

Universidade Federal de Minas Gerais
Instituto de Ciências Exatas
Departamento de Física

Éxcitons em poços quânticos
acoplados de InGaAs/InGaAlAs

Daniel Cunha Elias

Orientador: Prof. Paulo Sérgio Soares Guimarães

Co-orientador: Prof. Luiz Alberto Cury

Março de 2005.

Daniel Cunha Elias

***Éxcitons em poços quânticos
acoplados de InGaAs/InGaAlAs***

Orientador: Prof. Paulo Sérgio Soares Guimarães

Co-orientador: Prof. Luiz Alberto Cury

*Dissertação apresentada à Universidade Federal de Minas
Gerais como requisito parcial para obtenção do grau de
MESTRE EM FÍSICA.*

Belo Horizonte, Março de 2005.

Agradecimentos

Antes de iniciar esta dissertação, gostaria de agradecer às pessoas e às entidades que foram importantes para a realização deste trabalho, bem como foram importantes ao longo desse período em que cursei meu mestrado.

Primeiramente ao meu orientador Paulo Sérgio que vem sendo um amigo e orientador desde meu período de graduação. Ao meu co-orientador Luiz Cury, especialista nesse assunto, com quem tive a oportunidade de aprender bastante sobre as técnicas ópticas, os tratamentos experimentais aplicados e cálculos teóricos desenvolvidos. Ao meu colaborador Marcelo Valadares que iniciou este trabalho em seu projeto de mestrado dissertando sobre ele em maio de 2004, atuando, muitas vezes, como um co-orientador. Aos colaboradores de Londrina, Ivan F.L. Dias, José Leonil Duarte e Luiz Carlos Poças, que nos forneceram amostras e permitiram que trabalhássemos no assunto simultaneamente com eles.

Um agradecimento especial aos professores Alaor Chaves e Flávio Plentz, por terem me co-orientado em meus primeiros projetos de mestrado intitulados “*Violação das relações de Onseager em sistemas fractais*” e “*Foto-controle da densidade de portadores de cargas em gases de elétrons bidimensionais*”. Infelizmente ambos trabalhos se demonstraram relativamente muito complicados para serem concluídos durante o período de mestrado, mas a interação com estes professores foi bastante relevante para a minha formação acadêmica, profissional e pessoal.

Aos professores e amigos Elmo, Sampaio, Chacham, Ricardo, Mario Sérgio, Wagner Nunes, dentre outros, que em conversas informais e formais contribuíram para esse trabalho com informações úteis, além de terem fornecido referências para o trabalho. Ao Clóvis, por ter perdido parte de seus finais de semana garantindo hélio líquido para a realização das medidas, e a toda equipe técnica e administrativa que compõem o nosso departamento.

Às agencias financiadoras CNPq, CAPES e FAPEMIG

Aos meus amigos, colegas.

Ao meu pai e minha mãe e meu irmão, fundamentais para mim em minha vida e em meu trabalho. Aos meus familiares.

E ao Senhor meu Deus, pois sem Ele nada em minha vida seria possível.

Resumo

Neste trabalho, foram feitas medidas de magnetofotoluminescência até 12 T, em temperaturas de 2 K a 100 K, em uma amostra que consistia em uma estrutura do tipo poço quântico simples e em três estruturas de poços quânticos duplos acoplados de InGaAs/InGaAlAs, crescidos por epitaxia por feixe molecular sobre um mesmo substrato de InP, com o intuito de determinar a dimensionalidade efetiva α , a energia de ligação E_b e a massa efetiva dos éxcitons μ nesses sistemas. Como as medidas de magneto-fotoluminescência são realizadas de forma simultânea nas quatro estruturas, variações experimentais indesejadas na comparação dos dados são evitadas. Através de ajustes auto-consistentes da posição dos picos de luminescência em função do campo magnético, determinamos experimentalmente os valores para α , μ e E_b em cada uma das estruturas. Utilizando um método analítico, calculamos E_b teóricamente, corrigindo a energia de ligação de um éxciton tridimensional pelo fator $\left[2/(\alpha-1)\right]^2$, onde $2 \leq \alpha \leq 3$ é determinado pelo confinamento efetivo das funções de onda de elétrons e buracos. A comparação entre os resultados teóricos e experimentais para os diferentes poços quânticos permite verificar como o acoplamento entre os poços quânticos afeta os valores de μ e E_b para o sistema InGaAs/InGaAlAs.

Abstract

In this work, we performed magnetophotoluminescence measurements up to 12 T in the temperature range of 2 K to 100 K in a sample composed by a single quantum well and in three double quantum wells made of InGaAs/InGaAlAs grown on a InP substrate by molecular beam epitaxy. Our aim was the quantification of the effective dimensionality α , the binding energy E_b and the effective mass μ of the excitons. The measurements were made in the four structures simultaneously, thus avoiding unwanted experimental variations when comparing the data. Through a self-consistent fit of the luminescence peaks as a function of the magnetic field, we determined the values for α , μ and E_b for each structure. The binding energies were calculated theoretically through an analytic method which corrects the tridimensional exciton binding energy by a factor $[2/(\alpha-1)]^2$, where $2 \leq \alpha \leq 3$ is determined by the effective confinement of the electrons and holes wavefunctions. Comparison between the theoretical and experimental results for the different quantum wells has enabled us to check how the coupling of the wells affects the values of μ and E_b for the InGaAs/InGaAlAs system.

Índice

Capítulo 1 – Introdução	pág. 01
1.1 – Referências ao Capítulo 1	pág. 04
Capítulo 1 – Éxcitons em poços quânticos	pág. 05
2.1 – Éxcitons de Wannier	pág. 06
2.2 – Hamiltoniano de Kohn-Luttinger	pág. 10
2.3 – Método analítico para o cálculo da energia de ligação de éxcitons	pág. 13
2.4 – Éxcitons na presença de campos magnéticos	pág. 22
2.5 – Referências ao Capítulo 2	pág. 28
Capítulo 3 – Cálculos das energias de ligação de éxcitons confinados em poços quânticos de InGaAs/InGaAlAs	pág. 31
3.1 – Descrição das heteroestruturas	pág. 32
3.2 – Parâmetros dos materiais	pág. 35
3.3 – Níveis de energia em SQW	pág. 38
3.4 – Níveis de energia em DQW	pág. 43
3.5 – Cálculos das energias de ligação dos éxcitons confinados em SQW e DQW, utilizando o método MLC	pág. 47
3.6 – Referências ao Capítulo 3	pág. 52
Capítulo 4 – Determinação da energia de ligação de éxcitons confinados em SQW e DQW de InGaAs/InGaAlAs	pág. 53
4.1 – O Experimento	pág. 54
4.2 – Análise das curvas de magneto-fotoluminescência	pág. 58
4.3 – Resultados	pág. 64
4.4 – Comparação entre cálculos teóricos e os resultados experimentais	pág. 67
4.5 – Referências ao Capítulo 4	pág. 70
Capítulo 5 – Conclusão	pág. 71
5.1 – Referências ao Capítulo 5	pág. 75

Capítulo 1

Introdução

Estruturas de poços quânticos fabricados com materiais semicondutores são hoje rotineiramente utilizadas para a fabricação de dispositivos opto-eletrônicos como lasers, diodos e fotodetectores. Dentre essas, as estruturas baseadas em camadas alternadas de InGaAs/InGaAlAs são especialmente importantes para a fabricação de dispositivos que operam em comprimentos de onda, acima de 1 μm . Essa faixa do espectro eletromagnético é importante tecnologicamente principalmente porque inclui os comprimentos de onda de 1,3 μm e 1,55 μm , correspondentes a mínimos de absorção em fibras ópticas. Um grande número de dispositivos baseados nessa heteroestrutura, como lasers, moduladores de alta velocidade e detectores, vêm sendo descritos na literatura nos últimos anos.

Paradoxalmente, apesar de todo esse interesse, pouco se sabe ainda sobre as características físicas fundamentais dessas estruturas. Parâmetros como massa efetiva e energia de ligação de éxcitons, fundamentais para a perfeita compreensão do comportamento óptico dos dispositivos, ainda não são conhecidos com precisão. A maior parte dos trabalhos publicados sobre estruturas de poços quânticos de InGaAs/InGaAlAs se dedicam ao desenvolvimento de dispositivos e não investigam em detalhes as propriedades físicas dos materiais envolvidos.

Paralelamente, existe interesse em quantificar a dimensionalidade efetiva de portadores de carga confinados em super-redes e poços quânticos, simples ou acoplados. Em geral, cálculos da energia de ligação de éxcitons confinados em estruturas tipo poços quânticos são tediosos e complexos¹⁻⁴, mas podem ser simplificados se a energia de ligação do éxciton em um cristal volumétrico (*bulk*) for corrigida por um fator $[2/(\alpha-1)]^2$, onde $1 \leq \alpha \leq 3$ determina a dimensionalidade efetiva do éxciton⁵, podendo assumir valores fracionários. Em 1992, Mathieu, Lefebvre e Christol⁶ propuseram um método simples e analítico para determinar o valor de α em função da largura do poço (L_w) em sistemas de poços quânticos simples (SQW). Com este método é possível determinar a dependência de E_b em função de L_w , tendo uma

imagem de como a massa reduzida efetiva varia na mesma situação. Mais tarde, utilizando o mesmo formalismo, Zhao et al.⁷ aproximaram uma estrutura de poços quânticos duplos acoplados (DQW) de uma estrutura SQW de largura $L_{w,eff}$, podendo assim determinar α , E_b e μ em função da largura da barreira de acoplamento (L_b) e de L_w .

Neste trabalho estão sendo estudadas uma estrutura SQW e três estruturas DQW de InGaAs/InGaAlAs, com o intuito de determinar a dimensionalidade efetiva, a energia de ligação e a massa efetiva dos éxcitons nesses sistemas. Essas características são estudadas em função da temperatura, na faixa de 1 K a 100 K, utilizando magnetofotoluminescência.

As heteroestruturas investigadas neste trabalho foram crescidas por epitaxia por feixe molecular (MBE) sobre o mesmo de substrato de InP, ou seja, as quatro estruturas compõem uma única amostra. Assim, as medidas de fotoluminescência e magnetofotoluminescência são realizadas de forma simultânea nas quatro estruturas, evitando-se variações experimentais indesejadas na comparação dos dados. As amostras foram crescidas pelo grupo do Prof. Ivan F. L. Dias, da Universidade Estadual de Londrina, em colaboração com o Prof. Jean-Christophe Harmand, do Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS., França. O poço quântico simples é formado por uma camada de InGaAs de 10 nm de espessura colocada entre duas camadas espessas (30 nm) de InGaAlAs. As amostras de poços acoplados são construídas de forma a se ter dois poços de largura L_w separados por uma barreira de potencial com largura L_b tal que $L_w + L_b + L_w = 10$ nm.

Realizamos medidas de fotoluminescência e magneto-fotoluminescência, em campos magnéticos até 12 T, na faixa de temperatura entre 1,5 K e 100 K, nessas amostras. O campo magnético foi aplicado paralelo à direção de crescimento e a posição dos picos de luminescência correspondentes à recombinação excitônica em cada poço foi acompanhada, para cada temperatura, em função do campo magnético aplicado. A energia de recombinação varia em função do campo magnético apresentando dois

regimes. Um regime de campo fraco⁸, e outro de campo magnético campo intenso⁹. Ajustes auto-consistentes determinam quais os melhores valores para α , μ e E_b que ajustam as curvas de magnetofotoluminescência em ambos regimes, para cada uma das estruturas. Para os ajustes auto-consistentes foi utilizado um método semelhante ao desenvolvido por Valadares¹⁰.

Realizamos cálculos teóricos da dimensionalidade efetiva e da energia de ligação de éxcitons, utilizando o método de Mathieu, Lefebvre e Christol⁶ e de Zhao et al.⁷, para as estruturas estudadas experimentalmente. Esses cálculos mostram boa concordância com os valores determinados experimentalmente. A comparação entre os resultados para os diferentes poços duplos permite verificar como o acoplamento afeta os valores de massa efetiva e energia de ligação dos éxcitons para o sistema InGaAs/InGaAlAs. Demonstramos também que a inclusão de efeitos de não-parabolicidade é importante para a descrição correta dos resultados experimentais.

1.1 – Referências ao Capítulo 1

1. G. Bastard, E. E. Mendez, L. L. Chang and L. Esaki, Phys. Rev. B **26**, 1974 (1982).
2. R. L. Greene, K. K. Bajaj and D. E. Phelps, Phys. Rev. B **29**, 1807 (1984).
3. L. C. Andreani and A. Pasquarello, Phys. Rev. B **42**, 8928 (1990).
4. J. Cen and K. K. Bajaj, Phys. Rev. B **46**, 15280 (1992).
5. X. F. He, Phys. Rev. B **43**, 2063 (1991).
6. H. Mathieu, P. Lefebvre and P. Christol, Phys. Rev. B **46**, 4092 (1992).
7. Q. X. Zhao, B. Monemar, T. Westgaard, B. O. Fimland and K. Johannessen, Phys. Rev. B **50**, 4476 (1992).
8. M. Sugawara, Phys. Rev. B **45**, 11 423 (1992).
9. D. C. Rogers, J. Singleton, R. J. Nicholas, C. T. Foxon, and K. Woodbridge, Phys. Rev. B **34**, 4002 (1986).
10. **M. Valadares**, Magneto-éxcitons em super-redes de InAlAs/InGaAs, dissertação de mestrado, Universidade Federal de Minas Gerais, maio 2004.

Capítulo 2

Éxcitons em poços quânticos

Materiais semicondutores intrínsecos possuem, em $T = 0$ K, uma banda de valência completamente cheia e uma banda de condução completamente vazia, separadas por uma região de banda proibida (*gap*) de energia E_g de aproximadamente 1 eV. Com isso, ao excitarmos esse sistema com fótons de energia $\hbar\omega > E_g$, elétrons na banda de valência são transferidos para a banda condução criando “buracos” na banda de valência. Esses buracos e elétrons interagem entre si via um potencial de atração coulombiano e constituem uma excitação fundamental do material. Na maioria dos materiais semicondutores, em primeira aproximação, esse par elétron-buraco pode ser tratado por um modelo do tipo átomo hidrogenóide, sendo, nesse caso, conhecido como éxciton de Wannier. Esse modelo constitui uma boa aproximação para se descrever as excitações fundamentais em poços quânticos do tipo I, formados por heteroestruturas de materiais semicondutores III-V.

2.1 – Éxcitons de Wannier

O modelo de éxcitons, proposto primeiramente por Frenkel¹, consiste em se descrever a dinâmica de pares elétron-buraco, foto-gerados por radiação com energia aproximadamente igual a E_g , por meio de excitações de átomos individuais movendo-se no cristal devido às interações interatômicas. Porém, em um semiconductor de *gap* direto e constante dielétrica alta, ao considerarmos um elétron de massa efetiva M_e e carga $-q_0$ na banda de condução, em um meio de constante dielétrica ε , interagindo via um potencial coulombiano com um buraco de massa efetiva M_h e carga $+q_0$ na banda de valência, vemos que o raio médio desse hidrogenóide é muito maior que o parâmetro de rede do material (q_0 é a constante fundamental de carga). Nesse caso, o modelo de éxcitons de Wannier² proporciona uma descrição melhor. No modelo de Wannier, toda a interação com a rede cristalina está embutida no valor de massa reduzida efetiva μ do éxciton dentro de um meio de constante dielétrica ε , o que o torna bem mais simples e atrativo. A massa reduzida efetiva μ do éxciton é dada por:

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{M_e} + \frac{1}{M_h}. \quad (2.1)$$

Para as estruturas de poços quânticos nas quais estamos interessados neste trabalho, o modelo de éxcitons de Wannier fornece uma boa descrição para as excitações fundamentais.

Consideremos aqui camadas intercaladas de diferentes materiais semicondutores de parâmetros de rede praticamente iguais, mas que possuem valores de *gap* diferentes. Ao colocarmos uma fina camada de material com o *gap* menor entre camadas de outro material semiconductor de *gap* maior, daremos origem a um sistema de poço quântico quadrado finito, onde a estreita camada de *gap* menor caracteriza uma região de menor energia potencial e, portanto, de confinamento para elétrons e/ou buracos. Parte da descontinuidade entre as bandas adjacentes configura o potencial na banda de valência e parte configura o potencial na banda de condução. As estruturas que apresentam poços quânticos para elétrons e buracos na mesma região espacial são conhecidas como sendo do tipo I. Uma estrutura do tipo II (ver figura 2.1) é

caracterizada pela presença de um poço quântico na banda de condução e de uma barreira de potencial na banda de valência numa mesma região do espaço. Neste segundo caso, os elétrons estão confinados enquanto os buracos estão delocalizados ao longo da estrutura. No primeiro caso, entretanto, ambos ficam confinados na mesma região espacial, o que aumenta a interação entre eles.

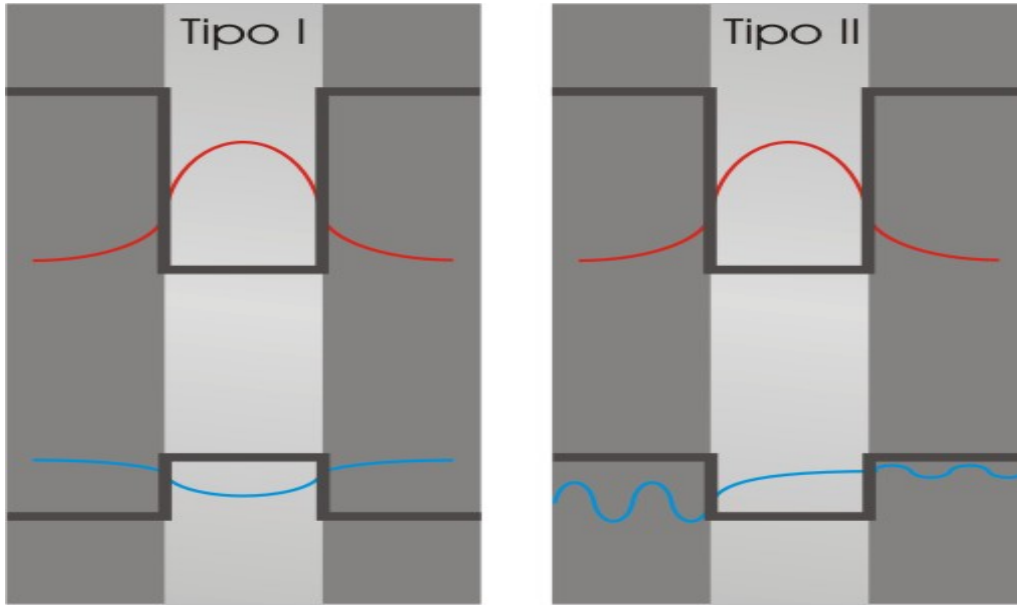


Figura 2.1 – Poço quântico tipo I: elétrons (função de onda esquemática em vermelho) e buracos (função de onda esquemática em azul) confinados em poços localizados na mesma região espacial. Poço quântico tipo II: elétrons confinados em um poço na banda de condução e buracos delocalizados fora da barreira na banda de valência. O material representado pelo tom mais escuro de cinza tem um valor de energia de *gap* maior que o representado em tom cinza claro.

Em nosso trabalho, vamos utilizar estruturas de poços quânticos tipo I, onde elétrons na banda de condução e buracos na banda de valência estão confinados na mesma região espacial. Nesse caso, dado o confinamento nas duas bandas, há níveis de energia quantizados tanto para elétrons quanto para buracos. Além disso, temos a interação entre as duas partículas, o que pode ser descrito na forma de um potencial de atração Coulombiano $-q_0 / \epsilon \epsilon_0 r$, em um meio de constante dielétrica ϵ . Esse problema é separável nas coordenadas de centro de massa e em coordenadas relativas^{3, 4}. Utilizando o modelo de éxcitons de Wannier, o Hamiltoniano do sistema apresenta-se na forma:

$$H = H_e + H_h + H_x, \quad (2.2)$$

onde $H_{e(h)}$ é o Hamiltoniano referente ao confinamento dos elétrons (buracos), cujas soluções são autovalores e autovetores dessas partículas em poços quânticos quadrados finitos^{3,4,5}. Já H_x está relacionada apenas ao potencial atrativo e descreve um átomo hidrogenóide de massa μ , dada pela equação (2.1).

A equação de autovalores do sistema é, portanto,

$$H\Psi = (E_T - E_g)\Psi, \quad (2.3)$$

onde E_T é a energia de recombinação do éxciton e E_g é o *gap* de energia do material do poço quântico, ou seja,

$$E_T = E_g + E_e + E_h + E_x. \quad (2.4)$$

As energias E_e e E_h são as energias de confinamento de elétrons e buracos, respectivamente, e os autovalores de E_x , resolvendo-se a equação de Schrodinger para um átomo hidrogenóide de massa reduzida μ , são dados por:

$$E_x = \frac{-E_b}{n^2}, \quad (2.5)$$

onde n é o índice do auto-estado do éxciton (número quântico principal) e E_b é a energia de ligação do éxciton. Considerando o caso de um material volumétrico (*bulk*), o valor de E_b pode ser obtido pela expressão

$$E_b = E_0 = \frac{\mu}{2\hbar^2} \left(\frac{q_0^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \right)^2 = \frac{\mu}{M_0\epsilon^2} \times 13,6 \text{ eV}, \quad (2.6)$$

ou seja, temos a energia de ligação do átomo de hidrogênio corrigida pelos parâmetros μ e ϵ do material (M_0 é a constante de massa fundamental do elétron).

Em nossas medidas de fotoluminescência, a serem apresentadas no Capítulo 4, observamos a emissão de luz que corresponde à energia de transição excitônica fundamental. Sendo assim, a expressão mais adequada para a energia de transição a ser considerada é dada por:

$$E_T = E_g + E_e + E_h - E_0, \quad (2.7)$$

onde E_0 corresponde à maior energia de ligação do éxciton. Além da energia de ligação do éxciton (autovalor de energia associado ao auto-estado fundamental da interação), outro importante resultado que temos é o raio de Bohr efetivo:

$$a_0^* = \frac{4\pi\epsilon\epsilon_0\hbar^2}{\mu q_0^2} = \frac{M_0\epsilon}{\mu} \times 0,529 \times 10^{-10} \text{ m}, \quad (2.8)$$

que é o valor esperado do raio do auto-estado fundamental do éxciton no *bulk*, também interpretado como o valor do raio de Bohr para o átomo de hidrogênio corrigido pelos parâmetros do material.

2.2 – Hamiltoniano de Kohn-Luttinger

Introduzido o problema da interação do par elétron-buraco, segundo o modelo de Wannier, torna-se necessário apresentar alguns problemas que dificultam os cálculos da energia de ligação desses éxcitons quando confinados em poços quânticos formados por heteroestruturas semicondutoras. Primeiramente, devemos levar em consideração os efeitos de anisotropia de massa e de degenerescência de *spins* dos buracos na banda de valência de materiais cujas estruturas são do tipo diamante ou *zinc-blend*⁶. Sendo a massa efetiva obtida a partir da derivada segunda da relação de dispersão $E(K)$ na primeira zona de Brillouin, seu valor, principalmente para os buracos (devido à significativa anisotropia da banda de valência em semicondutores com estrutura *zinc-blend*), será diferente quando considerarmos diferentes orientações cristalinas. Assim, tal qual foi demonstrado por Kohn e Luttinger⁷, o Hamiltoniano de um buraco livre na banda de valência deve ser descrito na forma de uma matriz de sexta ordem, de onde é possível obter a correção para massa efetiva ao longo de qualquer uma das direções cristalinas. Consequentemente, o Hamiltoniano do éxciton também deve considerar esses efeitos de anisotropia. Baseando-se nisso, Baldereschi e Lipari⁸ descreveram a dinâmica de um éxciton livre na forma de uma matriz de oitava ordem, onde no primeiro subespaço 6x6 da matriz inserem-se os elementos relacionados aos efeitos de anisotropia e de degenerescência de spins. Os elementos de matriz adicionais referem-se aos efeitos de não-parabolicidade dos elétrons na banda de condução⁸. Este é o caso em que os elétrons encontram-se com energia suficiente para que não possamos mais considerar a aproximação parabólica da banda de condução na região próxima da transição. Entretanto, como primeira aproximação, podemos considerar a banda de condução como sendo parabólica e introduzir os efeitos de não-parabolicidade através de fatores de correção⁹. Estas correções podem ser significativas quando confinamos os éxcitons em poços quânticos bem estreitos.

Considerando os efeitos descritos acima, a solução para o problema de éxcitons confinados em poços quânticos se torna bastante complicada e tediosa. Várias aproximações, no entanto, têm sido introduzidas no intuito de simplificar o problema.

Primeiro, para estabelecermos de maneira inequívoca as direções de confinamento, introduzimos a direção de crescimento z . Esta é a direção perpendicular à superfície do substrato, sobre a qual são depositadas as camadas dos diferentes materiais que compõem a hetero-estrutura. Como estamos trabalhando com materiais cuja direção z representa a direção $[1\ 0\ 0]$ do espaço recíproco, temos que a massa efetiva do buraco ao longo de z é¹⁰:

$$\frac{1}{M_{h\pm}^{(z)}} = \frac{\gamma_1 \mp 2\gamma_2}{M_0}, \quad (2.9)$$

onde $M_{h+}^{(z)}$ é a massa dos buracos pesados com momento angular total igual a $J = 3/2$, e $M_{h-}^{(z)}$ é a massa dos buracos leves com momento angular total igual a $J = 1/2$. Os parâmetros γ_1 e γ_2 são conhecidos como os parâmetros de Luttinger, obtidos a partir da solução do Hamiltoniano de Kohn-Luttinger^{7,10}.

Para um éxciton de natureza tridimensional, a parte do Hamiltoniano responsável pela anisotropia pode ser desconsiderada, e a massa do éxciton pode ser escrita na forma¹¹:

$$\frac{1}{\mu^{(3D)}} = \frac{1}{M_e} + \frac{\gamma_1}{M_0}. \quad (2.10)$$

Para um éxciton com caráter bidimensional, ou seja, completamente confinado em um plano perpendicular a z , sua massa reduzida pode ser obtida ao desconsiderarmos os termos fora da diagonal principal da matriz de Kohn-Luttinger¹², obtendo-se

$$\frac{1}{\mu_{\pm}^{(2D)}} = \frac{1}{M_e} + \frac{\gamma_1 \pm \gamma_2}{M_0}. \quad (2.11)$$

Um fato curioso nessa expressão é que, quando confinado em um plano 2D, perpendicular a z , a massa reduzida do éxciton de buraco leve é maior que a massa

reduzida de um éxciton de buraco pesado. Com isso, a massa efetiva dos buracos 2D torna-se próxima da massa efetiva dos elétrons na banda de condução.

No entanto, a correção da massa efetiva devido aos efeitos de não-parabolicidade na banda de condução, este é um problema bem mais complicado de se resolver. Os efeitos de não-parabolicidade são, em geral, significativos apenas para o elétron. Neste caso, vamos introduzir apenas a correção de primeira ordem, tal qual fora proposto por Ekemberg⁹, para as massas efetivas do elétron ao longo da direção de crescimento, $M_e^{(z)}$, e no plano perpendicular à direção de crescimento, $M_e^{(2D)}$:

$$M_e^{(z)} \simeq M_e (1 + \alpha' E_c) \quad (2.12a)$$

e

$$M_e^{(2D)} \simeq M_e [1 + (2\alpha' + \beta') E_c], \quad (2.12b)$$

onde E_c é definido como a energia do elétron a partir do extremo da banda de energia.

Nas duas equações acima, os parâmetros α' e β' são parâmetros de correção de primeira ordem para a massa efetiva de elétrons na banda de condução sob efeitos de não-parabolicidade. Estes são determinados para cada material ou heteroestrutura pelo método $\vec{k} \cdot \vec{p}$ de cálculo^{9,10}. Os valores de massa efetiva corrigidos, tanto na direção de crescimento, quanto no plano paralelo a ela, dependem da energia de confinamento do elétron no sistema.

2.3 – Método analítico para o cálculo da energia de ligação de éxcitons

Devido aos problemas relacionados com a anisotropia das massas de elétrons e buracos, os cálculos das energias de ligação de éxcitons confinados em poços quânticos são, em geral, bastante complicados, além de necessitarem de métodos computacionais relativamente complexos. Os métodos variacionais que fazem uso da matriz de Kohn-Luttinger podem descrever o comportamento de um éxciton em função do confinamento, entretanto, torna-se necessário utilizar aproximações que, apesar de facilitarem os cálculos, produzem resultados um pouco fora da realidade, como descreveremos abaixo.

Em primeira aproximação, consideravam-se poços quânticos infinitos para fazer os cálculos de energia de ligação de éxcitons¹³. Nesse caso a função de onda do elétron e do buraco e, portanto, a função de onda do éxciton fica inteiramente confinada dentro do poço. Dessa forma, as diferenças de massa efetiva e de constante dielétrica entre as camadas constituintes das regiões de barreiras e a região do poço não eram consideradas. Modelos teóricos posteriores, entretanto, passaram a utilizar métodos com menor rigor numérico e com um caráter mais realista, utilizando barreiras finitas e parâmetros dos materiais componentes das heteroestruturas de semicondutores. Para esses casos, a aproximação mais simples foi proposta por Greene et al.¹² que realizaram cálculos de energia de ligação de éxcitons em poços quânticos desconsiderando os termos fora da diagonal da matriz de Kohn-Luttinger e utilizando a aproximação parabólica para a banda de condução. Nessa aproximação, assim como em poços infinitos, os parâmetros do éxciton são os mesmos do material que compõem o poço. Cálculos mais sofisticados levam em consideração outros efeitos, como a diferença, entre o poço e a barreira, da constante dielétrica¹⁴, das massas efetivas¹⁵ dos buracos e dos elétrons, e até mesmo os efeitos da não-parabolicidade da banda de condução¹⁶.

Contudo, uma nova idéia de cálculo aparece quando He¹⁷, baseando-se no trabalho de Stillinger¹⁸, propõe que o efeito do confinamento pelos poços quânticos pode ser tratado em termos do grau de anisotropia da função de onda. Assim, ele introduz uma dimensionalidade efetiva α para o sistema, que pode assumir qualquer

valor real no intervalo $1 \leq \alpha \leq 3$. Neste caso, para encontrarmos os autovalores de energia do éxciton, devemos resolver a equação de Schroedinger para um átomo hidrogenóide,

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\alpha D}^2 - \frac{q_0^2}{\epsilon \epsilon_0 r} \right] \psi(r) = E_x \psi(r), \quad (2.13)$$

onde o grau de anisotropia é incorporado ao sistema na forma de uma dimensão efetiva no Laplaciano $\nabla_{\alpha D}$ proposto por Stillinger:

$$\nabla_{\alpha D}^2 = \frac{1}{r^{\alpha-1}} \frac{\partial}{\partial r} \left[r^{\alpha-1} \frac{\partial}{\partial r} \right] - \frac{l^2}{\hbar^2 r^2}, \quad (2.14)$$

onde

$$l^2 = -\frac{\hbar^2}{\sin^{\alpha-2}(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[\sin^{\alpha-2}(\theta) \frac{\partial}{\partial \theta} \right]. \quad (2.15)$$

Resolvendo-se a equação (2.13) temos que os autovalores de energia associados a um sistema de dimensionalidade efetiva α são:

$$E_n = \left[n + \frac{\alpha-3}{2} \right]^{-2} E_0, \quad (2.16)$$

onde E_0 é a energia de ligação para um éxciton 3D e seu valor está descrito na equação (2.6).

A energia de ligação é o nível fundamental do éxciton, ou seja:

$$E_b = \left[\frac{2}{\alpha-1} \right]^2 E_0 \quad (2.17)$$

Do mesmo modo, podemos obter o valor do raio médio para cada orbital de um éxciton αD , que é dado por

$$a_n = \left[n + \frac{\alpha - 3}{2} \right]^2 a_0^*, \quad (2.18)$$

onde a_0^* é o raio de Bohr efetivo de um éxciton $3D$, descrito na equação (2.8). Assim, o valor médio do raio do éxciton para um sistema αD , em seu estado fundamental é:

$$a_b = \left[\frac{\alpha - 1}{2} \right]^2 a_0^*. \quad (2.19)$$

Sendo assim, basta determinar o valor de α para termos a energia de ligação dos éxcitons confinados em poços quânticos. Uma proposta para determinar o parâmetro α foi formulada por Mathieu, Lefebvre e Christol¹⁹ (MLC), que calcularam a energia de ligação de éxcitons confinados em poços quânticos infinitos e finitos, utilizando um método analítico muito simples de ser implementado. Comparando seus resultados com outros resultados teóricos e também resultados experimentais, conclui-se que a aproximação utilizada no método MLC é boa para descrever a ação do confinamento do sistema na energia de ligação do éxciton.

O método MLC consiste, primeiramente, em se obter os níveis de energia em poços de largura L_w e com altura de potencial V_e e V_h na banda de condução e na banda de valência, respectivamente^{3,4,5}. A massa efetiva utilizada para os buracos é a massa $M_{h\pm}^{(z)}$ na direção de confinamento. Fazendo isso obteremos os valores de E_e e E_h , que correspondem aos níveis de energia fundamental nos poços de potencial para elétrons e buracos. Os vetores de onda associados a cada uma das bandas são

$$k_{w,e(h)} = \frac{\sqrt{2M_{w,e(h)}E_{e(h)}}}{\hbar^2}, \quad (2.20a)$$

nas regiões de poços de potencial, e

$$k_{b,e(h)} = \frac{\sqrt{2M_{b,e(h)}(V_{e(h)} - E_{e(h)})}}{\hbar^2}, \quad (2.20b)$$

nas regiões de barreira de potencial.

Com isso, podemos calcular as funções de onda tanto na banda de valência como na de condução e quantificar a penetração das funções de onda nas regiões de barreira de potencial em ambos os casos. Desse modo definimos a grandeza L_w^* que representa a extensão espacial efetiva da função de onda dos elétrons (buracos) ao longo da direção de crescimento. Do ponto de vista analítico, esta pode ser vista como uma largura efetiva do poço, que leva em consideração a penetração nas duas barreiras de potencial, ou seja:

$$L_w^* = \frac{1}{k_b} + L_w + \frac{1}{k_b}, \quad (2.21)$$

onde k_b é a combinação dos vetores de onda do elétron e do buraco, que se encontram em movimento relativo ao centro de massa da interação. Portanto,

$$\frac{1}{k_b} = \frac{1}{k_{be}} + \frac{1}{k_{bh}}. \quad (2.22)$$

Os valores de k_{be} e k_{bh} são obtidos da equação (2.20a), utilizando-se os autovalores de energia para os níveis fundamentais em ambos os poços.

Obtido o valor para L_w^* , devemos, então, compará-lo com valor mais provável do diâmetro do éxciton no *bulk*, que é o dobro do raio de Bohr efetivo. Contudo, é preciso corrigir os valores dos parâmetros dos materiais, devido aos efeitos de não-parabolicidade da banda de condução, e das diferenças de massa efetiva e de constante dielétrica entre os materiais do poço e das barreiras.

Primeiramente deve-se corrigir os valores de massa efetiva dos elétrons na banda de condução devido aos efeitos de não-parabolicidade. Utilizaremos a correção de primeira ordem proposta por Ekemberg⁹, assumindo que os parâmetros α' e β' são os mesmos para poços e barreiras. Com isso, os valores de massa efetiva para poços e barreiras (Eq. 12b) são re-escritos, respectivamente, por

$$M_{ew} \approx M_{ew0} \left[1 + (2\alpha' + \beta') E_e \right] \quad (2.23a)$$

e

$$M_{eb} \approx M_{eb0} \left[1 + (2\alpha' + \beta')(V_e - E_e) \right], \quad (2.23b)$$

onde M_{ew0} e M_{eb0} são os valores de massa na aproximação parabólica, ou seja, valores sem a correção de não-parabolicidade.

Feito isso, temos que corrigir as massas efetivas nas bandas de condução e de valência, Considerando-se que parte da função de onda das partículas envolvidas penetra nas barreiras de potencial da heteroestrutura. Com isso, os valores de massa reduzida do éxciton devem ser uma média dos valores nos diferentes materiais e para obtê-los devemos introduzir os seguintes parâmetros:

$$\beta_e = L_w / (2/k_{be} + L_w) \quad (2.24a)$$

e

$$\beta_h = L_w / (2/k_{bh} + L_w). \quad (2.24b)$$

Usando esses parâmetros, corrigimos os valores de massa efetiva nas duas bandas obtendo:

$$M_e = \beta_e M_{ew} + (1 - \beta_e) M_{eb}, \quad (2.25a)$$

$$\gamma_1 = \beta_h \gamma_{1w} + (1 - \beta_h) \gamma_{1b}, \quad (2.25b)$$

$$\gamma_2 = \beta_h \gamma_{2w} + (1 - \beta_h) \gamma_{2b}, \quad (2.25c)$$

onde M_{ew} e M_{eb} são as massas efetivas do elétron nos poços e nas barreiras, respectivamente. Os parâmetros γ_{1w} , γ_{2w} , γ_{1b} e γ_{2b} são os parâmetros de Luttinger (γ_1 e γ_2) utilizados nos cálculos dos valores de massa efetiva para os buracos, com os sub-índices "w" e "b" indicando, respectivamente, as regiões de poços e barreiras de potencial.

A correção para o efeito da diferença na constante dielétrica é introduzida a partir da média dos valores individuais dos valores de constante dielétrica do poço ϵ_w e da barreira ϵ_b , pesadas pelos valores dos parâmetros dados nas equações (2.24a) e (2.24b), ou seja,

$$\epsilon = \sqrt{\beta_e \beta_h} \epsilon_w + (1 - \sqrt{\beta_e \beta_h}) \epsilon_b. \quad (2.26)$$

Para obtermos o raio de Bohr efetivo 3D corrigido, basta resolvermos a equação (2.8), utilizando a constante dielétrica corrigida, dada pela equação (2.26). Para a massa reduzida, utiliza-se o valor da massa 3D, dado pela equação (2.10), considerando-se os valores de massa corrigidos pelos efeitos de não-parabolicidade na banda de condução e a diferença de massas efetivas.

Com os valores de L_w^* e a_0^* calculados, podemos obter a dimensionalidade efetiva do éxciton a partir da expressão:

$$\alpha = 3 - e^{-L_w^*/2a_0^*}, \quad (2.27)$$

sugerida originalmente por Mathieu, Lefebvre e Christol¹⁹. Esta expressão engloba valores para a dimensionalidade efetiva dos éxcitons que vão desde os de caráter puramente 2D ($L_w^* \ll a_0^*$) até os de caráter puramente 3D ($L_w^* \gg a_0^*$), ou seja, $2 \leq \alpha \leq 3$. Esta faixa de valores cobre o intervalo necessário para descrever um sistema de poços quânticos. O valor de α é também utilizado para calcular a energia de ligação de um éxciton de dimensão αD , dado pela equação (2.17). Neste caso, a massa reduzida também é uma massa α -dimensional, e seu valor é obtido a partir de uma interpolação

entre os valores de massa $3D$, equação (2.10), e de massa $2D$, equação (2.11). Ou seja,

$$\frac{1}{\mu_{\pm}^{(\alpha D)}} = \frac{1}{M_e} + \frac{\gamma_1 \pm (3 - \alpha)\gamma_2}{M_0}. \quad (2.28)$$

Utilizando-se essa metodologia, Mathieu, Lefebvre e Christol¹⁹ obtiveram excelentes resultados em heteroestruturas de GaAs/AlGaAs, em boa concordância com resultados experimentais e de cálculos variacionais e experimentais.

Posteriormente, Zhao et al.²⁰, baseados no método MLC, propuseram uma aproximação para se fazer cálculos analíticos de energia de ligação de éxcitons em estruturas de poços quânticos duplos. Tais estruturas consistiam de dois poços quânticos simples separados por uma estreita barreira feita do mesmo material que as camadas adjacentes às extremidades dos poços. Pelo fato da barreira que isola os poços ser muito estreita as funções de onda das partículas em cada um dos poços se sobrepõem, formando um estado simétrico, nível de menor energia, e um estado anti-simétrico, nível de maior energia. Assim, a aproximação de Zhao et al. consiste em reduzir o problema de poços duplos a um problema de poço simples cujo nível fundamental coincide com o nível simétrico.

Considere dois poços de larguras L_{w1} e L_{w2} , separados por uma barreira de largura L_b . Seja ainda $L_{w1} > L_{w2}$. Podemos aproximar esse sistema de poços duplos por um sistema de poço simples com uma largura efetiva dada por:

$$L_{w,eff} = L_{w1} + L_{w2}e^{-L_b k_b}, \quad (2.29)$$

onde k_b é obtido pela equação (2.22), após resolução da equação de Schroedinger para poços quânticos duplos. Detalhes sobre a solução da equação de poços quânticos simples e duplos serão apresentados no capítulo 3. Assim, para uma barreira excessivamente larga, o acoplamento entre os poços é extremamente pequeno e o sistema passa a ser tratado como um poço simples de largura L_{w1} . Se $L_b = 0$, teremos

um poço quântico simples de largura $L_{w1} + L_{w2}$. Obtidos esses valores, repete-se o método MLC, substituindo-se L_w por $L_{w,eff}$. Neste caso, a comparação com outros resultados da literatura também foi bastante satisfatória.

Estes cálculos foram de grande importância para as nossas conclusões neste trabalho. É uma forma simples de se obter a energia dos éxcitons, principalmente em sistemas de poços quânticos duplos de InP/InGaAs/InGaAlAs, cujos parâmetros disponíveis na literatura são poucos e não são amplamente aceitos. A apresentação de nossos resultados teóricos será feita no capítulo 3. Aqui queremos apenas expor, a título de comparação com resultados da literatura, um de nossos resultados obtidos para sistemas de poços quânticos simples e duplos de GaAs/AlGaAs, conforme mostrado na figura 2.2.

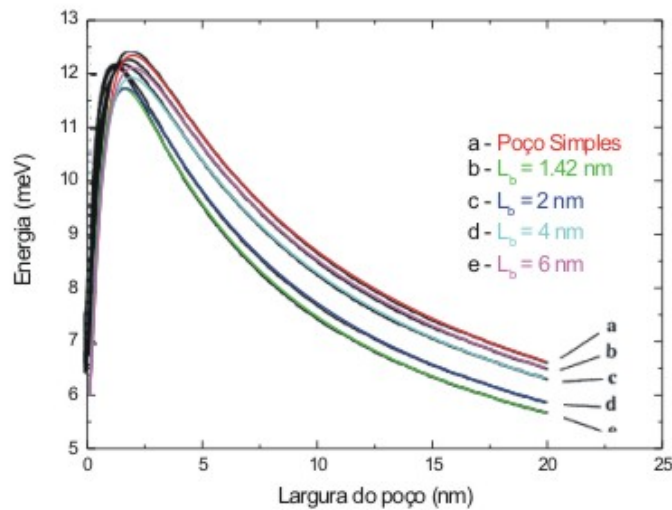


Figura 2.2 – Reprodução dos resultados de Zhao et al.²⁰ (curvas pretas) para a energia de ligação do éxciton em um sistema de poço simples e quatro sistemas de poços duplos de GaAs/AlGaAs. As curvas coloridas foram obtidas por nós utilizando os parâmetros disponíveis na literatura.

Para reconstruir as curvas da figura 2.2 utilizamos os mesmos parâmetros disponíveis na referência 20, entretanto, para os parâmetros de Luttinger do GaAs e do AlGaAs não descritos em Zhao et al.²⁰, utilizamos os valores encontrados em Vurgaftman¹⁰. Deixaremos os detalhes desses parâmetros para serem discutidos no capítulo 3. Contudo, mesmo não tendo o conhecimento dos parâmetros de Luttinger

utilizados por Zhao et al.²⁰, podemos verificar pela figura 2.2 que nossos resultados apresentam uma boa concordância com os resultados desses autores.

2.4 – Éxcitons na presença de campos magnéticos

Calcular analiticamente a energia e a função de onda de éxcitons confinados ou delocalizados na presença de campos magnéticos é um problema complicado, e que demanda a utilização de cálculos variacionais complexos, cuja solução sempre exige aproximações que distanciam os resultados da realidade e/ou a inclusão de parâmetros empíricos que são, em muitos casos, impossíveis de serem calculados teoricamente^{21, 22} e/ou medidos experimentalmente. Contudo, Akimoto e Hasegawa²³ demonstraram que o problema tem solução analítica se considerarmos o éxciton puramente 2D. Neste caso, temos um hidrogenóide totalmente confinado em z , porém livre no plano xy . Como o campo magnético (\vec{B}) atua no Hamiltoniano do sistema modificando a cinética das partículas no plano perpendicular ao de sua direção, temos que, ao aplicarmos \vec{B} paralelo à z , o movimento fica restrito a um plano, no qual a massa reduzida é isotrópica e é conhecida (equação 2.11).

No trabalho de Akimoto e Hasegawa²³, resolver o problema de um éxciton 2D sob a ação de um campo magnético perpendicular a plano xy , consiste em resolver a seguinte equação de autovalores:

$$\left[\frac{1}{2\mu} \left(\vec{p} - \frac{q_0}{2} \vec{B} \times \vec{r} \right) - \frac{q_0^2}{\epsilon \epsilon_0 r} \right] \phi = E \phi, \quad (2.30)$$

onde \vec{p} é o momento relativo entre o elétron e o buraco, \vec{r} é a diferença entre as posições das partículas e $r = |\vec{r}|$.

Como neste problema temos que \vec{B} é perpendicular a \vec{r} , podemos escrever a função de onda ϕ separando-a em coordenadas polares:

$$\phi(r, \varphi) = R(r) \frac{e^{im\varphi}}{\sqrt{2\pi}}, \quad (2.31)$$

onde m é o número quântico que determina o autovalor da componente z de momento angular. Fazendo isso, a equação em termos da coordenada r torna-se:

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu} \left[\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left(r \frac{d}{dr} \right) + \frac{m^2}{r^2} \right] R + \left(-\frac{q_0^2}{\varepsilon\varepsilon_0 r} + \frac{q_0^2 B^2}{8\mu} r^2 \right) R = E_r R. \quad (2.32)$$

A solução deste problema é matematicamente complicada, mas apresenta resultados bastante interessantes para entendermos o problema de éxcitons sob a ação de um campo magnético. Três importantes pontos merecem ser destacados neste trabalho. Vamos considerar o éxciton em seu nível fundamental, portanto $m=0$. Akimoto e Hasegawa resolvem o problema primeiramente na ausência de campo magnético. Neste caso, para um éxciton 2D, sua energia de ligação é 4 vezes maior que a energia de ligação de um éxciton 3D. Ou seja:

$$E_b^{2D} = 4E_0. \quad (2.33)$$

Eles também consideram o termo do potencial que descreve a ação de um campo magnético pequeno suficiente para tratarmos o problema como um problema de perturbação, ou seja, $\hbar\omega_c \ll E_b$, onde ω_c é a frequência natural de cíclotron:

$$\omega_c = \frac{q_0 B}{\mu}, \quad (2.34)$$

que aparece quando reescrevemos a equação (2.32), de forma que possamos tratá-la como um oscilador harmônico de frequência ω_c . O problema tem solução via teoria de perturbação de segunda ordem e descreve um efeito conhecido como deslocamento diamagnético. As auto-energias são:

$$E_{n_l} = -\frac{E_0}{(n_l + 1/2)^2} + \frac{5}{32} \left(n_l + \frac{1}{2} \right)^2 \left[\left(n_l + \frac{1}{2} \right)^2 + \frac{7}{20} \right] \frac{(\hbar\omega_c)^2}{E_0}, \quad (2.35)$$

onde n_l é o nível de Landau que indexa o autovalor de energia ($n_l = 0, 1, 2, \dots$). Substituindo as equações (2.6) e (2.34) na equação (2.35), para $n_l = 0$, que é o autoestado relevante em uma transição óptica, temos que

$$\Delta E_{Dia}^{2D} = \frac{3}{16} \frac{4\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon^2 \hbar^4 B^2}{q_0^2 \mu^3}, \quad (2.36)$$

onde ΔE_{Dia} é o termo referente a segunda parcela a direita da equação (2.35).

Para éxcitons puramente 3D o efeito diamagnético é descrito por uma equação semelhante ($\Delta E_{Dia}^{3D} = 4\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon^2 \hbar^4 B^2 / q_0^2 \mu^3$). Como poços quânticos não podem ser considerados sistemas nem 2D e nem 3D efetivamente, Mowbray et al.²⁴ sugeriram que o efeito diamagnético em poços quânticos fosse ajustado pela seguinte equação:

$$\Delta E_{Dia} = D_1 \frac{4\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon^2 \hbar^4 B^2}{q_0^2 \mu^3}, \quad (2.37)$$

onde D_1 é um parâmetro de dimensionalidade que varia entre 3/16 para éxcitons puramente 2D e 1 para éxcitons puramente 3D.

Posteriormente, Thilagam²⁵, baseando-se no Hamiltoniano de He¹⁷, desenvolveu uma teoria de perturbação para tratar o éxciton de dimensionalidade efetiva α obtendo uma expressão do parâmetro D_1 em função de α :

$$D_1 = \frac{3(\alpha - 1)^4}{\alpha 2^{\alpha+1}}, \quad (2.38)$$

cujos valores limites concordam com a proposta de Mowbray et al.²⁴.

Para campos magnéticos intensos, não podemos mais tratar o termo magnético da equação (2.32) por teoria de perturbação. Neste caso, Akimoto e

Hasegawa²¹ obtiveram, para um éxciton 2D, os seguintes valores para o deslocamento dos níveis de Landau

$$\Delta E \approx (n_l + 1/2) \hbar \omega_c - \frac{3}{2} \left(\frac{\hbar \omega_c}{n_l + 1/2} \right)^{1/2} \frac{E_0}{E_0^{1/2}}. \quad (2.39)$$

O primeiro termo a direita da equação (2.39), linear ao campo magnético, refere-se ao deslocamento dos níveis Landau em cada uma das bandas e advém tanto de transições excitônicas quanto de transições banda a banda (quando o par elétron-buraco não é interagente). Assim, para $n_l = 0$, temos:

$$\hbar \omega_c = \frac{\hbar q_0 B}{\mu} = \left(\frac{1}{M_e} + \frac{1}{M_h} \right) \hbar q_0 B \quad (2.40)$$

O deslocamento dos níveis de Landau, descrito pela equação (2.40), é independente do grau de confinamento e, portanto, não sofre nenhuma correção quanto à dimensionalidade²⁶.

O segundo termo à direita na equação (2.39), que chamaremos de ΔE_L , é um resultado da existência de éxcitons, ou seja, não aparece em transições puramente banda a banda. Nesse caso o confinamento dos éxcitons implica na modificação do potencial de interação elétron-buraco e, portanto, em uma correção do valor do deslocamento da energia de ligação com o campo magnético. Como o problema de éxcitons 3D não tem solução analítica, uma outra proposta para o problema de éxcitons confinados é dada por Rogers et al.²⁶, e consiste em se corrigir o valor da energia de ligação do éxciton na presença de campo magnético introduzindo um outro parâmetro de dimensionalidade D_2 , definido por

$$E_b = 4D_2 E_0, \quad (2.41)$$

onde $D_2 = 1$ para éxcitons puramente 2D e $D_2 = 1/4$ para éxcitons puramente 3D. Para éxcitons em um poço quântico formado por camadas semicondutoras, o parâmetro D_2

terá um valor entre 1 e 1/4 e a energia de ligação dos éxcitons tem um valor intermediário entre $4E_0$ e E_0 .

Assim, Rogers et al.²⁶ corrigem o valor de ΔE_L pelo mesmo parâmetro D_2 . Após uma pequena manipulação, aplicando as equações (2.34) e (2.6) no segundo termo a direita da equação (2.39), podemos escrever:

$$\Delta E_L = D_2 \sqrt{\frac{9q_0^5}{64\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon^2 \hbar}} B^{1/2}. \quad (2.42)$$

Este resultado teve excelentes concordâncias com resultados experimentais e se revelou uma importante ferramenta para se determinar o valor de massas reduzidas de éxcitons confinados em poços quânticos.

Quando medimos a energia de recombinação de um sistema elétron-buraco com formação de éxcitons em estruturas de poços quânticos, aplicando um campo magnético paralelo a direção de crescimento, a forma com que a energia varia em função de B apresentará os dois regimes. Um regime de campo magnético fraco, onde $\hbar\omega_c < E_b$ e o deslocamento do pico de energia é descrito pela equação (2.37), e um regime de campo magnético intenso onde $\hbar\omega_c > E_b$ e o deslocamento do pico de energia é descrito pela equação:

$$\Delta E(B) = \frac{\hbar q_0 B}{2\mu} - D_2 \sqrt{\frac{9q_0^5}{64\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon^2 \hbar}} B^{1/2}, \quad (2.43)$$

o que, para campos magnéticos muito intensos, leva o termo dependente de $B^{1/2}$ ser irrelevante no ajuste. Assim, em princípio, precisamos apenas do deslocamento de Landau banda a banda para determinarmos a massa reduzida do sistema. Porém, se o campo não for suficientemente intenso, teremos de ajustar as curvas simultaneamente em ambos regimes de campo magnético para determinação da massa efetiva. Torna-se necessário, portanto, estabelecer uma conexão entre os parâmetros D_1 e D_2 . Para isso,

comparamos a expressão (2.17) com a expressão (2.41) e, usando (2.38), concluímos que:

$$D_2 = \frac{1}{(\alpha - 1)^2}. \quad (2.44)$$

Desta forma podemos determinar o valor de massa e energia de ligação do éxciton sem depender de dois parâmetros diferentes. Conectando os parâmetros de dimensionalidade D_1 e D_2 através da dimensionalidade efetiva do sistema, podemos descrever os dois regimes de campo magnético através de apenas dois parâmetros de ajuste, α e μ .

2.5 – Referências ao Capítulo 2

1. J. Frenkel, Phys. Rev. **37**, 17, 1276 (1931)
2. G. Wannier, Phys. Rev. **52**, 191 (1937)
3. **Bastard, G.**, *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*, Les Éditions de Physique (1992).
4. **Griffiths, D. J.**, *Introduction to Quantum Mechanics*, Prentice Hall (1994).
5. **Liboff, R. L.**, *Introductory Quantum Mechanics*, 2nd Edition Addison-Wesley Publishing Company (1993).
6. **Kittel, C.**, *Introduction to Solid States Physics*, 7th. ed. New York: John Wiley (1996).
7. J. M. Luttinger and W. Kohn, Phys. Rev. **97**, 869 (1955)
8. A. Baldereschi and N. O. Lipari, Phys. Rev. B **3**, 439 (1971)
9. U. Ekenberg, Phys. Rev. B **40**, 7714 (1989)
10. I. Vurgaftman, J. R. Meyer e L. R. Ram-Mohan, J. Appl. Phys. **89**, 5815 (2001)
11. R. J. Elliott, Phys. Rev. **108**, 1384 (1957)
12. R. L. Greene, K. K. Bajaj and D. E. Phelps, Phys. Rev. B **29**, 1807 (1984).
13. G. Bastard, E. E. Mendez, L. L. Chang and L. Esaki, Phys. Rev. B **26**, 1974 (1982).
14. U. Ekenberg and M. Altarelli, Phys. Rev. B **35**, 7585 (1987).
15. G. Priester, G. Allan and M. Lannoo, Phys. Rev. B **30**, 7302 (1984).
16. L. C. Andreani and A. Pasquarello, Phys. Rev. B **42**, 8928 (1990).
17. X. F. He, Phys. Rev. B **43**, 2063 (1991).
18. F. H. Stillinger, J. Math. Phys. **18**, 1224 (1977)
19. H. Mathieu, P. Lefebvre and P. Christol, Phys. Rev. B **46**, 4092 (1992).
20. Q. X. Zhao, B. Monemar, P. O. Holtz, M. Willander, B. O. Fimland e K. Johannessen, Phys. Rev. B **50**, 4476 (1994).
21. M. Altarelli and N. O. Lipari, Phys. Rev. B **9**, 1733 (1974).
22. R. L. Greene and K. K. Bajaj, Phys. Rev. B **31**, 6498 (1985).
23. O. Akimoto and H. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **22**, 181 (1967)
24. D. J. Mowbray, J. Singleton, M. S. Skolnick, N. J. Pulsford, S. J. Bass, L. L. Taylor, R. J. Nicholas, and W. Hayes, Superlattices Microstruct. **3**, 471 (1987)

25. A. Thilagam, Physica B **262**, 390 (1999).
26. D. C. Rogers, J. Singleton, R. J. Nicholas, C. T. Foxon, and K. Woodbridge, Phys. Rev. B **34**, 4002 (1986)

Capítulo 3

Cálculos das energias de ligação de éxcitons confinados em poços quânticos de InGaAs/InGaAlAs

Neste capítulo apresentaremos as heteroestruturas de semicondutores que utilizamos para realizar nosso trabalho experimental e os resultados teóricos que obtivemos para o cálculo da energia de ligação de éxcitons confinados em poços quânticos. Para isso descreveremos a amostra utilizada, detalhando parâmetros como massa efetiva de elétrons e buracos, constante dielétrica, *gap* de energia e descontinuidade das bandas dos materiais envolvidos (InGaAs e InGaAlAs). Esses materiais são relativamente pouco estudados no que se refere às suas características físicas e vários dos seus parâmetros ainda não se encontram disponíveis na literatura. Assim, para obter esses parâmetros, tivemos de utilizar interpolações de ligas binárias e/ou ternárias mais conhecidas. Depois de estabelecidos os parâmetros para o InGaAs e principalmente para o material quaternário InGaAlAs, discutiremos o método para o cálculo dos níveis de energia em poços quânticos simples (SQW) e em poços quânticos duplos (DQW) formados pela intercalação desses materiais e discutiremos os resultados obtidos para a energia de ligação dos éxcitons nestas estruturas.

3.1 – Descrição das heteroestruturas

Em nosso trabalho utilizamos como amostra uma estrutura formada por um poço simples e três poços duplos de potencial crescidos em seqüência sobre um substrato de InP. O crescimento desta amostra foi realizado por Dias e Harmand no CNRS em Marcoussis, França, utilizando a técnica de epitaxia por feixe molecular¹. Nela foram utilizados dois diferentes materiais semicondutores. O de menor *gap* é o $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$, que forma as regiões dos poços de potencial, e o $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$, de maior *gap*, forma as regiões das barreiras de potencial eletrônico. As proporções das ligas ternárias e quaternárias foram escolhidas de forma que ambas tivessem os parâmetros de rede iguais ao do substrato de InP. A escolha desses materiais é devido à sua grande importância tecnológica, pois dispositivos formados por eles possuem transições ópticas na faixa de comprimentos de onda de 1 μm a 1,6 μm , que é a região de pequena perda e pouca dispersão para transmissão de sinal em fibras ópticas.

Um destaque relevante de nossa amostra é o fato dos poços de potencial terem sido crescidos seqüencialmente sobre o mesmo substrato. Desta forma, temos quatro amostras em uma, possibilitando a realização de medidas simultâneas nas quatro heteroestruturas, em condições experimentais idênticas.

A seqüência de crescimento de nossa amostra está esquematizada na figura 3.1. Sobre um substrato de InP foi crescido, primeiramente, um SQW de largura $L_w = 10$ nm. Em seguida foram crescidas três estruturas de DQW. O primeiro DQW com poços de largura $L_w = 4,5$ nm, acoplados por uma fina barreira de largura $L_b = 1$ nm. O segundo DQW com poços de largura $L_w = 4$ nm e a barreira de acoplamento de largura $L_b = 2$ nm. O terceiro e último DQW foi crescido com poços de largura $L_w = 3,5$ nm e a barreira de $L_b = 3$ nm. Para evitar o acoplamento entre essas estruturas, elas foram isoladas uma das outras por barreiras de potencial de 30 nm, crescidas com o mesmo material que compõe as barreiras de acoplamento. Os DQW foram crescidos de forma que $L_w + L_b + L_w$, fosse igual à largura do SQW, 10 nm. Neste trabalho, para denominar cada uma das estruturas de poços quânticos da amostra utilizamos como referência o parâmetro L_b . Assim, foi chamado de S0 o sistema de

SQW e de S1, S2 e S3 os sistemas de DQW com larguras $L_b = 1 \text{ nm}$, $L_b = 2 \text{ nm}$ e $L_b = 3 \text{ nm}$, respectivamente.

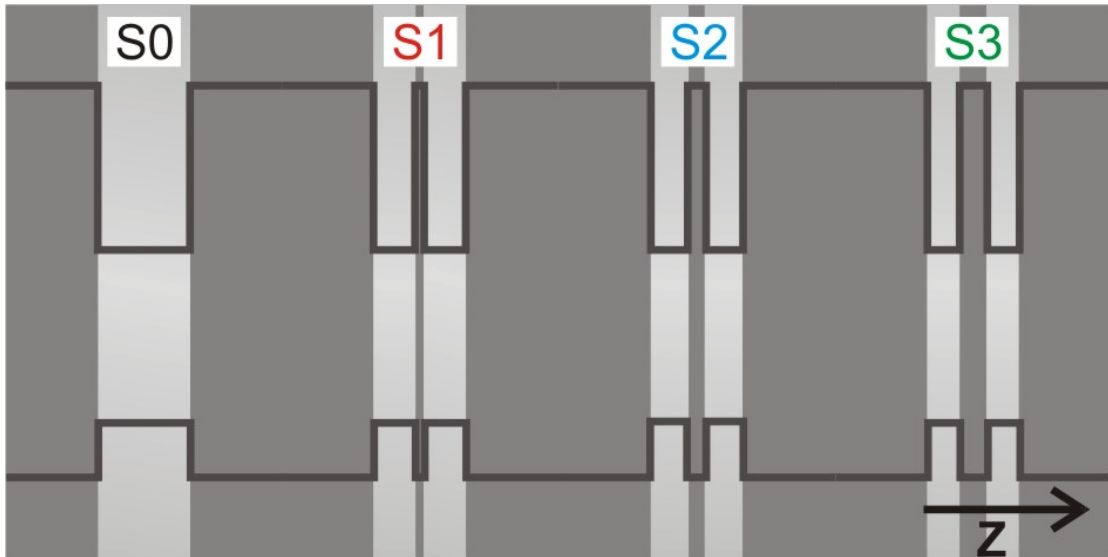


Figura 3.1 – Quatro estruturas semicondutoras crescidas sobre um mesmo substrato de InP. A estrutura S0 é um SQW de 10 nm de largura, S1, S2 e S3 são três DQW de comprimento total igual a 10 nm e barreiras de acoplamento iguais a 1 nm, 2 nm e 3 nm, respectivamente. Isolando cada estrutura temos uma barreira de potencial relativamente larga de 30 nm. Os poços de potencial, representados pelas regiões cinza claro, são de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ e as barreiras, representadas pelas regiões cinza escuro, são de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$. Os traçados em negro mostram o perfil das energias do fundo da banda de condução e do topo da banda de valência ao longo da direção de crescimento, z , da amostra.

Devido à diferença entre os $gaps$ de energia do InGaAs^2 (808 meV) e do InGaAlAs^3 (1045 meV), ocorre a formação de poços quânticos tipo I, ou seja, as camadas de InGaAs formam poços de potencial tanto na banda de condução quanto na banda de valência. Parte da diferença entre os $gaps$ de energia (ΔE_g) determina a altura da barreira de potencial para os elétrons (V_e) e a outra parte determina a altura da barreira de potencial para os buracos (V_h). O parâmetro que determina qual é a proporção de ΔE_g que configura o potencial em cada uma das bandas é conhecido como a descontinuidade de bandas. Para poços de $\text{InGaAs}/\text{InGaAlAs}$ esse parâmetro vale⁴ 75:25, ou seja, $0.75\Delta E_g$ configura a barreira de potencial na banda de condução e $0.25\Delta E_g$ configura o potencial na banda de valência. Assim, temos: $V_e = 178 \text{ meV}$ e $V_h = 59 \text{ meV}$.

Devido às barreiras relativamente espessas que isolam as estruturas de poços simples e duplos, o acoplamento entre elas é pequeno o suficiente para não originar qualquer efeito significativo nos resultados experimentais e nos cálculos teóricos. Como consequência, o espectro de fotoluminescência desta amostra evidencia quatro picos de emissão muito bem resolvidos em energia, conforme mostra a figura 3.2.

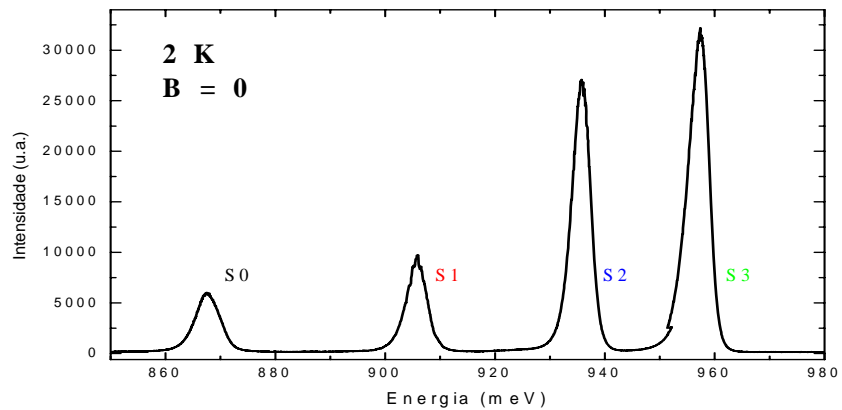


Figura 3.2 - Espectro de fotoluminescência a baixa temperatura evidenciando os picos de emissões excitônicas do poço de potencial simples único S0, e dos três poços duplos acoplados S1, S2, e S3. A associação da energia de cada pico ao sistema emissor é feita com base no valor de energia deste e nas larguras dos poços de potencial de cada sistema, as quais determinam os níveis de energia quantizados para elétrons e buracos. A intensidade do sinal também serve como referência, uma vez que estruturas mais superficiais tendem a emitir luz com maior intensidade.

3.2 – Parâmetros dos materiais

Com base nos procedimentos descritos na seção 2.3, é necessário estabelecer os parâmetros como as massas efetivas, *gaps*, constante dielétrica, descontinuidade das bandas e parâmetros de correção de primeira ordem da não-parabolicidade na banda de condução dos materiais utilizados nas heteroestruturas, a fim de se realizar os cálculos das energias de ligação dos éxcitons confinados. Contudo, são relativamente poucas as informações na literatura científica a respeito desses parâmetros nas ligas ternárias e quaternárias aqui utilizadas. Para proceder com os nossos cálculos, fizemos uma interpolação linear dos parâmetros de materiais binários e/ou ternários já conhecidos para obtenção dos parâmetros da liga quaternária InAlGaAs. Inicialmente, como forma de testar nossos cálculos numéricos, conforme descrito na seção 2.3, realizamos cálculos de heteroestruturas do tipo GaAs/AlGaAs, cujos parâmetros já são bem conhecidos. Em particular, utilizamos os mesmos parâmetros de Zhao et al.⁵, para que pudéssemos comparar explicitamente nossos resultados com os destes autores. No entanto, no trabalho de Zhao et al.⁵ não foram descritos os parâmetros relacionados ao efeito de não-parabolicidade. Para os nossos cálculos, obtivemos esses parâmetros de um artigo de revisão publicado por Vurgaftman et al.² no ano 2001, bem posterior ao trabalho de Zhao et al.⁵.

	GaAs	AlAs	Al _x Ga _{1-x} As
M_e	$0,0667M_0$	$0,1497M_0$	$(0,0667 + 0,083x)M_0$
γ_1	6,98	3,76	$6,98(1-x) + 3,76x$
γ_2	2,06	0,82	$2,06(1-x) + 0,82x$
ε	12,5	9,8	$12,5(1-x) + 9,8x$

Tabela 3.1 – Parâmetros utilizados no cálculo de SQW e DQW a fim de reproduzir os resultados de Zhao et al.⁵ e assim testar nosso procedimento de cálculo das energias de ligação de éxcitons. A massa efetiva dos elétrons no fundo da banda de condução, M_e , é dada em termos da massa do elétron livre, M_0 . As outras entradas na tabela são os parâmetros de Luttinger γ_1 e γ_2 e a constante dielétrica ε .

A partir da diferença entre os *gaps* de energia⁵ ($\Delta E_g = 1,455x$) e da descontinuidade⁵ das bandas (0,65:0,35) para o sistema GaAs/AlGaAs, calculamos as alturas das barreiras de potencial nas bandas. Para reproduzir os resultados de Zhao et al.⁵ usamos a liga Al_{0,3}Ga_{0,7}As. Para a correção de não-parabolicidade⁵ utilizamos $\alpha' = 0,64 \text{ eV}^{-1}$ e $\beta' = 0,70 \text{ eV}^{-1}$. Com esses valores, seguimos o roteiro de

cálculo descrito na seção 2.3 e reproduzimos muito bem os resultados obtidos por Zhao et al.⁵, conforme mostrado na figura 2.2.

Contudo, nosso maior interesse é o de obter as energias de ligação dos éxcitons em nossa heteroestrutura InGaAs/InGaAlAs a partir dos ajustes teóricos de nossas curvas experimentais da energia de transição excitônica em função do campo magnético. Determinamos então tanto os parâmetros para o $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ que constitui as regiões de poços de potencial como para o $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$ que caracteriza as regiões de barreiras de potencial. No caso do InGaAs, os parâmetros já se encontram disponíveis na literatura². Para o InGaAlAs, os parâmetros foram obtidos por interpolação de duas ligas ternárias², ou seja, consideramos o InGaAlAs como sendo uma mistura de ligas ternárias de $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$ e de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ na forma $(\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As})_z(\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As})_{1-z}$. No nosso caso, a quantidade de $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$ necessária para se obter o $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$ corresponde a $z = 0.4167$. Contudo, pouco ainda se sabe, também, sobre o InAlAs, por isso alguns parâmetros desse material foram obtidos por interpolação entre os parâmetros das ligas binárias InAs e AlAs. Os parâmetros obtidos dessa forma estão mostrados nas tabelas 3.2 e 3.3.

	InAs	AlAs	$\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$
E_g	-	-	1,508 eV ^[3]
M_e	-	-	$0,069M_0$ ^[6]
γ_1	20,0 ^[2]	3,76 ^[2]	12,2 [*]
γ_2	8,5 ^[2]	0,82 ^[2]	4,81 [*]
ε	14,6 ^[7]	10,9 ^[7]	12,8 [*]

Tabela 3.2 – Parâmetros do InAs, AlAs e da liga $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$, obtidos das referências indicadas ou pela interpolação linear entre os parâmetros do InAs e do AlAs (indicados por *)

	$\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$	$\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$	$(\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As})_z(\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As})_{1-z}$	$\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$
E_g	0,808 eV ^[3]	1,508 eV ^[3]	$(0,808 + 0,475z + 0,225z^2)$ eV ^[3]	1,045 eV [*]
M_e	$0,043M_0$ ^[6]	$0,069M_0$ ^[6]	$(0,043 + 0,042z - 0,016z^2)M_0$ ^[6]	$0,058M_0$ [*]
γ_1	11,01 ^[2]	12,2 [*]	$11,01(1-z) + 12,2z$	11,5 [*]
γ_2	4,18 ^[2]	4,81 [*]	$4,18(1-z) + 4,81z$	4,44 [*]
ε	13,9 [*]	12,8 [*]	$13,9(1-z) + 12,8z$	13,4 [*]

Tabela 3.3 – Parâmetros utilizados neste trabalho para os cálculos da energia de ligação dos éxcitons em SQW e DQW de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ / $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$, obtidos das referências indicadas ou por interpolação linear (indicados por *), conforme descrito no texto.

Com os parâmetros descritos acima, mais a descontinuidade das bandas⁴ que, no sistema InGaAs/InGaAlAs, é de 0,75:0,25, faltam apenas os parâmetros de correção para o efeito de não-parabolicidade para podermos calcular as energias de ligação dos éxcitons pelo método MLC, conforme descrito na seção 2.3. Contudo, estes ainda não foram calculados. A única referência disponível é um trabalho experimental, realizados por Oiknine-Schlesinger et al.⁸, onde os autores estimaram para o parâmetro $\alpha' = (1,35 \pm 0,25) \text{ eV}^{-1}$, porém ainda não existem registros sobre o valor de β' e nem outras referências sobre o valor de α' . Portanto, neste trabalho, utilizamos $\alpha' = 1.35 \text{ eV}^{-1}$. Como o parâmetro β' é em geral da mesma ordem de magnitude do parâmetro α' , fizemos a aproximação $\beta' \approx \alpha'$ para obter o valor estimado da correção de não-parabolicidade para as energias de ligação de éxcitons que calculamos aqui.

3.3 – Níveis de energia em SQW.

Outro importante passo para o desenvolvimento do nosso procedimento numérico para ajuste das curvas experimentais é resolver o problema de poço quadrado finito em heteroestruturas semicondutoras. Resolve-se esse problema em cada uma das bandas de energia, escolhendo os parâmetros apropriados para cada caso. Com isso, podemos começar a resolver o problema de SQW⁹, descrevendo o potencial e a massa efetiva ao longo da direção de crescimento, conforme disposto na Figura 3.3:

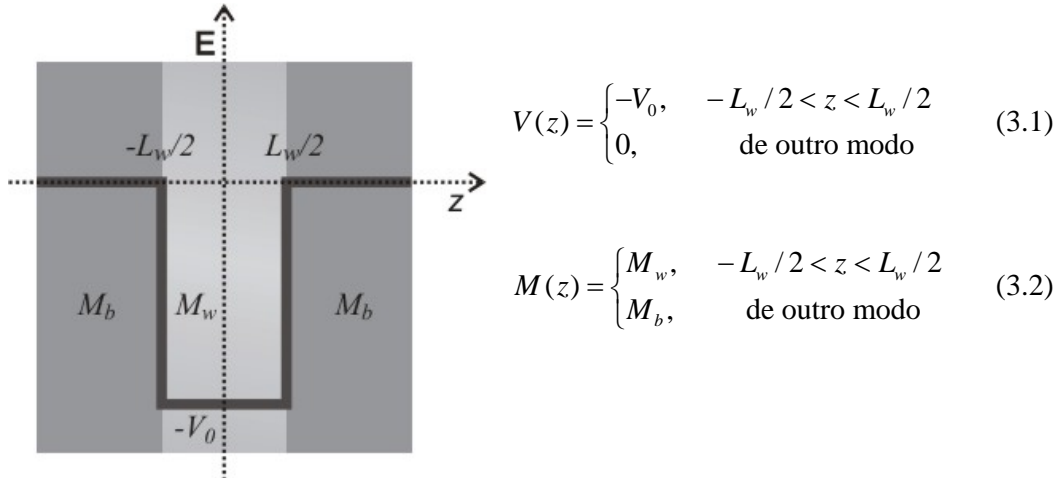


Figura 3.3 – Diagrama de potencial para um poço simples quadrado finito em uma heteroestrutura semicondutora.

Agora devemos encontrar os autovalores de energia e as autofunções para a equação de Schroedinger:

$$\frac{-\hbar^2}{M(z)} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \psi(z) + V(z) \psi(z) = E_{n_w} \psi(z). \quad (3.3)$$

Estamos interessados em níveis de energia ligados, ou seja, $E_{n_w} < 0$. A função de onda que resolve este problema tem a forma de ondas planas na região do poço de potencial. Na região das barreiras, esta se apresenta como ondas evanescentes, decaindo exponencialmente à medida que se afasta das interfaces. Assim,

podemos dizer que:

$$\begin{cases} \psi_{n,b}(z) = Ae^{k_b z}, & z < -L_w/2 \\ \psi_{n,w}(z) = Be^{ik_w z} + Ce^{-ik_w z}, & -L_w/2 < z < L_w/2 \\ \psi_{n,b}(z) = De^{-k_b z}, & z > L_w/2 \end{cases} \quad (3.4)$$

onde:

$$k_w = \frac{\sqrt{2M_w(E_{n_w} + V_0)}}{\hbar}, \quad (3.5)$$

$$k_b = \frac{\sqrt{-2M_b E_{n_w}}}{\hbar}, \quad (3.6)$$

e A , B , C e D são constantes a ser determinadas aplicando-se as condições de continuidade para a função de onda e para o fluxo de probabilidade da função de onda, ao longo de todo o espaço.

A condição de continuidade da função de onda impõe:

$$\psi_b(z_{interface}) = \psi_w(z_{interface}). \quad (3.7)$$

Em seguida, temos de considerar que o fluxo de probabilidade da função de onda também deve ser contínuo nas interfaces. Assim, devemos levar em consideração as discontinuidades nas massas efetivas. Um bom método de fazermos isso, é aplicar as condições de contorno seguindo o modelo de Ben Daniel-Duke¹⁰:

$$\frac{1}{M_b} \frac{d}{dz} \psi_b(z_{interface}) = \frac{1}{M_w} \frac{d}{dz} \psi_w(z_{interface}). \quad (3.8)$$

Aplicando as condições de continuidade (3.7) e (3.8) nas duas interfaces ($z = -L_w/2$ e $z = L_w/2$) obtemos o seguinte sistema de equações¹¹:

$$\begin{aligned}
Ae^{-k_b L_w/2} &= Be^{-ik_w L_w/2} + Ce^{ik_w L_w/2}, \\
A \frac{k_b}{M_b} e^{-k_b L_w/2} &= i \frac{k_w}{M_w} (Be^{-ik_w L_w/2} - Ce^{ik_w L_w/2}), \\
Be^{ik_w L_w/2} + Ce^{-ik_w L_w/2} &= De^{-k_b L_w/2}, \\
i \frac{k_w}{M_w} (Be^{ik_w L_w/2} - Ce^{-ik_w L_w/2}) &= -D \frac{k_b}{M_b} e^{-k_b L_w/2},
\end{aligned} \tag{3.9a}$$

que na forma matricial torna-se:

$$M \begin{pmatrix} A \\ B \\ C \\ D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{-k_b L_w/2} & -e^{-ik_w L_w/2} & -e^{ik_w L_w/2} & 0 \\ -i\xi e^{-k_b L_w/2} & -e^{-ik_w L_w/2} & e^{ik_w L_w/2} & 0 \\ 0 & e^{ik_w L_w/2} & e^{-ik_w L_w/2} & -e^{-k_b L_w/2} \\ 0 & e^{ik_w L_w/2} & -e^{-ik_w L_w/2} & -i\xi e^{-k_b L_w/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \\ C \\ D \end{pmatrix} = 0, \tag{3.9b}$$

onde

$$\xi = \frac{M_w k_b}{k_w M_b}. \tag{3.10}$$

Pela regra de Cramer¹¹, o sistema de equações (3.9), só terá solução não trivial se o determinante da matriz M for nulo. Assim, fazendo $\det M = 0$ chegamos as seguintes equações transcendentais:

$$\tan(k_w L_w/2) = \xi, \tag{3.11a}$$

$$\cot(k_w L_w/2) = -\xi. \tag{3.11b}$$

Estas equações transcendentais não possuem solução analítica, devendo ser resolvidas de forma numérica ou gráfica. Utilizamos a expressão (3.11a) para encontrarmos os autovalores de k_w para o caso em que n_w seja par e a expressão (3.11b) para o caso em que n_w seja ímpar. Com os valores de k_w obtidos, encontram-se os autovalores de energia a partir de manipulações na equação (3.5). Para nós o importante é encontrar os autovalores de energia, não sendo necessária a determinação das

autofunções, ou seja, não é necessária a determinação das constantes A , B , C e D que compõem a função de onda (3.4).

Conforme o referencial para o poço quadrado finito da figura 3.3 temos que todos os níveis confinados do sistema são negativos, ou seja, $E_{n_w} < 0$, e seus valores, em módulo, são relativos ao topo do poço de potencial. Porém, no problema de heteroestruturas, é normalmente mais conveniente expressar o valor das energias relativo ao fundo do poço (ver figura 3.4a), pois esse é o valor de energia da partícula na banda ao considerarmos uma transição (ver figura 3.4b).

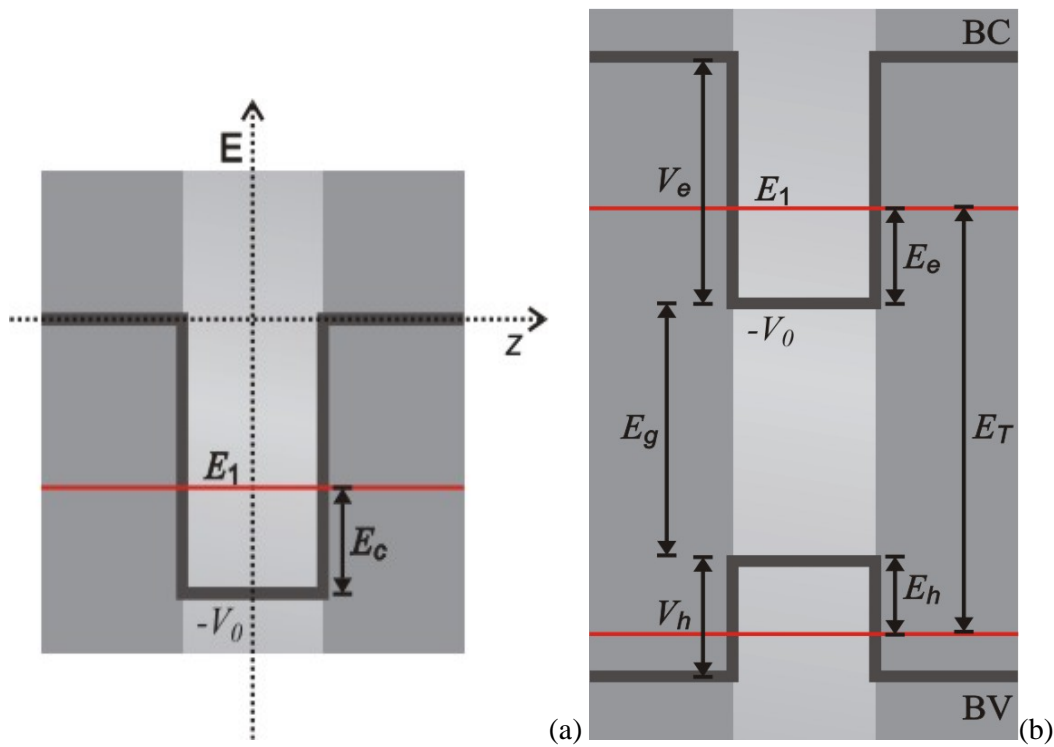


Figura 3.4 – (a) Esquema do primeiro nível de energia do poço quadrado finito, onde a energia de confinamento é $E_c = V_0 - E_1$. (b) Este esquema mostra os níveis de energia para o estado fundamental em ambas as bandas da heteroestrutura. No caso de uma transição envolvendo um par elétron-buraco não-interagente, ou seja não-excitônica, a energia de transição será: $E_T = E_g + E_e + E_h$.

Para resolvermos o problema na banda de condução (valência), utilizamos os valores de massa efetiva do elétron (buraco) de cada material e substituímos $V_0 = V_e$ ($V_0 = V_h$). Os valores de V_e e V_h são obtidos a partir da diferença dos *gaps* de energia, levando em consideração a descontinuidade das bandas de

condução e valência. Resolvendo o problema de poço quadrado finito, em cada uma das bandas, obtemos a energia de confinamento para cada partícula. Assim, em uma transição banda a banda, o valor de energia de transição será $E_g + E_e + E_h$.

3.4 – Níveis de energia em DQW.

A estrutura de DQW é modestamente mais complicada de ser resolvida. Neste caso temos dois poços quânticos de largura L_w acoplados por uma barreira de potencial de largura L_b , como mostrado na figura 3.5. O potencial e a massa efetiva ao longo da direção de crescimento são escritos na seguinte forma:

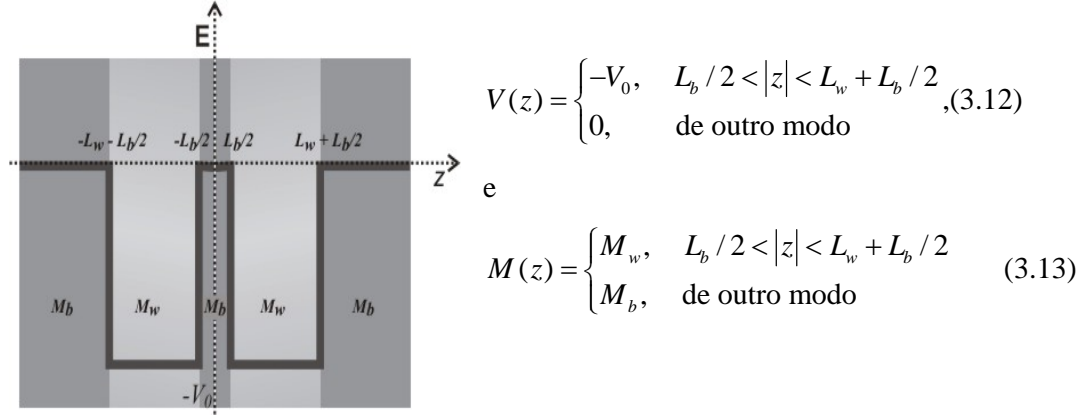


Figura 3.5 – Diagrama de potencial para um poço duplo quadrado finito em um meio material semiconductor.

Conforme se encontra discutido por Bastard⁹, primeiramente tratamos o problema como um SQW centralizado em $z_1 = (-L_w - L_b)/2$ cuja função de onda $\psi_{n_w}(z - z_1)$ é a função de onda dada pela equação (3.4) centralizada igualmente na posição z_1 , e outro SQW centralizado em $z_2 = (L_w + L_b)/2$ com a função de onda dada por $\psi_{n_w}(z - z_2)$. Como a barreira entre os poços é estreita, há uma probabilidade de tunelamento quântico entre eles. Desta forma, é necessário se levar em consideração o princípio de exclusão de Pauli que proíbe que dois férmions ocupem o mesmo auto-estado. Assim, a função de onda que descreve cada auto-estado do DQW deve ser uma combinação linear das autofunções de mesmo n_w de cada um dos SQWs que compõem o sistema. Ou seja:

$$\psi(z) = \alpha \psi_{n_w}(z - z_1) + \beta \psi_{n_w}(z - z_2), (3.14)$$

onde α e β são parâmetros a serem determinados.

Aplicando a equação (3.14) na solução da equação de autovalores (3.3), onde o potencial $V(z)$ é dado pela equação (3.12) e a massa $M(z)$ é dado pela equação (3.13), temos que:

$$\begin{pmatrix} E_{n_w} + s - E_v & (E_{n_w} - E_v)r + t \\ (E_{n_w} - E_v)r + t & E_{n_w} + s - E_v \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix} = 0, \quad (3.15)$$

de onde obtemos:

$$E_v = E_{n_w} \pm \frac{t}{1 \pm r} + \frac{s}{1 \pm r}, \quad (3.16)$$

onde E_v são os autovalores de energia para o DQW e a escolha dos sinais é feita para combinações simétricas (+) e anti-simétricas (-) das funções de onda. Os termos r , s e t são conhecidos como as integrais de superposição (*overlap*), deslocamento (*shift*) e transferência (*transfer*), respectivamente, e são definidos como:

$$\begin{aligned} r &= \langle \psi_{n_w}(z - z_1) | \psi_{n_w}(z - z_2) \rangle \\ &= \langle \psi_{n_w}(z - z_2) | \psi_{n_w}(z - z_1) \rangle, \end{aligned} \quad (3.17a)$$

$$\begin{aligned} s &= \langle \psi_{n_w}(z - z_1) | V^{(SQW)}(z - z_2) | \psi_{n_w}(z - z_1) \rangle \\ &= \langle \psi_{n_w}(z - z_2) | V^{(SQW)}(z - z_1) | \psi_{n_w}(z - z_2) \rangle, \end{aligned} \quad (3.17b)$$

$$\begin{aligned} t &= \langle \psi_{n_w}(z - z_1) | V^{(SQW)}(z - z_1) | \psi_{n_w}(z - z_2) \rangle \\ &= \langle \psi_{n_w}(z - z_2) | V^{(SQW)}(z - z_2) | \psi_{n_w}(z - z_1) \rangle, \end{aligned} \quad (3.17c)$$

Nas equações acima, $V^{(SQW)}(z - z_i)$ é o potencial para um SQW (equação 3.1) deslocados pelas posições z_1 ou z_2 . Em geral o termo r é muito pequeno e pode ser desprezado. Assim, devido à existência de um auto-estado simétrico e um auto-estado anti-simétrico, ocorre uma separação (*split*) de energia referente ao auto-estado do SQW, que pode ser representado na forma do diagrama esquemático mostrado na figura 3.6.

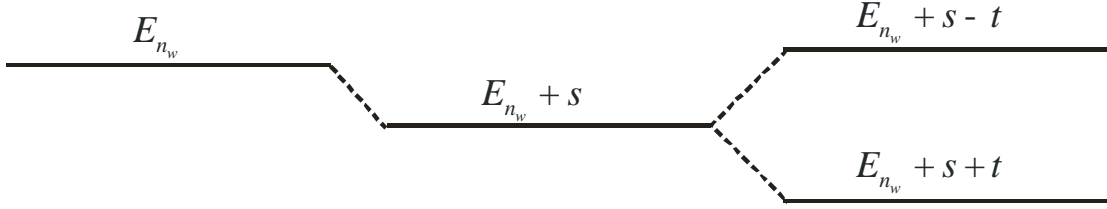


Figura 3.6 – Diagrama esquemático, que representa como o acoplamento dos poços atua, modificando e duplicando um nível de energia de um SQW para os níveis de energia do DQW resultados da combinação simétrica e anti-simétrica dos auto-estados do SQW.

Este problema também pode ser resolvido aplicando-se o método de condições de continuidade para a função de onda de um DQW. Tal qual fizemos no problema do SQW, construiremos nossa função de onda considerando que dentro de cada poço esta deve ser uma função da forma de ondas planas. Nas barreiras mais externas, as funções de onda devem ser tratadas como ondas evanescentes, que decaem exponencialmente à medida que se afastam das interfaces. Na região da barreira de acoplamento, devemos levar em consideração que existe uma probabilidade da partícula tunelar em ambos sentidos. Assim, descrevemos a função de onda na seguinte forma:

$$\psi_{n_D}(z) = \begin{cases} Ae^{k_b z}, & z < -L_w - L_b/2 \\ Be^{ik_w z} + Ce^{-ik_w z}, & -L_w - L_b/2 < z < L_b/2 \\ De^{k_b z} + Fe^{-k_b z}, & -L_b/2 < z < L_b/2 \\ Ge^{ik_w z} + He^{-ik_w z}, & L_b/2 < z < L_w + L_b/2 \\ Je^{-k_b z}, & z > L_w + L_b/2 \end{cases}, \quad (3.18)$$

onde os vetores de onda k_w e k_b estão definidos pelas equações (3.5) e (3.6) e A, B, C, D, F, G, H e J são constantes a ser determinadas.

Semelhante ao método descrito na seção 3.3, aplicamos as condições de continuidade (3.7) e (3.8) para cada uma das interfaces, para obtermos um sistema de equações similar ao (3.9). Aplicando a regra de Cramer¹¹, obtemos a seguinte equação transcendental⁹:

$$2 \cos(k_w L_w) + \left(\xi - \frac{1}{\xi} \right) \sin(k_w L_w) \pm \left(\xi + \frac{1}{\xi} \right) e^{-k_b L_b} \sin(k_w L_w) = 0, \quad (3.19)$$

onde a grandeza ξ está definida pela equação (3.10).

Os autovalores de energia são obtidos resolvendo a equação (3.19) numericamente, escolhendo o sinal de menos (-) para auto-estados simétricos e o sinal de mais (+) para auto-estados anti-simétricos. De forma semelhante ao que foi feito na resolução do problema de SQW, no DQW os autovalores de energia devem ser obtidos independentemente em cada uma das bandas, escolhendo adequadamente os parâmetros em cada uma delas. Os autovalores de energia obtidos são relativos ao topo dos poços, onde o potencial foi definido como zero. Contudo, a energia de confinamento é obtida relativa ao fundo dos poços (ver figura 3.7a). Como a transição do primeiro auto-estado simétrico da banda de condução para o primeiro auto-estado simétrico da banda de valência é a transição mais provável e de menor energia (ver figura 3.7b), definimos neste trabalho a energia de confinamento para cada banda tomando como referência o autovalor do auto-estado anti-simétrico.

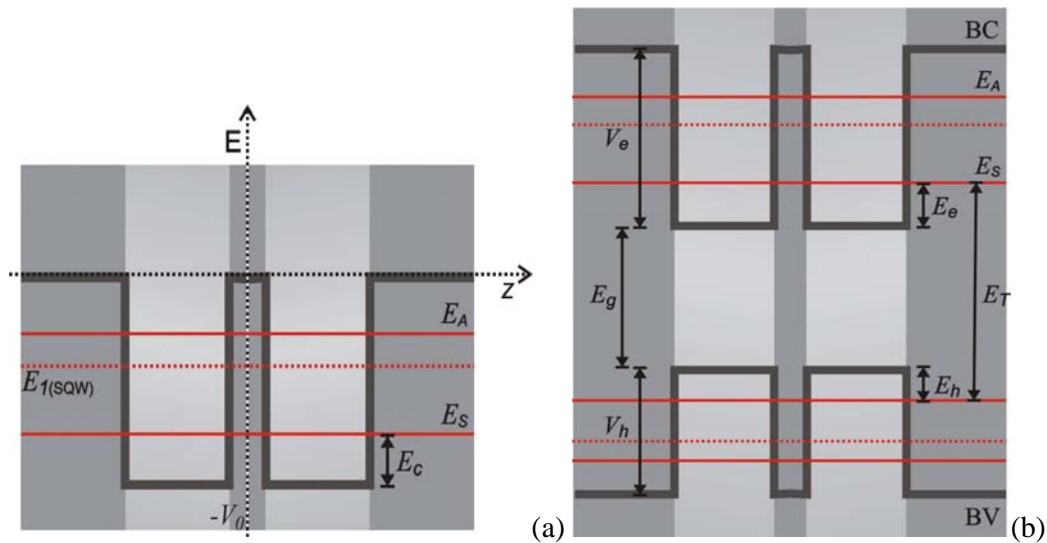


Figura 3.7 – (a) Representação dos primeiros níveis anti-simétrico (E_A) e simétrico (E_S) de energia em poços quadrados duplos acoplados. Em vermelho pontilhado, $E_{1(SQW)}$ é o primeiro nível de energia de um poço quadrado finito simples de largura L_w . A energia de confinamento é dada referente ao nível mais profundo em relação ao fundo do poço ($|E_c = V_0 - E_S|$). Em (b) temos representado os níveis de energia e as energias relativas de uma transição banda a banda (E_T), no diagrama de bandas de uma estrutura tipo DQW.

3.5 – Cálculos das energias de ligação dos éxcitons confinados em SQW e DQW, utilizando o método MLC.

Uma vez determinados os parâmetros das nossas estruturas, conforme descrito nas seções 3.1 e 3.2, nosso próximo objetivo é utilizar esses parâmetros na realização dos cálculos das energias de ligação E_b dos éxcitons seguindo o método MLC¹², descrito na seção 2.3. Para as estruturas do tipo DQW, utilizamos a aproximação de Zhao et al.⁵. Visando a comparação dos resultados teóricos para E_b com os valores obtidos pela análise experimental das curvas de magnetofotoluminescência, realizamos nossos cálculos levando-se em consideração transições excitônicas entre o nível de menor energia da banda de condução, para o nível menos energético de buracos pesados na banda de valência. Conforme fora dito anteriormente, para termos confiabilidade em nosso procedimento numérico realizamos alguns cálculos em sistemas do tipo GaAs/Al_xGa_{1-x}As, que nos permitiram discutir com maior clareza, a influência do efeito da não-parabolicidade na banda de condução nos valores de E_b obtidos.

Conforme o roteiro descrito na seção 2.3, primeiramente obtivemos os autovalores da energia de confinamento, tanto na banda de valência (E_h), quanto na banda de condução (E_c), através da solução numérica das equações transcendentais (3.11) para um SQW e (3.19) para um DQW. Em um espectro de fotoluminescência, a transição mais provável é a menos energética. Como os buracos leves são menos confinados que os buracos pesados, resolvemos o problema do confinamento apenas para os buracos pesados, cuja massa efetiva $M_h^{(z)}$ está definida pela equação (2.9). A partir desses autovalores de energia calculamos os valores de vetor de onda k_{be} e k_{bh} , necessários para se obter o valor da extensão espacial da função de onda (L_w^*), conforme descrito pela equação (2.21) (no caso do DQW aproximamos⁵ a estrutura por uma SQW segundo a equação 2.29). Utilizando a equação (2.8), estimamos o raio de Bohr efetivo do éxciton no *bulk*, corrigindo seus parâmetros segundo os efeitos de diferença de massas efetivas, diferença de constantes dielétricas e o efeito de não-parabolicidade da banda de condução. Pela razão $L_w^*/2a_0^*$, obtivemos a dimensionalidade efetiva (α), conforme descrito na equação (2.27), a qual tornou possível estabelecer os valores de

massa reduzida e energia de ligação para um éxciton confinado em um sistema α -dimensional.

Realizamos cálculos da energia de ligação de éxcitons (E_b) variando o valor de L_w , para diferentes valores fixos de L_b . Assim, demonstramos como E_b evolui em um SQW e/ou em um DQW em função da largura do poço. Conforme apresentado no gráfico da figura 3.8, os cálculos foram realizados considerando-se heteroestruturas de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$, dentro da aproximação parabólica, em um SQW com $L_b = 0$ nm e três DQW com $L_b = 1$ nm, $L_b = 2$ nm e $L_b = 3$ nm, respectivamente. As setas na figura 3.8 correspondem aos valores nominais de L_w das respectivas estruturas de SQW e DQW de nossa amostra.

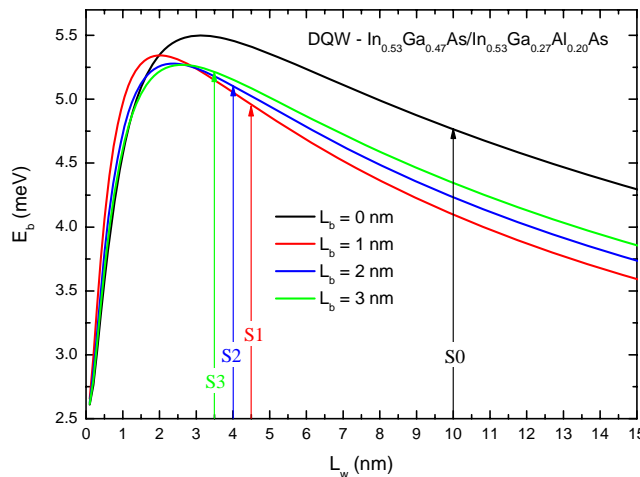


Figura 3.8 – Cálculos da energia de ligação de éxcitons confinados em um SQW $L_b = 0$ nm e três DQW $L_b = 1$ nm, $L_b = 2$ nm e $L_b = 3$ nm, em função de L_w , para heteroestruturas de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$.

Outros cálculos foram feitos, a fim de estudarmos como a altura da barreira de potencial (figura 3.9a) e o efeito de não-parabolicidade na banda de condução (figura 3.9b), modificariam as energias de ligação excitônicas. Desta vez escolhemos realizá-los em heteroestruturas do tipo $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, cujos parâmetros se encontram melhor estabelecidos. Diferentemente da figura 3.8, o cálculo de E_b é apresentado na figura 3.9 em função de L_b . Contudo, para cada valor de L_b ,

recalculamos os valores de L_w de forma a garantirmos a regra de crescimento das estruturas de nossa amostra onde a largura total de cada uma delas é dada por $L_w + L_b + L_w = 10$ nm.

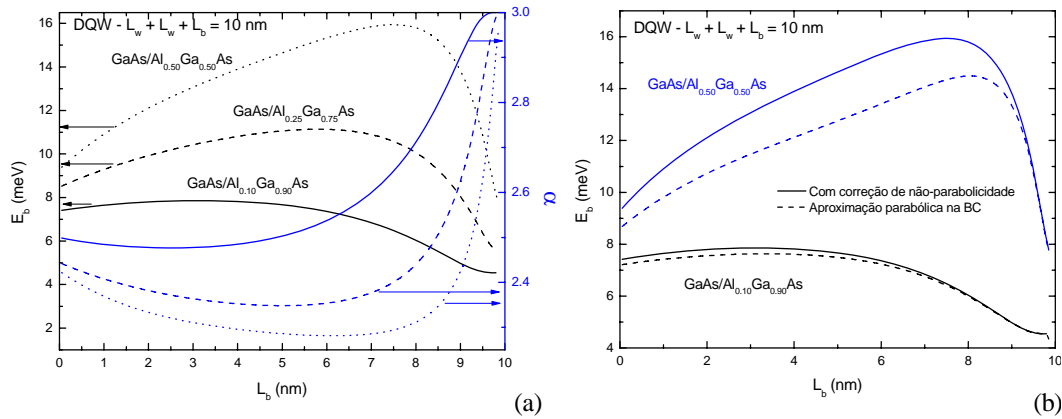


Figura 3.9 – (a) Dimensionalidade efetiva (azul) e energia de ligação de éxcitons em função da largura da barreira de acoplamento em DQW de GaAs/Al_xGa_{1-x}As, para x = 0,10, 0,25 e 0,50 (linha sólida, tracejada e pontilhada respectivamente). As curvas foram obtidas considerando-se os efeitos de não-parabolicidade. (b) Cálculo da energia de ligação do éxciton, para duas concentrações de Al. As curvas sólidas foram obtidas considerando a correção de não-parabolicidade e as tracejadas levando em conta a aproximação parabólica na banda de condução. Em ambas as figuras foi considerada a condição de crescimento $L_w + L_b + L_w = 10$ nm.

No caso de heteroestruturas de GaAs/Al_xGa_{1-x}As, é sabido que quanto maior a concentração de alumínio na liga ternária, maior será a altura da barreira de potencial tanto na banda de condução como na banda de valência. Com base nessa informação e nos resultados da figura 3.9, podemos concluir que quanto maior a energia da barreira de potencial mais confinados tornar-se-ão os éxcitons, acarretando numa diminuição na dimensionalidade efetiva dos mesmos. Isto também resulta em éxcitons mais fortemente ligados, ou seja, com maiores valores de energia de ligação. Podemos ver também na figura 3.9 que a medida que a largura da barreira de potencial L_b aumenta, e a largura dos poços consequentemente diminui, a energia de ligação dos éxcitons aumenta até $L_b \sim 8$ nm. Para barreiras ainda maiores, com L_b tendendo para 10 nm, a energia de ligação diminui abruptamente. Esse comportamento é fácil de ser entendido, se considerarmos que o aumento do confinamento causado pela diminuição da largura dos poços de potencial leva primeiramente a um aumento da energia de ligação. Entretanto, para barreiras muito espessas (e portanto poços muito finos), a

maior parte da função de onda dos éxcitons estará localizada no material da barreira e a energia de ligação excitônica tende para o valor de E_b no *bulk* da liga semicondutora que compõe a barreira de potencial.

Em um sistema de poços quânticos, em geral os elétrons possuem energia suficiente para que não possamos mais considerar a aproximação parabólica da banda de condução na região próxima de transição, por isso o valor de massa efetiva para os elétrons deve ser corrigido segundo o efeito de não-parabolicidade na banda de condução¹³. Neste caso, conforme demonstrado na figura 3.9b, vemos que essa correção atua aumentando a energia de ligação dos éxcitons ao longo de toda curva. Para valores de L_b abaixo de aproximadamente 6 nm fica evidente na figura 3.9b que quanto maior for o confinamento do éxciton, maior será a correção devido ao efeito de não-parabolicidade. É importante lembrar que, isoladamente, esse efeito atua aumentando o valor de M_e a medida que aumentamos o valor de E_e , porém isso pode nos levar a seguinte errônea interpretação: as correções dos valores de E_b serão mais proeminentes para valores maiores de E_e . Contudo não é isso que verificamos na figura, pois, nela estão contidas outras correções, como a do efeito de diferença de massas efetivas em ambas as bandas, por isso, na figura 3.9b, na faixa onde L_b varia aproximadamente entre 2 nm e 7 nm a correção dos valores de E_b é significativamente maior que a correção vista para valores de $L_b > 8$ nm, onde E_e é maior.

No caso de heteroestruturas de InGaAs/InGaAlAs, só conhecemos o valor do parâmetro de correção de não-parabolicidade α' para a massa efetiva do elétron, proposto por Oiknine-Schlesinger et al.⁸. Conforme já mencionado, na maioria dos materiais semicondutores III-V o parâmetro β' é da mesma ordem de magnitude do parâmetro α' . Para estimarmos os efeitos de não-parabolicidade nas nossas estruturas, realizamos cálculos da energia de ligação dos éxcitons incluindo a correção de não-parabolicidade conforme a equação 2.12, usando para α' o valor proposto por Oiknine-Schlesinger et al.⁸ e para o parâmetro β' os valores $\beta'=0$ e $\beta'=\alpha'$. Repetimos os cálculos para nossa estrutura, seguindo a mesma regra $L_w + L_b + L_w = 10$ nm. Os resultados para a energia de ligação E_b em função de L_b são mostrados na figura 3.10. Os resultados mostram claramente que os efeitos de não-parabolicidade levam a um

aumento da energia de ligação dos éxcitons, o que é esperado, conforme já discutido acima para o sistema GaAs/AlGaAs, já que a não-parabolicidade corresponde ao aumento da massa efetiva eletrônica. Notamos também, analisando a figura 3.10, que nossas estruturas de SQW e de DQW, denominadas por S0, S1, S2 e S3, encontram-se dentro de um regime de confinamento do éxciton que aumenta gradativamente à medida que aumentamos o valor de L_b . Com isso esperamos que a energia de ligação E_b seja maior na amostra S3 e vá decrescendo consecutivamente para S2, S1, até S0, sistema ao qual corresponde um SQW bem mais largo.

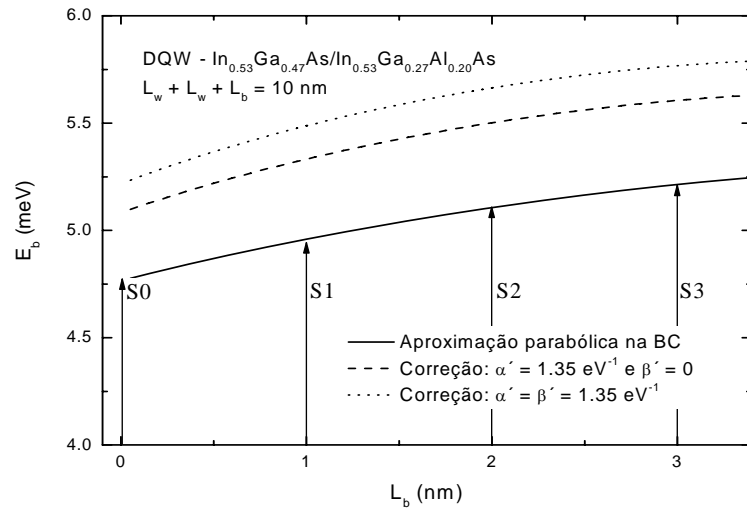


Figura 3.10 – Cálculos da energia de ligação de éxcitons em DQW de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$ em função da largura da barreira de acoplamento. A largura L_w dos poços de potencial varia segundo a regra. $L_w + L_b + L_w = 10$ nm. A curva sólida leva em consideração a aproximação parabólica da banda de condução, a curva tracejada considera a correção de não-parabolicidade com $\alpha' = 1,35 \text{ eV}^{-1}$ e $\beta' = 0$, e a curva pontilhada foi obtida considerando-se $\alpha' = \beta' = 1,35 \text{ eV}^{-1}$.

3.5 – Referências ao Capítulo 3

1. **Dias, I.F.L.**, *Fotocondutividade em ligas de $Al_xGa_{1-x}As$ dopadas com silício e em heteroestruturas moduladas por dopagem preparadas pela técnica de epitaxia por feixe molecular*, Tese de Doutorado, UFMG, 1990
2. I. Vurgaftman, J. R. Meyer e L. R. Ram-Mohan, J. Appl. Phys. **89**, 5815 (2001)
3. J. C. Fan and Y. F. Chen, J. Appl. Phys. **80**, 1239 (1996)
4. M. S. Hybertsen, Appl. Phys. Lett. **58**, 1759 (1991).
5. Q. X. Zhao, B. Monemar, P. O. Holtz, M. Willander, B. O. Fimland e K. Johannessen, Phys. Rev. B **50**, 4476 (1994)
6. L. A. Cury, J. Beerens, and J. P. Praseuth, Appl. Phys. Lett. **63**, 1804 (1993)
7. **Lide, D. R.**, *Handbook of chemistry and physics: a ready reference book of chemical and physical data*. 76 ed. Boca Raton: CRC, 1995
8. J. Oiknine-Schlesinger, E. Ehrenfreund, D. Gershoni, D. Ritter, M. B. Panish e R. A. Hamm, Appl. Phys. Lett. **59** 970 (1991)
9. **Bastard, G.**, *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*, Les Éditions de Physique (1992).
10. D. J. Ben Daniel e C. B. Duke, Phys. Rev. **152**, 683 (1966)
11. **Liboff, R. L.**, *Introductory Quantum Mechanics*, 2nd Edition Addison-Wesley Publishing Company (1993).
12. H. Mathieu, P. Lefebvre and P. Christol, Phys. Rev. B **46**, 4092 (1992).
13. U. Ekenberg, Phys. Rev. B **40**, 7714 (1989)

Capítulo 4

Determinação da energia de ligação de éxcitons confinados em SQW e DQW de InGaAs/InGaAlAs

No capítulo anterior, calculamos a energia de ligação dos éxcitons confinados em SQW e DQW de InGaAs/InGaAlAs crescidas sobre substrato de InP. Com os resultados desses cálculos, verificamos que a energia de ligação dos éxcitons (E_b) depende das dimensões dos poços quânticos e das propriedades dos materiais que compõem a heteroestrutura que proporciona o confinamento. Sobretudo, ressaltamos a importância da dimensionalidade efetiva (α) do confinamento, que é uma medida do grau de anisotropia espacial das propriedades físicas do sistema, conforme descrito na seção 2.3. Particularizando os cálculos para as amostras descritas na seção 3.1, vimos que E_b tende a ser maior nas DQW que na SQW. A presença de uma barreira de acoplamento tem forte influência sobre os valores de massa efetiva em questão. Assim, em nossas amostras, quanto maior for o valor de L_b , maior será o grau de anisotropia da massa efetiva reduzida (μ) dos éxcitons e com isso, maior será E_b .

Neste capítulo, verificamos experimentalmente os resultados obtidos no capítulo 3. Utilizando a técnica de magnetofotoluminescência (MPL), verificaremos como a presença de um campo magnético B aplicado perpendicular à direção de crescimento altera o espectro de energia de nossas amostras. Utilizando a teoria descrita na seção 2.4, ajustaremos as curvas de MPL, com um vínculo entre os dois regimes de campo magnético por meio do valor da dimensionalidade efetiva. Dessa forma é possível determinar, para cada amostra, valores de α e μ comuns aos dois regimes. Obtidos esses valores, é possível determinar E_b , para cada caso, e comparar os resultados experimentais com os teóricos. Modificando a temperatura, verificamos que quando $K_B T > E_b$, onde K_B é a constante de Boltzman, as transições deixam de ser excitônicas e passam a ser do tipo banda a banda. Para temperaturas mais elevadas, o deslocamento dos níveis de energia em função de B não é mais corrigido pelo modelo teórico apresentado na seção 2.4, pois não há mais a formação de éxcitons.

4.1 – O Experimento

Este trabalho tem como precursor o trabalho de dissertação de Valadares¹ e, por esse motivo, o experimento aqui realizado, bem como as análises e a montagem experimental, são bem semelhantes. Nossa amostra (ver figura 4.1) foi montada no interior de um magneto supercondutor que opera de zero a 12 T. Uma fibra óptica transportava o sinal de excitação de laser de argônio, com fótons de comprimento de onda $\lambda = 514 \text{ nm}$, que incidia sobre superfície da amostra, oposta ao substrato. Uma outra fibra óptica, posicionada ao lado da primeira, transportava o sinal de fotoluminescência (PL) até um conjunto de lentes que focalizava o sinal na janela de um espectrômetro. Neste, o sinal passava por uma rede de difração e se obtinha o espectro em função do comprimento de onda da luz emitida. O espectro era analisado em um detector linear de InGaAs. O magneto produzia um campo magnético perpendicular à superfície de crescimento (ver figura 4.2).

O detector linear de InGaAs consiste em uma série de 1024 diodos *p-i-n* de InGaAs, dispostos ao longo de uma linha formando vários detectores pontuais enfileirados. Assim, para cada posição da grade de difração do espectrômetro, ele detecta uma janela espectral. A utilização desse equipamento agilizou o processo de obtenção dos espectros. Dessa forma foi possível obter espectros de alta resolução para vários valores de B .

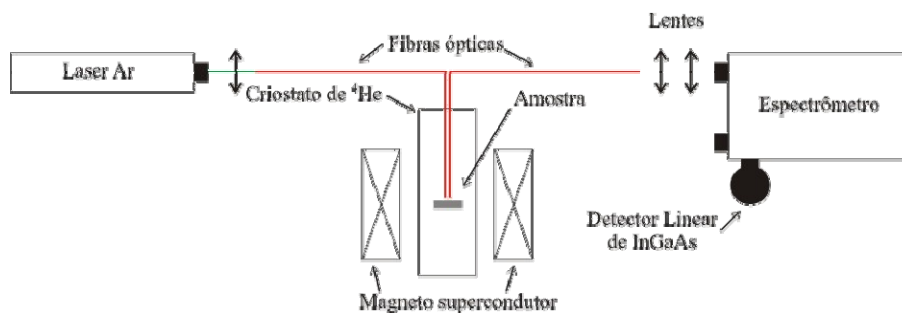


Figura 4.1 – Esquema da montagem experimental utilizada para se obter os espectros de fotoluminescência em baixa temperatura sobre a ação de um campo magnético.

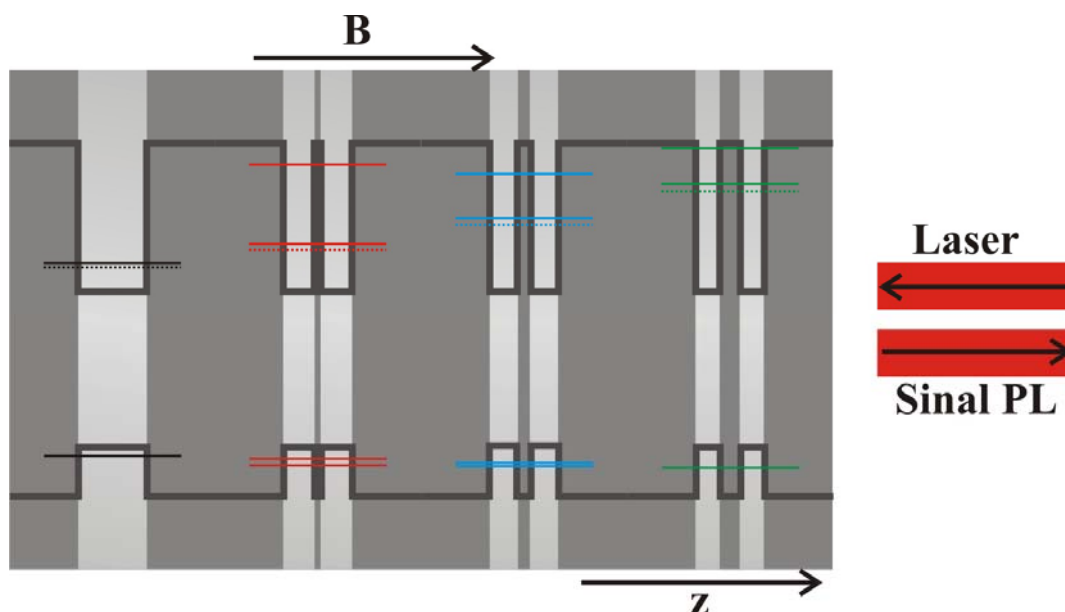


Figura 4.2 – Diagrama esquemático mostrando a posição da amostra montada dentro do magneto em relação à posição das fibras ópticas e a direção do campo magnético. Para cada hetero-estrutura, o diagrama mostra o primeiro nível de energia (SQW) e/ou o *split* do primeiro nível de energia devido ao acoplamento (DQW), nas bandas de valência e de condução. Em linhas tracejadas apresentamos o nível de energia associado aos éxcitons.

Cada espectro de PL foi obtido para valores fixos de temperatura T e B . Primeiramente, controla-se o valor de T no criostato e, aplicando um determinado valor de B na amostra, obtém-se o sinal de PL das hetero-estruturas excitadas pelo laser. Mantendo-se T constante, varia-se então o valor de B obtendo-se um novo espectro. Depois de obtidos espectros para vários valores de B entre zero a 12 T, repete-se todo o procedimento para um novo valor de T . Neste experimento, foram obtidos espectros para T igual a 2 K, 4 K, 15 K, 40 K, 80 K e 100 K, e, para cada temperatura, variamos B de zero a 3 T, em intervalos de 0.25 T, e de 3 T a 12 T em intervalos de 1 T.

Conforme mostrado na figura 3.2, para um dado valor de T e B , temos um espectro típico de PL onde a energia de transição de cada heteroestrutura que compõe nossa amostra corresponde a um pico na intensidade. Para cada temperatura, conforme mostrado na figura 4.3, normalizamos os espectros, colocando-os em gráficos que mostram como o sinal de PL varia com o campo magnético.

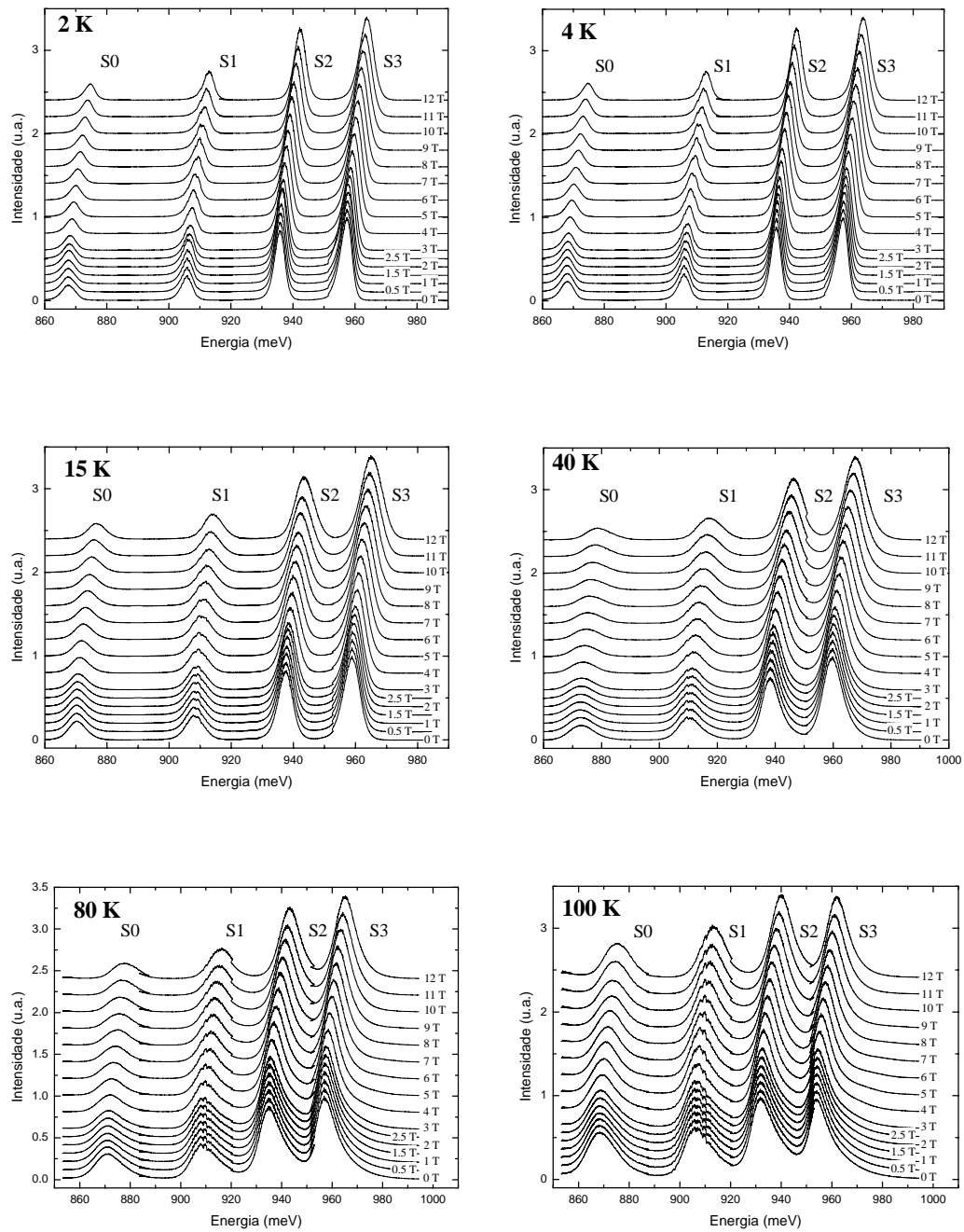


Figura 4.3 – Espectros de fotoluminescência em função do campo magnético, para valores fixos de temperatura.

Analisando-se estes espectros, verificamos que, em todas as temperaturas, o deslocamento dos picos de luminescência com o campo magnético é bem evidente para todas as quatro heteroestruturas. Este efeito é bem pronunciado para campos magnéticos superiores a 5 T, devido ao deslocamento dos níveis de Landau com o campo magnético. Em quase todas as estruturas, esse deslocamento é muito pouco evidente para campos inferiores a 2 T. Esta é a região de campos magnéticos fracos, onde vemos o deslocamento diamagnético para transições excitônicas, ou não vemos deslocamento para transições banda a banda. Contudo, para uma análise mais completa, é necessário determinar a posição central de cada um dos picos de PL, analisando-se a curva de magneto-fotoluminescência, ou seja, a energia de transição em função de B . Na próxima seção, essa análise será feita para cada estrutura em todas as temperaturas.

Outro efeito que fica evidente nos espectros da figura 4.3 é o efeito da temperatura. O aumento de energia térmica $K_B T$ associado ao aumento de temperatura faz com que os picos de PL se tornem mais largos. Nos espectros de 2 K e 4 K vemos que cada um dos picos é bem estreito e entre eles a intensidade de PL chega a ser zero, indicando que não existem sobreposições entre os picos. Diferente do que ocorre nos espectros de 80 K e 100 K, onde a energia térmica é grande o bastante para fazer com que os picos de energia tenham uma sobreposição. Felizmente, o alargamento térmico ainda foi suficientemente pequeno para não atrapalhar nossas análises, pois, mesmo nessas situações, o máximo de intensidade de cada pico ficou muito evidente. Contudo, conforme fora dito anteriormente, o acréscimo de $K_B T$ influencia no caráter da transição, porém só podemos determinar se esta é do tipo excitônica ou banda a banda analisando as curvas de MPL.

4.2 – Análise das curvas de magneto-fotoluminescência

Nos espectros de PL, fica evidente que o campo magnético atua no sistema promovendo um deslocamento dos níveis de energia. Pioneiros nesse tipo de pesquisa, Rogers et al.² basearam-se na teoria de Akimoto e Hasegawa³, e utilizaram campos magnéticos para determinar a massa efetiva reduzida (μ) do par elétron-buraco em heteroestruturas do tipo AlGaAs/GaAs. Estimulados por esse trabalho, outras pesquisas apareceram, afim de determinar μ para estruturas de outros materiais, como o InGaAs/GaAs⁴, o InGaAs/InP⁵⁻⁷ e o InGaAs/InAlAs/InP^{1,8}.

Em nossos espectros, cada pico de PL representa a energia de transição $E_T(B)$ entre o nível de menor energia na banda de condução para o nível de menor energia na banda de valência de cada estrutura. A energia de transição é uma função do campo magnético. Das características desse deslocamento em função de B , essa transição pode ser caracterizada como excitônica ou, simplesmente, banda a banda. A fim de determinar o caráter dessa transição e, utilizando o método descrito na seção 2.4, conhecer os valores de μ , α e E_b de cada estrutura, construímos gráficos da variação da energia de ligação, $E_T(B) - E_T(B=0)$, em função do campo magnético para cada estrutura. As curvas de magneto-fotoluminescência para a temperatura de 2 K estão apresentadas na figura 4.4 e são conhecidas como curvas. Essa análise foi repetida para todas as temperaturas, a fim de determinarmos como os sistemas se comportam em função de T . A figura 4.5 mostra o comportamento com a temperatura das curvas de magnetoluminescência para a estrutura S1. As outras estruturas apresentam comportamento similar.

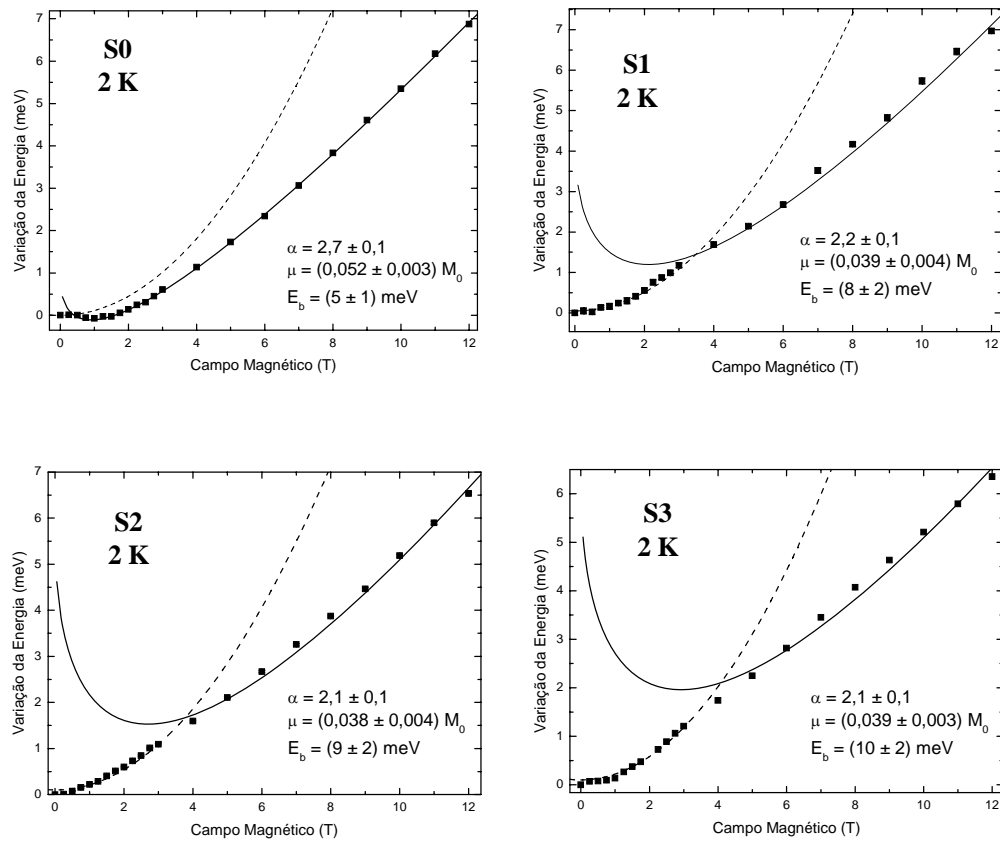


Figura 4.4 – Curvas de magneto-fotoluminescência para as quatro estruturas estudadas à temperatura de 2 K. Os pontos experimentais são os quadrados preenchidos, a curva sólida se refere aos ajustes de campo magnético intenso e as curvas tracejadas são referentes aos ajustes na região de campo magnético fraco.

Em primeira análise, podemos dizer que as quatro curvas apresentadas revelam comportamentos diferentes entre as DQW e a SQW. Observando as curvas referentes às estruturas S1, S2 e S3, para campos magnéticos baixos ($B < 3 \text{ T}$), a energia de transição começa a crescer em um regime parabólico até que passa a crescer de forma quasi-linear ($B > 6 \text{ T}$). Contudo não verificamos nenhum tipo de transição abrupta entre os regimes de campo para esses casos. Já para a estrutura S0, é muito fácil verificar um regime quasi-linear para campos magnéticos intensos, porém, para valores pequenos de campo magnético, o deslocamento não aparenta ter um regime quadrático. Isto provavelmente ocorre porque nessa estrutura o éxciton se encontra com menor energia de ligação. Como é a energia de ligação E_b do éxciton que determina a fronteira entre o regime de campo baixo ($E_b > \hbar q_0 B / \mu$) e o regime de campo alto ($E_b < \hbar q_0 B / \mu$), a SQW S0 está no regime de campo magnético alto já para $B \sim 0,5 \text{ T}$.

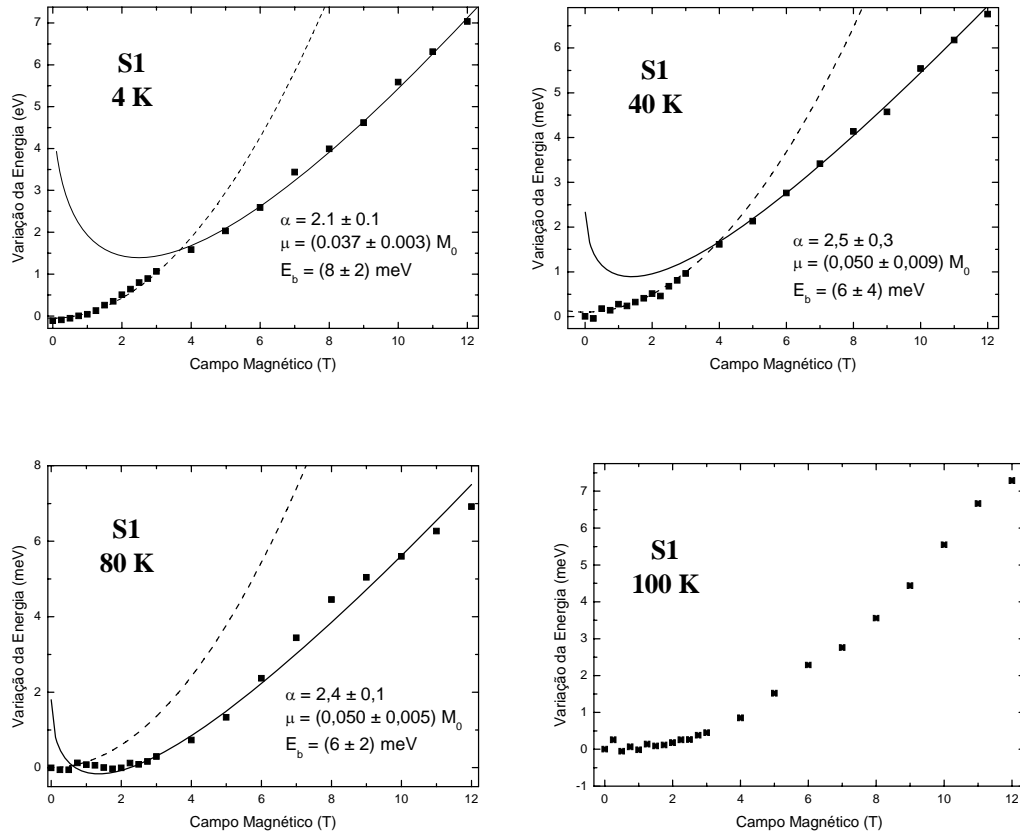


Figura 4.5 – Curvas de magneto-fotoluminescência da hetero-estrutura S1 em diferentes temperaturas. Os pontos experimentais são os quadrados preenchidos, a curva sólida é referente aos ajustes de campo magnético intenso e as curvas tracejadas são referentes aos ajustes na região de campo magnético fraco. Para temperatura de 100 K não é possível um ajustes em nenhum dos dois regimes de campo magnético.

Analisando o comportamento dos éxcitons em função da temperatura, verificamos uma clara mudança nas características das curvas de MPL. A exemplo do que está demonstrado na figura 4.5 para a estrutura S1, temos que em baixas temperaturas o regime quadrático fica bem evidente, porém para as temperaturas de 80 K e 100 K esse regime não é tão claro. Nessas temperaturas, a energia de ligação dos éxcitons é da ordem de $K_B T$. Sob esse aspecto é necessária uma análise mais cuidadosa para averiguarmos se a transição pode ser caracterizada como excitônica ou não.

Em posse das curvas de MPL, a próxima etapa do trabalho é utilizar a teoria descrita na seção 2.4 nas análises e ajustes das curvas, a fim de obter os valores adequados de μ e α para cada caso. Descreveremos o regime de campo magnético

fraco a partir do efeito de deslocamento diamagnético. O deslocamento diamagnético em poços quânticos é descrito pela equação (2.37), que reescreveremos na seguinte forma:

$$\Delta E(B) = D_1 \left(\frac{M_0}{\mu} \right)^3 a B^2, \quad (4.1)$$

onde

$$a = \frac{4\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon^2 \hbar^4}{q_0^2 M_0^3}, \quad (4.2)$$

é uma constante, M_0/μ é um parâmetro a ser ajustado e D_1 , que é uma função de α (eq. 2.38), também é um parâmetro de ajuste.

Para obtermos a equação de ajuste para regiões de campos magnéticos intensos, nos baseamos no efeito do deslocamento de níveis de Landau de éxcitons^{2,3}, e reescrevemos a equação (2.43) na seguinte forma:

$$\Delta E(B) = \frac{M_0}{\mu} b B - D_2 c B^{1/2}, \quad (4.3)$$

onde

$$b = \frac{\hbar q_0}{2M_0}, \quad (4.4)$$

e

$$c = \sqrt{\frac{9q_0^5}{64\pi^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon^2 \hbar}}, \quad (4.5)$$

são constantes, e os parâmetros de ajustes são M_0/μ e D_2 . Nesse caso, o parâmetro de dimensionalidade D_2 também é uma função de α (eq. 2.44).

Relacionando os valores de D_1 e D_2 a partir das expressões analíticas obtidas na seção 2.4, podemos ajustar as curvas de MPL utilizando um método autoconsistente. Para um determinado valor de α , calculamos o valor de D_2 associado a este e ajustamos a curva de MPL para uma estrutura em uma dada temperatura na região de campo magnético intenso, considerando D_2 como uma constante. Desta forma obtém-se o melhor valor de M_0/μ para aquele suposto valor de α . Então, testa-se o valor de massa encontrado tentando ajustar a mesma curva no regime de campos magnéticos fracos, cujo valor de D_1 já foi determinado pela escolha do valor de α . Repete-se esse procedimento para vários valores de dimensionalidade efetiva α . Assim, são obtidos alguns pares de valores de α e M_0/μ que ajustam ambos os regimes de campo magnético. Estes determinam a dimensionalidade efetiva e a massa reduzida de cada estrutura, com seus respectivos desvios padrão.

Em alguns casos, as curvas de ajustes não determinam nenhuma região de transição entre os dois regimes de campo magnético, ou seja, todos os pontos experimentais são ajustados por uma ou outra curva. O ponto de interseção entre as curvas de ajuste para cada regime proporciona uma estimativa da energia de ligação para o éxciton, lembrando que a caracterização de regime de campo alto ou baixo é feito comparando-se a energia de cíclotron, $\hbar q_0 B/\mu$, com a energia de ligação E_b . Essa estimativa está de acordo com a determinação da energia de ligação a partir dos valores de α e M_0/μ encontrados no ajuste, conforme descrito a seguir.

Curvas referentes a S0 a 2 K, na figura 4.4, e a estrutura S1, a 80 K, na figura 4.5, aparentam não ter o regime de deslocamento diamagnético. Contudo, ainda que não tenhamos como ajustar as curvas no regime de campo magnético fraco, é possível determinar um valor de α . Nestes casos, acreditamos que os éxcitons estão tão fracamente ligados que a transição de regime de campo magnético ocorre para valores de campo muito baixos. Este resultado é único e original na literatura científica e demonstra claramente o comportamento proporcional a $B^{1/2}$ proposta pelo modelo de Akimoto e Hasegawa³. Este efeito não é observado em curvas semelhantes à curva para S1 a 100 K (figura 4.5), onde a impossibilidade de um ajuste autoconsistente dos dados experimentais nos leva a acreditar que esta transição não é do tipo excitônica.

Após determinarmos os valores de massa reduzida e dimensionalidade efetiva dos éxcitons através das análises das curvas de MPL como descrito acima, utilizamos esses valores para determinar a energia de ligação do éxciton pela equação 2.17, que reescrevemos aqui na forma:

$$E_b = \left(\frac{2}{\alpha - 1} \right)^2 \frac{\mu}{M_0 \varepsilon^2} \times 13,6 \text{ eV}, \quad (4.6)$$

onde $(2/\alpha - 1)^2$ é o termo que corrige a energia segundo a sua dimensionalidade efetiva, $\mu/M_0 \varepsilon^2$ é o termo que leva em consideração os parâmetros dos materiais e 13,6 eV é a energia de ligação para o nível fundamental do átomo de hidrogênio.

Ao realizarmos os cálculos da energia de ligação dos éxcitons confinados em poços quânticos, um dos efeitos que devemos levar em consideração é o devido à diferença entre as constantes dielétricas dos materiais dos poços e barreiras de potencial. Rigorosamente, devemos considerar nas equações (4.2), (4.5) e (4.6) as constantes dielétricas dos materiais do poço e da barreira de potencial, colocando para cada uma um peso proporcional à extensão da função de onda do éxciton em cada região da heteroestrutura. Isso complicaria em demasiado os nossos cálculos para a inclusão de um efeito relativamente pequeno, já que as constantes dielétricas são semelhantes ($\varepsilon = 13,9$ para o $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$ e $\varepsilon = 13,4$ para o $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,27}\text{Al}_{0,20}\text{As}$, ver tabela 3.3). No entanto, para não excluirmos totalmente esse efeito em nossos ajustes, consideramos um valor médio razoável para a constante dielétrica, atribuindo a ela um desvio padrão. O valor que foi utilizado para o cálculo das constantes de ajustes (eqs. 4.2 e 4.5) e das energias de ligação dos éxcitons (eq. 4.6) em cada sistema foi $\varepsilon = 13,7 \pm 0,2$.

4.3 – Resultados

Os resultados dos ajustes nos revelam como o confinamento dos éxcitons modifica os valores de massa reduzida, dimensionalidade efetiva e, conseqüentemente, os valores da energia de ligação. O grau de confinamento dos éxcitons é expresso pelo valor do parâmetro de dimensionalidade efetiva que pode variar entre 2 e 3. Este valor, que foi determinado pelos ajustes, é também uma medida do grau de anisotropia da massa reduzida, cujo valor para o caso tridimensional é maior que o valor medido para o caso bidimensional para éxcitons de buracos pesados. Com isso, podemos dizer que o valor de μ obtido está fortemente ligado à dimensionalidade do sistema⁹. Contudo, ainda temos de levar em consideração a diferença de massas efetivas entre os materiais que compõem as heteroestruturas, em conseqüência da penetração da função de onda nas barreiras de potencial.

Conforme foi dito anteriormente, para cada uma das heteroestruturas que compõem a nossa amostra foram feitos ajustes autoconsistentes que determinaram seus valores de α e μ , para cada temperatura. É importante lembrar que, devido ao fato dessas heteroestruturas terem sido crescidas sobre um mesmo substrato, as condições experimentais no ato de cada medida foram idênticas para todas. Com a mudança de temperatura, podemos acompanhar como α e μ de cada heteroestrutura se modifica. Conforme demonstrado na figura 4.6, para as amostras do tipo DQW verifica-se que os valores de α e μ são bastante parecidos em todas as temperaturas. As pequenas diferenças entre eles indicam que, para poços mais estreitos, os valores obtidos para α e μ serão menores. Entretanto, a SQW se destaca fortemente das outras três estruturas. Isso se deve, certamente, por se tratar de um poço simples e bem mais largo que os outros. Além disso, a ausência da barreira de acoplamento diminui as correções originadas pela diferença de massas efetivas entre os poços e as barreiras.

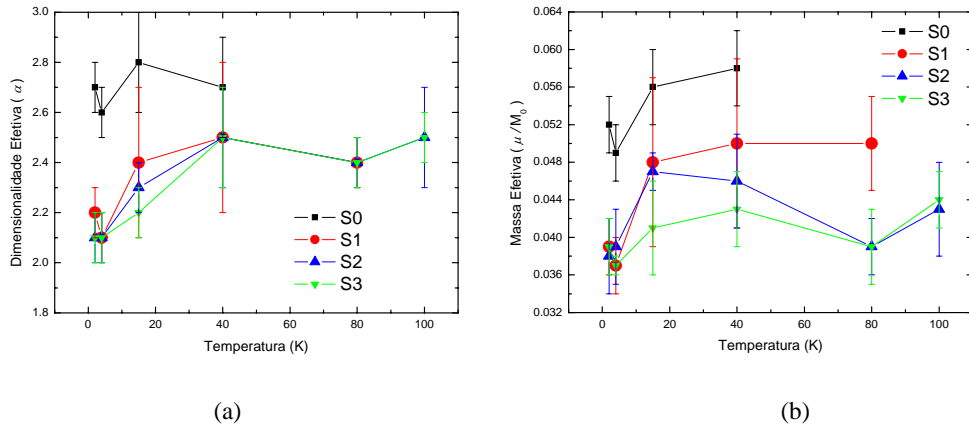


Figura 4.6 – (a) Dimensionalidade efetiva dos éxcitons em função da temperatura para as quatro heteroestruturas. (b) Massa efetiva relativa à massa fundamental do elétron em função da temperatura para as quatro heteroestruturas.

A partir dos resultados mostrados na figura 4.6, podemos calcular o valor de E_b para cada um dos casos, utilizando a equação 4.6. Os resultados foram colocados na figura 4.7 e demonstram o valor de E_b determinado nas diferentes temperaturas. Isto demonstra os efeitos da dimensão dos poços e da temperatura influenciando na capacidade de dissociação dos éxcitons. Este gráfico confirma que, para temperaturas abaixo de aproximadamente 40 K, os éxcitons formados em poços mais estreitos são mais fortemente ligados, o que corrobora o que foi previsto em nossos cálculos (seção 3.5). Também para este caso, o valor de E_b obtido para a SQW é significativamente diferente dos valores obtidos para os DQW, o que reforça a grande diferença entre as estruturas.

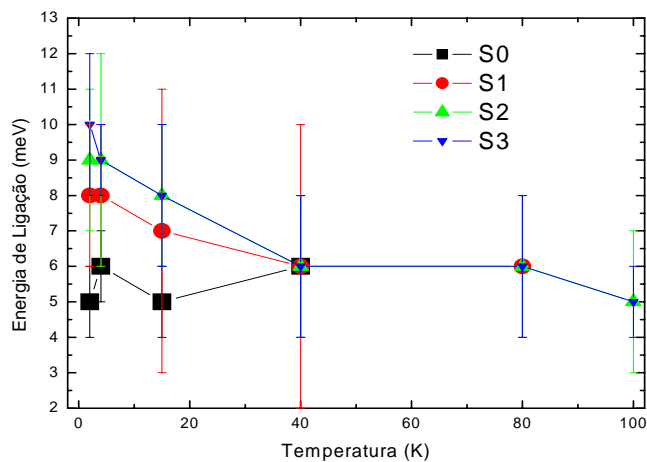


Figura 4.7 – Energia de ligação dos éxcitons confinados em função da temperatura para as quatro heteroestruturas.

À medida que aumentamos a temperatura do sistema, verificamos uma queda sistemática do valor estimado de E_b para todas as heteroestruturas. Isso ocorre pois o fornecimento de energia térmica $K_B T$ torna o éxciton cada vez mais instável, ou seja, menos fortemente ligado. Quando E_b é comparável a $K_B T$, dizemos que existe uma transição entre o regime de transição excitônica (par elétron-buraco é interagente) para um regime de transição banda a banda (par não interagente). Isso pode ser verificado na figura 4.7 para as estruturas S0 e S1. Acompanhando seus valores estimados de E_b para diferentes T , verificamos que para temperaturas mais elevadas não conseguimos obter mais um bom ajuste para as curvas de magnetofotoluminescência, indicando que o par elétron-buraco não é mais interagente e nosso modelo teórico, que tem como hipótese a formação de éxcitons, não se aplica mais. No caso da heteroestrutura S1 essa transição entre recombinação excitônica e recombinação banda-a-banda fica mais evidente pois ocorre por volta de 80 K e 100 K. Conforme demonstrado na figura 4.5, ainda conseguimos ajustar as curvas de MPL à temperatura de 80 K, porém não é possível realizar um ajuste para a temperatura de 100 K onde $K_B T = 8.6$ eV, que é aproximadamente o valor da energia de ligação que obtivemos para E_b na DQW S1, para temperaturas de 2 K e 4 K.

É importante lembrar que os valores de E_b , α e μ , são definidos apenas em $T=0$, portanto não é possível descrevê-los em função de T . Contudo, utilizando nossos modelos podemos estimá-los em diferentes temperaturas e descrever como que $K_B T$ interfere na determinação desses valores, ou seja, como que a agitação térmica contribui facilitando a dissociação dos éxcitons nas estruturas.

4.4 – Comparação entre cálculos teóricos e os resultados experimentais

Utilizamos o método MLC⁹ (Mathieu, Lefebvre e Christol) para calcular a energia de ligação dos éxcitons confinados em poços quânticos, utilizando a aproximação de Zhao et al.¹⁰ para tratar os sistemas de DQW. O roteiro deste procedimento e os resultados teóricos que obtivemos estão descritos nas seções 2.3 e 3.5, respectivamente. Nessas duas referências, os autores realizam seus cálculos para heteroestruturas GaAs/AlGaAs e comparam seus resultados teóricos com resultados experimentais obtidos por eles ou por outros autores. Ambos os trabalhos obtiveram uma boa concordância entre teoria e experimento, demonstrando que o método MLC se aplica para cálculos das estruturas GaAs/AlGaAs e o conjunto de parâmetros que as compõe.

O mesmo pode ser dito sobre nossas estruturas. Conforme vemos na figura 4.8, o cálculo feito descreve muito bem o comportamento que obtivemos experimentalmente. Ou seja, à medida que aumentamos a largura da barreira de acoplamento, e conseqüentemente, diminuimos as larguras dos poços quânticos, nossos éxcitons ficam mais confinados e mais fortemente ligados. Por isso a energia de ligação da SQW S0 é consideravelmente menor quando comparada com as DQW, que por sua vez são bem semelhantes entre si. Sendo assim, podemos dizer que nossos resultados experimentais servem bem como teste para o método de cálculo proposto, quando utilizamos o conjunto de parâmetros dos materiais InGaAs e InGaAlAs com parâmetro de rede igual ao do InP. Desta forma podemos discutir a relevância dos efeitos que foram levados em consideração ao realizar os cálculos e a qualidade dos parâmetros disponíveis na literatura. Uma vez que essas ligas ainda são pouco estudadas, quando comparadas às heteroestruturas baseadas no sistema GaAs/AlGaAs, esse é um bom método para julgar a qualidade desses parâmetros.

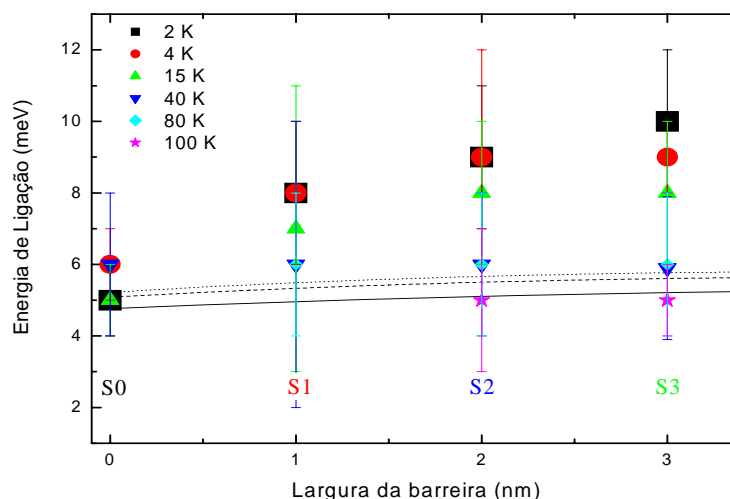


Figura 4.8 – Comparação entre os resultados experimentais e teóricos para as heteroestruturas de InGaAlAs/InGaAs na faixa de temperatura investigada. A linha sólida representa os cálculos utilizando a aproximação parabólica, a linha tracejada a correção de não-parabolicidade considerando $\alpha' = 1.35 \text{ eV}^{-1}$ e $\beta' = 0$, e a linha pontilhada considerando $\alpha' = \beta' = 1.35 \text{ eV}^{-1}$ para a correção de não-parabolicidade.

Embora concordem bem qualitativamente, quando comparamos os resultados obtidos em valores absolutos vemos que os cálculos teóricos e os resultados experimentais apresentam uma diferença significativa. Isso, provavelmente, é resultado da falta de parâmetros confiáveis para os materiais das heteroestruturas, sobretudo os parâmetros de Luttinger para a massa efetiva dos buracos nas barreiras de potencial, que são resultados muito difíceis de serem obtidos experimentalmente. Nossos resultados experimentais revelam também a grande relevância do efeito de não-parabolicidade na banda de condução para heteroestruturas de InGaAs/InGaAlAs. Tomando como base a figura 3.9 onde apresentamos como o efeito de não-parabolicidade na banda de condução modifica o valor da energia de ligação de um éxciton confinado em DQW de GaAs/AlGaAs, podemos dizer que na faixa que corresponde a aproximadamente $2 \text{ nm} < L_b < 7 \text{ nm}$ a correção em E_b segundo o efeito de não-parabolicidade é maior. Podemos esperar que, para estruturas de InGaAs/InAlGaAs, existam regiões onde essa correção é mais proeminente. Isso pode ser verificado na figura 4.8, quando comparamos a SQW com as outras estruturas, onde o valor calculado para E_b é muito próximo ao valor obtido através dos ajustes experimentais, enquanto os valores calculados para a energia de ligação nas DQW são consistentemente inferiores aos resultados obtidos experimentalmente. Conforme foi discutido anteriormente, os efeitos de não-parabolicidade devem ser mais importantes para poços de potencial mais estreitos. Uma correção de não-parabolicidade maior levaria certamente a uma melhor

concordância teórico-experimental para as nossas estruturas. Concluindo, podemos dizer que é necessário estabelecer melhor os parâmetros de correção para o efeito de não-parabolicidade se quisermos calcular com precisão os valores de energia de ligação dos éxcitons em heteroestruturas de InGaAs/InGaAlAs.

4.5 – Referências ao Capítulo 4

1. **M. Valadares**, *Magneto-éxcitons em super-redes de InAlAs/InGaAs*, dissertação de mestrado, Universidade Federal de Minas Gerais, maio 2004.
2. D. C. Rogers, J. Singleton, R. J. Nicholas, C. T. Foxon, and K. Woodbridge, Phys. Rev. B **34**, 4002 (1986).
3. O. Akimoto and H. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. 22, 181 (1967)
4. D. C. Reynolds, D. C. Look, B. Jogai, and C. E. Stutz, Appl. Phys. Lett. **65**, 2293 (1994).
5. D. J. Mowbray, J. Singleton, M. S. Skolnick, N. J. Pulsford, S. J. Bass, L. L. Taylor, R. J. Nicholas, and W. Hayes, Superlattices Microstruct. **3**, 471 (1987).
6. M. Sugawara, N. Okazaki, T. Fujii, and S. Yamazaki, Phys. Rev. B **48**, 8848 (1993).
7. O. Jaschinski, M. Vergöhl, J. Schoenes, A. Schlachetzki e P. Bönsch, Phys. Rev. B **57**, 13086 (1998).
8. K-S Lee e W-S Han, J. Korean Phys. Soc **44**, 471 (2004).
9. H. Mathieu, P. Lefebvre and P. Christol, Phys. Rev. B **46**, 4092 (1992).
10. Q. X. Zhao, B. Monemar, P. O. Holtz, M. Willander, B. O. Fimland e K. Johannessen, Phys. Rev. B **50**, 4476 (1994).

Capítulo 5

Conclusão

Neste trabalho, estudamos a interação de pares elétron-buraco, gerados por fotoexcitação, em heteroestruturas semicondutoras. Estas estruturas são constituídas por camadas alternadas de dois materiais semicondutores diferentes, formando poços quânticos nas bandas de condução e de valência. Devido ao confinamento quântico nos poços de potenciais, os elétrons (buracos) ocupam auto-estados discretos na banda de condução (valência), cujos autovalores de energia dependem das dimensões da heteroestrutura e das propriedades dos materiais. Confinados dentro dos poços, pares elétron-buraco interagem via um potencial de interação coulombiano formando éxcitons de Wannier, que podem ser modelados como átomos hidrogenóides em um meio material.

Assim como acontece para os níveis de energia dos poços de potencial, quando resolvemos o problema da energia de ligação dos éxcitons utilizando o modelo de átomos hidrogenóides, os autovalores de energia que obtemos também são funções das dimensões das heteroestruturas e das propriedades dos materiais utilizados em sua confecção^{1,3}. Devido à interação do par elétron-buraco, o espectro de energia da recombinação do par deve ser corrigido subtraindo da transição banda a banda a energia de ligação do éxciton (E_b). Esta correção é uma assinatura típica dessa interação e o valor de E_b para éxcitons confinados pode chegar a ser quatro vezes maior que o valor encontrado em éxcitons em materiais *bulk*^{3,4}.

Outro resultado típico para esta interação são os efeitos que ocorrem nos espectros de energia desses sistemas na presença de um campo magnético (B) paralelo à direção de crescimento das heteroestruturas. Descrito primeiramente por Akimoto e Hasegawa⁴, para éxcitons idealmente confinados em um plano, o deslocamento dos níveis de energia em função de B apresenta dois regimes. O primeiro, chamado de regime de campo magnético fraco, tem forma quadrática no campo magnético e trata-se de um deslocamento diamagnético que ocorre apenas quando temos interação do par elétron-buraco formando um sistema hidrogenóide. O segundo é um regime de campo magnético intenso, dominado pelo deslocamento dos níveis de Landau com o campo

magnético, mas apresentando uma correção que é uma função de $B^{1/2}$ toda vez que o par é interagente.

Devido ao fato dos poços quânticos reais não se tratarem de estruturas idealmente bidimensionais ou idealmente tridimensionais, podemos corrigir os efeitos de deslocamento dos níveis de energia em função de B atribuindo parâmetros de dimensionalidade D_1 e D_2 aos regimes de campos magnéticos fracos e intensos respectivamente^{5,6}. Da mesma forma, podemos atribuir uma dimensionalidade efetiva^{2,3} (α) fracionária ao éxciton, modelando assim como o confinamento modificaria o valor de E_b obtido no sistema. Podemos escrever os parâmetros D_1 [7] e D_2 em termos de expressões analíticas em função de α . Com isso, torna-se possível analisar o efeito do deslocamento dos níveis de energia excitônicos devido à ação do campo magnético, utilizando um único parâmetro de ajuste, α , que expressa a dimensionalidade efetiva (ou grau de anisotropia) do sistema. No entanto, para a maioria das heteroestruturas semicondutoras, a massa efetiva de buracos não é bem conhecida. Dessa forma torna-se necessário⁸ usar dois parâmetros de ajuste na análise do deslocamento dos níveis de energia excitônicos com o campo magnético, os valores de α e da massa reduzida (μ) dos éxcitons confinados. A partir desses valores podemos determinar a energia de ligação E_b para os éxcitons em poços de potencial.

Para estudar estes efeitos, realizamos medidas de magnetofotoluminescência (MPL), em diferentes temperaturas (T), em um estrutura do tipo poço quântico simples (SQW) e em três estruturas do tipo poços quânticos duplos (DQW), crescidas como camadas alternadas de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ e $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.27}\text{Al}_{0.20}\text{As}$, sobre um mesmo substrato de InP. Conforme descritas na seção 3.1, a SQW, a quem chamamos de S0, é um poço simples de largura $L_w = 10$ nm e as DQW, denominadas S1, S2 e S3, são formadas por dois poços de potencial estreitos separados por uma barreira de acoplamento com larguras $L_b = 1$ nm, $L_b = 2$ nm e $L_b = 3$ nm, respectivamente. A largura total de cada DQW é $L_w + L_b + L_w = 10$ nm, ou seja, quanto maior a largura da barreira de acoplamento entre os poços, mais estreitos são estes poços.. Por terem sido crescidas sobre um mesmo substrato, as medidas foram

realizadas simultaneamente em todas as quatro estruturas, garantindo condições experimentais idênticas.

As medidas de MPL mostram como o espectro de energia se desloca em função de B para transições entre o nível fundamental dos poços de potencial na banda de condução para o nível fundamental na banda de valência. Analisando esse deslocamento, podemos caracterizar essa transição como sendo excitônica ou puramente banda a banda. Além disso, para as transições excitônicas, podemos extrair os valores de α e μ para cada um dos casos, determinando assim os valores da energia de ligação E_b . Com estes resultados, concluímos que em nossas heteroestruturas, a medida que diminuimos as larguras dos poços, os éxcitons ficam mais confinados. Ou seja, para poços mais estreitos temos menores valores de α . Da mesma forma, os valores de μ obtidos aparentam essa mesma tendência, ou seja, obtemos menores valores de massa efetiva reduzida dos éxcitons para os poços mais estreitos. Isto ocorre, pois o parâmetro α nada mais é que uma medida do grau de anisotropia espacial dos sistemas quase-bidimensionais². Assim, ambos valores estão intimamente ligados, conforme modelado pela equação (2.28). Além disso, sabemos que conforme modifica-se o confinamento das partículas (elétrons e buracos), muda-se também a parcela de suas funções de onda que penetram nas barreiras de potencial. Conforme descrito na seção 2.3, o valor de μ obtido também se altera, devido à diferença de massa desses materiais³.

Nas estruturas DQW, os poços são bem mais estreitos do que o poço da SQW, o que conferirá à função de onda do éxciton a tendência de apresentar uma característica significativamente mais bidimensional. Apesar de ser um efeito menos significativo, não podemos deixar de lembrar que nas DQW existe uma fina barreira de acoplamento, o que aumenta a correção dos valores de massa devido ao efeito de diferença de massas efetivas entre os materiais do poço e da barreira. Considerando todos esses efeitos, os valores de α e μ são significativamente maiores em S0, quando comparados aos valores encontrados nas outras estruturas. O mesmo efeito pode ser verificado nos valores estimados de E_b . O éxciton em S0 é menos fortemente ligado, tendendo a se dissociar mais facilmente, possuindo assim uma transição do regime de campo magnético baixo para o regime de campo magnético alto para valores bem menores de B , comparado aos valores obtidos para as estruturas DQW.

Com o aumento da temperatura, foi possível verificar como a agitação térmica ($K_B T$) atua nos éxcitons facilitando sua dissociação. Em todos os resultados vimos uma forte tendência da diminuição de E_b , conforme aumentamos T . Em dois casos, S0 e S1, ficou bem evidente que E_b diminui até que o éxciton se dissocie, mudando a característica do tipo de transição. Ou seja, em situações onde $K_B T$ é comparável a E_b , não é possível identificar com clareza o deslocamento diamagnético nas curvas de MPL. Conforme demonstrado na figura 4.5, esse efeito fica bem evidente para as temperaturas de 80 K e 100 K. No primeiro caso, ainda conseguimos ajustar as curvas utilizando o modelo de éxciton α -dimensionais, mas em 100 K não foi possível ajustar as curvas de MPL com esse modelo. A impossibilidade de realizar esses ajustes indica que o éxciton se dissociou e portanto a transição deixou de ter caráter excitônico.

Nossos resultados experimentais são um teste para a eficiência do método de cálculo de energia de ligação proposto por Mathieu, Lefebvre e Christol³. Uma vez que esse método havia sido comprovado anteriormente pelos autores apenas em sistemas GaAs/AlGaAs, seria interessante verificar se o mesmo método tem a mesma eficiência em outras heteroestruturas, como as de InGaAs/InGaAlAs. Além disso, simultaneamente, nossos resultados nos permitem avaliar os parâmetros das ligas semicondutoras InGaAs e InGaAlAs disponíveis na literatura científica. Assim, utilizando a aproximação de Zhao et al.⁹ para estruturas DQW, realizamos os cálculos e verificamos que estes predizem muito bem o comportamento encontrado nas nossas heteroestruturas. Contudo, ficou claro da comparação quantitativa entre os nossos cálculos teóricos e resultados experimentais que os parâmetros disponíveis desses materiais ainda precisam ser melhor estabelecidos. Nesse aspecto, conforme mostrado na figura 4.8, nossos resultados indicam que o efeito de não-parabolicidade para estruturas de poços quânticos de InGaAs/InGaAlAs é significativo, relativamente maior do que em estruturas semelhantes de GaAs/AlGaAs.

5.1 – Referências ao Capítulo 5

1. **Bastard, G.**, *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*, Les Éditions de Physique (1992).
2. X. F. He, Phys. Rev. B **43**, 2063 (1991).
3. H. Mathieu, P. Lefebvre and P. Christol, Phys. Rev. B **46**, 4092 (1992).
4. O. Akimoto and H. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **22**, 181 (1967).
5. D. C. Rogers, J. Singleton, R. J. Nicholas, C. T. Foxon, and K. Woodbridge, Phys. Rev. B **34**, 4002 (1986).
6. D. J. Mowbray, J. Singleton, M. S. Skolnick, N. J. Pulsford, S. J. Bass, L. L. Taylor, R. J. Nicholas, and W. Hayes, Superlattices Microstruct. **3**, 471 (1987)
7. A. Thilagam, Physica B **262**, 390 (1999).
8. **M. Valadares**, *Magneto-éxcitons em super-redes de InAlAs/InGaAs*, dissertação de mestrado, Universidade Federal de Minas Gerais, maio de 2004.
9. Q. X. Zhao, B. Monemar, P. O. Holtz, M. Willander, B. O. Fimland e K. Johannessen, Phys. Rev. B **50**, 4476 (1994).