ambas ventajas y que somos capaces de investigarlas adecuadamente. Vamos a ver entonces como interpretamos nuestros resultados de saturación de la figura 9.15 basándonos en dicho régimen. El experimento de Wu se basa en la utilización de dos láseres monocromáticos en onda continua y sintonizables. Uno de ellos se utiliza para bombear intensamente una de las transiciones atómicas de los átomos del haz y el otro para probar el espectro de absorción. La frecuencia del bombeo puede ser ajustada por encima o por debajo de la resonancia atómica investigada, pero la intensidad del mismo no se varía durante el experimento. Para una diferencia entre ambas $\Delta\omega$, el espectro de absorción es monitorizado variando la frecuencia del segundo láser. Los resultados obtenidos se recogen en los paneles (a) y (b) de la figura 9.16.

Como vemos, tanto la forma de línea, como su posición e intensidad varían de manera importante en función de la condición de sintonización entre el bombeo y la

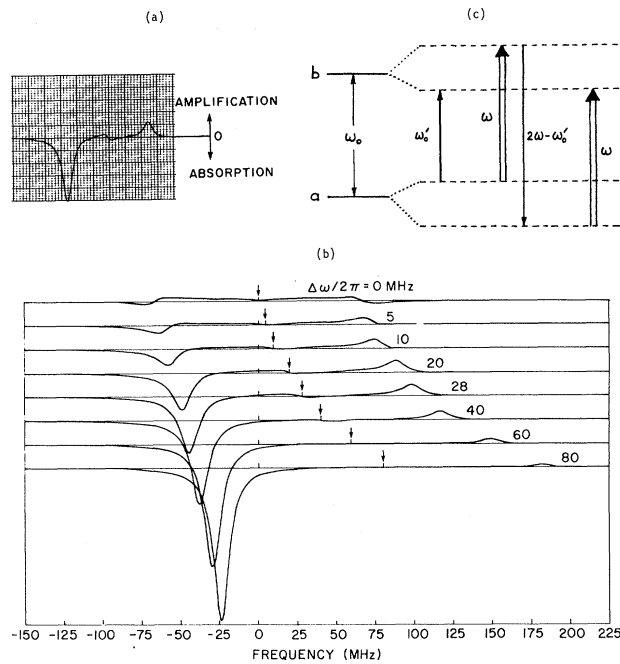


FIG. 4. (a) Measured line shape with driving field detuned by 28 MHz above resonance frequency ($\Delta\omega/2\pi = 28$ MHz). Intensity 560 mW/cm^2 ($\Omega/2\pi = 66$ MHz). Vertical scale 0.6% per large division. (b) Progression of theoretical line shapes with constant field strength ($\Omega/2\pi = 66$ MHz) and increasing detuning $\Delta\omega/2\pi = 0, 5, 10, 20, 28, 40, 60,$ and 80 MHz. Origin of horizontal axis is transition resonance frequency. Arrows indicate frequency of driving field. (c) Energy-level diagram illustrating the interaction of a two-level atom with a strong off-resonance field. The frequency of maximum probe absorption is shifted from ω_0 to ω_0' ; the probe is amplified at $2\omega - \omega_0'$ due to a three-photon process, involving absorption of two driving-field photons at ω (double arrows) and stimulated emission at $2\omega - \omega_0'$.

Figura 9.16: Experimento de absorción en un haz colimado de átomos de Sodio. Dos láseres cuasi-colineales se utilizan para probar la transición $3^2S_{1/2} - 3^2P_{3/2}$. El láser de prueba mide el espectro de absorción para diferentes condiciones de sintonización $\Delta\omega$ del láser de bombeo. El panel (a) corresponde al resultado experimental y el (b) al cálculo realizado asumiendo las transiciones descritas en (c). Cada doblete de del diagrama (c) está separado por una energía $\Omega' = \sqrt{\Delta\omega^2 + \Omega_R^2}$. Justo en resonancia $\Omega' = \Omega_R$. Reproducida de Wu *et al* [150].

transición atómica. Todos los efectos observados se explican con el desdoblamiento de los estados que hemos mencionado arriba. Varias son las características de estos

espectros que nos interesan para nuestros resultados. En cada espectro del panel (b) aparecen dos resonancias, una negativa y otra positiva. La primera corresponde a un pico de absorción, la segunda es luz reemitida por el átomo a costa de la energía suministrada por el láser de bombeo. La intensidad del pico de absorción es siempre mucho mayor que la del de emisión²⁰. Es posible demostrar que la diferencia que separa ambos picos es exactamente $\delta = 2\sqrt{\Delta\omega^2 + \Omega_R^2}$ [140, 141, 150], donde Ω_R es la frecuencia de Rabi en resonancia a la potencia del láser utilizada en el experimento. Por último, conforme el láser se hace más resonante con la transición real, la forma de la línea de absorción cambia de manera acusada, volviéndose más asimétrica y tomando valores por encima de cero justo como lo hacen los espectros de absorción reflejados en la figura 9.15.

A primera vista, la configuración del experimento recién descrito es muy diferente de nuestro experimento de absorción. Sin embargo, un examen más minucioso revelaría similitudes importantes. En nuestro caso, el láser de bombeo es el láser de diodo de cavidad externa cuya frecuencia se mantiene constante a lo largo de todo el experimento. Por otro lado, aunque está claro que no disponemos de un segundo láser para realizar el espectro de absorción, sí que disponemos de una manera de cambiar la frecuencia de prueba. Nuestro láser de prueba virtual es proporcionado por el efecto Stark de confinamiento cuántico de las líneas de absorción $\hbar\omega_{01}^{V_g} = \hbar\omega_{01}^{V_{g0}} + m\Delta V_g$, con $m = 2.78 \mu\text{eV}/\text{mV}$. En nuestro caso, V_g , controlado de manera externa, nos permite variar la energía de las transiciones inter-banda. En estas condiciones, hemos de preguntarnos como se trasladan los resultados de uno y otro experimento. En la figura 9.17(a) se han representado los mismos espectros de la figura 9.15, pero recalculando el eje de abscisas. Para hacerlo realizamos el siguiente razonamiento. En el experimento de Wu, la potencia de bombeo era constante y lo que se modificaba era la condición de sintonización entre el bombeo y la transición atómica. Esto ocurre de manera que para $\Delta\omega \rightarrow 0$, el régimen de interacción es más intenso. En nuestro caso, el láser de bombeo tiene una frecuencia fija, y la intensidad de la interacción se

²⁰De hecho, el pico de emisión se basa en una interacción de tercer orden involucrando una absorción a dos fotones y una reemisión a la frecuencia de Rabi.

haya gobernada por el aumento de la potencia. Cuando la interacción aumenta, el pico de absorción del experimento de Wu se desplaza hacia bajas energías respecto a la posición nominal de la transición atómica (0 en el panel (b) de la figura 9.16). La magnitud de este desplazamiento está determinada por la separación entre picos y la condición de sintonización utilizada, $\Delta\omega$. Por tanto, el desplazamiento respecto al cero es de $\sqrt{\Delta\omega^2 + \Omega_R^2} - \Delta\omega$. En nuestro experimento de absorción, el láser de bombeo es siempre resonante con la energía de la transición²¹, o lo que es lo mismo $\Delta\omega = 0$. Por tanto, si esto es cierto, el pico de absorción debe aparecer desplazado $\omega_{01}^0 - \omega_{01}^{P_{eff}} = \Omega_R$. Tomando nuestro cero para el eje de abscisas a la energía del pico de absorción a potencias reducidas, el aumento de la interacción produce un desplazamiento hacia bajas energías del pico de absorción igual a la frecuencia de Rabi correspondiente a la potencia efectiva aplicada:

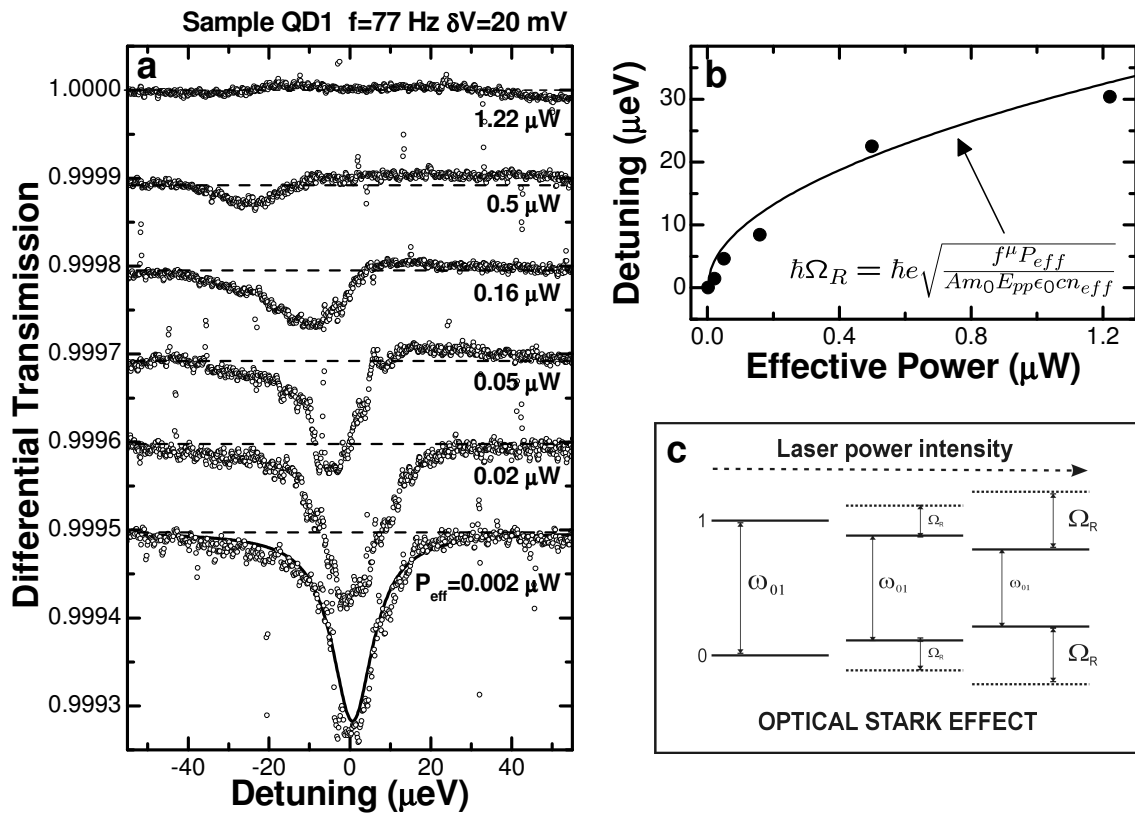


Figura 9.17: La signatura del *Efecto Stark Óptico* en cajas cuánticas aisladas de InAs.

²¹De otra manera no habría fotones que absorber pues sólo tenemos un láser.

$$\hbar\Omega_R = \hbar e \sqrt{\frac{f^\mu P_{eff}}{Am_0 E_{pp} \epsilon_0 c n_{eff}}} \quad (9.10)$$

En esta ecuación todas las magnitudes han sido definidas, y medidas o calculadas, previamente. Introduciendo los valores de la fuerza de oscilador, $f^\mu = 16$, determinada independientemente, y de la energía de la transición $1239.85/\lambda_L$, el resultado es el que muestra el panel (b) de la figura 9.17. Los puntos experimentales en esa figura corresponden a las posiciones de los máximos de absorción a cada potencia. A la vista del acuerdo cualitativo de la evolución de la forma de línea e intensidad de la absorción de ambos experimentos, y el acuerdo cuantitativo del desplazamiento recién demostrado, creemos que el fenómeno observado constituye una prueba experimental en exclusiva²² del *Efecto Stark Óptico* en nanoestructuras cuánticas aisladas de InAs, utilizando además para ello un sólo láser de prueba.

Sin embargo, las implicaciones de esta afirmación merecen un pequeño examen pues parecen conducir a una paradoja. Para apreciarla, hay que tener en cuenta que todos los fotones absorbidos en el experimento de absorción que venimos realizando tienen exactamente la misma frecuencia, aquella que suministra el láser. Si nos ciñéramos estrictamente a la analogía con el experimento de Wu, el resultado obtenido implica que, para una potencia elevada, necesitamos fotones a frecuencia ω_L para producir el bombeo óptico resonante con la transición, y también fotones a frecuencia $\omega_L - \Omega_R$ para que sean absorbidos y den lugar al pico de absorción observado.

Para intentar aclarar este resultado podemos analizar con algo más de detalle nuestro experimento. En la situación descrita en la figura 9.18, cuando la potencia del láser es reducida (weak coupling), la transición interbanda investigada es resonante con el láser para un voltaje V_g^0 produciéndose absorción a dicha energía, $E_L = \hbar\omega_{01}^0$. Si aumentamos la potencia, cada nivel electrónico se desdobra debido

²²Tan sólo recientemente (16 de Abril de 2004) se ha publicado una prueba experimental de este efecto en islas cuánticas naturales GaAs/AlGaAs, aunque tal y como ya se ha mencionado en otras ocasiones su confinamiento cuántico es mucho menor propiciando una fuerza de oscilador superior [151].

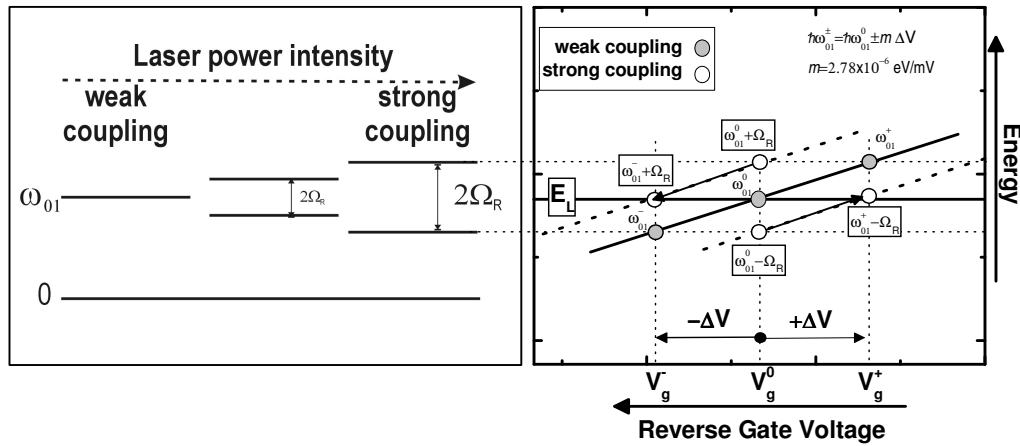


Figura 9.18: Diagrama del experimento de absorción modulada en el régimen donde el efecto Stark óptico es significativo $\hbar\Omega_R \geq \Gamma$ (ver texto).

al acoplamiento entre luz y materia de manera que aparecen dos transiciones separadas simétricamente de la original por la frecuencia de Rabi en resonancia Ω_R . En estas condiciones, la absorción no es posible a la energía del láser de bombeo. Hasta aquí todo es análogo a los experimentos de este tipo realizados en otros sistemas discretos. En nuestro caso, y por lo que hemos visto, podemos restablecer la condición de resonancia y por tanto medir la absorción de nuevo aplicando un voltaje externo, $\pm\Delta V$, que desplace las transiciones del régimen de acoplamiento fuerte, $\omega_{01}^0 \pm \Omega_R$, hacia altas o bajas energías, respectivamente [fig. 9.18]. Esto explica de manera empírica el fenómeno de absorción observado, sin embargo, hay dos cuestiones que merece la pena destacar. En primer lugar, al cambiar el voltaje aplicado, la condición de sintonización entre el láser y la transición no perturbada, $\Delta\omega = \omega_L - \omega_{01}^{V_g}$, también cambiará. Dado que ahora el desdoblamiento de los niveles electrónicos dependería de la condición de sintonización particular, intuimos, a la vista del resultado experimental, que debería dar lugar al mismo desplazamiento neto que nuestro razonamiento empírico. Aun así, en un experimento puramente óptico, si el láser de bombeo fuese resonante con la transición atómica no perturbada, dicha condición sería inamovible cuando midiesemos el espectro de absorción por medio del láser de prueba. Ésta es la base del desarrollo teórico que permite describir las propiedades

ópticas de sistemas de dos niveles resolviendo las ecuaciones de Bloch de manera exacta para el láser de bombeo, e introduciendo de manera perturbativa el láser de prueba [140]. En nuestro caso, esto no se cumple o al menos no podemos decir que el propio método de medida no perturbe al estado investigado según hemos visto. En segundo lugar, se deriva del razonamiento empírico que deberíamos observar dos resonancias separadas simétricamente en el eje de voltajes y correspondientes a las transiciones $\omega_{01}^{\pm} \pm \Omega_R$ de la figura 9.18. En el experimento de Wu, por ejemplo, la transición de alta energía (respecto a la no perturbada) da lugar a amplificación y la de baja energía a absorción. Esto es debido a que el láser de bombeo se encuentra por encima de la transición atómica en ese caso. Sin embargo, justo en resonancia, no existe tal asimetría, y se comprueba que ambas señales han de ser iguales en intensidad y reflejadas respecto al láser de bombeo [espectro superior de la figura 9.16(b)]. En nuestro caso, sólo una de ellas es visible aunque su comportamiento es análogo al de la línea de absorción del experimento puramente óptico. Ésta es otra diferencia no trivial entre ambos experimentos. Una explicación definitiva para estas discrepancias no nos es conocida por el momento, pero podemos manejar varias hipótesis de trabajo.

En primer lugar, y siguiendo con la analogía óptica, habría que resolver las ecuaciones de Bloch de manera exacta, o no perturbativa, para el láser de prueba. Esto debería, en principio, simular el efecto del campo eléctrico sobre la energía de la transición original y constituye el paso siguiente para formalizar el análisis empírico llevado a cabo.

La segunda hipótesis es más sutil. Para ello hemos de considerar que el campo eléctrico aplicado se encuentra modulado por una onda cuadrada de gran amplitud y frecuencia constante. En resonancia, esto es equivalente a excitar resonantemente un sistema de dos niveles con un láser totalmente modulado en amplitud (on/off), para el cual, por otro lado, podemos variar la potencia. Esta situación ha sido analizada teóricamente por S. Feneuille *et al* [152] en el marco del efecto Stark Óptico en transiciones atómicas. En estas condiciones, la transformada de Fourier de dicha modulación temporal de la intensidad resulta en un desdoblamiento de la

línea láser en el espacio de frecuencias que ahora tendrá tres contribuciones a ω_L y $\omega_L \pm \omega_{mod}$. Hasta aquí nada nuevo, pero en esta situación, se deriva que aumentando la potencia del láser a frecuencia de modulación constante, llegará un momento en que las transiciones de Rabi se encontrarán con las frecuencias laterales del láser produciéndose absorción allí donde en principio no cabía esperarla, y sin necesidad de desplazar para ello la longitud de onda del láser, que es único en este caso. Esto recuerda bastante a nuestro resultado experimental si bien hay muchos detalles que quedarían por explicar.

Por último, no debemos olvidar que un desplazamiento de la línea de absorción hacia bajas energías, acompañado de un ensanchamiento de la misma, es compatible con un mecanismo de relajación dependiente de la potencia y que conlleve una renormalización de la banda de energía prohibida del semiconductor. Un posible candidato para dicho mecanismo es la interacción entre el cuasi-continuo resonante con los estados discretos según vimos en el capítulo anterior. Para estos puntos cuánticos, el confinamiento más débil respecto al de los anillos, provoca una menor preponderancia del continuo a las energías de exceso correspondientes a la primera transición excitada estudiada aquí [67]. Sin embargo, si asumimos que dicho continuo existe y se haya degenerado con nuestra transición discreta, el aumento de potencia del láser provocaría una población creciente de pares electrón hueco en el continuo capaces de, por un lado, ensanchar la línea de absorción a través de la interacción de Coulomb, y por otro lado, provocar un desplazamiento hacia el rojo de la absorción debido al apantallamiento local del campo aplicado²³, y conocido comunmente como efecto de renormalización. Si esta hipótesis se confirmase, nuestro resultado experimental implicaría que la magnitud del desplazamiento y forma de línea en general producida por dicha interacción, responde a la perfección a lo que cabría esperar de la teoría del régimen de interacción fuerte radiación-materia que describe, por ejemplo, el experimento de Wu. Esto, por supuesto, no es evidente a primera vista y refleja, hasta que punto, la interacción entre la estructura elec-

²³No confundir con el apantallamiento electrostático que se produce al excitar sobre la barrera debido a la acumulación de huecos en la intercara de la superred.

trónica (discreta+continua) y el campo electromagnético (que según hemos visto ha de englobar la frecuencia óptica del láser y la componente AC del campo eléctrico aplicado) han de ser descritos de manera unificada en una imagen polaritónica de complejidad manifiesta.

Dinámica de relajación intra-banda en cajas cuánticas aisladas con $N_e = 2$

Para finalizar esta sección, vamos a mostrar cómo el análisis del comportamiento de saturación de la absorción puede utilizarse también para determinar la dinámica intra-banda de relajación [146]. Anteriormente, hemos visto que nuestros estados excitados gozan de tiempos de vida elevados de ~ 50 ps. Estos tiempos son necesarios para que el efecto Stark óptico pueda ser observado a potencias moderadas según hemos visto en el apartado anterior. En este apartado, vamos a investigar a la luz de un modelo de saturación simple que es lo que ocurre entre el instante en que se pierde la coherencia del estado y el instante en que el mismo puede ser ocupado de nuevo. La probabilidad de que nuestro sistema electrónico decaiga hacia su estado fundamental²⁴ de manera espontánea tras un evento de absorción ocurrido en $t=0$, varía con el tiempo como $(1 - e^{-t/\tau})$, siendo τ el tiempo característico de dicho proceso que consideramos independiente de la potencia²⁵. Por otro lado, sabemos que si P es la potencia que llega a la muestra, el máximo número de fotones absorbidos por unidad de tiempo será $\frac{\alpha_0 P}{\hbar\omega}$, siendo $t_{min} = \frac{\hbar\omega}{\alpha_0 P}$ el mínimo tiempo transcurrido entre dos eventos consecutivos. Dicho tiempo es un límite inferior, pues la transición óptica va a estar bloqueada en promedio un tiempo τ . Podemos asumir sin reparos que el cociente entre el número de fotones absorbido a una potencia dada, y el número máximo posible debe tender asintóticamente a la unidad cuando $P \rightarrow 0$, y en estas condiciones $t_{min} \rightarrow \tau$. Esta ley se puede describir adecuadamente con la siguiente ecuación sigmoïdal:

$$\alpha(P) = \alpha_0 \left(1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{\alpha_0 \tau P}} \right) \tag{9.11}$$

²⁴Aquel que permite una nueva absorción.

²⁵Este razonamiento asume un mecanismo de relajación espontánea y una fuerza de oscilador constante.

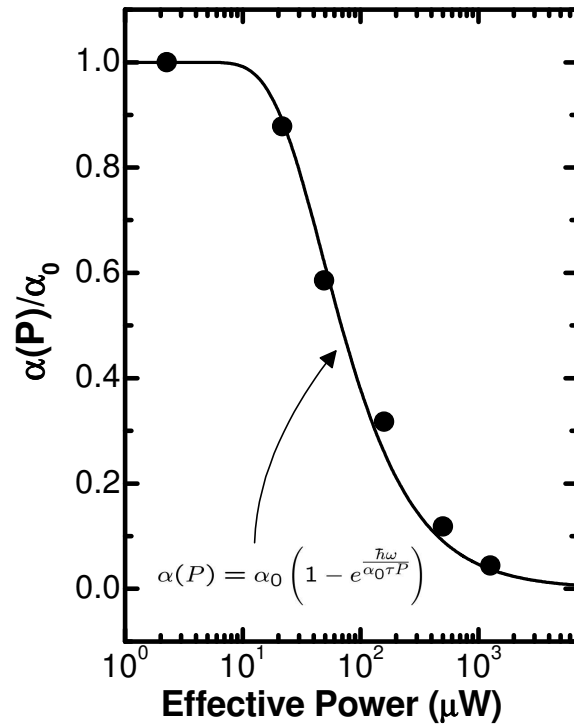


Figura 9.19: Comportamiento de saturación de la intensidad máxima de absorción. La línea continua representa la ecuación logística con $\alpha_0 = 1.1 \times 10^{-3}$ y $\tau = 3.6$ ns.

Y dado que conocemos α_0 y $\hbar\omega$ de nuestros experimentos anteriores, podemos tratar de ajustarla a los datos experimentales de saturación. Este procedimiento debe proporcionarnos τ .

En la figura 9.19 se ha representado el máximo contraste del pico de absorción, $\Delta T/T_{max}$, para las diferentes potencias investigadas en el apartado anterior. En línea continua se representa el ajuste realizado a la expresión (9.11). Dado que la potencia efectiva es la potencia útil que la caja cuántica puede absorber, el valor de α_0 utilizado es²⁶ $\alpha_0 = 1.1 \times 10^{-3}$. El ajuste proporciona un tiempo para el ciclo de trabajo de la absorción de $\tau = 3.6 \pm 0.3$ ns. Para entender lo que esto significa, vamos a analizar el diagrama de la figura 9.20. Para $t = 0$ los estados excitados de la banda de conducción y de valencia se hallan vacíos, no así el estado fundamental de la banda de conducción (1). Un fotón es absorbido a la frecuencia

²⁶ $2 \times 10^{-4}((1 - 0.63)/2)^{-1}$

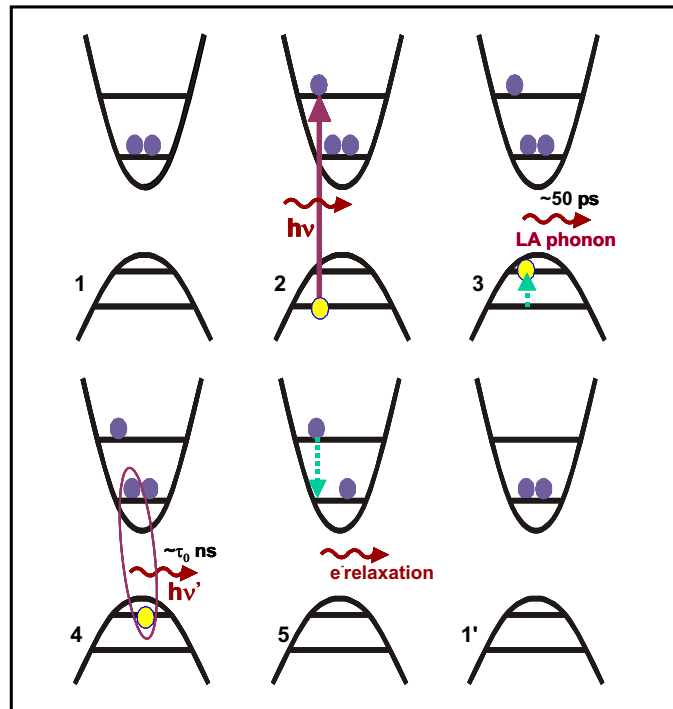


Figura 9.20: Ciclo de trabajo de la absorción inter-banda pp de cajas cuánticas aisladas con 2 electrones en exceso.

$\hbar\omega_L$ creando un par electrón-hueco (2). La anchura de línea de la absorción determina el tiempo de relajación de este estado, que sabemos es ~ 50 ps. Éste corresponde a la desexcitación del hueco en el paso (3). Dado que el estado fundamental de la banda de conducción se haya bloqueado para nuevos electrones, es necesaria una recombinación radiativa entre los estados s de nuestra caja cuántica (4). Dicho tiempo se sabe que es del orden de 0.8-1 ns en estas cajas cuánticas de InAs y, por tanto, aún no explica el valor de τ que hemos encontrado. Es necesario un último proceso para recuperar la situación inicial, y es que el electrón tiene que relajar su energía hacia el estado fundamental (5). En este análisis es primordial recordar que todas las configuraciones electrónicas entre 1 y 1', dan lugar, por supuesto, a transiciones ópticas inter-banda en nuestra nanoestructura. Sin embargo, las mismas no son resonantes con el láser de excitación, pues se hayan separadas de la resonancia investigada por las energías de intercambio y de Coulomb correspondientes a la configuración de carga particular. Ellas contribuyen a los picos observados en $\Delta E \sim$

1.25 meV cuando hacemos un barrido de frecuencias variando el voltaje aplicado. Cada resonancia individual corresponde a un estado absolutamente no degenerado y la configuración electrónica original exacta ha de ser recuperada para que un nuevo fotón sea absorbido del láser.

Nos queda, por tanto, encontrar un mecanismo que inhiba la relajación entre el estado excitado y el estado fundamental de la banda de conducción de manera que el ciclo de trabajo supere los 3 ns. El sistema de dos electrones en los estados s y p, ya ha sido investigado previamente en esta tesis. Esta configuración es la responsable del desdoblamiento en estado singlete y estado triplete del excitón doblemente cargado [74]. Dicho estado singlete es la configuración antisimétrica del sistema de dos spines, formando la configuración simétrica el estado triplete, según hemos visto en el capítulo 5. El estado final tras la relajación ($1'$) es un estado de spin total $S = 0$ y, por tanto, el tiempo de relajación va a ser diferente para el estado singlete y el estado triplete. Dado que nuestro experimento está realizado con luz polarizada linealmente, ambos estados son igualmente probables tras el ciclo de absorción-radiación en el estado fundamental. En un tiempo t donde varias absorciones sucesivas tienen lugar, el mecanismo más lento es el que determina el ciclo de trabajo promedio. De esta manera, nuestro resultado sugiere que la inversión de spin (*spin-flip*) del estado triplete en cajas cuánticas de InAs tiene un tiempo característico de ~ 3 ns. Esto es relevante para las aplicaciones de este sistema en el control coherente del spin que han de llevar a la computación cuántica. Por último, este resultado está de acuerdo con otros resultados experimentales obtenidos midiendo la rotación de Faraday resuelta en tiempo en este sistema [9].

Para finalizar esta sección recapitemos brevemente los resultados obtenidos. Se ha diseñado y optimizado un método experimental para investigar la absorción óptica de cajas cuánticas aisladas de InAs. El método se ha demostrado de validez general para investigar diferentes muestras y rangos de energía²⁷. Se ha determinado la anchura de línea homogénea de estados excitados aislados con dos electrones en

²⁷Los resultados obtenidos en el estado fundamental de anillos cuánticos no se mostrarán aquí [147].

exceso con una precisión inferior a $2 \mu\text{eV}$. La máxima absorción se ha determinado con un nivel señal ruido de $5.5 \times 10^{-6} \text{ Hz}^{-1/2}$. Esto ha permitido determinar de manera individual la fuerza de oscilador de las transiciones ópticas investigadas, así como su tiempo de vida. Por otro lado, el estudio de la espectroscopía de saturación ha revelado que las propiedades del acoplamiento entre materia y radiación para potencias elevadas pueden ser descritas basándonos en el régimen de interacción fuerte de un sistema de dos niveles. Algunos resultados indican, sin embargo, que en este sistema, la descripción pormenorizada de esta interacción es posible que deba contemplar la presencia de un continuo resonante con nuestros estados discretos del tipo observado en los anillos cuánticos. Más investigación es necesaria a ese respecto. Por último, un modelo simple de saturación de la relajación espontánea ha permitido investigar el ciclo completo de la dinámica de relajación intra-banda con dos electrones en exceso.

9.2. Espectroscopía de dispersión de cajas cuánticas aisladas de InAs

Una vez demostrada la posibilidad de medir el espectro de absorción de una caja cuántica aislada, pretendemos mostrar a continuación como es posible también registrar simultáneamente su espectro de reflectividad. La parte real e imaginaria de la función dieléctrica de un sistema electrónico o polarizable en general, ofrecen información complementaria sobre la respuesta en frecuencia de la polarización microscópica del mismo. Conocida una de ellas en todo el espectro de frecuencias, la otra puede ser determinada haciendo uso de las relaciones de Krammers-Kronig [5]. Por tanto, uno ha de preguntarse cuál es la utilidad de registrar el espectro de dispersión de una caja cuántica aislada toda vez que el de absorción nos es conocido. La respuesta se halla en el carácter diferente de uno y otro experimento [153]. En el caso que hemos descrito anteriormente de absorción microscópica, el fotón que interacciona con el nivel electrónico es destruido en el propio proceso de absorción. Considerar lo que le ocurre a un fotón individual puede parecer demasiado preten-

cioso o poco relevante, pero no lo es en un sistema en el que un sólo excitón es monitorizado y resonante con el campo en un instante t dado. Esto es precisamente lo que ocurre en nuestro sistema, aunque la señal colectada corresponde al promedio temporal de la polarización generada. De cara a aplicaciones basadas en la manipulación coherente de la polarización de un sólo nivel electrónico en una sólo caja cuántica (*Quantum Information Technology*), disponer de una herramienta capaz de probar y retornar la información de la fase en tiempo real de dicho nivel es importante. Esa información sobre la fase es justo la que proporciona el espectro de dispersión. En nuestro caso, nuestra detectividad se haya lejos de ser suficiente para saber lo que le pasa a cada excitón individual en un instante t cualquiera (tiempo real). No se trata de un experimento capaz de detectar fotones individuales. Pero si somos capaces de registrar el espectro de dispersión, podemos asegurar que todos los fotones detectados portan información sobre el promedio temporal de la fase de dicha resonancia electrónica. Éste es el primer paso para pensar en detectar en el futuro dichos fotones de manera individual y en tiempo real de computación, por ejemplo.

En nuestra geometría, el láser de prueba es focalizado en un área minúscula de la muestra siendo el campo electromagnético aplicado \vec{E}_0 . En respuesta al campo aplicado, en el medio se genera una polarización microscópica responsable del campo de polarización, \vec{E}_s , que para campos lo bastante débiles queda descrito por la respuesta armónica de la carga en movimiento según el modelo de Lorentz:

$$\vec{E}_s = \frac{1}{A} \frac{e^2 f}{2\epsilon_0 c m_0 n} \frac{i\omega}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \vec{E}_0 \quad (9.12)$$

donde todas las magnitudes son conocidas de la discusión previa. La condición de estricta resonancia provocada por la aplicación del voltaje y la reducida anchura de línea del láser provoca que sólo un oscilador responda a la frecuencia ω en un instante dado. En estas condiciones, a lo largo de la dirección del láser de prueba se encuentra nuestro detector sobre el cual incide un campo total transmitido $\vec{E}_T = \vec{E}_0 + \vec{E}_s$. Si eventualmente colocáramos un detector monitorizando la luz reflejada de nuestro oscilador aislado, sobre el mismo incidiría un campo $\vec{E}_R = \vec{E}_s$. Dichos detectores sólo pueden detectar el promedio temporal del campo, esto es su intensidad, y por

tanto $T = \left| \frac{E_0 + E_s}{E_0} \right|^2$ y $R = \left| \frac{E_s}{E_0} \right|^2$:

$$\begin{aligned} T &\sim 1 - \alpha_0 \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} \\ R &\sim \left(\frac{\alpha_0}{2} \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} \right)^2 \end{aligned} \quad (9.13)$$

donde se ha utilizado que $\Gamma = 2\gamma \ll \omega_0$ y que $\alpha_0 \ll 1$. Lo importante de este resultado es que R es un factor $\alpha_0/2$ menor que el máximo contraste de absorción. Esto significa que si $\alpha_0 \sim 2 \times 10^{-4}$, el máximo contraste de la reflectividad de nuestra caja cuántica aislada va a ser de $\sim 1 \times 10^{-8}$, y que ineludiblemente se ha de perder en nuestro nivel de ruido rms $\sim 2.5 \times 10^{-6}$.

En este punto, podemos hacer la comprobación experimental de este resultado, y en las mismas condiciones que antes, monitorizar la intensidad de un fotodiodo sobre el que incide la luz reflejada desde nuestra caja cuántica. A tal fin, a la entrada del microscopio se dispone de un divisor de haz que, por un lado, divide en dos el láser de prueba, y por otro lado, dirige hacia un fotodiodo de silicio, colocado sobre la mesa óptica, la luz reflejada desde la muestra y que sale de nuevo por la fibra [fig. 6.7]. Igual que antes, la señal de fotocorriente se pre-amplifica y se introduce en un amplificador sincronizado que se haya sintonizado a la frecuencia de modulación del voltaje aplicado a la muestra. El nivel continuo de dicha señal se utiliza para normalizar el espectro de reflectividad $\Delta R(V_g)/R$. Utilizando dos amplificadores simultáneamente es posible registrar la señal de absorción y reflectividad al mismo tiempo. Finalmente, el uso de una modulación cuadrada de amplitud suficiente permite analizar el resultado sin desconvolucionar numéricamente la forma de línea de la señal modulada²⁸.

La figura 9.21 muestra los espectros recogidos de esta manera en ambos detectores a una longitud de onda del láser de prueba de 1058.876 nm. A la vista del resultado, comprobamos que nuestras estimaciones iniciales eran incorrectas. La predicción realizada era válida para un dipolo ideal que se haya aislado y en el vacío.

²⁸En este caso, la forma de línea de la absorción diferencial es directamente la función lorentziana [fig.9.6].

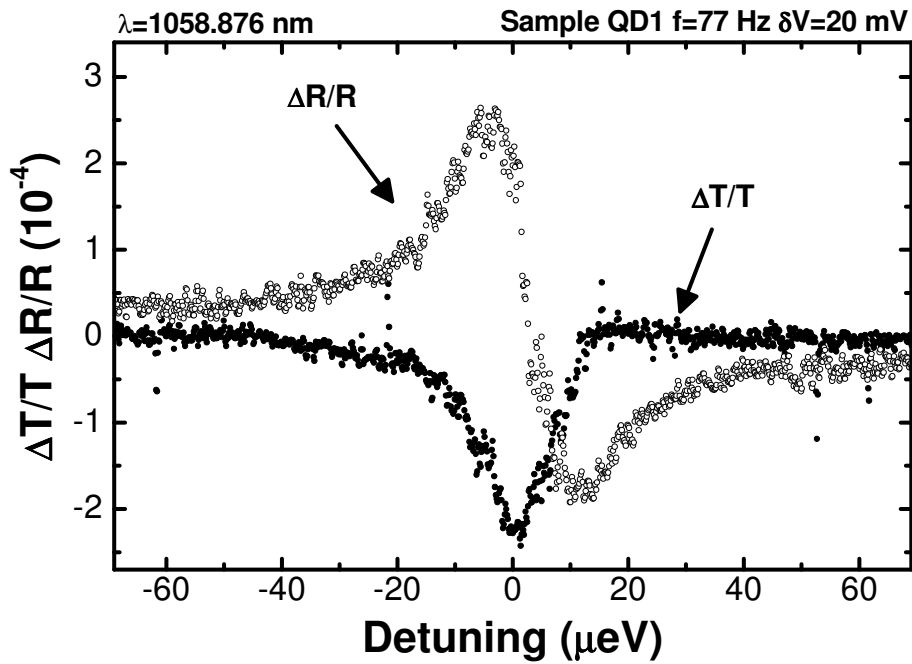


Figura 9.21: Espectros de absorción y reflectividad de una transición óptica no degenerada perteneciente a una caja cuántica aislada de InAs.

En nuestro caso, el oscilador que interactúa con el campo (nuestra transición dipolar excitónica), forma parte de un medio material con varias capas homogéneas que lo albergan y cuya constante dieléctrica es mayor que la del vacío. Las ecuaciones de Maxwell han de ser resueltas en este caso en cada intercara del material para deducir la respuesta dieléctrica del mismo en función de la frecuencia. En primera aproximación, podemos pensar que dicha respuesta no debería ser relevante para la amplitud de la señal modulada²⁹. Sin embargo si que lo es para la intensidad transmitida del láser como vimos en el apartado 9.1.2. El patrón de interferencias que allí se observó nos informa de que la intensidad del mismo va a depender de la frecuencia, y esto es una consecuencia de la respuesta dieléctrica del material. Sin embargo, si nos quedasemos aquí, estaríamos olvidando una cuestión importante y es que la interacción entre el campo aplicado y el campo de polarización es coherente y no son las intensidades las que hay que sumar si no los campos eléctricos respectivos. El efecto será tanto más notorio cuanto mayor es la coherencia del campo

²⁹Dado que no depende del campo eléctrico aplicado que provoca la modulación [ap. C].

electromagnético empleado y menor la anchura de línea de la resonancia. Ambas condiciones se cumplen en nuestro sistema. En lo que sigue vamos a demostrar, que la forma de línea del experimento de dispersión, así como el máximo contraste que cabe esperar dependen de manera decisiva del ajuste de fases entre el campo electromagnético de prueba, parte propagante y contrapropagante entre sí, y con el campo electromagnético generado por la polarización microscópica que pretendemos analizar. Dicho ajuste de fases se haya determinado, como es natural, por la diferencia de camino óptico de las diferentes ondas electromagnéticas que intervienen en el problema. Este hecho puede demostrarse, por ejemplo, repitiendo el experimento para dos longitudes de onda diferentes, y es justo lo que se representa en la figura 9.22.

En la misma se ha realizado el mismo experimento a dos longitudes de onda del láser separadas entre sí tan sólo 0.32 \AA . En primer lugar, observamos un desplazamiento de las líneas de absorción y dispersión, a razón de menor longitud de onda para un mayor voltaje inverso aplicado. Ésta es la firma del efecto Stark de confinamiento cuántico, como ya sabemos. Sin embargo, y como hemos predicho, observamos también que la forma de línea de absorción y reflectividad han cambiado de uno a otro espectro, siendo el cambio mucho más patente en la señal de reflectividad. Aplicando las relaciones de Kramers-Kronig a una lorentziana, correspondiente a la parte imaginaria de la función dieléctrica, la parte real se puede hallar de manera unívoca. El resultado tiene la forma de la señal de reflectividad de la figura 9.21. En nuestro experimento, tal y como vemos en la figura 9.22, esto no ocurre para todas la longitudes de onda. Este comportamiento es debido a la coherencia del láser de prueba y a su ajuste de fase con la resonancia investigada.

Lo interesante en este caso es que tal ajuste de fases no ocurre de cualquier manera y puede ser controlado de manera externa. De hecho, está totalmente determinado por la geometría del microscopio, incluyendo el número de superficies, y su composición, capaces de inducir un cambio de fase apreciable. Aunque esto puede parecer contraproducente, en realidad no lo es, o, al menos puede tener aplicaciones interesantes. El ajuste de fases está controlado por la longitud de onda, como ya

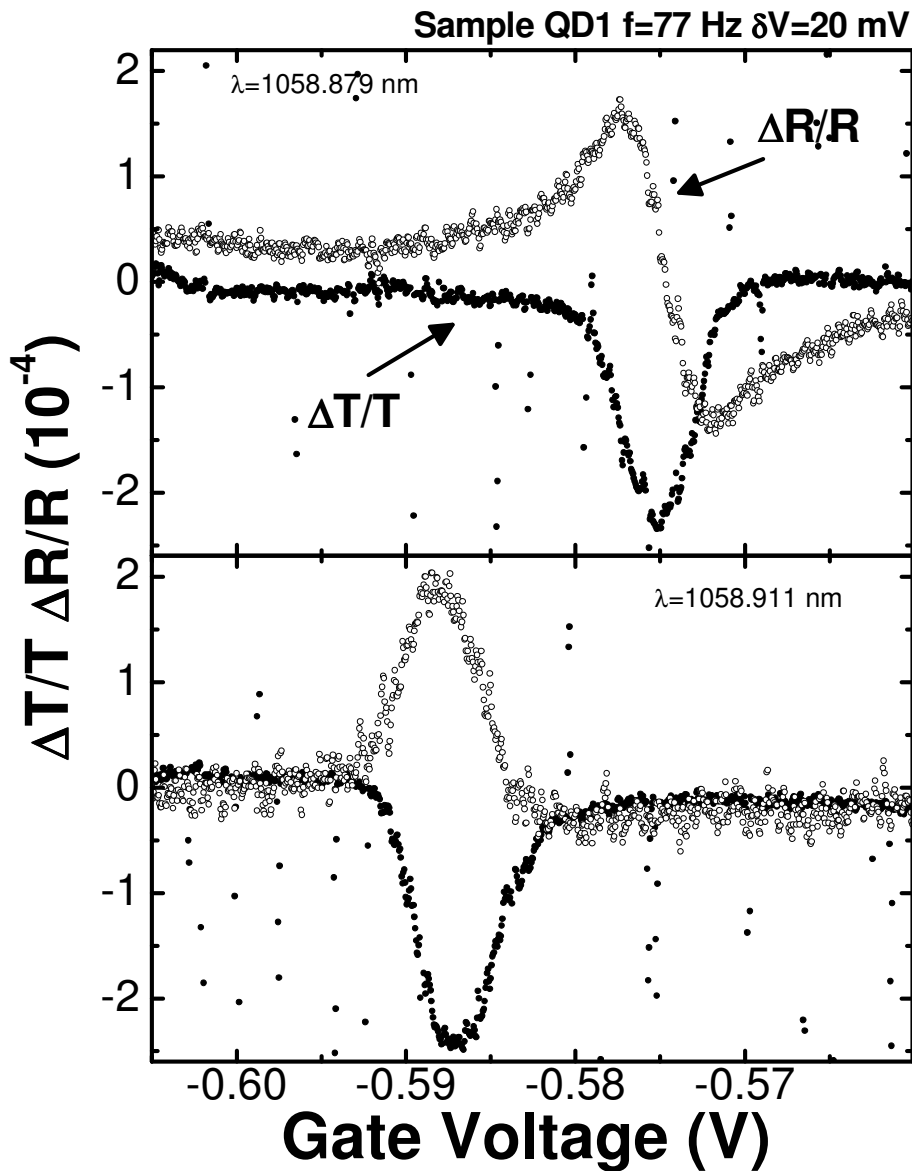


Figura 9.22: Espectros de absorción y reflectividad de una caja cuántica aislada para dos longitudes de onda del láser de prueba próximas entre sí. El desplazamiento queda descrito por el efecto Stark de confinamiento cuántico, no así la forma de línea en cada caso.

sabemos, pero también por distancias macroscópicas que pueden ser modificadas externamente. Nos referimos, en concreto, a la distancia entre el objetivo y la muestra, o más precisamente, entre el extremo de la fibra y la superficie de la muestra.

En la figura 9.23 se ha representado el resultado obtenido al modificar la longitud de onda del láser en un intervalo de unas pocas décimas de Å, a la vez que

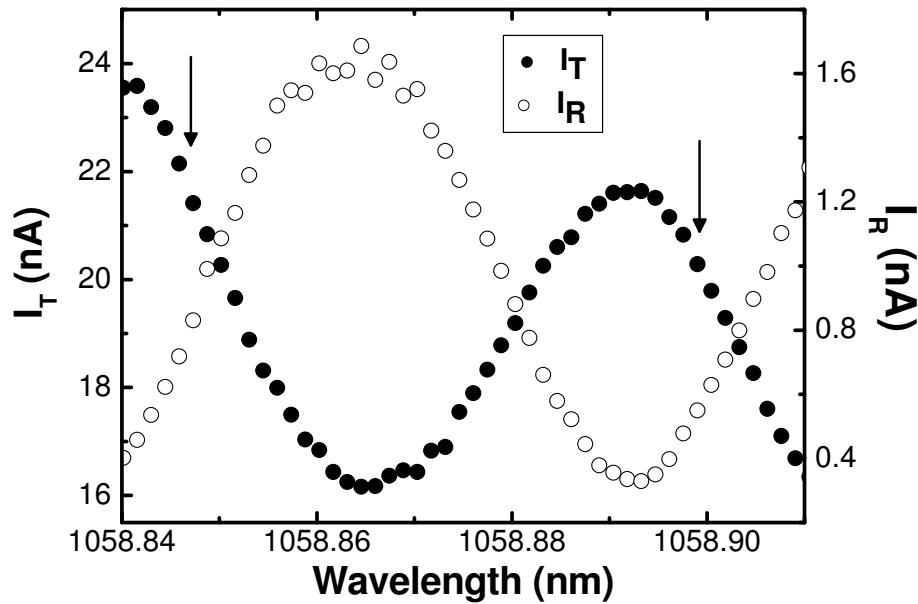


Figura 9.23: Curva característica de un *etalon* formado por el extremo de nuestra fibra óptica y la superficie de la muestra. Las interferencias son visibles en reflexión y transmisión.

monitorizamos el nivel de continua de ambos fotodiodos. Como ya sabemos, dicho experimento da lugar a franjas de interferencia en transmisión [fig. 9.3]. Como es de esperar lo mismo ocurre en reflectividad, como demuestra esta figura. Un cambio de fase de π entre ambas es justo lo que se espera de las relaciones de Fresnel [154].

Del período de dichas oscilaciones o de la ecuación del *etalon* (9.6), el origen de las mismas se pudo determinar y asociar a la cavidad formada por el extremo de la fibra monomodo y la superficie de la muestra, acopladas de manera efectiva en nuestro montaje confocal. Lo que entonces fue un inconveniente, vemos ahora que es altamente deseable, pues nos permite modificar la diferencia de camino óptico, y con ello la fase relativa, variando dicha distancia. Para ello, no obstante, es necesario disponer de un sistema de posicionamiento a baja temperatura capaz de desplazamientos inferiores a $\lambda/2\pi$. En nuestro caso, el paso de menor longitud que podemos realizar de manera reproducible³⁰ es de aproximadamente 25 nm. Esto debería dejar suficiente margen para llevar a cabo interferometría con una sólo caja cuántica ais-

³⁰Recordemos que el movimiento de los motores es inercial

lada³¹. A fin de demostrarlo, veamos que es lo que ocurre cuando llevamos a cabo el experimento para diferentes longitudes de onda que cubran una oscilación completa del patrón de intensidad de la figura 9.23. El resultado se muestra en la figura 9.24.

Dos son los resultados de esta figura relevantes para nuestra investigación. En primer lugar, vemos que el ajuste de fase entre el campo aplicado y la polarización microscópica tiene un efecto tan sólo marginal en la señal de transmisión. La forma de línea se vuelve ligeramente asimétrica dependiendo de la longitud de onda empleada, pero no afecta significativamente al contraste o la anchura total a media altura de la señal de transmisión. Esto es importante para la validación de la discusión de la sección anterior, donde estos dos parámetros han sido empleados para determinar múltiples propiedades de nuestras cajas cuánticas³². No se puede decir lo mismo de la señal de reflectividad. A lo largo de un período completo, la señal cambia bruscamente de forma e intensidad. El cambio de intensidad refleja en parte el contraste del 80% de la curva I_R en la figura 9.23. Sin embargo, vemos que para ciertas longitudes de onda (~ 1058.89 nm) la señal es mucho mayor que lo que la simple normalización podría explicar. Esto es precisamente a lo que nos hemos referido arriba, y es una consecuencia de la interferencia entre ambos campos electromagnéticos. Para modelizar correctamente el sistema es necesario considerar que las cajas cuánticas se hallan a una distancia d de la superficie. El problema por tanto se reduce al de dos cavidades planas de espesores D y $D+d$, respectivamente, que tienen un extremo común en la fibra óptica. Los campos de prueba y de polarización se reflejan y transmiten en cada una de estas superficies. Dado que pretendemos describir nuestro resultado basándonos en la polarización microscópica del medio, supondremos que el plano que contiene las cajas cuánticas tiene una conductividad superficial, σ , que puede ser descrita por el modelo de Lorentz [fig. 9.25].

El sistema así descrito puede resolverse mediante el formalismo de la matriz de transferencia que describe la propagación de ondas planas entre superficies plano-paralelas de conductividades arbitrarias [155]. De esta manera, la transmisión dife-

³¹De interés notable en aplicaciones que requieran de la determinación de la fase.

³²Además de que allí se tomó la precaución de basar el análisis en resonancias que puedan ser descritas adecuadamente por una lorentziana.

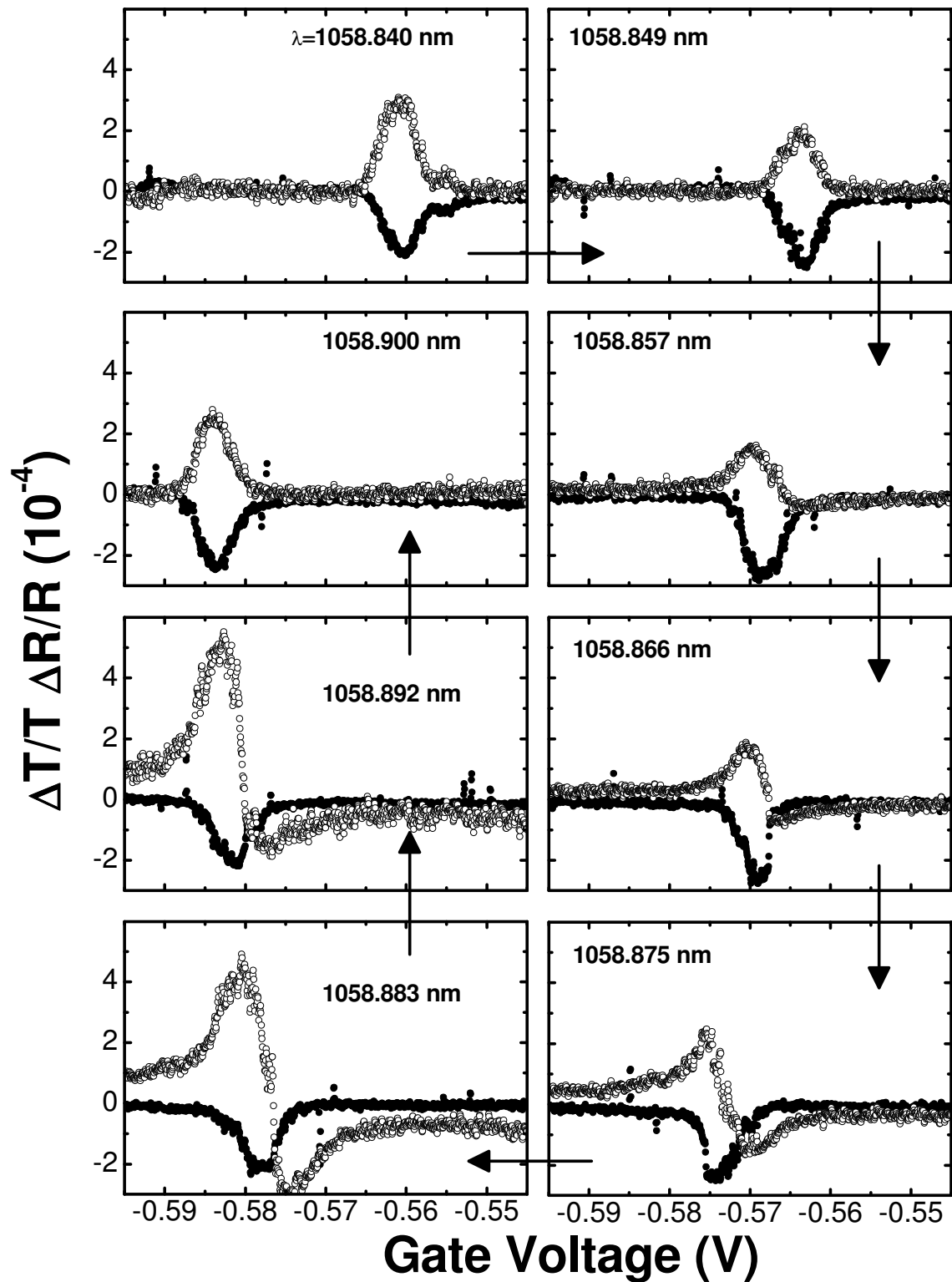


Figura 9.24: Espectros de absorción y reflectividad de una caja cuántica aislada para diferentes longitudes de onda. Al recorrer con el láser un período completo del interferómetro la situación inicial se restaura.

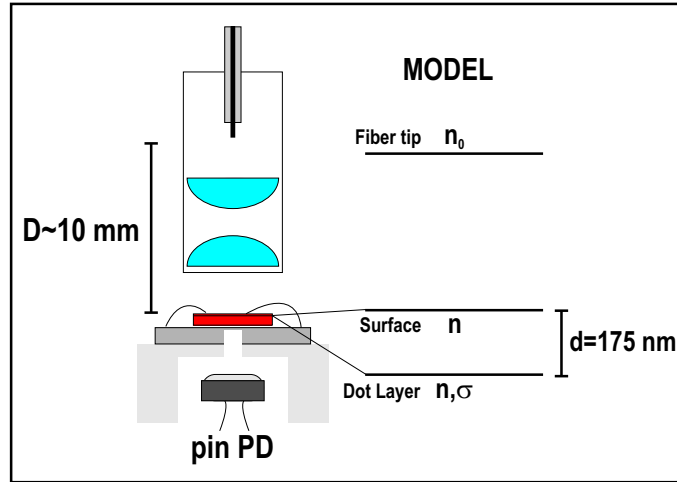


Figura 9.25: Modelo basado en dos cavidades acopladas para describir la propagación de ondas electromagnéticas planas en nuestro microscopio. La polarización microscópica de las cajas cuánticas puede describirse introduciendo una conductividad superficial, σ .

rencial y reflectancia diferencial se pueden calcular y comparar con nuestros resultados experimentales. Por este procedimiento, la transmisión diferencial viene dada en función de distancias y magnitudes ya conocidas de nuestra investigación anterior. El resultado de dicho cálculo adaptado a nuestra geometría particular es³³:

$$\frac{\Delta T}{T} \sim -\frac{\alpha_0}{r_1^2 r_2^2 + 1 + 2r_1 r_2 \cos 2\Phi} \frac{\gamma^2}{\delta^2 + \gamma^2} \left(1 - (1 + r_1^2) r_2 \left[\cos 2\varphi + \frac{\delta}{\gamma} \sin 2\varphi \right] + r_1 \left[\cos 2(\varphi + \Phi) + \frac{\delta}{\gamma} \sin 2(\varphi + \Phi) \right] + r_1 r_2^2 \left[\cos 2(\varphi - \Phi) + \frac{\delta}{\gamma} \sin 2(\varphi - \Phi) \right] \right) \quad (9.14)$$

y:

$$\frac{\Delta R}{R} \sim F \left(\alpha_0 \frac{\gamma^2}{\delta^2 + \gamma^2} + \frac{\Delta T}{T} \right) \quad (9.15)$$

donde hemos introducido las siguientes definiciones:

$$F = \frac{r_1^2 + r_2^2 - r_1^2 r_2^2 - 1}{r_1^2 + r_2^2 + 2r_1 r_2 \cos 2\Phi}; \quad r_1 = \frac{n_0 - 1}{n_0 + 1}; \quad r_2 = \frac{1 - n}{1 + n}; \quad \Phi = \frac{2\pi D}{\lambda}; \quad \varphi = \frac{2\pi d n}{\lambda} \quad (9.16)$$

³³Dr. Khaled Karrai, comunicación privada

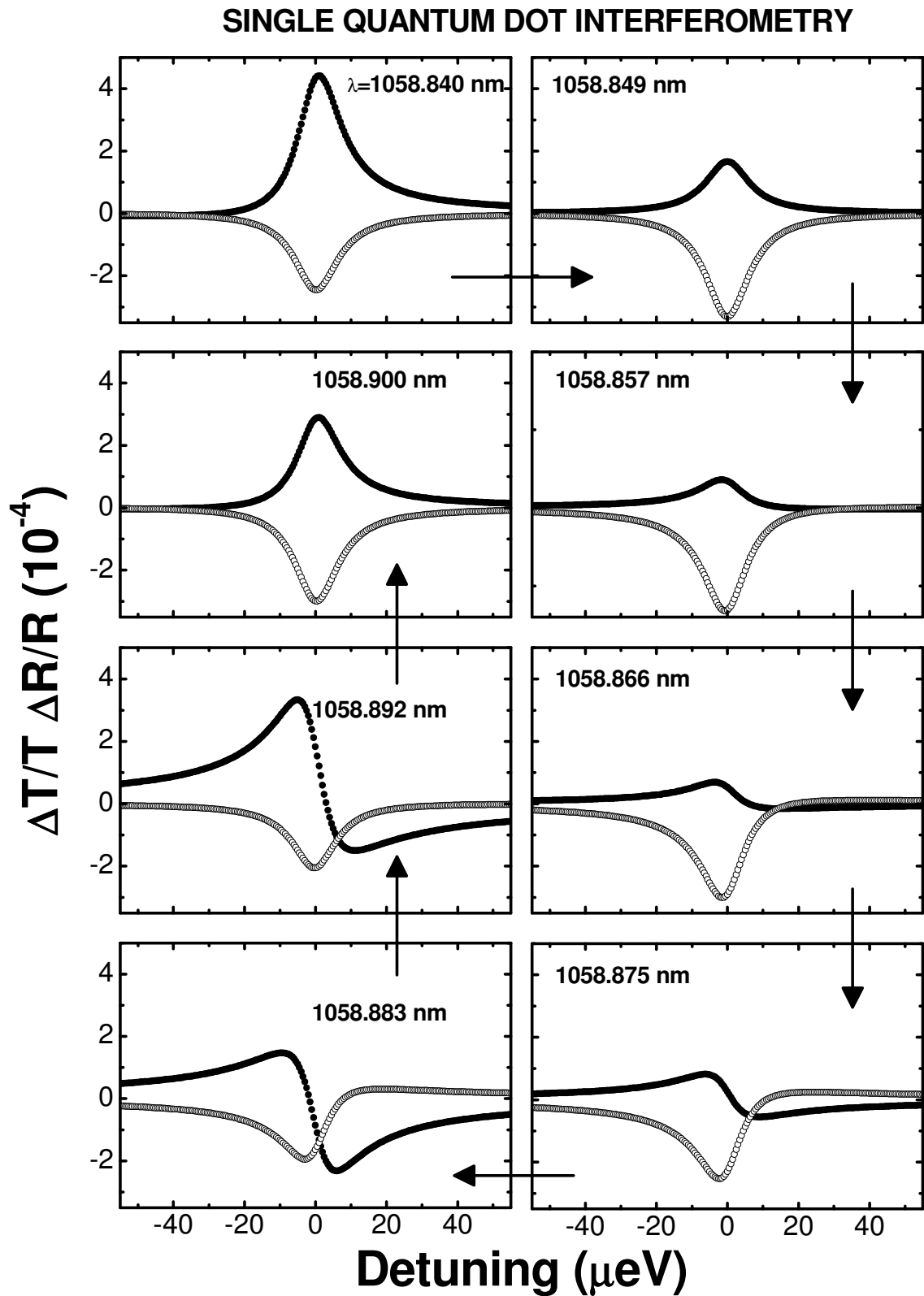


Figura 9.26: Espectros de absorción y reflectividad calculados a partir de las expresiones teóricas deducidas de la geometría de nuestro microscopio.

Aquí, al igual que anteriormente $n_0 = 3.4$ y $n = 2.6$ son los índices de refracción de la sílice y la muestra, respectivamente. Las distancias $d = 175$ nm y $D = 10.015$ mm son conocidas o han sido calculadas anteriormente. En estas condiciones, introduciendo los valores de $\alpha_0 = 2 \times 10^{-4}$ y $\gamma = 7.5$ μeV , las curvas teóricas de absorción y reflectividad pueden calcularse sin utilizar ningún parámetro ajustable. El resultado de dicho cálculo se muestra en la figura 9.26 y demuestra hasta que punto el modelo es capaz de describir hasta los mínimos detalles de los espectros obtenidos en nuestras cajas cuánticas aisladas. Este resultado no es diferente del que se encontraría en una estructura multicapa de las mismas características, pero aquí hemos de recordar que un sólo nivel electrónico contribuye a la señal detectada. En estas condiciones la interacción ocurre entre fotones individuales que prueban el mismo excitón. Aunque dichos fotones no pueden ser discriminados individualmente en nuestro experimento, hemos dado el primer paso hacia la efectiva realización de dicho control coherente. Para ello el grado de interacción y fase relativa puede ser modificado variando la longitud de onda o la longitud de la cavidad. En estas condiciones, la aplicación de un voltaje externo actuaría como control electrónico preciso de dicha interacción.

En definitiva, juntando estos resultados con los de la sección anterior, hemos investigado la función dieléctrica, $\epsilon(\omega)$, asociada a transiciones ópticas no degeneradas pertenecientes a cajas cuánticas aisladas de InAs. En el curso de dicha investigación, hemos demostrado que cada caja cuántica se comporta como un super-átomo, y que sus propiedades individuales de interacción con un campo electromagnético monocromático se pueden describir en el régimen de acoplamiento débil por un modelo basado en un sistema de dos niveles discretos. Cuando el régimen de interacción es elevado, fenómenos típicos de la Física Atómica han sido observados experimentalmente y se han explicado de manera empírica. En este caso, una observación más rigurosa de los resultados sugiere que la hipótesis del super-átomo no es suficiente para dar cuenta de la fenomenología observada. Por último, hemos podido demostrar que no sólo es posible llevar a cabo la caracterización fundamental de dicha interacción, sino que con un sólo láser, el acoplamiento radiación-materia se puede

9.2 Espectroscopía de dispersión de cajas cuánticas aisladas de InAs 267

controlar a escalas nanométricas, tanto en su parte real como imaginaria, o bien por la aplicación de un campo eléctrico externo, o bien mediante el ajuste de la fase relativa entre campo y la polarización en un montaje interferométrico basado en un sólo nivel electrónico.

Capítulo 10

Conclusiones

Las propiedades ópticas y electrónicas individuales de cajas cuánticas autoensambladas y aisladas de InAs han sido investigadas mediante diversas técnicas espectroscópicas de alta resolución espacial y espectral. La implementación de dichas técnicas experimentales, en algunos casos exclusivas de esta tesis, constituyen el primer resultado relevante de la investigación llevada a cabo. Con este estudio hemos demostrado que los procesos de relajación y recombinación están determinados por el régimen de confinamiento fuerte de los portadores en las nanoestructuras. Esto nos ha permitido describir nuestros resultados, cualitativa y cuantitativamente, mediante un modelo perturbativo basado en un confinamiento lateral de tipo armónico o parabólico.

En este marco, hemos demostrado que mediante la aplicación de un campo eléctrico externo podemos controlar a voluntad el número de electrones confinados en una nanoestructura dada. Esto nos ha permitido investigar y modelizar la interacción de Coulomb, directa y de intercambio, entre portadores de carga individuales confinados en nanoestructuras cuánticas de InAs. En este estudio se ha demostrado que, en presencia de un dopado residual no intencionado, las propiedades de captura, relajación, y recombinación excitónica dependen del entorno local de carga. Estos fenómenos son responsables de la observación de desviaciones sistemáticas, respecto al correspondiente a muestras puras, en las propiedades ópticas y eléctricas de estas nanoestructuras. Algunos de estos resultados confirman lo observado por

otros autores, otros sin embargo, pueden ser la primera prueba experimental de su existencia.

En segundo lugar, hemos determinado la estructura electrónica completa de cada caja cuántica individual. El número de estados excitados, su posición, y anchura se han investigado y comparado con las predicciones del modelo parabólico. En este estudio hemos caracterizado la anchura de línea de las transiciones excitadas y su dependencia con la energía de confinamiento. Esto ha permitido demostrar, en acuerdo con otros autores, la importancia de la interacción electrón-fonón y electrón-electrón entre estados discretos y estados continuos resonantes entre si en las nanoestructuras. Dicha interacción es la responsable de la alta eficiencia cuántica de estos sistemas y resuelve la paradoja del cuello de botella predicho primigeniamente.

La interacción radiación-materia en cajas cuánticas aisladas de InAs se ha investigado en los regímenes de acoplamiento fuerte y débil. En estos estudios, la anchura de línea homogénea y la fuerza de oscilador de transiciones ópticas no degeneradas, han podido ser determinadas con una precisión $< 2 \mu\text{eV}$ y una relación señal-ruido de $\sim 5 \times 10^{-6} \text{ Hz}^{-1/2}$. Los resultados microscópicos confirman los resultados ya conocidos por métodos de baja resolución espacial. Pero a esto hay que añadir dos nuevos resultados que no son accesibles por otros métodos. Así, se ha podido investigar la dinámica de relajación intra-banda cuando el estado fundamental se haya bloqueado por el principio de exclusión de Pauli. Esto provoca que la anchura de línea del estado excitado sea hasta un orden de magnitud inferior al de otras configuraciones electrónicas. En estas condiciones, los tiempos de relajación elevados de estas transiciones han permitido demostrar experimentalmente el Efecto Stark Óptico en cajas cuánticas autoensambladas y aisladas de InAs.

Por último, hemos visto que es posible establecer una interacción puramente dispersiva entre el campo electromagnético aplicado y la polarización microscópica de una sola caja cuántica. La coherencia de esta interacción ha permitido realizar interferometría con una sólo caja cuántica aislada. Aunque dicho resultado no difiere del que se obtendría en una estructura bidimensional multicapa de similares características, ésta es la primera vez que se demuestra que dicho efecto es posible

interactuando coherentemente con una s3la transici3n 3ptica aislada de esta magnitud. Adem3s, la existencia de tres grados de libertad independientes: longitud de onda, voltaje aplicado y longitud de la cavidad resonante, permitir3a ajustar de manera arbitraria la fase y el grado de interacci3n entre la radiaci3n y la materia. Esto abre la puerta a nuevas investigaciones encaminadas al control coherente en tiempo real de excitones confinados en estas cajas cu3nticas, que son de la mayor importancia para el desarrollo presente y futuro de nuevos dispositivos basados en las mismas.

Apéndice A

Difracción de la luz por una lente delgada. Disco de Airy

Antes de obtener con más detalle cuál es la resolución típica de un microscopio confocal es necesario estudiar brevemente el caso más general de un microscopio convencional. Puesto que la resolución en cualquier caso está limitada por la difracción de campo lejano de la luz en las diferentes aperturas del sistema comenzaremos introduciendo brevemente dicho fenómeno.

Si la función de onda $\psi(x_1, y_1)$ describe la distribución del campo electromagnético en un plano $\{x_1, y_1\}$, el patrón de difracción de Fraunhofer de dicha onda en un plano paralelo $\{x_2, y_2\}$ cuando se ha propagado con vector de ondas $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ una distancia z mucho mayor que el máximo de $\{x_1, y_1\}$ (campo lejano) viene dado por [154]:

$$\psi(x_2, y_2) = \frac{e^{-jkz}}{j\lambda z} \exp\left\{-j\frac{k}{2z}(x_2^2 + y_2^2)\right\} \times \iint_{-\infty}^{\infty} \psi(x_1, y_1) \exp\left\{j\frac{k}{z}(x_1x_2 + y_1y_2)\right\} dx_1 dy_1 \quad (\text{A.1})$$

que se conoce como patrón de difracción de Fraunhofer o de campo lejano y es consecuencia del principio de Huygens en la aproximación escalar. La ecuación A.1

puede reescribirse de la siguiente forma:

$$\psi(x_2, y_2) = \frac{e^{-jkz}}{j\lambda z} \exp\left\{-j\frac{k}{2z}(x_2^2 + y_2^2)\right\} \times \iint_{-\infty}^{\infty} \psi(x_1, y_1) \exp\left\{2\pi j\left(\frac{x_2}{\lambda z}x_1 + \frac{y_2}{\lambda z}y_1\right)\right\} dx_1 dy_1 \quad (\text{A.2})$$

que comparando con la transformada de Fourier bidimensional definida por:

$$U(m, n) = FT\{u(x, y)\} = \iint_{-\infty}^{\infty} u(x, y) \exp\{2\pi j(mx + ny)\} dx dy \quad (\text{A.3})$$

nos permite escribir:

$$\Psi\left(\frac{x_2}{\lambda z}, \frac{y_2}{\lambda z}\right) = FT\{\psi(x_1, y_1)\} = j\lambda z e^{jkz} \exp\left\{j\frac{k}{2z}(x_2^2 + y_2^2)\right\} \psi(x_2, y_2) \quad (\text{A.4})$$

y que despreciando factores de escala y de fase arbitrarios significa que el patrón de difracción en un plano lejano arbitrario viene dado por la transformada de Fourier bidimensional del campo en un plano anterior:

$$\psi(x_2, y_2) = \Psi\left(\frac{x_2}{\lambda z}, \frac{y_2}{\lambda z}\right) \quad (\text{A.5})$$

Consideremos ahora que la onda que atraviesa el plano $\{x_1, y_1\}$ no es libre de propagarse de cualquier manera sino que ha de pasar a través de una apertura sita en el mismo. Las propiedades de transmisión de tal apertura quedan descritas por su función de pupila, $p(x, y)$, y el campo inmediatamente tras dicho plano viene dado por la multiplicación del campo óptico incidente, $\psi(x_1, y_1)$ y dicha función de pupila. En particular, si la apertura está uniformemente iluminada (*i.e.* $\psi(x_1, y_1)$ es una onda plana), el patrón de difracción del campo en un plano arbitrario alejado vendrá dado simplemente por la transformada de Fourier bidimensional de la función de pupila de la apertura, como hemos visto:

$$\psi(x_2, y_2) = \iint_{-\infty}^{\infty} p(x_1, y_1) \exp\left\{2\pi j\left(\frac{x_2}{\lambda z}x_1 + \frac{y_2}{\lambda z}y_1\right)\right\} dx_1 dy_1 = FT\{p(x_1, y_1)\} \quad (\text{A.6})$$

Si la apertura es un círculo de radio a iluminado uniformemente, entonces:

$$p(x, y) = \text{circ}\left(\frac{r}{a}\right) = \begin{cases} 1 & \text{si } r = \sqrt{x^2 + y^2} \leq a \\ 0 & \text{si } r = \sqrt{x^2 + y^2} > a \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

y el patrón de difracción a una distancia z de la apertura resulta:

$$\psi(x_2, y_2) = \frac{1}{\lambda z} \frac{2\pi a^2 J_1\left(\frac{2\pi a \sqrt{x_2^2 + y_2^2}}{\lambda z}\right)}{\frac{2\pi a \sqrt{x_2^2 + y_2^2}}{\lambda z}} \quad (\text{A.8})$$

donde J_1 es la función de Bessel de primera especie y orden uno.

Para la irradiancia que sería observada en una pantalla situada en dicho plano basta con calcular:

$$I(x_2, y_2) = |\psi(x_2, y_2)|^2 = \left(\frac{\pi a^2}{\lambda z}\right)^2 \left(\frac{2J_1\left(\frac{2\pi a \sqrt{x_2^2 + y_2^2}}{\lambda z}\right)}{\frac{2\pi a \sqrt{x_2^2 + y_2^2}}{\lambda z}}\right)^2 \quad (\text{A.9})$$

distribución que se conoce como *disco de Airy* y se halla representada en la figura A.1.

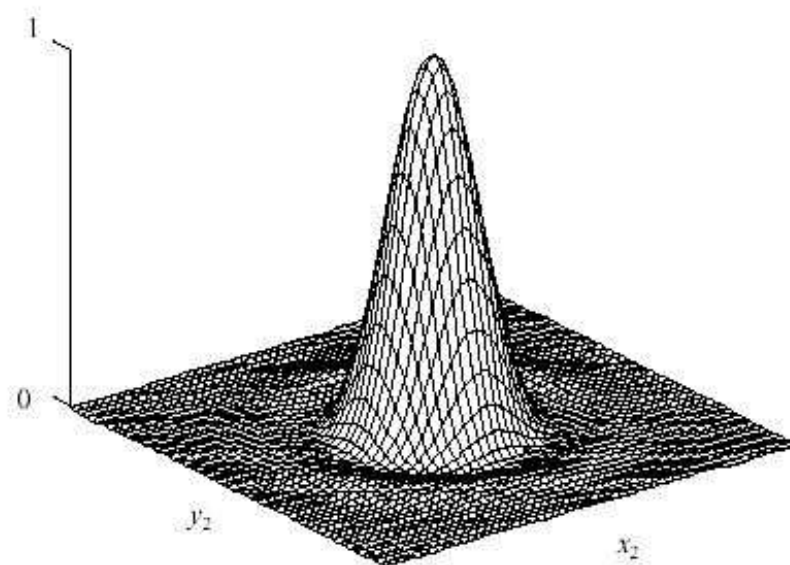


Figura A.1: Distribución de la irradiancia difractada por una apertura circular según las ecs. (A.9) y (A.12)

El resultado recién alcanzado es relevante pues nos permite inferir cuál será la distribución del campo óptico en el plano focal de una lente delgada de focal f . En

tal caso, se cumple:

$$\psi(x_2, y_2) = \frac{e^{-jkf}}{j\lambda f} \exp\left\{-j\frac{k}{2f}(x_2^2 + y_2^2)\right\} \times \iint_{-\infty}^{\infty} \psi(x_1, y_1) p_L(x_1, y_1) \exp\left\{j\frac{k}{f}(x_1x_2 + y_1y_2)\right\} dx_1 dy_1 \quad (\text{A.10})$$

que no es más que la ec. (A.1) sustituyendo z por f . Por tanto, si el frente de onda que incide sobre la lente es plano tenemos:

$$\psi(x_2, y_2) = \iint_{-\infty}^{\infty} p_L(x_1, y_1) \exp\left\{j\frac{k}{f}(x_1x_2 + y_1y_2)\right\} dx_1 dy_1 = h_L(x_2, y_2) \quad (\text{A.11})$$

que como sabemos es la transformada de Fourier de la función de pupila de la lente $p_L(x_1, y_1)$. La función $h_L(x_2, y_2)$ es conocida como *PSF*¹ de la lente en cuestión, y para el caso en que ésta sea circular la irradiancia en el punto focal se puede escribir como:

$$I(x_2, y_2) = |h_L(x_2, y_2)|^2 = \left(\frac{\pi a^2}{\lambda f}\right)^2 \left(\frac{2J_1\left(\frac{2\pi a\sqrt{x_2^2 + y_2^2}}{\lambda f}\right)}{\frac{2\pi a\sqrt{x_2^2 + y_2^2}}{\lambda f}}\right)^2 \quad (\text{A.12})$$

obtenida de (A.9) con z igual a f [fig. A.1]. La forma de *campana* de dicha función nos permite introducir el concepto de anchura de la distribución de irradiancia en el punto focal como:

$$w_{Airy} = 1.22\frac{f\lambda}{a} = 1.22\frac{\lambda}{NA} \quad (\text{A.13})$$

que corresponde al primer cero de la función de Bessel J_1 en (A.12), o:

$$w_{Airy(FWHM)} = 0.6\frac{\lambda}{NA} \quad (\text{A.14})$$

si escogemos la anchura total a media altura del disco de Airy.

Como vemos, la ecuación (A.13) ya fue introducida en (2.5) con motivo de la discusión del criterio de Rayleigh. Dicho criterio establece una definición de la resolución lateral máxima que se puede alcanzar mediante una lente u objetivo y es consecuencia directa de la difracción de la luz en el mismo. Un procedimiento parecido nos permite hallar la distancia axial entre los dos primeros mínimos del patrón

¹De las siglas en inglés de *Point Spread Function*.

de Airy tridimensional:

$$z_{Airy} = \frac{4\lambda\eta}{NA^2} \quad (\text{A.15})$$

donde η el índice de refracción del medio de inmersión. Y permite calcular la *profundidad de foco*, $d = z_{Airy}/4$, que es la mínima distancia que hemos de desplazar el objetivo para apreciar un cambio en la imagen (criterio de Rayleigh axial). Finalmente, es interesante notar que el cociente entre la resolución axial y lateral:

$$\gamma_{Airy} = \frac{z_{Airy}}{w_{Airy}} = \frac{3.28\eta}{NA} \quad (\text{A.16})$$

es mayor que la unidad y disminuye al aumentar la apertura numérica del objetivo.

Apéndice B

Descripción del sistema de detección y colección

En este apéndice, se investiga el origen de las diferentes señales ópticas que son detectadas en las experiencias de μPL y μPLE . En estos experimentos, la única señal con información útil es la intensidad asociada a la recombinación radiativa en las nanoestructuras. Sin embargo, como vamos a ver, el sistema de adquisición contribuye con otro tipo de señales, cuya intensidad es comparable a la de la luminiscencia. Afortunadamente, un análisis detallado de unas y otras permiten discriminar la señal útil de aquello que simplemente es una fuente de ruido sistemática. Por otro lado, dado que las señales que pretendemos medir son especialmente débiles, es imprescindible esta descripción pormenorizada a fin de evitar malinterpretaciones.

A tal fin, es necesario conocer con más detalle el funcionamiento del detector utilizado. Para estos experimentos dicho detector es una cámara CCD cuya región activa se haya iluminada posteriormente a través de una capa de Si:p de espesor reducido [pág. 48]. Sus características en términos de relación señal-ruido y eficiencia cuántica fueron discutidas en el capítulo 3, y es por ellas por lo que se ha elegido dicho detector. La imagen de la figura B.1 corresponde a la zona activa de la cámara de $H \times V = 1024 \times 128$ píxeles, cuando se haya iluminada por la luz procedente de una fibra monomodo que ha sido dispersada por nuestro espectrómetro doble [fig. 6.8].

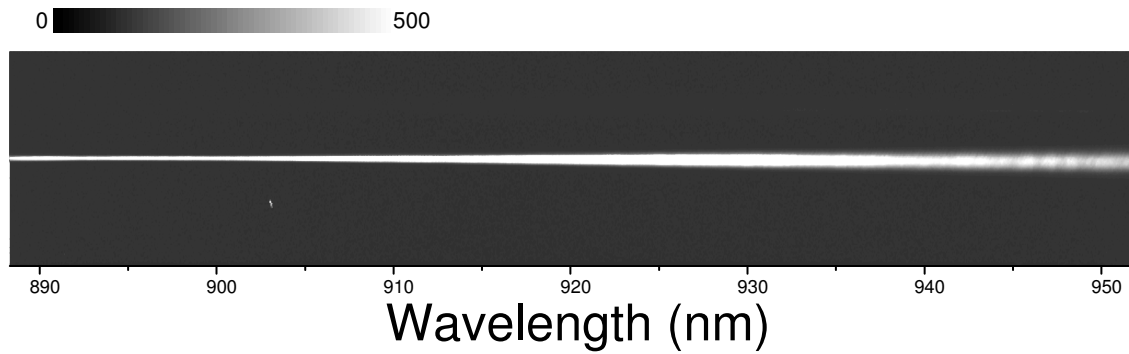


Figura B.1: Imagen de la zona activa de la CCD correspondiente a longitudes de onda alejadas de la de excitación.

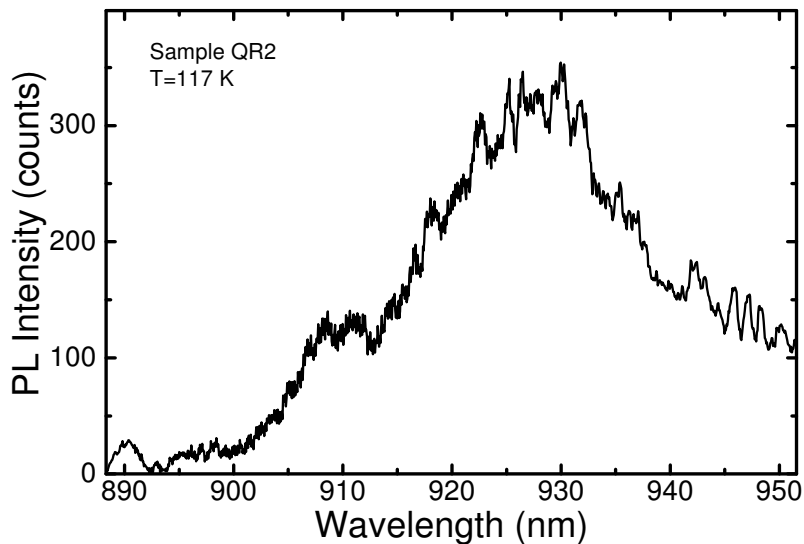


Figura B.2: Espectro de fotoluminiscencia obtenido promediando la intensidad en la zona central de la imagen de la figura B.1.

Tal como se observa, sólo unos pocos píxeles, correspondientes a la zona central de la CCD, se hayan iluminados. Esto es debido a que nuestra fuente de luz es el modo fundamental de una fibra monomodo cuyo radio es $r_0 = 2.2 \mu\text{m}$ [sec. 8.1.1]. La imagen formada en la CCD es de unas $150 \mu\text{m}$ (FWHM) en la dirección vertical, correspondientes a 6 píxeles del área activa. Por tanto, todas las medidas se han realizado promediando la intensidad de los 10 píxeles centrales del dispositivo. Esto nos arroja 1024 valores de intensidad, correspondientes al rango de longitudes de

onda cubierto por la imagen (~ 60 nm). El espectro de PL obtenido de esta manera es el que se representa en la figura B.2, y aunque carece de importancia para esta discusión, corresponde a la muestra QR2 a unos 120 K de temperatura.

Ahora, comparemos dicha imagen con las de las figuras B.3(a) y (b). Ambas han sido realizadas en un rango de longitudes de onda cercano al láser de excitación sintonizado a 830 nm. A fin de mitigar los efectos que precisamente vamos a describir, es usual colocar a la entrada del espectrómetro un filtro paso alto que impida que el láser de excitación penetre en el mismo. En nuestro caso, para la experiencia de μ PL, utilizamos dos filtros paso alto en serie a 850 nm, y dos homólogos a 950 nm para la experiencia de μ PLE. En las imágenes se observa lo que ocurre en dichas regiones de longitud de onda cercanas al láser. Fijándonos en la figura B.3(a), vemos que desde el extremo derecho parte una señal del tipo que acabamos de discutir, esto es, centrada en la imagen y ocupando una extensión vertical de unos 10 píxeles. Esta señal no se trata de luminiscencia ni está asociada a la muestra de ningún modo. Pero antes, observemos que es lo que ocurre en el otro extremo. Para una longitud de onda de excitación de 830 nm y dos filtros paso alto de 850 nm colocados a la entrada del espectrómetro, la señal del láser consigue penetrar y se extiende de manera errática en toda el área cercana al borde del detector. Ese efecto es más aparente en la imagen B.3(b), donde uno de los filtros se ha extraído aumentando la señal de dispersión más de un orden de magnitud en esa zona. Esto se demuestra en el panel inferior de la figura. La escala es logarítmica y los espectros corresponden al promedio de intensidad de los 10 píxeles centrales, exactamente igual que en el experimento real. La señal justo en el borde izquierdo es hasta 15 veces superior que utilizando un sólo filtro. Colocando un filtro más, esta señal es fuertemente atenuada pero aún resulta apreciable. Un poco más a la derecha, las imágenes muestran que la dispersión ya no ocupa toda la extensión vertical del detector y en la zona central desaparecen súbitamente a 865 nm. Todos los efectos observados en esta zona del detector, no corresponden a características espectrales reales del láser, sino que son debidas a reflexiones erráticas en las inmediaciones del área activa de la CCD. En esa zona, existen superficies metálicas abruptas que provocan el patrón

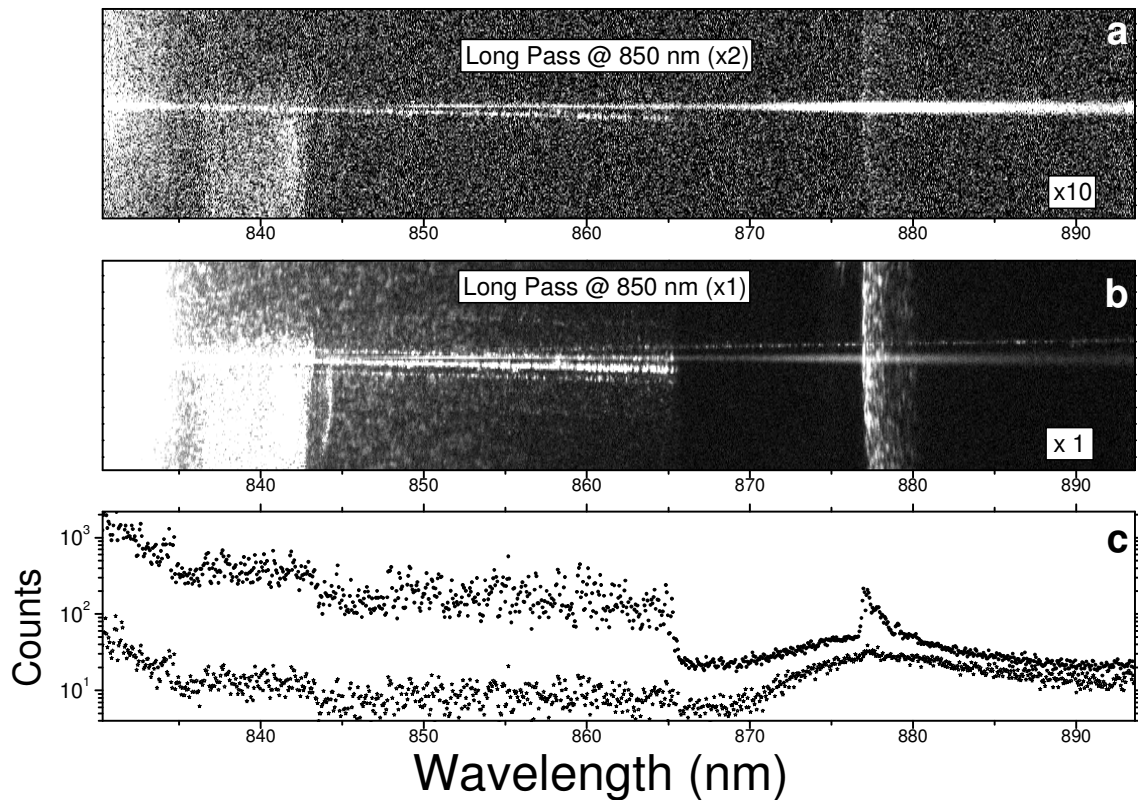


Figura B.3: Imagen de la zona activa de la CCD correspondiente a longitudes de onda inmediatamente superiores a la de excitación. Con la utilización de filtros paso alto la intensidad en esta región queda fuertemente suprimida. Los factores de magnificación se muestran en el extremo inferior derecho de cada imagen. El panel (c) corresponde a los espectros obtenidos promediando 10 píxeles centrales en cada columna de las imágenes superiores.

de intensidad errático que observamos. De otra manera, la señal no debería alejarse del centro del detector, pues tal y como sabemos, ahí es donde se forma la imagen de la fibra a través del espectrómetro. Finalmente, podemos apreciar cómo ambos espectros en la figura B.3(c) convergen a un valor similar para longitudes de onda elevadas. Esta señal proviene de características espectrales, pero no de la muestra que deseamos investigar. Para realizar esta caracterización, la fibra que se conecta a la entrada del microscopio fue conectada directamente a la fibra que se dirige hacia los dispositivos de detección. En estas condiciones el láser pasa directamente del acoplador de fibra hacia el detector, sin interactuar con la muestra, pero sí con

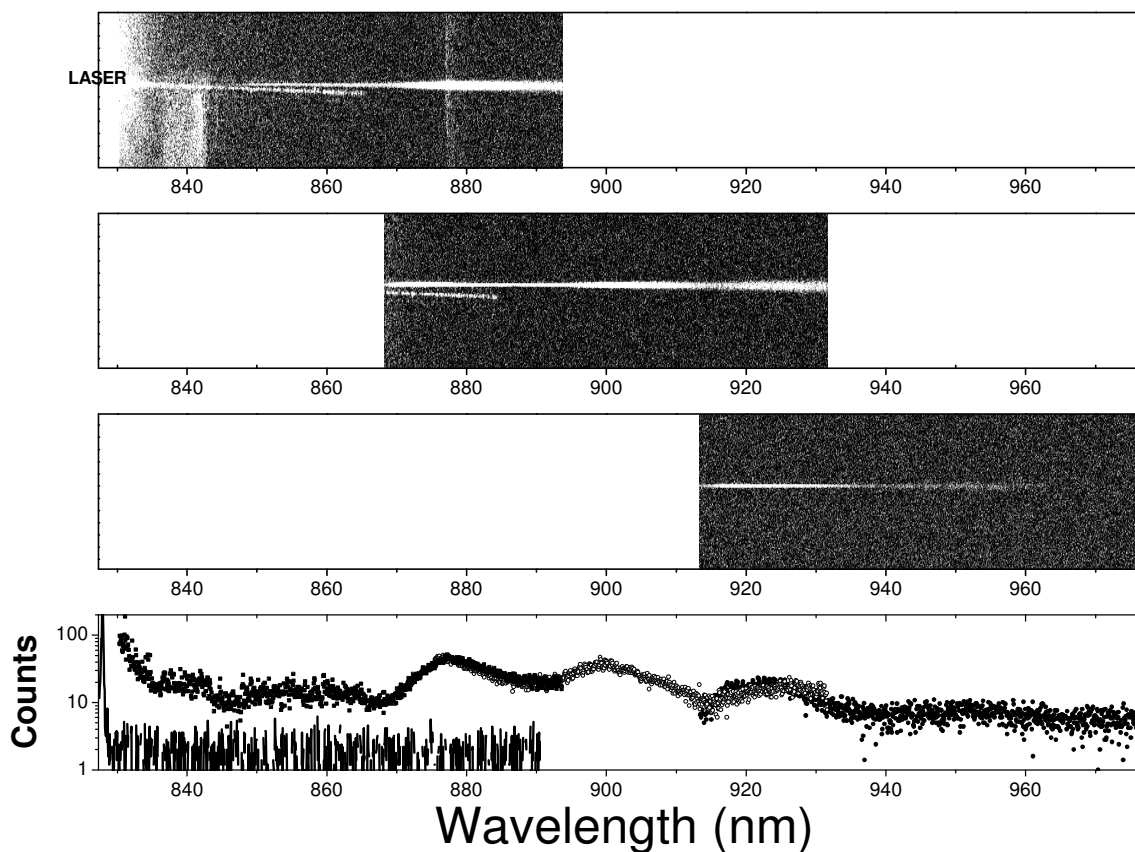


Figura B.4: Varias imágenes tomadas para caracterizar la respuesta espectral del sistema de detección. En este caso, la luz del láser de excitación viaja por las diversas fibras del montaje experimental provocando la señal que se observa.

el resto del dispositivo experimental [fig. 6.8]. Esto incluye, las ópticas y filtros de manipulación y atenuación del haz, y todas las fibras y conectores que están presentes en el experimento real. De esta manera caracterizamos la respuesta espectral de nuestro montaje óptico.

En la figura B.4 se observa la señal obtenida de este modo en un intervalo de longitudes de onda que cubren la región donde la PL aparecería en la muestra. Pese a lo que se podría pensar, la luz procedente del láser no cae a cero rápidamente. Reduciendo la potencia del láser en un factor 10^5 el espectro del láser es el que se observa en línea continua gruesa en el extremo izquierdo del panel inferior de la figura B.4. La intensidad sólo tiene un valor apreciable en el borde izquierdo en este caso.

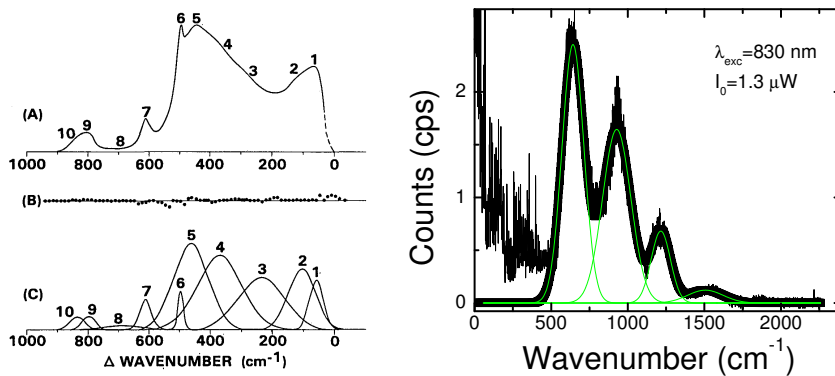


Figura B.5: A la izquierda espectro Raman obtenido en fibras ópticas de sílice reproducido de Walrafen *et al* [156]. A la derecha espectro obtenido promediando la intensidad en el centro de nuestra cámara CCD para una intensidad del láser de Ti-Zafiro similar a la del experimento real. La muestra no contribuye a esta señal (ver texto).

Sin embargo, cuando la potencia se aumenta a valores del orden de los utilizados en el experimento real, el detector nos ofrece un resultado bien distinto. Dejando aparte la zona contigua al laser, cuya intensidad procede de las reflexiones espúreas ya comentadas, en las otras dos imágenes existe una modulación de la intensidad que parece ser periódica en longitud de onda (~ 23 nm) y se extiende unos 80 nm hacia bajas energías. Para entender de donde proviene dicha señal hay que pensar en procesos capaces de producir tal efecto en las condiciones del experimento. Éstos podrían ser dispersión de Brillouin y dispersión Raman en las fibras monomodo de SiO₂ utilizadas. Estos dos procesos existen en sus versiones espontánea y estimulada en este sistema [140, 141]. El primero, sin embargo, tiene un ancho de banda reducido que no se corresponde con el efecto observado. En la figura B.5 se han representado el espectro Raman de una fibra monomodo obtenido de la referencia [156]. A la derecha se muestra el espectro obtenido en nuestro sistema, según hemos explicado. Vemos que el rango y el tipo de señal se corresponden de manera notable, y asumiremos por tanto que este es el efecto observado. El hecho que esta señal no sea observable en la región más cercana al láser se debe simplemente a la presencia de dos filtros paso-alto de 850 nm.

Con esto creemos demostrado el origen de las fuentes de ruido sistemático que

aparecen en nuestros espectros de micro-fotoluminiscencia. Nos quedaría explicar cómo se pueden identificar dichas señales en los mismos. Para ello, en la figura B.6 se han representado exactamente los mismos espectros que en la figura 8.4(c) pero sin eliminar las contribuciones no deseadas. En la figura B.6 vemos cómo en todos, menos en el espectro obtenido a $V_g = 1.2$ V, la señal en la zona de baja energía es invariable. Dos son las señales que contribuyen a la intensidad en esa región para voltajes inversos elevados. Por un lado, la señal espúrea de la fibra, que obviamente no depende del voltaje aplicado, y, por otro lado, la recombinación radiativa electrón-aceptor, que tampoco se ve modificada por la acción del campo eléctrico [fig. 7.13]. Cuando el voltaje supera ~ 1 V, la WL contribuye al espectro en esa zona, y un pequeño hombro es visible en el espectro de fotoluminiscencia en este caso. Está claro, que a la vista del resultado, podemos eliminar la señal espúrea sin más que restar a todos los espectros en ese rango de voltaje un espectro obtenido en las mismas condiciones pero con un voltaje inverso elevado. Esto es exactamente lo que se ha hecho para obtener los espectros de la figura 8.4¹.

Si nuestro sistema de detección produce tal señal espúrea del orden de nuestra micro-fotoluminiscencia², está claro que al variar la energía de excitación vamos a ver un comportamiento característico. Dicho comportamiento es el que se observa en las figuras B.7(a) y B.7(b). En las mismas hemos repetido el experimento de μ PLE descrito en el capítulo 8, pero sin conectar la fibra del microscopio, tal y como venimos diciendo a lo largo de este apéndice. Sólo la respuesta del dispositivo experimental contribuye a la señal en este caso. En la figura B.7(a) se observan exactamente las mismas bandas diagonales que aparecen en la figura 8.18 del capítulo 8. La potencia

¹Inevitablemente se elimina también la contribución e^-A^0 , pero ésta ya ha sido analizada en el capítulo 7 y no aporta nada nuevo a la discusión de la sección 8.1.3. Por el contrario, una contribución similar en la cola de baja energía es esencial en la discusión detallada de las secciones siguientes. Por ello, y como se menciona en el texto, los espectros se presentan tal cual son obtenidos en ese caso [sec. 8.1.4]. Las señales espúreas son negligibles en esta zona de baja energía cuando excitamos con $\lambda = 830$ nm.

²O inversamente, y desafortunadamente, si nuestra señal de μ PL es tan pequeña como para que el débil fondo pueda ser observado.

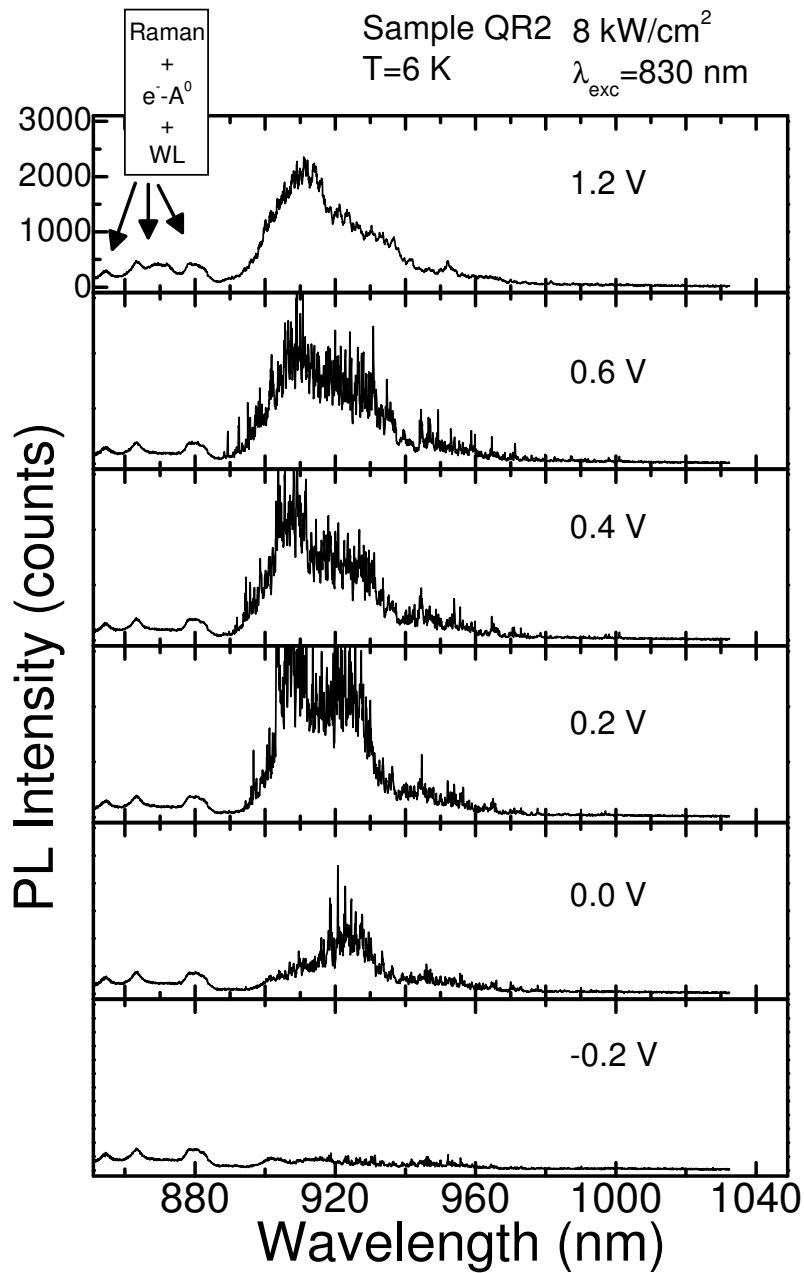


Figura B.6: Los espectros representados en la figura 8.4 se obtienen de los originales representados aquí substrayendo la contribución de la dispersión Raman y la recombinación electrón-aceptor que no dependen del voltaje (ver texto).

acoplada a la fibra por el láser de excitación se muestra en el panel superior de ambas figuras³. En la figura B.7(b) se representan los mismos datos, calculando el

³Comparando la variación de la intensidad del láser en ambas, vemos que tanto el abrupto corte

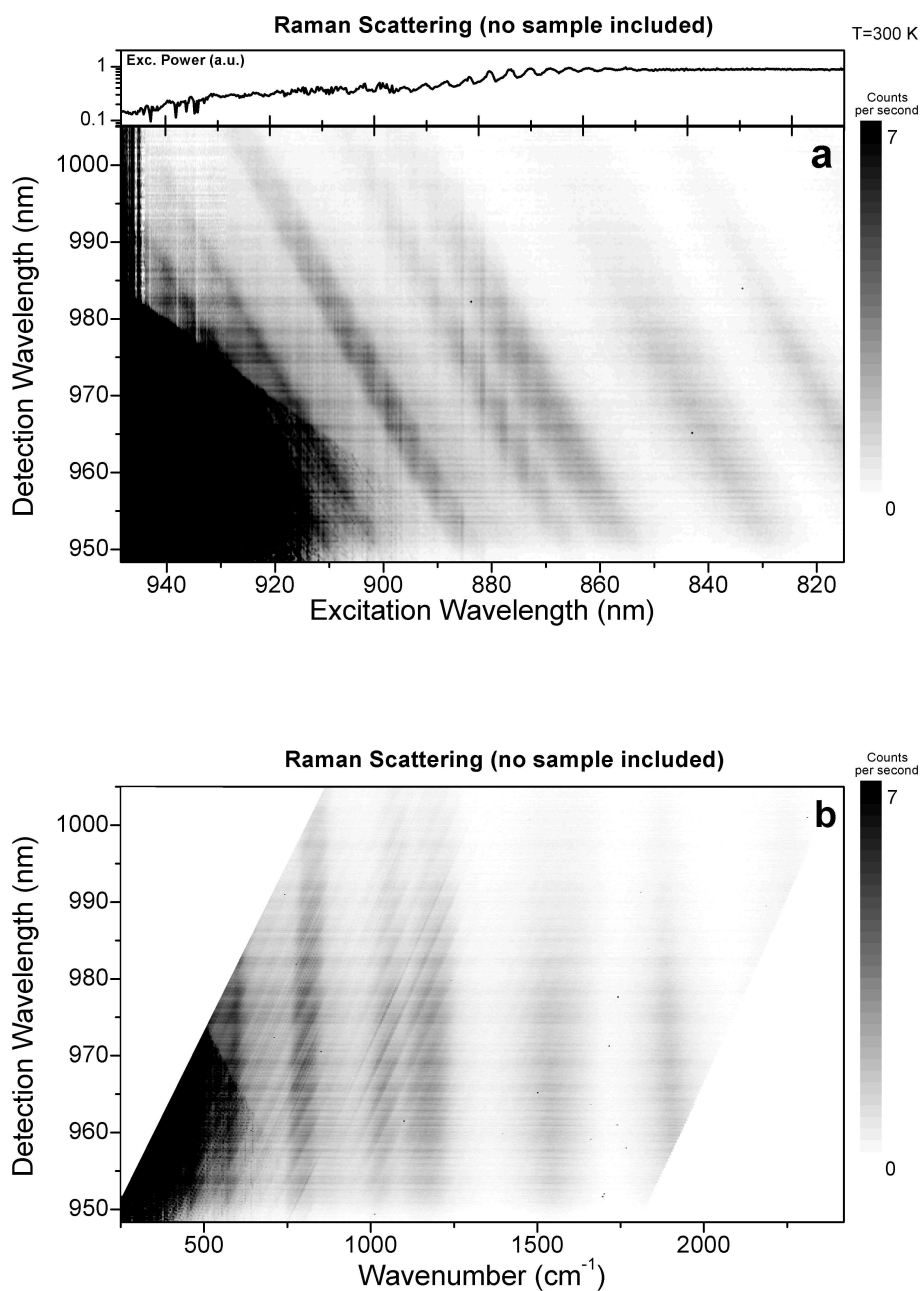


Figura B.7: a) Imagen obtenida por composición de los espectros obtenidos a diferentes longitudes de emisión en un rango de longitudes de onda de detección fijo ($\lambda_{exc} > \lambda_{det}$). b) La diferencia entre la energía de detección y de excitación puede convertirse a número de ondas dando lugar a una imagen que nos recuerda a procesos Raman, tal y como se discute en el texto.

desplazamiento Raman de cada espectro respecto a la longitud de onda de detección. Dado que las líneas Raman se desplazan con el láser de excitación, las bandas diagonales se convierten de manera natural en bandas verticales correspondientes a desplazamientos Raman constantes. Esto permite eliminar su contribución en los espectros de μ PLE del capítulo 8. Los detalles de este procedimiento se explican en dicho capítulo.

Por último, sólo nos queda analizar la contribución de las reflexiones erráticas del láser en el experimento de μ PLE. Cuando el láser se acerca al borde del área activa de la CCD, la señal aumenta rápidamente y da lugar a la zona oscura del extremo inferior izquierdo de la imagen B.7(a). Podemos ampliar dicha zona y aumentar la escala a fin de ver en detalle la estructura de la señal en este caso. El resultado está representado en la figura B.8(a) y muestra exactamente las mismas líneas delgadas y diagonales de la imagen correspondiente al experimento real (fig. 8.18) que se muestra aquí en el panel (b). Asimismo, se reproduce la línea vertical intensa a aproximadamente 945 nm. Dicha línea corresponde a un ensanchamiento súbito del láser de excitación en su propagación por el sistema, pues es paralelo al eje vertical y sólo ocurre a esa longitud de onda particular. Su origen puede ser un proceso no lineal sin identificar en el montaje experimental. Dada la imposibilidad de corregir estos efectos, en el análisis de resultados del capítulo 8 no se consideran las regiones del espectro cuasi-resonantes con el láser. Esto impide observar estados excitados de baja energía como se reitera en la discusión.

que se ve en aquella, como las oscilaciones que se ven ahora se deben probablemente al estado de optimización de la cavidad del Ti-Zafiro.

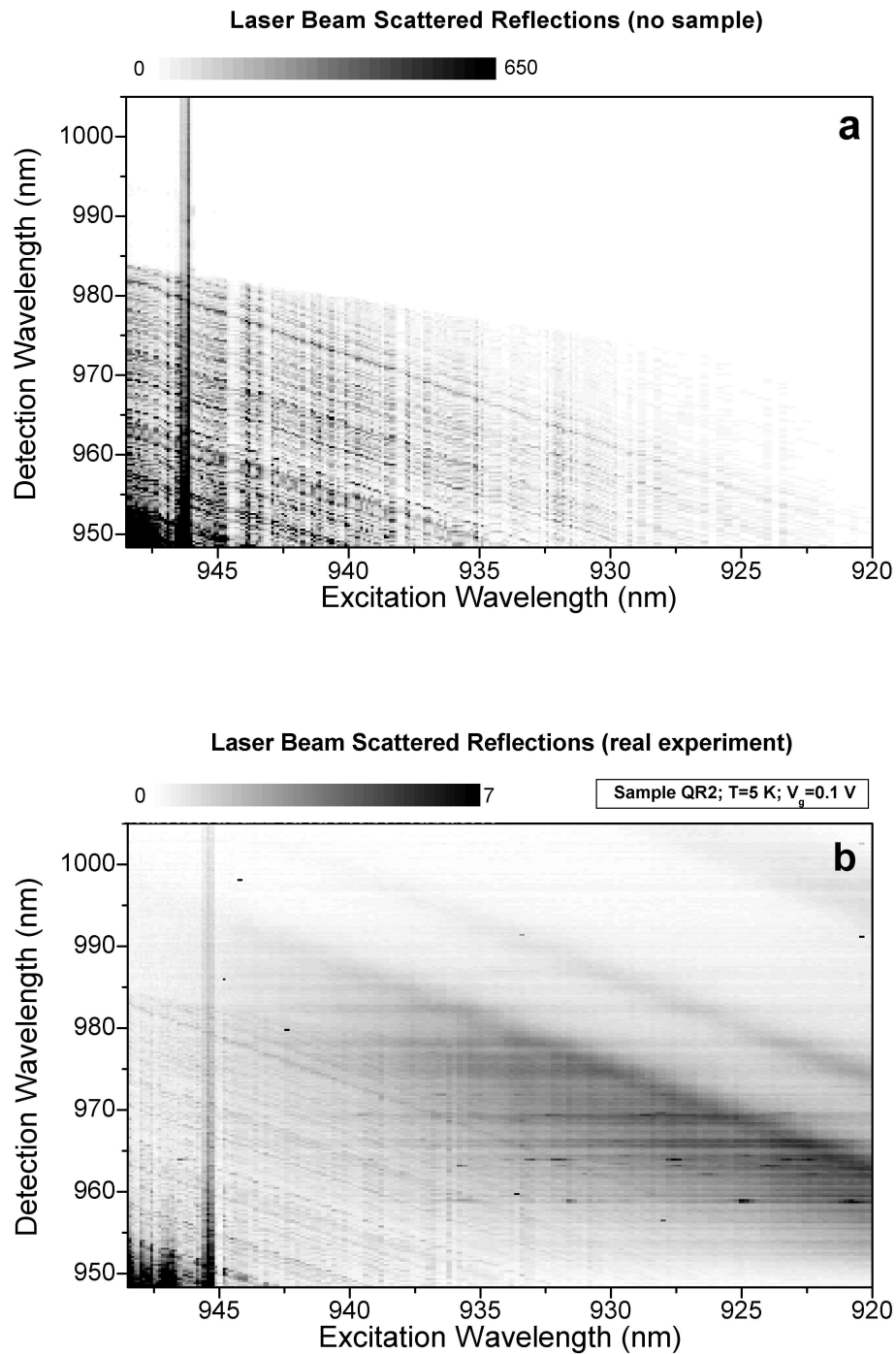


Figura B.8: Zona resonante de los espectros de caracterización del sistema experimental (a) y de los espectros de μ PLE (b). Cuando la longitud de onda de excitación es muy próxima al rango de detección, las reflexiones del láser en las inmediaciones del área activa provocan un patrón de intensidades característico.

Apéndice C

Amplitud de modulación y espectro de absorción

En el capítulo 9 se ha dedicado a la espectroscopía de absorción de cajas cuánticas aisladas de InAs, utilizando una técnica de modulación basada en el efecto Stark. Las técnicas de modulación son una herramienta utilizada frecuentemente en la espectroscopía óptica de sólidos [157]. En ese sentido la técnica descrita aquí no difiere de muchas utilizadas antes como son la electroreflectancia, fotorefectancia, transmisión diferencial, resonancia magnética, etc... La única diferencia estriba en que está basada en el efecto Stark de Confinamiento Cuántico, siendo el mismo exclusivo de las nanoestructuras cuánticas, incluyendo pozos cuánticos, como vimos en el capítulo 4. En esta técnica, cualquier señal óptica que no responda al cambio en el parámetro de modulación es automáticamente eliminada de la señal colectada. Esa es la ventaja del método de modulación frente a otros métodos basados en señales continuas. En nuestro caso, el parámetro modulado, i.e. el voltaje aplicado, sólo es capaz de perturbar la energía de las transiciones discretas de nuestras cajas cuánticas aisladas, y además lo hace unos pocos μeV . Esto, en conjunción con el ancho de banda reducido del láser, hace que la resolución espectral del método sea enorme. Conviene por tanto analizar que tipos de señales vamos a detectar con el experimento de modulación empleado. A tal fin, asumiremos que nuestra transición electrónica queda adecuadamente descrita por un sistema de dos niveles discretos, siendo su

respuesta en frecuencia al campo electromagnético, la correspondiente al modelo de Lorentz. En estas condiciones, la forma de línea de la absorción corresponde a una lorentziana, y la técnica de modulación se puede analizar en detalle. Para ello, vamos a revisar el concepto de detección sincronizada. En el mismo, la señal que pretendemos medir y que se haya modulada a una frecuencia ω_{mod} es mezclada a la entrada de la etapa de amplificación con una señal de referencia que es cuadrada y proporciona la necesaria sintonización:

$$a_{sw}(t) = \frac{4}{\pi} \sum_{k=0}^N \frac{\sin((2k+1)\omega_{mod}t + \phi_{sw})}{2k+1} \quad (C.1)$$

Tal señal cuadrada es generada por el amplificador a partir de la señal de referencia que proporcionamos externamente e independientemente de la forma de ésta. Por otro lado, la aplicación del voltaje AC a la muestra provocará que la energía de la resonancia se encuentre modulada a la misma frecuencia por el efecto Stark y:

$$E = E_0 + \Delta E_{Stark} = E_0 + \Delta E_{mod} \sin(\omega_{mod}t + \phi_{Stark}) \quad (C.2)$$

siendo E_0 la energía correspondiente al voltaje estacionario V_{g0} , y donde se ha supuesto que la modulación introducida es de tipo sinusoidal. En estas condiciones, la absorción a una energía E viene dada por una lorentziana:

$$\alpha(t) = \frac{\alpha_0 \gamma^2}{\gamma^2 + (E - E_0 - \Delta E_{Stark})^2} \quad (C.3)$$

donde α_0 es la absorción en el máximo, $\Gamma = 2\gamma$, y $\alpha(t)$ se haya modulada a la frecuencia ω_{mod} a través del término ΔE_{Stark} . En esta ecuación, vemos que la respuesta del sistema a la modulación es no lineal, y por ello vamos a ver que la señal demodulada por el lock-in a partir de ésta va a depender de la amplitud ΔE_{mod} . Si ΔE_{Stark} es pequeña podemos hacer un desarrollo en serie de Taylor de la ecuación (C.3) de la forma:

$$\alpha(t) = \alpha_0 \sum_{i=0}^M f_i \Delta E_{Stark}^i \quad (C.4)$$

El primer término $i = 0$ es un término constante y se elimina en el proceso de mezclado síncrono con la señal cuadrada. Los tres siguientes términos de esta expansión $f_i(E, E_0, \gamma; t)$ $i : 1 - 3$ se hallan representados en la figura C.1 en función de $((E - E_0)/\gamma)$ para $\Delta E_{mod} = \gamma/2$.

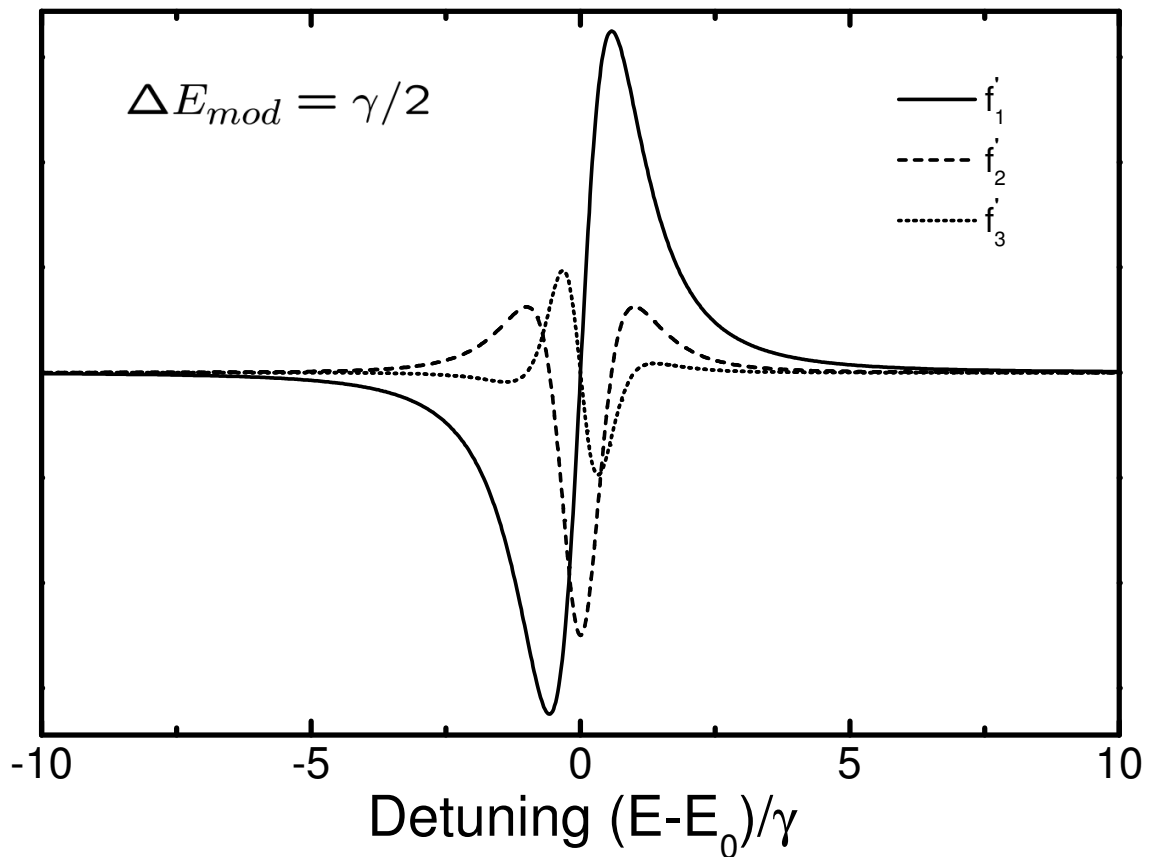


Figura C.1: Coeficientes de la expansión de Taylor de una lorentziana en potencias de la amplitud de modulación de la energía de la transición E .

El término de primer orden f'_1 :

$$f'_1 = f_1 \Delta E_{mod} = -2 \frac{(E - E_0)}{\gamma} \left(1 + \frac{(E - E_0)^2}{\gamma^2} \right)^{-2} \frac{\Delta E_{mod}}{\gamma} \quad (\text{C.5})$$

es la primera derivada de la lorentziana (C.3), los términos sucesivos disminuyen paulatinamente con el cociente $(\Delta E_{mod}/\gamma)^i$ aunque no los explicitaremos aquí. Esta expansión nos permite analizar fácilmente cuales van a ser las contribuciones al primer armónico de la frecuencia ω_{mod} tras el proceso de mezclado de (C.1) y (C.4) realizado por el amplificador. Multiplicando ambas:

$$a_{Mix}(t) = \frac{4\alpha_0}{\pi} \sum_{k=0}^N \sum_{i=0}^M f'_i \sin(\omega_{mod}t + \phi_{Stark}) \frac{\sin((2k+1)\omega_{mod}t + \phi_{sw})}{2k+1} \quad (\text{C.6})$$

obtenemos la ecuación más general que describe la salida del amplificador sincronizado. Para modulaciones pequeñas es suficiente como hemos visto con tomar los cuatro primeros términos del sumatorio ($M = 4$). A fin de analizar sólo las contribuciones más importantes, la expansión de la función de referencia cuadrada puede limitarse también a los cuatro primeros términos ($N = 4$). Con ello se obtiene una suma de términos dependientes de las frecuencias $n \times \omega_{mod}$ con $n : 1 - 3$ que pueden ser agrupados a fin de extraer el correspondiente al primer armónico de la modulación, que es lo habitual en este tipo de detección sincronizada. El resultado de dicha operación es:

$$a_{Mix}^0(t)|_{\phi_{Sw}=\phi_{Stark}} = \frac{\alpha_0}{6\pi}(12f'_1 + 9f'_3 - f'_3 \cos(2\phi_{Stark})) \quad (C.7)$$

donde se ha sustituido la condición habitual de ajuste de fase $\phi_{Sw} = \phi_{Stark}$. Este es el resultado que estábamos buscando y que demuestra que, en general, la forma de línea obtenida en el proceso de demodulación va a depender de la amplitud de modulación utilizada a través de los términos f'_i . En la figura C.2 se ha representado la ecuación (C.7) para diferentes valores de $\Delta E_{mod}/\gamma$. La amplitud máxima pico a pico de la señal modulada va a depender de la amplitud de modulación. Por ahora no discutiremos dicha variación si no que nos centraremos en la forma de línea que resulta del experimento. Tal como vemos, la situación para $\Delta E_{mod} \ll \gamma$ es la que cabría esperar intuitivamente de la derivada de una lorentziana, sin embargo, cuando la relación entre ambas se hace próxima a la unidad, la desviación respecto a la derivada comienza a ser significativa. El caso extremo es cuando $\Delta E_{mod} \gg \gamma$ en el que la tercera derivada domina la forma de la curva de resonancia, dando lugar a un cambio de fase en la intensidad. Si hubiésemos truncado los sumatorios menos restrictivamente, la mezcla de armónicos de mayor orden se haría igualmente palpable para amplitudes de modulación elevadas.

Vemos finalmente que la forma de línea del experimento de modulación depende de manera importante de la amplitud de modulación empleada. A la vista del resultado obtenido, queda claro que para simplificar el análisis de los datos experimentales, en general la amplitud de modulación ha de mantenerse dentro de unos límites moderados que dependen de la anchura de línea del tipo de proceso que que-

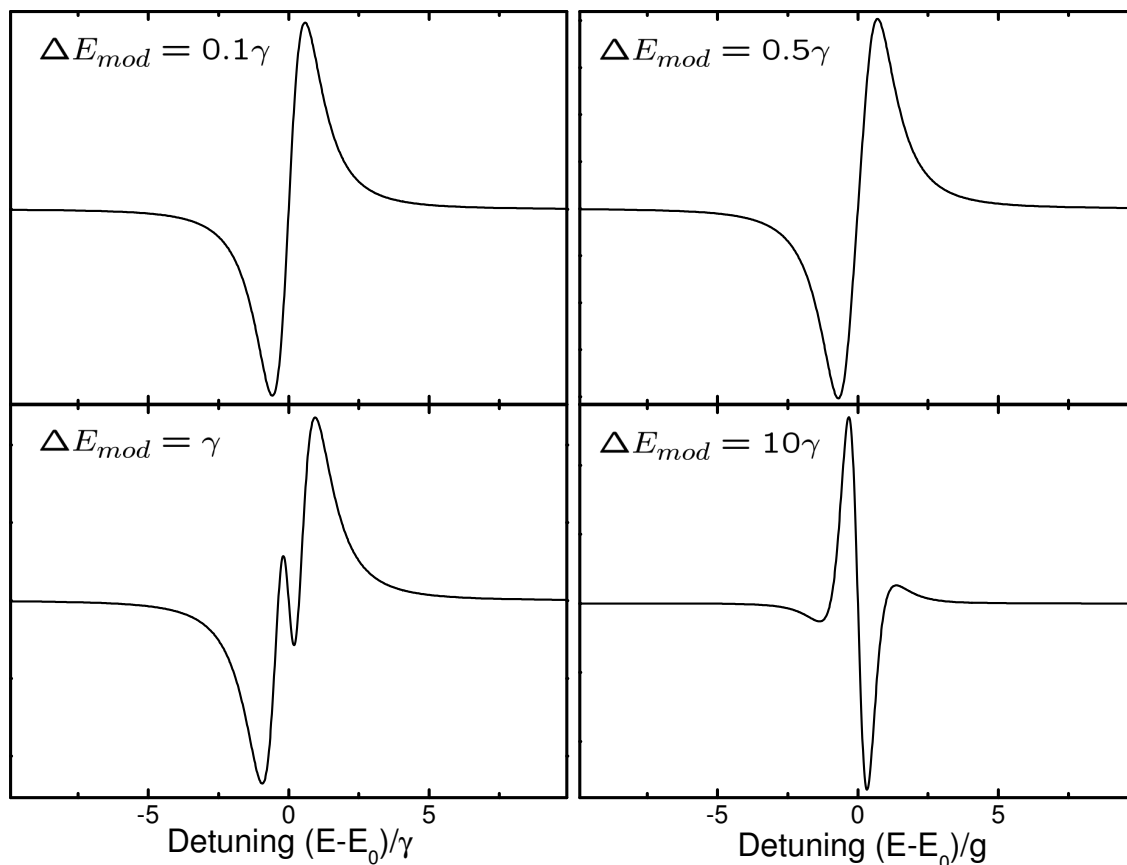


Figura C.2: Diversas formas de línea para la señal de salida del amplificador sincronizado en función de la amplitud de modulación empleada. Las curvas han sido obtenidas de la ecuación (C.7) sustituyendo $\phi_{Stark} = \Pi/2$ y normalizadas para apreciar los cambios de una a otra.

ramos estudiar. Alternativamente, y como se ve en el capítulo 9, podemos utilizar una modulación, distinta de la sinusoidal, a fin de simplificar también el análisis.

Apéndice D

Constantes fundamentales y magnitudes relevantes

Tabla D.1: Constantes fundamentales.

Const.	Valor
\hbar	1.05459×10^{-34} J s $6.58211915 \times 10^{-16}$ eV s
e	1.60219×10^{-19} C
c	2.997925×10^{10} m s ⁻¹
m_0	9.10956×10^{-31} Kg
ϵ_0	8.854187×10^{-12} F m ⁻¹

Tabla D.2: Parámetros característicos del GaAs y el InAs.

Magnitud	GaAs	InAs
ϵ_r	12.9	15.5
$\frac{m_e^*}{m_0}$	0.063	0.023
$\frac{m_{hh}^*}{m_0}$	0.51	0.41
R_y^*	4.58 meV	1.23 meV
a_0	12.2 nm	37.7 nm

Tabla D.3: Conversión de valores de la energía.

1 eV	1.60219×10^{-19} J s
	2.41797×10^{14} Hz
	8.06546×10^3 cm ⁻¹
	1.16048×10^4 K

Anexo I

Propiedades ópticas de hilos
cuánticos autoensamblados

$\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$

Los hilos cuánticos de InAs obtenidos sobre sustratos de InP(001) surgen como consecuencia de la anisotropía de la relajación elástica en las direcciones (110) y $(1\bar{1}0)$. La diferente constante de red de ambos materiales provoca un desacuerdo de malla compresivo del 3.2% y genera una deformación elástica de las sucesivas monocapas (ML) de InAs cuando éste es depositado epitaxialmente sobre InP. A partir de un espesor depositado superior al espesor crítico, 2.5 ML en este sistema, los procesos de autoensamblado tridimensional provocan la aparición de cajas o hilos cuánticos [fig. 1] que mantienen sus propiedades morfológicas una vez recubiertos y retirados de la cámara de crecimiento. Gracias al estudio de dichos procesos, hoy en día es posible utilizar las condiciones de crecimiento adecuadas para controlar la composición, tamaño y densidad de dichos hilos dentro de los límites impuestos por el carácter autoorganizado del método [53, 54, 55, 56, 57, 58].

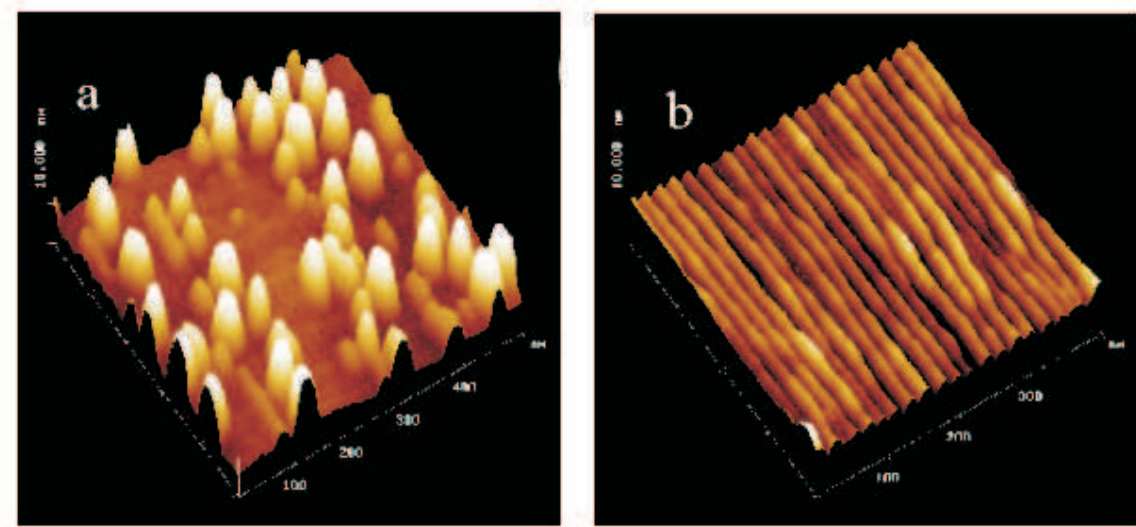


Figura 1: Imagen de microscopía de fuerzas atómicas (AFM) de nanoestructuras de InAs formadas sobre una capa tampón de InP(001). El área escaneada es de 500×500 nm en a) y 400×400 nm en b). El eje vertical corresponde a 10 nm. Imágenes por cortesía de la Dra. Luisa González (IMM-CSIC, Madrid).

En las figuras 2(a) y (b) se muestran los espectros de absorción y fotoluminiscencia a 30 K de una muestra que contiene hilos cuánticos InAs/InP [54]. Debido al

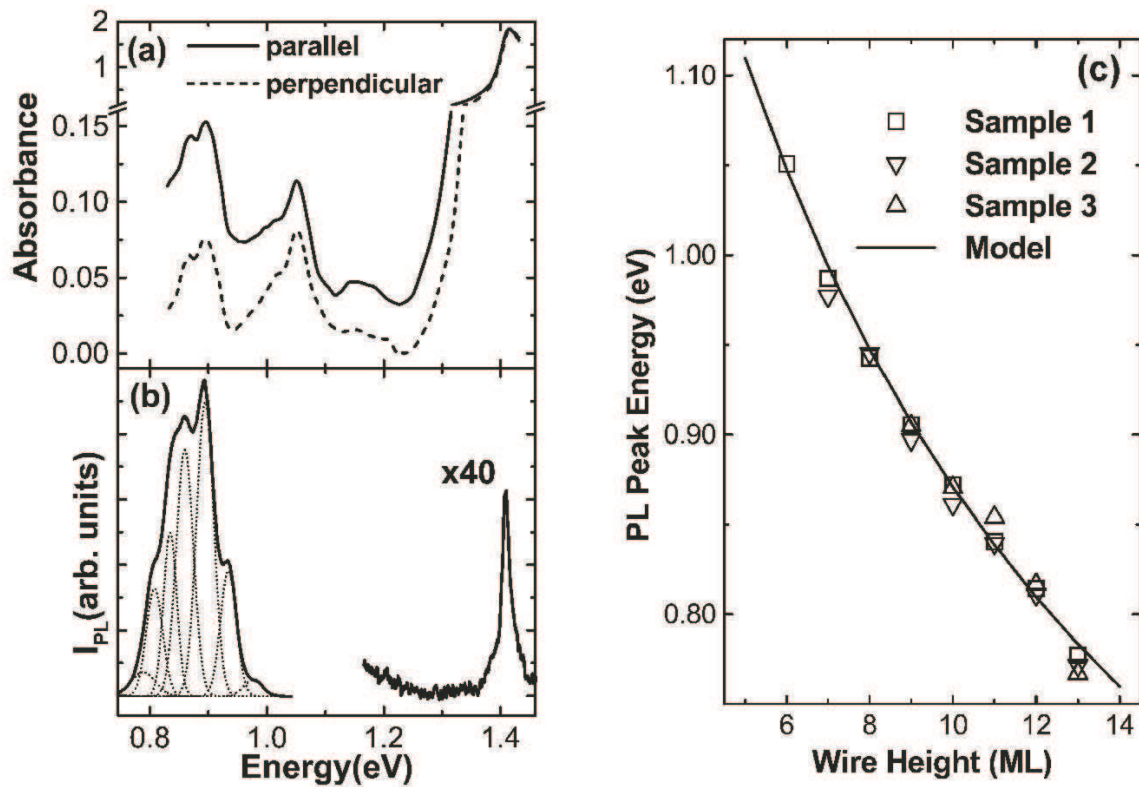


Figura 2: Espectros de absorción (a) y fotoluminiscencia (b) a 30 K de una muestra que contiene hilos cuánticos InAs/InP. La anisotropía de polarización lineal de la absorción típica de este sistema se observa en a). Las energías del máximo de diferentes componentes gaussianas extraídas de los espectros de PL en diferentes muestras y correlacionadas con la altura en ML del hilo son comparadas con un modelo teórico en c).

confinamiento cuántico de los portadores, los procesos de recombinación y absorción inter-banda ocurren a energías superiores a la banda de energía prohibida del InAs en volumen (~ 0.41 eV) alcanzando valores centrales de 0.8 eV ó $1.55 \mu\text{m}$ a temperatura ambiente. Además, se observa en la figura 2(b) que, aunque la excitación es no resonante (2.4 eV de un láser de Ar^+), prácticamente todos los portadores recombinan radiativamente en las nanoestructuras y sólo una pequeña porción contribuyen a la luminiscencia asociada a la barrera de InP a 1.4 eV. Además, comparando los espectros de absorción y emisión se puede constatar la ausencia del corrimiento *Stokes* típico de sistemas bidimensionales o en volumen, lo que es una consecuencia más

del superior confinamiento de los portadores. Dado que las propiedades ópticas han sido estudiadas en un conjunto macroscópico de hilos correspondiente a un área de colección de $\sim 50 \mu\text{m}$ de diámetro, los espectros de emisión y absorbanza se hallan ensanchados inhomogéneamente. La estructura multigaussiana que se resuelve en dichos espectros ha sido asociada a la recombinación excitónica en hilos que difieren entre si en una o varias monocapas de espesor y que dan lugar a las diferentes componentes del espectro. Éste es el punto de apoyo de la conocida como distribución multimodal de la emisión y ha sido corroborada experimentalmente y teóricamente calculando los estados electrónicos de electrón y hueco en hilos cuánticos rectangulares de espesor y anchura comparables al de las nanoestructuras analizadas. Las energías del estado fundamental para diferentes espesores extraídas del modelo se ajustan perfectamente a los máximos de las componentes gaussianas presentes en la banda de emisión de diferentes muestras validando la hipótesis sobre su origen [fig. 2(c)]. Recientemente, se han investigado muestras que contienen islas elongadas InAs/InP obtenidas mediante métodos de crecimiento similares, habiéndose propuesto la presencia de estados excitados en el espectro como responsable de los picos de mayor energía [158, 159]. Más allá de los resultados arrojados por los modelos teóricos, a este nivel siempre dependientes de las aproximaciones llevadas a cabo, también se puede hacer el análisis basándonos en la dispersión de tamaños observada en AFM y en el comportamiento de las diferentes componentes al aumentar la densidad de excitación. En nuestro caso, ambos resultados apuntan hacia un carácter multimodal de las bandas de emisión/absorción obtenidas, conclusión que ha sido corroborada recientemente mediante experimentos de magneto-fotoluminiscencia en muestras idénticas a las nuestras [160].

Introduciendo una cierta cantidad de Galio durante el crecimiento de la capa de InAs, se pueden obtener hilos cuánticos de $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$. Por este procedimiento, no sólo la composición, sino también el tamaño y morfología de estos hilos se ve modificada [56]. En las figuras 3(a) y (b) se muestran sendas imágenes de AFM obtenidas en dos muestras diferentes con $x_{\text{Ga}}=0\%$ y 15% , respectivamente. Ambas micrografías cubren un área de $1 \mu\text{m}^2$, de lo cual se desprende que el tamaño de

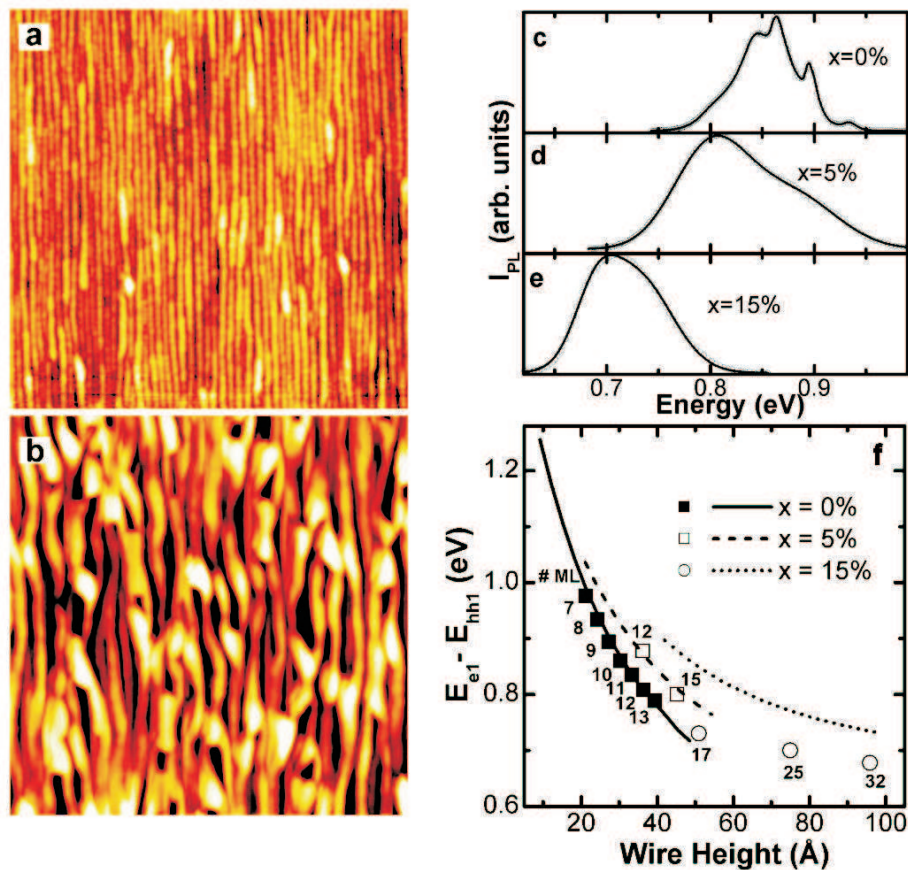


Figura 3: Imágenes de AFM de dos muestras que contienen hilos cuánticos $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ con $x=0\%$ a), y $x=15\%$ b). El área escaneada es de $1\mu\text{m}\times 1\mu\text{m}$ en ambas. Los espectros de fotoluminiscencia a 50 K respectivos son comparados en c) y e) junto al de una muestra con $x=5\%$ d). Las energías correspondientes al ajuste multigaussiano de los espectros de PL son reproducidas mediante un modelo teórico con distinto grado de ajuste como se muestra en f.

los hilos es mucho mayor en el segundo caso, siendo también más irregulares sus dimensiones y forma, en general. La reducción del confinamiento cuántico queda patente en el panel superior derecho donde se han representado los espectros de fotoluminiscencia a baja temperatura de muestras recubiertas equivalentes a las de las imágenes y una intermedia con $x_{\text{Ga}}=5\%$. Aumentando el contenido de Ga, no sólo la energía del máximo de la banda de PL no aumenta, sino que disminuye 150 meV desde (c) a (d). Esta disminución se debe al aumento del tamaño vertical y lateral de los hilos al incrementar x_{Ga} , pero también cabe esperar un efecto de localización

fuerte debido a la pronunciada inhomogeneidad que se observa en la muestra con mayor contenido en Ga. Efectivamente, al aumentar x_{Ga} de 5% a 15%, la banda de emisión se estrecha y desplaza hacia bajas energías, más de lo que cabe esperar por el aumento de tamaño extraído de las imágenes de AFM. De hecho, el modelo teórico propuesto anteriormente falla en el cálculo de las energías de transición de la muestra con $x_{\text{Ga}}=15\%$, mientras que aún proporciona resultados satisfactorios para su homóloga con menor concentración de Galio [fig. 3(f)].

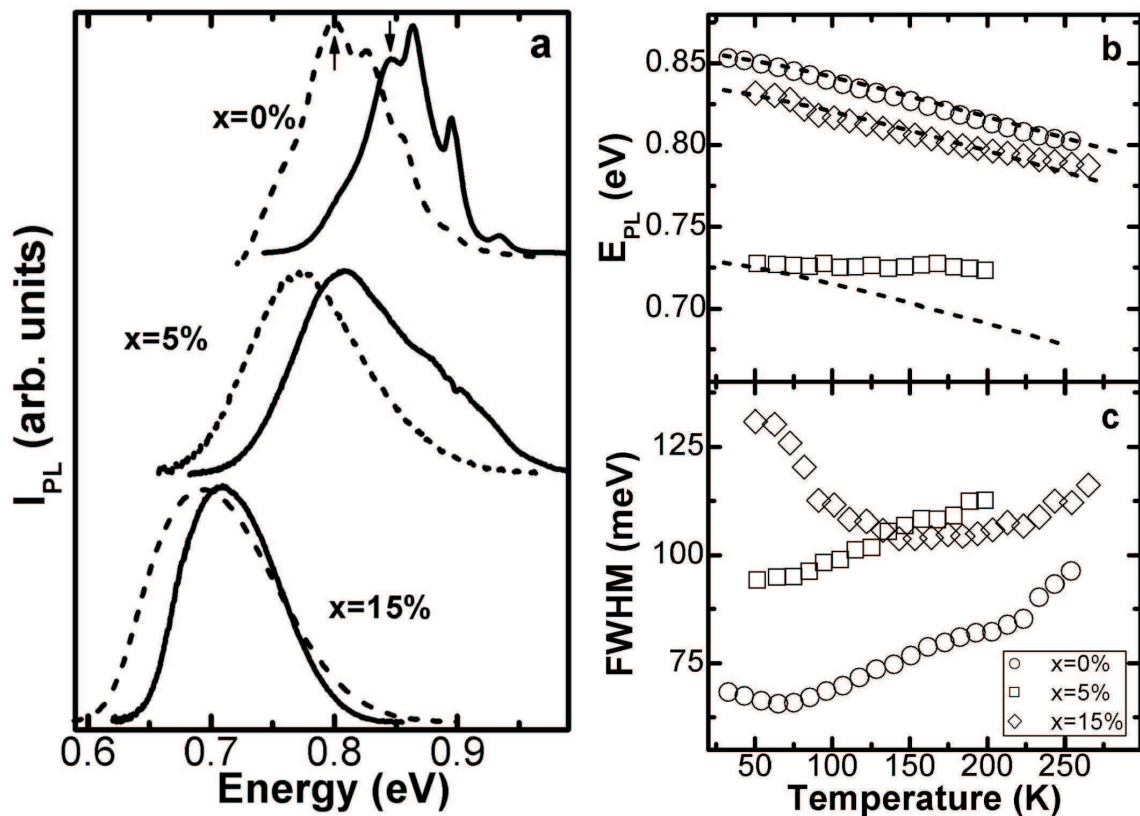


Figura 4: La evolución con la temperatura de muestras que contienen hilos cuánticos $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ con x variable es analizada basándonos en la diferente morfología y dimensiones de los mismos.

Las diferencias continúan al investigar la evolución de la fotoluminiscencia con la temperatura en las tres muestras. En la figura 4(a) se han representado los espectros correspondientes a 50 K y 240 K obtenidos en las diferentes muestras. El comportamiento para las muestras con menor contenido en Ga puede ser descrito

adecuadamente atendiendo a los mecanismos de escape térmico de portadores desde los hilos. En dicho modelo, a partir de cierta temperatura, que dependerá del confinamiento cuántico, los portadores fotogenerados y atrapados en hilos homogéneos de diferentes alturas pueden, o bien recombinar radiativamente, o escapar térmicamente hacia la barrera o hacia un nivel de impureza dado donde recombinarán no radiativamente¹ [54]. Por este mecanismo, los hilos de menor tamaño son los primeros en perder sus portadores, observándose como resultado una disminución de la intensidad de la banda de PL a altas energías y una reducción de la anchura de la banda a temperaturas relativamente bajas [fig. 4(c)]. Tal y como indican las flechas de la figura 4(a) para la muestra con $x_{Ga}=0\%$, el máximo de la PL cambiará sucesivamente de una componente gaussiana a la inmediata de menor energía al aumentar la temperatura. Sin embargo, el centroide de la emisión, o energía que divide la intensidad integrada en dos partes iguales, debería evolucionar siguiendo la banda prohibida del InAs, como cabe esperar de la interacción electron-fonón, y se muestra en la figura 4(b).

En contraste, la situación para la muestra más inhomogénea, $x_{Ga} = 15\%$, es completamente diferente. Por un lado, como ya se ha dicho, el desplazamiento hacia bajas energías de la banda de emisión es mucho mayor del que cabe esperar dadas las dimensiones y composición promedio de las nanoestructuras. Por otro lado, la evolución de la luminiscencia con el aumento de temperatura es completamente anómalo y se aleja del comportamiento esperado en este sistema y observado para las otras dos muestras [Figs. 4]. Todo apunta a que en dicha muestra la descripción de los estados electrónicos no puede hacerse en los términos usuales de confinamiento fuerte y acoplamiento de hilo a hilo despreciable. En su lugar, las nanoestructuras de GaInAs formadas en esta muestra no pueden considerarse independientes unas de otras y los mecanismos de *hopping* entre centros de localización de diferente tamaño y distribuidos aleatoriamente en la superficie han de incluirse en la descripción de sus propiedades ópticas y electrónicas. La diferencia principal que permite dicho

¹Un modelo de ecuaciones de balance puede dar cuenta de esta fenomenología adecuadamente [86].

cambio de comportamiento es el diferente grado de confinamiento de unas y otras. En el caso de la muestra más inhomogénea el pobre confinamiento del electrón y hueco, provoca una localización del centro de masas del excitón. Esto introduce nuevos fenómenos debidos a la correlación coulombiana en este sistema, que no se hallan presentes cuando el grado de confinamiento es elevado. Dicha descripción ha sido aplicada con éxito a sistemas bidimensionales y unidimensionales altamente desordenados y cabe esperar que explique adecuadamente los resultados obtenidos en nuestro caso, aunque es necesario más trabajo a fin de cuantificar exactamente su contribución [161, 162, 163].

Como vemos, la estructura morfológica de las nanoestructuras afecta de manera importante a las propiedades de las mismas, no sólo a título individual (por el cambio del potencial de confinamiento), sino también en su comportamiento colectivo. A fin de obtener hilos y cajas cuánticas homogéneos entre si, las condiciones de crecimiento han de ser exactamente controladas. Sin embargo, el carácter espontáneo del método autoensamblado, provoca que, en la mayoría de los casos, ello no sea suficiente, y las nanoestructuras formadas tengan una cierta dispersión de tamaños. Una estrategia para corregir esta inhomogeneidad e incluso controlar la posición de las nanoestructuras formadas, consiste en el crecimiento de éstas sobre sustratos pre-estructurados por métodos químico-físicos, tal y como se comentó en la sección 2.1. El otro método se basa en el apilamiento sucesivo de las nanoestructuras en estructuras multicapa y será brevemente descrito a continuación para hilos cuánticos InAs/InP.

Las figuras 5(a) y (b) muestran dos imágenes de microscopía de transmisión de electrones (TEM), realizadas en la sección transversal de dos muestras que contienen diez capas de hilos cuánticos InAs/InP separadas entre si $d_{InP}=5$ nm y 13.5 nm, respectivamente [55]. Los espectros de fotoluminiscencia a baja temperatura de dichas muestras se representan en el panel derecho de dicha figura junto a los de dos muestras que contienen una sola capa de hilos para comparar. En primer lugar, la simple inspección visual de las imágenes de TEM nos informa de que mientras que en la muestra con menor espaciado todos los hilos cuánticos presentes en la

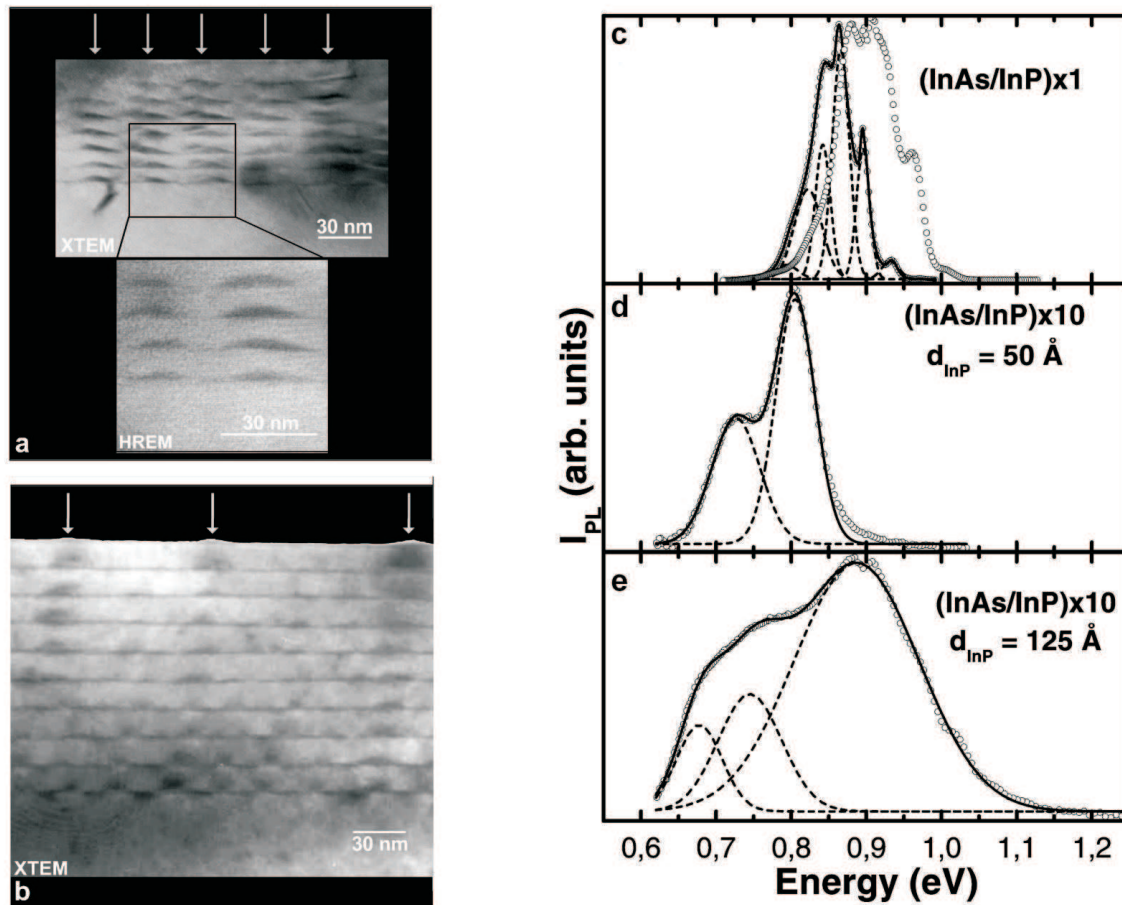


Figura 5: Imágenes de XTEM de dos muestras que contienen diez capas apiladas de hilos cuánticos InAs/InP con diferente espesor de la capa espaciadora d_{InP} : a) 5 nm y b) 12.5 nm. Los espectros de fotoluminiscencia correspondientes, representados en d) y e), confirman el efecto de autofiltrado de tamaños producido por el apilamiento al ser comparados con la distribución multimodal característica de una sola capa en a).

primera capa dan lugar a un punto de nucleación sobre el que se apilan de manera correlativa los hilos de las siguientes capas, esto sólo ocurre en la figura 5(b) para hilos de tamaño especialmente grande en la capa inicial. Esta correlación entre el tamaño del hilo *propagado* y el espesor de la capa espaciadora es la clave del mecanismo de autofiltrado de tamaños. Para un espesor dado, sólo aquellos hilos que alcancen un tamaño crítico en la primera capa provocarán una deformación elástica apreciable sobre su vertical que sirva de punto de nucleación de la capa subsiguie-

te. Si d_{InP} es muy grande el efecto del apilamiento será nulo en la distribución de tamaños. Ahora bien, cuando el espaciamiento se reduce adecuadamente, los hilos más grandes comenzarán a propagarse dando lugar a hilos homogéneos entre si apilados verticalmente. En este caso, dado que la distancia existente entre columnas es elevada, la coherencia del campo de deformaciones se reduce tan sólo a la dirección vertical dentro de una misma columna. Finalmente, cuando el tamaño crítico se aproxima al tamaño promedio de la distribución en la primera capa, prácticamente todos los hilos se propagan verticalmente produciendo un campo de deformaciones coherente en todo el volumen y una distribución de tamaños uniforme. El número de capas necesario para *homogeneizar* una distribución inhomogénea presente en la primera capa ha sido calculado numéricamente por Tersoff [164], para el caso de cajas cuánticas InAs/GaAs. Dicho cálculo supone que las cajas enterradas afectan a la posición y tamaño de las cajas que se van a formar en la capas sucesivas, permaneciendo ellas mismas inalteradas. La eficiencia observada en la figura 5(a), donde todo el volumen se ha autoorganizado dando lugar a una distribución homogénea, parece indicar que a las altas temperaturas en que se realiza el crecimiento, el intercambio As/P puede acelerar dicho proceso provocando que el autofiltrado ocurra simultáneamente en la capa enterrada y en la que aún se está formando [57, 58].

Como vamos a ver, los resultados de fotoluminiscencia no hacen más que corroborar esta hipótesis. La banda de emisión de una muestra que contiene una sola capa de hilos InAs/InP consta de múltiples componentes gaussianas, cada una de ellas de ~ 25 meV de anchura (FWHM), que corresponden a diferentes familias con alturas típicas entre 7 y 13 ML dependiendo de la muestra particular [fig. 5(c)]. En la muestra multicapa con mayor espaciamiento dicha dispersión de tamaños sigue presente y da lugar a una banda ancha de emisión que coincide en energía y anchura con la suma inhomogénea de las componentes presentes en las muestras simples [fig. 5(e)]. Junto a esta banda y a más baja energía, aparecen dos componentes adicionales no presentes en las muestras de una sola capa. Dichas componentes han sido asociadas a la emisión de los hilos de mayor tamaño (en proporción 1:3) que si que han conseguido formar apilamientos verticales en esta muestra con alturas de 14 ± 4

ML según la estadística de tamaños llevada a cabo. En la muestra multicapa con menor espaciado, por el contrario, casi todo el material contribuye al apilamiento vertical y el efecto de autofiltrado es acusado. El espectro se reduce en este caso a dos únicas componentes a 0.805 y 0.728 eV de ~ 60 meV cada una, anchura que es compatible con las fluctuaciones de 2 ML observadas entre hilos de la misma columna en las imágenes de XTEM.

El efecto del acoplamiento elástico resulta pues evidente, pero todavía queda esclarecer la presencia o no de acoplamiento electrónico entre los hilos de una misma columna. Los cálculos correspondientes a hilos aislados de altura igual al promedio obtenido de las imágenes de TEM (11 ML) arrojan una energía para el estado fundamental de 0.839 eV, que es ligeramente superior a la posición del máximo de la componente de más alta energía en esta muestra. Para una altura de 12 ML, el modelo ofrece un valor de 0.807 eV que es prácticamente el valor experimental. Aunque es posible una disminución de la energía de la transición inter-banda de 20 meV debido al acoplamiento electrónico vertical (disminución efectiva del confinamiento), el modelo en si mismo tiene una incertidumbre de 1-2 MLs que impide una discriminación concluyente a este respecto. Finalmente, la componente a más baja energía en esta muestra ha de provenir de hilos de mayor tamaño homogéneos entre si, pero que no aparecen en las áreas examinadas por XTEM siendo su energía compatible con una altura promedio de 14 ± 2 ML.

En definitiva, vemos que el estudio conjunto de las propiedades morfológicas y ópticas de hilos cuánticos autoensamblados permiten extraer información valiosa sobre la estructura electrónica de estas nanoestructuras. En el caso del sistema InAs/InP el interés se centra en la obtención, mediante el confinamiento cuántico, de dispositivos emisores de luz más eficientes en el rango de las telecomunicaciones por fibra óptica ($1.55 \mu\text{m}$). Por ello, los estudios fundamentales llevados a cabo son de la mayor importancia para encontrar la combinación ideal de composición, tamaño y distribución óptimos para dichos dispositivos.

Bibliografía

- [1] Esaki, L. and Tsu, R. Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors. *IBM Journal of Research and Development* **14**, 61 (1970).
- [2] Yacoby, A., Heiblum, M., Mahalu, D., and Shtrikman, H. Coherence and phase sensitive measurements in a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4047 (1995).
- [3] Holleitner, A. W., Decker, C. R., Qin, H., Eberl, K., and Blick, R. H. Coherent coupling of two quantum dots embedded in an aharanov-bohm interferometer. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 256802–1 (2001).
- [4] Bonadeo, N. H., Chen, G., Gammon, D., Katzer, D. S., Park, D., and Steel, D. G. Nonlinear nano-optics: Probing one exciton at a time. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2759 (1998).
- [5] Yu, P. Y. and Cardona, M. *Fundamentals of Semiconductors*. Springer-Verlag, Berlin, (1996).
- [6] Weig, E. M., Blick, R. H., Brandes, T., Kirschbaum, J., Wegscheider, W., Bichler, M., and Kotthaus, J. P. Single electron-phonon interaction in a suspended quantum dot phonon cavity. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 046804 (2004).
- [7] Hühberger, E. M., Krämer, T., Wegscheider, W., and Blick, R. H. In situ control of electron gas bidimensionality in freely suspended semiconductor membranes. *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4160 (2003).
- [8] Bimberg, D., Grundmann, M., Heinrichsdorff, F., Ledentsov, N.Ñ., Ustinov, V. M., Zhukov, A. E., Kovsh, A. R., Maximov, M. V., Shernyakov, Y., Volovik,

- B. V., Tsatsul'nikov, A. F., Kop'ev, P. S., and Alferov, Z. I. Quantum dot lasers: Breakthrough in optoelectronics. *Thin Solid Films* **367**, 235 (2000).
- [9] Burkard, G., Engel, H., and Loss, D. Spintronics and quantum dots for quantum computing and quantum communication. *Fortschritte der Physik* **48**, 965 (2000).
- [10] Santori, C., Fattal, D., Vuckovic, J., Solomon, G. S., and Yamamoto, Y. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature* **419**, 594 (2002).
- [11] Yuan, Z., Kardynal, B. E., Stevenson, R. M., Shields, A. J., Lobo, C. J., Cooper, K., Beattie, N. S., Ritchie, D. A., , and Pepper, M. Electrically driven single-photon source. *Science* **295**, 102 (2002).
- [12] Leonard, D. K., Pond, K., and Petroff, P. M. Critical layer thickness for self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **50**, 11687 (1994).
- [13] Moskalenko, E. S., Karlsson, K. F., Holtz, P. O., Monemar, B., Schoenfeld, W. V., García, J. M., and Petroff, P. M. Influence of excitation energy on charged exciton formation in self-assembled InAs single quantum dots. *Phys. Rev. B* **64**, 085302 (2001).
- [14] Brunner, K., Abstreiter, G., Böhm, G., Tränkle, G., and Weimann, G. Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1138 (1994).
- [15] Hess, H. F., Betzig, E., Harris, T. D., Pfeiffer, L.Ñ., and West, K. W. *Science* **264**, 1740 (1994).
- [16] Gammon, D., Snow, E. S., Shanabrook, B. V., Katzer, D. S., and Park, D. Homogeneous linewidths in the optical spectrum of a single gallium arsenide quantum dot. *Science* **273**, 87 (1996).
- [17] Bonadeo, N. H., Erland, J., Gammon, D., Park, D., Katzer, D. S., and Steel, D. G. Coherent optical control of the quantum state of a single quantum dot. *Science* **282**, 1473 (1998).

- [18] Guest, J. R., Stievater, T. H., Li, X., Cheng, J., Steel, D. G., Gammon, D., Katzer, D. S., Park, D., Ell, C., Thäranhardt, A., Khitrova, G., and Gibbs, H. M. Measurement of optical absorption by single quantum dot exciton. *Phys. Rev. B* **65**, 241310(R) (2002).
- [19] Bimberg, D., Grundmann, M., and Ledentsov, N.Ñ. *Quantum Dot Heterostructures*. John Wiley & Sons, 1 edition, (1999).
- [20] Song, H. Z., Nakata, Y., Okada, Y., Miyazawa, T., Ohshima, T., Takatsu, M., Kawabe, M., and Yokoyama, N. Growth process of quantum dots precisely controlled by an AFM-assisted technique. *Physica E* **21**, 625 (2004).
- [21] Nakamura, Y., Ikeda, N., Ohkouchi, S., Sugimoto, Y., Nakamura, H., and Asakawa, K. Regular array of InGaAs quantum dots with 100-nm-periodicity formed on patterned GaAs substrates. *Physica E* **21**, 551 (2004).
- [22] Jung, M. and Hirakawa, K. Lateral electron transport through single InAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy. *Physica E* **21**, 423 (2004).
- [23] Bayer, M. and Forchel, A. Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B* **65**, 041308(R) (2002).
- [24] Finley, J. J., Fry, P. W., Ashmore, A. D., Lemaitre, A., Tartakovskii, A. I., Oulton, R., Mowbray, D. J., Skolnick, M. S., Hopkinson, M., Buckle, P. D., and Maksym, P. A. Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single ingaas quantum dot. *Phys. Rev. B* **63**, R161305 (2001).
- [25] Bayer, M., Stern, O., Hawrylak, P., Fafard, S., and Forchel, A. Hidden symmetries in the energy levels of excitonic 'artificial atoms'. *Nature* **405**, 923 (2000).
- [26] Kammerer, C., Cassabois, G., Voisin, C., Delalande, C., and Roussignol, P. Photoluminescence up-conversion in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 207401 (2001).

- [27] Guest, J. R., Stievater, T. H., Chen, G., Tabak, E. A., Orr, B. G., Steel, D. G., Gammon, D., and Katzer, D. S. Near-field coherent spectroscopy and microscopy of a quantum dot system. *Science* **293**, 2224 (2001).
- [28] Hecht, B., Sick, B., Wild, U. P., Deckert, V., Zenobi, R., Martín, O. J. F., and Pohl, D. W. Scanning near-field optical microscopy with aperture probes: Fundamentals and applications. **112**, 7761 (2000).
- [29] Pohl, D. Technical report, (1982). European patent no. 0112401 (Dec, 1982); US Patent no. 4604520 (Dec, 1983).
- [30] Pohl, D. W., Denk, W., and Lanz, M. Optical stethoscopy: Image recording with resolution $\lambda/20$. *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984).
- [31] Michael A, P. and Moyer, P. J. *Near-Field Optics: Theory, Instrumentation and Applications*. John Wiley & Sons, New York, (1996).
- [32] Synge, E. H. A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region. *Phil. Mag.* **6**, 356 (1928).
- [33] Obermüller, C., Deisenrieder, A., Abstreiter, G., Karrai, K., Grosse, S., Manus, S., Feldmann, J., Lipsanen, H., Sopanen, M., and Ahopelto, J. Mechanical nanomanipulation of single strain-induced semiconductor quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 358 (1999).
- [34] Robinson, H. D., Goldberg, B. B., and Merz, J. L. Observation of excitation transfer among neighbouring quantum dots. *Phys. Rev. B* **64**, 075308 (2001).
- [35] Eah, S. K., Jhe, W., and Arakawa, Y. Near-field optical photoluminescence microscopy of high-density InAs/GaAs single quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2779 (2002).
- [36] Matsumoto, T., Ohtsu, M., Matsuda, K., Saiki, T., Saito, H., and Nishi, K. Low-temperature near-field nonlinear absorption spectroscopy of InGaAs single quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **75**, 3246 (1999).

- [37] Lienau, C., Intonti, F., Guenther, T., Elsaesser, T., Savona, V., Zimmermann, R., and Runge, E. Near-field autocorrelation spectroscopy of disordered semiconductor quantum wells. *Phys. Rev. B* **69**, 085302 (2004).
- [38] Minsky, M. Microscopy apparatus. Technical report, (1957). U.S. Patent 3013467.
- [39] (Ed.), J. B. P. *Handbook of Biological Confocal Microscopy*. Plenum Press, New York and London, 2nd edition, (1995).
- [40] Wilson, T. and Carlini, A. R. Size of the detector in confocal imaging systems. *Opt. Lett.* **12**, 227 (1987).
- [41] der Voort, H. T. M. V. and Brakenhoff, G. J. 3d image formation in high-aperture fluorescence confocal microscopy: A numerical analysis. *J. Microsc.* **158**, 43 (1990).
- [42] Koechner, W. *Solid State Laser Engineering*. Springer-Verlag, Berlin, (1996).
- [43] Demtroder, W. *Laser Spectroscopy*. Springer-Verlag, Berlin, enlarged 2nd edition, (1998).
- [44] Littman, M. G. and Metcalf, H. J. Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander. *Appl. Opt.* **17**, 2224 (1978).
- [45] Harvey, K. C. and Myatt, C. J. External-cavity diode laser using a grazing-incidence diffraction grating. *Opt. Lett.* **16**, 910 (1991).
- [46] Sheppard, C. J. R. and Larkin, K. G. Optimal concentration of electromagnetic radiation. *J. Mod. Opt.* **41**, 1495 (1994).
- [47] *Confocal and Differential Microscopy Using Optical Fiber Detection*, volume 2 of *Proceeding of SPIE-International Society for Optical Engineering*, (1992).
- [48] Gu, M., Sheppard, C. J. R. S., and Gan, X. Image formation in a fiber-optical confocal scanning microscope. *J. Opt. Soc. Am. A* **8**, 1755 (1991).

- [49] Gu, M. and Sheppard, C. J. R. Signal level of the fibre-optical confocal scanning microscope. *J. mod. Optics* **38**, 1621 (1991).
- [50] Kimura, S. and Wilson, T. Confocal scanning optical microscope using single-mode fiber for signal detection. *Appl. Opt.* **30**, 2143 (1991).
- [51] Delaney, P. M., Harris, M. R., and King, R. G. Fiber-optic laser scanning confocal microscope suitable for fluorescence imaging. *Appl. Opt.* **33**, 573 (1994).
- [52] Rudra, A., Houdré, R., Carlin, J. F., and Ilegems, M. *J. Cryst. Growth* **136**, 278 (1994).
- [53] González, L., García, J. M., García, R., Martínez-Pastor, J., Ballesteros, C., and Briones, F. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1104 (2000).
- [54] Alén, B., Martínez-Pastor, J., García-Cristóbal, A., González, L., and García, J. M. Optical transitions and excitonic recombination in InAs/InP self-assembled quantum wires. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 4025 (2001).
- [55] Alén, B., Martínez-Pastor, J., González, L., García, J. M., Molina, S. I., Ponce, A., and García, R. Size filtering effects by stacking InAs/InP (001) self-assembled quantum wires into multilayers. *Phys. Rev. B* **65**, R241301 (2002).
- [56] Alén, B., Biswas, D., Martínez-Pastor, J., García, J., and González, L. Optical properties of self-assembled $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ quantum wires. *Phys. Stat. Sol. (a)* **190**, 763 (2002).
- [57] González, M., García, J. M., González, L., Silveira, J. P., González, Y., Gómez, J. D., and Briones, F. In situ measurements of As/P exchange during InAs/InP(001) quantum wires growth. *Appl. Surf. Sci.* **188**, 188 (2002).
- [58] González, M. U., González, L., García, J. M., González, Y., Silveira, J. P., and Briones, F. Stress evolution aspects during InAs/InP(001) quantum wires self-assembling. *Microelectron. J.* **35**, 13 (2004).

- [59] Ruvimov, S., Werner, P., Scheersmidt, K., Gösele, U., Heydenreich, J., Richter, U., Ledentsov, N.Ñ., Grundmann, M., Bimberg, D., Ustinov, V. M., Egorov, A. Y., Kop'ev, P., and Alferov, Z. I. Structural characterization of (In,Ga)As quantum dots in a GaAs matrix. *Phys. Rev. B* **51**, 14766 (1995).
- [60] García, J. M., Medeiros-Ribeiro, G., Schmidt, K., Ngo, T., Feng, J. L., Lorke, A., Kotthaus, J., and Petroff, P. Intermixing and shape changes during the formation of InAs self-assembled quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2014 (1997).
- [61] Granados, D. and García, J. M. In(Ga)As self-assembled quantum ring formation by molecular beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.* **82**, 2401 (2003).
- [62] Stier, O. and Bimberg, D. *Phys. Rev. B* **55**, 7726 (1997).
- [63] Wang, L.-W. and Zunger, A. Linear combination of bulk bands method for large-scale electronic structure calculations on strained nanostructures. *Phys. Rev. B* **59**, 15806 (1999).
- [64] Llorens, J. M., Trallero-Giner, C., García-Cristobal, A., and Cantarero, A. Electronic structure of a quantum ring in a lateral electric field. *Phys. Rev. B* **64**, 035309 (2001).
- [65] Martínez-Pastor, J., Alén, B., Rudamas, C., Roussignol, P., García, J., and González, L. Vertical stacks of small InAs/GaAs self-assembled dots: Resonant and non-resonant excitation. *Physica E* **17**, 46 (2003).
- [66] Rudamas, C., Martínez-Pastor, J., García-Cristóbal, A., Roussignol, P., García, J., and González, L. *Surf. Science* **507-510**, 624 (2002).
- [67] Vasanelli, A., Ferreira, R., and Bastard, G. Continuous absorption background and decoherence in quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 216804 (2002).
- [68] Madelung, O. *Introduction to Solid-State Theory*. Springer-Verlag, Berlin, (1978).

- [69] Cerdeira, F., Buchenauer, C. J., Pollak, F. H., and Cardona, M. Stress-induced shifts of first-order raman frequencies of diamond and zinc-blende type semiconductors. *Phys. Rev. B* **5**, 580 (1972).
- [70] Grundmann, M., Stier, O., and Bimberg, D. InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure. *Phys. Rev. B* **52**, 11969 (1995).
- [71] Verzelen, O., Ferreira, R., and Bastard, G. Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B* **62**, R4809 (2000).
- [72] Heitz, R., Kalburge, A., Xie, Q., Grundmann, M., Chen, P., Hoffmann, A., Madhukar, A., and Bimberg, D. *Phys. Rev. B* **57**, 9050 (1998).
- [73] Bockelmann, U. Exciton relaxation and radiative recombination in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B* **48**, 17637 (1993).
- [74] Warburton, R. J., Schäfflein, C., Haft, D., Bickel, F., Lorke, A., Karrai, K., García, J. M., Schoenfeld, W., and Petroff, P. M. Optical emission from a charge tunable quantum ring. *Nature* **405**, 926 (2000).
- [75] Dow, J. D. and Redfield, D. Electroabsorption in semiconductors: The excitonic absorption edge. *Phys. Rev. B* **1**, 3358 (1970).
- [76] Miller, D. A. B., Chemla, D. S., Damen, T. C., Gossard, A. C., Wiegmann, W., Wood, T. H., and Burrus, C. A. Electric field dependence of optical absorption near the band gap of quantum-well structures. *Phys. Rev. B* **32**, 1043 (1985).
- [77] Barker, J. A. and O'Reilly, E. P. Theoretical analysis of electron-hole alignment in InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **61**, 13840 (2000).
- [78] Bastard, G., Mendez, E. E., Chang, L. L., and Esaki, L. Variational calculations on a quantum well in an electric field. *Phys. Rev. B* **28**, 3241 (1983).

- [79] Warburton, R. J., Schulhauser, C., Haft, D., Schäfflein, C., Karrai, K., García, J. M., Schoenfeld, W., and Petroff, P. M. Giant permanent dipole moments of excitons in semiconductor nanostructures. *Phys. Rev. B* **65**, 113303 (2002).
- [80] Fry, P., 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., Cullis, A. G., Hill, G., and Clark, J. C. Inverted electron-hole alignment in InAs-GaAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 733 (2000).
- [81] Hsu, T. M., Chang, W. H., Huang, C. C., Yeh, N. T., and Chyi, J. I. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1760 (2001).
- [82] Findeis, F., Baier, M., Beham, E., Zrenner, A., and Arbsreiter, G. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2958 (2001).
- [83] Martínez-Pastor, J., Bosch, J., Biswas, D., Alén, B., García, J., and González, L. Exciton recombination in self-assembled InAs/GaAs small quantum dots under an external electric field. *Phys. Stat. Sol. (a)* **190**, 599 (2002).
- [84] Biswas, D., Alén, B., Bosch, J., Martínez-Pastor, J., García, J. M., and González, L. Quenching and enhancement of high energy luminescence from self-assembled InAs/GaAs quantum dots under low external electric fields. In 11th International Workshop on the Physics of Semiconductor Devices, Kumar, V. and Basu, P., editors, volume 1, 173 (Allied Publishers Ltd., Delhi (India), 2001).
- [85] Bosch, J., Alén, B., Martínez-Pastor, J., García, J. M., and González, L. Charge transport and charge accumulation in quantum dots embedded in a schottky diode. In CDE2003-4^a Conferencia de Dispositivos Electrónicos, Acero, M. and Lozano, M., editors (CNM-CSIC, Calella (Barcelona), 2003).
- [86] Fuster, D., Alén, B., Bosch, J., Rudamas, C., and Martínez-Pastor, J. Temperature and electric field quenching of the photoluminescence in self-assembled

- InAs/GaAs quantum dots. In *TNT 2002 - Trends in Nanotechnology 2002* (CMP Científica, Santiago de Compostela (España), 2002).
- [87] Tyagi, M. S. *Introduction to Semiconductor Materials and Devices*. John Wiley & Sons, New York, (1991).
- [88] Sze, S. M. *Physics of Semiconductor Devices*. John Wiley & Sons, Inc., New York, (1981).
- [89] Itskevich, I. E., Rybchenko, S. I., Tartakovskii, I. I., S, T. S., Levin, A., Main, P. C., Eaves, L., Henini, M., and Parnell, S. Stark shift in electroluminescence of individual InAs quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3932 (2000).
- [90] Sheng, W. and Leburton, J. P. Absence of correlation between built-in electric dipole moment and quantum stark effect in single InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B* **67**, 125308 (2003).
- [91] Galindo, A. and Pascual, P. *Mecánica Cuántica*, volume 2. Eudema, Madrid, (1989).
- [92] Davies, J. H. *The Physics of Low-Dimensional Semiconductors: An Introduction*. Cambridge University Press, London, (1996).
- [93] Bastard, G. *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*. Les Editions de Physique, Paris, (1989).
- [94] Wojs, A. and Hawrylak, P. Theory of photoluminescence from modulation-doped self-assembled quantum dots in a magnetic field. *Phys. Rev. B* **55**, 13066 (1997).
- [95] Haug, H. and Koch, S. W. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific, Singapore, 3rd. edition, (1990).
- [96] Bányai, L. and Koch, S. W. *Semiconductor Quantum Dots*, chapter 3, 37. World Scientific Publishing (1993).

- [97] Sakurai, J. J. *Modern Quantum Mechanics*. Addison-Wesley Publishing, California, (1985).
- [98] Shumway, J., Franceschetti, A., and Zunger, A. Correlation versus mean-field contributions to excitons, multiexcitons, and charging energies in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B* **63**, 155316 (2001).
- [99] Warburton, R. J., Miller, B. T., Dürr, C. S., Bödefeld, C., Karrai, K., Kotthaus, J. P., Medeiros-Ribeiro, G., Petroff, P. M., and Huan, S. Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model. *Phys. Rev. B* **58**, 16221 (1998).
- [100] Urbaszek, B., Warburton, R. J., Karrai, K., Gerardot, B. D., Petroff, P. M., and García, J. M. Fine structure of highly charged excitons in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 247403–1 (2003).
- [101] Warburton, R. J., Dürr, C. S., Karrai, K., Kotthaus, J. P., Medeiros-Ribeiro, G., and Petroff, P. M. Charged excitons in self-assembled semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997).
- [102] Warburton, R. J., Schäfle, C., Haft, D., Bickel, F., Lorke, A., Karrai, K., García, J. M., Schoenfeld, W., and Petroff, P. M. Optical emission from single, charge-tunable quantum rings. *Physica E* **9**, 124 (2001).
- [103] Efros, A. L. and Afros, A. L. *Sov. Phys. Semicond.* **16**, 772 (1982).
- [104] Andreani, L. C. Exciton-polaritons in confined systems. In *Electron and Photon Confinement in Semiconductor Nanostructures*, Deveaud, B. and Quatropiani, A., editors, 105. Società Italiana de Fisica, IOS Press, Amsterdam (2003).
- [105] Blood, P. and Orton, J. W. *The Electrical Characterization of Semiconductors: Majority Carriers and Electron States*. Academic Press, London, (1990).

- [106] Baxandall, P. J., Colliver, D. J., and Fray, A. F. An instrument for the rapid determination of semiconductor impurity profiles. *J. of Physics E: Scientific Instruments* **4**, 213 (1971).
- [107] Haft, D. *Positioning for the Nanoworld*. Attocube Systems AG, Viktualienmarkt 3 D - 80331 München (Germany), (2001).
- [108] Karrai, K., Warburton, R. J., Schulhauser, C., Höegele, A., Urbaszek, B., McGhee, E. J., Govorov, A. O., García, J. M., Gerardot, B. D., and Petroff, P. M. Hybridization of electronic states in quantum dots through photon emission. *Nature* **427**, 135 (2004).
- [109] Alén, B., Bickel, F., Karrai, K., Warburton, R. J., and Petroff, P. M. Stark-shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **83**, 2235 (2003).
- [110] Lorke, A., Luyken, R. J., Govorov, A. O., Kotthaus, J. P., García, J. M., and Petroff, P. M. Spectroscopy of nanoscopic semiconductor rings. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2223 (2000).
- [111] Fuhrer, A., Lüscher, S., Ihn, T., Heinzl, T., Ensslin, K., Wegscheider, W., and Bichler, M. Energy spectra of quantum rings. *Nature* **413**, 822 (2001).
- [112] Viefers, S., Koskinen, P., Deo, P. S., and M.Manninen. Quantum rings for beginners: Energy spectra and persistent currents. *Physica E* **35**, 1 (2004).
- [113] Koenraad, P., Bruls, D., Davies, J., Gill, S., Long, F., Hopkinson, M., Skolnick, M., and Wolter, J. Composition profiling at the atomic scale in III/V nanostructures by cross-sectional STM. *Physica E* **17**, 526 (2003).
- [114] Barker, J. A., Warburton, R. J., and O'Reilly, E. P. Electron and wave functions in self-assembled quantum rings. *Phys. Rev. B* **69**, 035327–1 (2004).
- [115] Medeiros-Ribeiro, G., Leonard, D., and Petroff, P. M. Electron and hole energy levels in inas self-assembled quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1767 (1995).

- [116] Brounkov, P.Ñ., Polimeni, A., Stoddart, S. T., Henini, M., Eaves, L., Main, P. C., Kovsh, A., Musikhin, Y. G., and Konnikov, S. G. Electronic structure of self-assembled inas quantum dots in gaas matrix. *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1092 (1998).
- [117] Lorke, A., Luyken, R. J., Fricke, M., Kotthaus, J. P., Medeiros-Ribeiro, G., García, J. M., and Petroff, P. M. Electronic structure of nanometer-size quantum dots and quantum rings. *Microelectronics Engineering* **47**, 95 (1999).
- [118] Wetzler, R., Wacker, A., Schöll, E., Kapteyn, C. M. A., Heitz, R., and Bimberg, D. Capacitance-voltage characteristics of inas/gaas quantum dots embedded in a pn structure. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 1671 (2000).
- [119] Medeiros-Ribeiro, G., García, J. M., and Petroff, P. M. Charging dynamics of inas self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B* **56**, 3609 (1997).
- [120] Luyken, R. J., Lorke, A., Govorov, A. O., Kotthaus, J. P., Medeiros-Ribeiro, G., and Petroff, P. M. The dynamics of tunneling into self-assembled inas dots. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2486 (1999).
- [121] Reuter, D., Schafmeister, P., Kailuweit, P., and Wieck, A. D. Frequency dependent $c(v)$ -spectroscopy of the hole system in inas quantum dots. *Physica E* **21**, 445 (2004).
- [122] Wibbelhoff, O., Meier, C., Lorke, A., Schafmeister, P., and Wieck, A. D. Wave function mapping of self-assembled quantum dots by capacitance spectroscopy. *Physica E* **21**, 516 (2004).
- [123] Fricke, M., Lorke, A., Kotthaus, J. P., Medeiros-Ribeiro, G., and Petroff, P. M. Shell structure and electron-electron interaction in self-assembled InAs quantum dots. *Europhys. Lett.* **36**, 197 (1996).
- [124] Lacroix, Y., Tran, C. A., Watkins, S. P., and Thewalt, M. L. W. Low temperature photoluminescence of epitaxial inas. *J. Appl. Phys.* **80**, 6416 (1996).

- [125] Pettersson, H., Warburton, R. J., Lorke, A., Karrai, K., Kotthaus, J. P., García, J. M., and Petroff, P. M. Excitons in self-assembled quantum ring-like structures. *Physica E* **6**, 510 (2000).
- [126] Regelman, D. V., Deckel, E., Gershoni, D., Ehrenfreund, E., Williamson, A. J., Shumway, J., Zunger, A., Schoenfeld, W. V., and Petroff, P. M. Optical spectroscopy of single quantum dots at tunable positive, neutral, and negative charge states. *Phys. Rev. B* **64**, 165301 (2001).
- [127] Ferreira, R. and Bastard, G. Phonon-assisted capture and intradot auger relaxation in quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2818 (1999).
- [128] Baskoutas, S., Schommers, W., Terzis, A. F., Kapaklis, V., Rieth, M., and Politis, C. Stability of an exciton bound to an ionized donor in quantum dots. *Phys. Lett. A* **308**, 219 (2003).
- [129] Hu, J., Harrison, D. A., Karasyuk, V. A., Watkins, S. P., Thewalt, M. L., Bassignana, I. C., Beckett, D. J. S., Hillier, G. C., and SpringThorpe, A. J. Lattice parameter variation in doped GaAs substrates determined using high resolution photoluminescence spectroscopy. *J. Appl. Phys.* **84**, 6305 (1998).
- [130] Lemaître, A., Ashore, A. D., Finley, J. J., Mowbray, D. J., Skolnick, M. S., Hopkinson, M., and Krauss, T. F. Enhanced phonon-assisted absorption in single InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **63**, 161309 (2001).
- [131] Khitrova, G., Gibbs, H. M., Jahnke, F., Kira, M., and Koch, S. W. Nonlinear optics of normal-mode-coupling semiconductor microcavities. *Rev. Mod. Phys.* **71**, 1591 (1999).
- [132] Kamada, H., Gotoh, H., Temmyo, J., Takagahara, T., and Ando, H. Exciton Rabi oscillation in a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 246401 (2001).
- [133] Madelung, O., editor. *Intrinsic Properties of Group IV Elements and III-V, II-VI and I-VII Compounds*, volume Landolt-Börnstein III/22a. Springer-Verlag, New York, (1987).

- [134] Urbaszek, B., McGhee, E. J., Krüger, M., Warburton, R. J., Karrai, K., Amand, T., Gerardot, B. D., Petroff, P. M., and García, J. M. Temperature-dependent linewidth of charged excitons in semiconductor quantum dots: Strongly broadened ground state transitions due to acoustic phonon scattering. *Phys. Rev. B* **69**, 0353304 (2004).
- [135] Kammerer, C., Cassabois, G., Voisin, C., Delalande, C., Roussignol, P., Lemaître, A., and Gerard, J. M. Efficient acoustic phonon broadening in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **65**, 033313 (2001).
- [136] Hawrylak, P., Narvaez, G. A., Bayer, M., and Forchel, A. Excitonic absorption in a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 389 (2000).
- [137] Oulton, R., Finley, J. J., Tartakovskii, A. I., Mowbray, D. J., Skolnick, M. S., Hopkinson, M., Vasanelli, A., Ferreira, R., and Bastard, G. Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled stranski-krastanow quantum dots. *Phys. Rev. B* **68**, 235301 (2003).
- [138] Toda, Y., Moriwaki, Y., Nishioka, M., and Arakawa, Y. Efficient carrier relaxation mechanism in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4114 (1999).
- [139] Htoon, H., Kulik, D., Baklenov, O., Holmes, A. L., Takagahara, J. T., and Shih, C. K. Carrier relaxation and quantum decoherence of excited states in self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B* **63**, 241303(R) (2001).
- [140] Boyd, R. W. *Nonlinear Optics*. Academic Press, San Diego, (1992).
- [141] Shen, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons, New York, (1984).
- [142] Slichter, C. P. *Principles of Magnetic Resonance*. Springer Verlag, Berlin, 2nd edition, (1978).
- [143] Moerner, W. E. and Kador, L. Optical detection and spectroscopy of single molecules in a solid. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2535 (1989).

- [144] Moerner, W. and Orrit, M. Illuminating single molecules in condensed matter. *Science* **283**, 1670 (2001).
- [145] Moerner, W. A dozen years of single-molecule spectroscopy in physics, chemistry, and biophysics. *J. Phys. Chem. B* **106**, 910 (2002).
- [146] Alén, B., Karrai, K., Warburton, R. J., Bickel, F., Petroff, P. M., and Martínez-Pastor, J. Absorption spectroscopy of single self-assembled quantum dots. *Physica E* **21**, 395 (2004).
- [147] Högele, A., Alén, B., Bickel, F., Warburton, R. J., Petroff, P. M., and Karrai, K. Exciton fine structure splitting of single InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Physica E* **21**, 175 (2004).
- [148] Feneuille, S. Interaction of laser radiation with free atoms. *Rep. Prog. Phys.* **40**, 1257 (1977).
- [149] Cohen-Tannoudji, C. and Reynaud, S. Dressed-atom description of resonance fluorescence and absorption spectra of a multi-level atom in an intense laser beam. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **10**, 345 (1977).
- [150] Wu, F. Y., Ezequiel, S., Ducloy, M., and Mollow, B. R. Observation of amplification in a strongly driven two-level atomic system at optical frequencies. *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1077 (1977).
- [151] Unold, T., Mueller, K., Lienau, C., Elsaesser, T., and Wieck, A. D. Optical stark effect in a quantum dot: Ultrafast control of single exciton polarizations. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 157401 (2004).
- [152] Feneuille, S., Scheweihofer, M.-G., and Oliver, G. Response of a two-level system to a narrow-band light excitation completely modulated in amplitude. *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **9**, 2003 (1976).
- [153] Cohen-Tannoudji, C.Ñ. Manipulating atoms with photons. *Rev. Mod. Phys.* **70**, 707 (1998).

- [154] Born, M. and Wolf, E. *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Cambridge University Press, UK, (1997).
- [155] Karrai, K., Huant, S., Martínez, G., and Brunel, L. C. Magneto-optical response of a multilayered semiconducting material in the optical phonon energy region. *Solid State Comm.* **66**, 355 (1988).
- [156] Walrafen, G. E. and Krishnan, P.Ñ. Model analysis of the raman spectrum from fused silica optical fibers. *Appl. Opt.* **21**, 359 (1982).
- [157] Cardona, M. *Modulation Spectroscopy*. Academic Press, New York, (1969).
- [158] Miska, P., Even, J., Platz, C., Salem, B., Benyattou, T., Bru-Chevalier, C., Guillot, G., Bremond, G., Moumanis, K., Julien, F. H., Marty, O., Monat, C., and Gendry, M. Experimental and theoretical investigation of carrier confinement in InAs quantum dashes grown on InP(001). *J. Appl. Phys.* **95**, 1074 (2004).
- [159] Salem, B., Benyattou, T., Gyllot, G., Bru-Chevalier, C., Bremond, G., Monat, C., Hollinger, G., and Gendry, M. *Phys. Rev. B* **66**, 193305 (2002).
- [160] Maes, J., Hayne, M., González, Y., González, L., Fuster, D., García, J. M., and Moshchalkov, V. V. Confinement in self-assembled InAs/InP quantum wires studied by magneto-photoluminescence. *Physica E* **21**, 261 (2004).
- [161] Runge, E. and Zimmermann, R. *Phys. Stat. Sol. (b)* **206**, 167 (1998).
- [162] Savona, V., Haacke, S., and Deveaud, B. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 183 (1999).
- [163] Jahn, U., Ramsteiner, M., Hey, R., and Grahn, H. T. *Phys. Rev. B* **56**, R4387 (1997).
- [164] Tersoff, J., Teichert, C., and Lagally, M. G. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1675 (1996).

Lista de Publicaciones

- [1] Alén, B., Martínez-Pastor, J., García-Cristóbal, A., González, L., and García, J. M. Optical transitions and excitonic recombination in InAs/InP self-assembled quantum wires. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 4025 (2001).
- [2] Alén, B., Martínez-Pastor, J., González, L., García, J. M., Molina, S. I., Ponce, A., and García, R. Size filtering effects by stacking InAs/InP (001) self-assembled quantum wires into multilayers. *Phys. Rev. B* **65**, R241301 (2002).
- [3] Alén, B., Biswas, D., Martínez-Pastor, J., García, J., and González, L. Optical properties of self-assembled $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ quantum wires. *Phys. Stat. Sol. (a)* **190**, 763 (2002).
- [4] Martínez-Pastor, J., Bosch, J., Biswas, D., Alén, B., García, J., and González, L. Exciton recombination in self-assembled InAs/GaAs small quantum dots under an external electric field. *Phys. Stat. Sol. (a)* **190**, 599 (2002).
- [5] Martínez-Pastor, J., Alén, B., Rudamas, C., Roussignol, P., García, J., and González, L. Vertical stacks of small InAs/GaAs self-assembled dots: Resonant and non-resonant excitation. *Physica E* **17**, 46 (2003).
- [6] Alén, B., Bickel, F., Karrai, K., Warburton, R. J., and Petroff, P. M. Stark-shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **83**, 2235 (2003).
- [7] Alén, B., Karrai, K., Warburton, R. J., Bickel, F., Petroff, P. M., and Martínez-Pastor, J. Absorption spectroscopy of single self-assembled quantum dots. *Physica E* **21**, 395 (2004).

- [8] Högele, A., Alén, B., Bickel, F., Warburton, R. J., Petroff, P. M., and Karrai, K. Exciton fine structure splitting of single InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Physica E* **21**, 175 (2004).
- [9] Alén, B., et al. Bound and free excitons in negatively charged self-assembled quantum rings. To be published (2004).
- [10] Alén, B., et al. Continuum and discrete optical transitions in single self-assembled quantum rings. To be published (2004).
- [11] Alén, B., et al. Optical stark shift of single excitons in self-assembled InAs quantum dots. To be published (2004).
- [12] Alén, B., et al. An electronically driven single quantum dot interferometer. To be published (2004).

Agradecimientos

Llega el momento de mirar hacia atrás y agradecer su ayuda a los que me han acompañado en este periplo. Dado que este trabajo no habría sido posible sin la atenta dirección de mi tutor, Dr. Juan Martínez Pastor, es a él a quién primero agradezco su apoyo constante y paciencia. Le agradezco especialmente la confianza que ha depositado en mi, no escatimando cuantos recursos fueran necesarios para llevar a cabo esta investigación, que han sido muchos. No puedo dejar de agradecerle también la fraternidad con que me ha tratado a lo largo de los muchos años ya, en que nos conocemos.

En segundo lugar, quiero agradecer a mis compañeros en el Instituto de Ciencia de Materiales, José Bosch, David Fuster, Jordi Gomis, Dra. Laura Martín y Dr. José Luis Valdés el haberme ayudado a superar con éxito este período y el haber escuchado cuantas ideas peregrinas pudiesen ocurrírseme. Ellos han hecho ameno el día a día durante este tiempo. También me gustaría agradecer especialmente a Jose Llorens las largas horas de discusión y buenos ratos compartidos durante estos años. No puedo dejar de mencionar aquí a antiguos compañeros como Dr. Carlos Rudamas, Dra. Gemma Martínez, Jorgelina Carballo, Joedmi Pereira y Dr. Eduardo Moya, que aunque ahora se encuentren lejos su recuerdo sigue vivo en mi. Muchos otros compañeros del ICMUV y del departamento han compartido conmigo buenos y malos momentos durante este tiempo, sirva este reconocimiento para todos ellos.

A los miembros del grupo del Dr. Khaled Karrai, Florian Bickel, Alex Hoegele, Dr. Christian Schulhauser y a él mismo, les agradezco especialmente el afectuoso trato que me dispensaron en su laboratorio en Munich, así como el haberme invitado a compartir el estimulante ambiente científico que han creado a su alrededor.

También quiero agradecer su apoyo a los miembros del Instituto de Microelec-

trónica de Madrid, Daniel Granados, Jorge García y Luisa González, sin su buen hacer esta tesis no habría sido la misma. Incluyo también aquí a nuestros compañeros de la Universidad de Cádiz, S. I. Molina y compañía, que han brindado su labor de caracterización estructural en algunos aspectos de este trabajo.

Al personal técnico y administrativo del Instituto y del Departamento de Física Aplicada les agradezco su disponibilidad y competencia profesional en todo momento.

Por último agradezco a mi familia y amigos el haber aceptado durante este período que tiempo de laboratorio dividido por tiempo de ocio tiene una singularidad de primera especie en t igual siempre. A M^a Carmen, gracias por seguir queriéndome a pesar de ello.

Gracias a todos

BAM

Valencia, 23 de Abril de 2004