

**Dinâmica do Pseudo-spin de Exciton-polariton em**

**Microcavidades Semicondutoras**

Thonimar Vieira de Alencar Souza

Agosto de 2010



**Universidade Federal de Minas Gerais - UFMG**  
**Instituto de Ciências Exatas - ICEx**  
**Programa de Pós Graduação em Física**

**Dinâmica do Pseudo-spin de Exciton-polariton em Microcavidades  
Semicondutoras**

Thonimar Vieira de Alencar Souza

Orientador: Prof. Dr. Franklin Massami Matinaga

Dissertação apresentada à UNIVERSIDADE FEDERAL DE  
MINAS GERAIS, como requisito parcial para a obtenção do  
grau de Mestre em Física.

Área de Concentração: Física da Matéria Condensada.

Agosto de 2010

*Pandora não resistiu à curiosidade. E quando o Mal tinha tomado um quarto da Terra sobre seu domínio, um quarto de cem Pássaros de Enxofre voou das Profundezas. Os pássaros cruzaram centenas de montanhas e encontraram vinte e quatro homens sábios que vieram das estrelas. E então começou, os crentes se atreveram a ouvir. Em seguida, pegaram suas canetas e se atreveram a criar. Finalmente, eles ousaram compartilhar seus escritos com toda a humanidade. Espalhando palavras de liberdade e rompendo as correntes, os pássaros trouxeram libertação para todos.*

*E novamente Mamon adormeceu.*

*Adaptado de O Livro de Mozilla, 11:1*

# Agradecimentos

Em primeiro lugar, agradeço a minha família. Meus pais, incondicionalmente, são a mais importante fonte de motivação, em todos os sentidos, e a evolução de cada passo de minha vida, sempre foi impulsionado pelo apoio deles. Agradeço à Alana, pelo companheirismo, compreensão e amizade durante estes vários meses de convivência.

Também gostaria de agradecer ao meu orientador, o professor Franklin Martinaga, pela confiança e persistência, lapidadas durante várias horas de trabalho no laboratório, junto com a agradável convivência do Vitor e da Marina.

Shirley Marciel e Maria Clarice, em conjunto com a equipe da biblioteca, foram pessoas essenciais para conclusão deste trabalho. Na Biblioteca Professor Manoel Lopes de Siqueira, existe um cativante empenho na busca de qualquer tipo de informação, adicionada a uma contínua disposição em ajudar. Por toda a generosidade, muito obrigado.

Por fim, agradeço a todos os colegas e companheiros do departamento, principalmente a galera da sala 3087.

# Resumo

Esta dissertação tem como objetivo relatar as informações originadas a partir do estudo da dinâmica do pseudo-spin do estado exciton-polariton formado em uma microcavidade semicondutora baseada em Arseneto de Gálio. O estado de exciton-polariton é apresentado como um efeito do acoplamento entre a excitação do campo eletromagnético e o estado de exciton seguindo o formalismo da teoria quântica de muitos corpos. Algumas características físicas da microcavidade são descritas, mostrando a relação na transição eletrônica inter-bandas entre o spin do exciton e a polarização do feixe de excitação. O conceito de pseudo-spin do polariton é construído e os principais aspectos de sua dinâmica, formação e relaxação, são discutidas. Por fim, são descritos alguns resultados obtidos por medidas de fotoluminescência resolvida no tempo, explorando os possíveis mecanismos de relaxação de spin na microcavidade.

**Palavras-chaves:** microcavidade, arseneto de gálio, exciton-polariton, pseudo-spin.

# Abstract

This dissertation aims to report the information derived from the study of the dynamics pseudo-spin state of the exciton-polariton formed in a semiconductor microcavity based on Gallium Arsenide. Exciton-polariton state is presented as an effect of coupling between the excitation of the electromagnetic field and exciton state following the formalism of many-body quantum theory. Some physical characteristics of the microcavity are described, showing the relationship in the inter-band electronic transition between exciton spin and polarized excitation beam. The concept of pseudo-spin polariton is built and the main aspects of its dynamics, formation and relaxation, are discussed. Finally, we describe some results obtained by photoluminescence measurements resolved in time, exploring the possible mechanisms of spin relaxation on microcavity.

**Keywords:** microcavity, gallium arsenide, exciton-polariton, pseudo-spin.

# Sumário

<b>Resumo</b>	<b>I</b>
<b>Abstract</b>	<b>II</b>
<b>Lista de Figuras</b>	<b>V</b>
<b>1 Introdução</b>	<b>1</b>
<b>2 Teoria Microscópica de Exciton-Polaritons</b>	<b>4</b>
2.1 Excitons em Semicondutores . . . . .	5
2.1.1 Quantização do campo de exciton . . . . .	6
2.1.2 Excitons como Bósons . . . . .	7
2.2 Quantização do Campo Eletromagnético . . . . .	8
2.2.1 Hamiltoniano do Campo Livre . . . . .	8
2.3 Interação Exciton-Fótons e Auto-Interação . . . . .	10
2.4 Exciton-Polaritons . . . . .	11
2.4.1 Modos Upper e Lower Polariton . . . . .	12
2.4.2 Relação de Dispersão . . . . .	13
<b>3 Detalhes Experimentais</b>	<b>18</b>
3.1 Sobre a Microcavidade . . . . .	18
3.2 Estrutura de Banda do <i>GaAs</i> . . . . .	20
3.3 Regra de Seleção e Sub-bandas . . . . .	21
3.4 Gerando Pulsos de Femtosegundos . . . . .	23
3.5 Técnica Experimental . . . . .	26

<i>SUMÁRIO</i>	IV
<b>4 Dinâmica de Spin</b>	<b>29</b>
4.1 Orientação Ótica de Spin . . . . .	30
4.2 Relaxação de Spin . . . . .	32
4.3 Formalismo de Pseudo-spin e Matriz Densidade . . . . .	33
<b>5 Resultados e Conclusões</b>	<b>37</b>
5.1 Medidas com Variação da Dessintonia . . . . .	39
5.2 Variação da Potência de Excitação . . . . .	42
5.3 Considerações Finais . . . . .	42
<b>Apêndice A</b>	<b>44</b>
<b>Referências Bibliográficas</b>	<b>45</b>



# Lista de Figuras

1.1	Curva de dispersão do lower polariton. . . . .	2
2.1	Esboço da curva de dispersão do upper e lower polariton com diferentes dessintonias:(a) $\delta > 0$ , (b) $\delta = 0$ e (c) $\delta < 0$ . As curvas tracejada e tracejada-pontilhada representam a dispersão do exciton e fóton desacoplados, respectivamente. . . . .	14
2.2	(a) Espectro de emissão da microcavidade como função da dessintonia. (b) A projeção do espectro no plano mostra o Rabi splitting entre os dois modos em função da dessintonia. Os parâmetros utilizados são $\hbar\gamma = 0,1meV$ e $\hbar\Omega = 3meV$ . . . . .	15
2.3	Esboço do espectro de emissão da microcavidade. Os dois picos de distribuição Lorentziana, representam os dois modos exciton-polariton. . . . .	17
3.1	Representação de uma microcavidade com poço quântico. O potencial tipo poço quadrado formado por $Al_{0,30}Ga_{0,70}As$ e $GaAs$ ao longo da direção de crescimento. . . . .	19
3.2	Estrutura de banda do $GaAs$ próximo ao cento da zona de Brillouin. . . . .	20
3.3	Dispersão da sub-banda de valência para um poço quântico de $GaAs$ de $11,2nm$ com barreiras de $Al_xGa_{1-x}As$ com $x = 0,51$ obtidas por Altarelli e co-autores. . . . .	22
3.4	Os diagramas <b>a)</b> , <b>b)</b> e <b>c)</b> representam as correspondentes transições inter-bandas $hh - c$ , $lh - c$ e $so - c$ , respectivamente. Os números próximos as setas representam as intensidades de transição relativas. . . . .	23
3.5	Esboço básico do modelo Trestles-50. . . . .	24

3.6	Pulsos formados a partir da sobreposição de cinco modos ( $N = 5$ ) com mesma fase. . . . .	26
3.7	Esquema da montagem experimental para realizar medidas de <i>pump-probe</i> . . .	27
3.8	Espectro de emissão da microcavidade à temperatura de 10K, mostrando Rabi <i>splitting</i> de $\sim 3,02meV$ . . . . .	28
4.1	<i>Splitting</i> longitudinal-transversal para o lower e upper polariton calculados com diferentes dessintonias. . . . .	33
4.2	Esfera de Poincaré com pseudo-spin. Os pontos no equador da esfera correspondem a diferentes polarizações lineares e os polos correspondem a duas polarizações circulares. . . . .	34
5.1	Espectro do pulso laser. A linha contínua representa o <i>fitting</i> gaussiano com FWHM=38,96meV. . . . .	39
5.2	(a) Gráfico tridimensional e (b) linhas de contorno da intensidade resultantes da medidas de fotoluminescência resolvida no tempo com $\delta = -1,72meV$ . . .	40
5.3	Medida do tempo de precessão versus dessintonia a uma temperatura de 11,7K. Também é mostrada a relação linear entre a dessintonia e a energia de emissão (eixo a direita). . . . .	41
5.4	Medida da intensidade integrada versus o tempo de atraso. Diferentes tempos de relaxação são observados para dessintonia negativa (a) $\delta = -1,72meV$ e dessintonia positiva (b) $\delta = 0,36meV$ . . . . .	41
5.5	Medida da variação temporal da área espectral em função do tempo de atraso para diferentes potências. . . . .	42

# Capítulo 1

## Introdução

A possibilidade de fabricação de dispositivos opto-eletrônicos dependentes de spin baseados em microcavidades semicondutoras tem atraído a atenção nos últimos anos [1, 2]. A dinâmica do spin, de elétrons e buracos, está intrinsecamente ligada as propriedades óticas do meio. Assim microcavidades tem permitido o estudo de propriedades de spin através do estado de polarização da excitação ótica. Nestes sistemas excitons em poços quânticos são confinados em regiões tão pequenas quanto o seu raio de Bohr, e acoplados com fótons, criam um novo estado de excitação elementar conhecido como *exciton-polariton*. Do ponto de vista quântico, este estado da matéria pode ser entendido como um estado de excitação de dois osciladores acoplados podendo ser representado por operadores de criação e aniquilação seguindo o formalismo de segunda quantização. Por outro lado, é possível utilizar as equações de Maxwell e seguir um tratamento semiclássico de interação luz-matéria descrevendo as alterações do campo eletromagnético propagando-se no cristal [3]. Respeitando as leis de conservação e regras de seleção da transição cristalina, a curva de dispersão de polariton exhibe um típico anti-cruzamento dos dois modos normais [4, 5], caracterizando o regime de acoplamento forte entre a luz e a matéria. Esta curva de dispersão difere substancialmente das dispersões excitônica e fotônica, e depende da diferença de energia entre elas, definindo o que chamamos de dessintonia.

A formação dos dois auto-estados, *lower* polariton e *upper* polariton, segue uma relação bem definida entre energia e vetor de onda, originando as curvas de dispersões. Em particular, a dispersão do *lower* polariton possui um ponto de inflexão para um determinado vetor de onda como é mostrado na Figura 1.1. Então, se a excitação ocorre no ponto de inflexão da curva de dispersão do lower polariton, o regime de amplificação paramétrica [6, 7] pode ser alcançado, permitindo a formação de estados correlacionados *signal* e *idler*.

Um outro assunto que tem chamado a atenção para microcavidades semicondutoras está

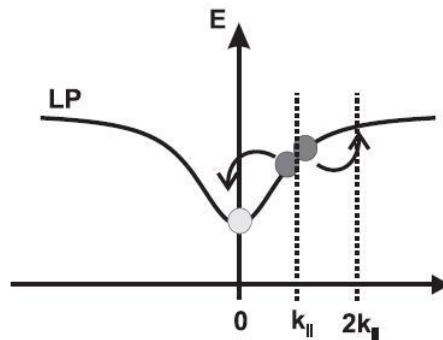


Figura 1.1: Curva de dispersão do lower polariton.

relacionado com a observação de transição de fase para transição de fase quântica condensada [8, 9]. Exciton-polaritons no regime de baixas densidades se comportam como bósons, tornando-se bons candidatos para formação do condensado de Bose-Einstein em sistemas de estado sólido. Assim, a ocupação massiva no estado fundamental e a coerência espontânea são características que podem ser exploradas para realização do *laser polariton* [10, 11], por exemplo. Mais recentemente, efeitos quânticos de superfluidez também tem sido reportado [12].

Contudo, o estado exciton-polariton herda as propriedades de spin e momento de dipolo do feixe de excitação polarizado. Consequentemente a polarização do feixe de bombeio permite o controle ótico coerente da orientação de excitons em poços quânticos [13]. Como será descrito adiante, a polarização da fotoluminescência da microcavidade depende sobre o estado de pseudo-spin do polariton. No entanto, devido a diversos processos de relaxação de spin o grau de polarização do estado inicial é perdido. Por outro lado, os resultados no Capítulo 5 mostram que o tempo de relaxação de spin pode ser controlado por algum fator externo como a dessintonia. Por estes motivos, microcavidades podem ser utilizadas para

transferência de informação ótica a curtas distâncias utilizando a polarização como grau de liberdade, viabilizando a fabricação de amplificadores e *switches* sensíveis a polarização [14].

Nesta dissertação, está contida uma breve descrição da teoria microscópica de formação de exciton-polaritons seguindo a teoria quântica de campos (Capítulo 2). Nos Capítulos 3 e 4 segue os detalhes do experimento, incluindo algumas características fundamentais da física de semicondutores e dinâmica de spin. Por fim, no Capítulo 5, são apresentados os resultados de medidas de fotoluminescência resolvida no tempo de uma microcavidade semicondutora baseada em *GaAs* com um único poço quântico, seguido das conclusões.

## Capítulo 2

# Teoria Microscópica de Exciton-Polaritons

Em semicondutores, quando um elétron é excitado da banda de valência para a banda de condução, deixa um espaço vazio na banda de valência, que pode ser descrito por uma quase-partícula com carga oposta ao elétron, chamada de “buraco”. A interação de Coulomb, entre o elétron e o buraco, produz um potencial atrativo formando um estado ligado destas duas “partículas” conhecida como *exciton*. Se um campo eletromagnético dentro deste semicondutor possui a mesma frequência de vibração do estado de exciton, o acoplamento entre fóton e exciton pode acontecer, levando a um estado de excitação elementar, conhecido como polariton (ou exciton-polariton). Em particular, estamos interessados em excitons produzidos em um poço quântico, inserido em uma microcavidade ótica com alto fator de qualidade, estudados extensivamente nas últimas décadas [15, 16, 17, 18]. Desta forma, tratamos de descrever a teoria microscópica de exciton-polariton, partindo do acoplamento de exciton em um poço quântico, e os modos quantizados do campo eletromagnético, para obter o Hamiltoniano diagonalizado dos modos polariton.

A teoria microscópica de exciton-polariton foi primeiro derivada por Hopfield [19], mos-

trando que a teoria semi-clássica de absorção da luz pelo estado de exciton não é completamente satisfatória. Agranovich [20] desenvolveu uma teoria microscópica utilizando excitons de Frenkel e interação com o campo eletromagnético, incluindo a relação de dispersão.

Na Seção 2.1, obtemos o Hamiltoniano de exciton livre e seu regime de validade como bósons. Na Seção 2.2, a quantização do campo eletromagnético é obtida, utilizando o *gauge* de Coulomb nas equações de Maxwell no vácuo, sem fontes. O Hamiltoniano de interação é descrito da Seção 2.3, onde é discutido a importância do termo de auto-interação dos fótons. Por fim, na Seção 2.4 os modos polariton são obtidos, utilizando uma transformação de Hopfield para diagonalizar o Hamiltoniano, encontrando enfim a relação de dispersão para o lower e upper polariton.

## 2.1 Excitons em Semicondutores

Quando um elétron é excitado da banda de valência para a banda de condução vazia, um par de excitação é criado consistindo da falta de um elétron na banda de valência (isto é, um buraco) e um elétron na banda de condução. O estado ligado de um elétron na banda de condução e um buraco na banda de valência é chamado de *exciton*, enquanto que um *par elétron-buraco livre* pode ser formado fora do estado ligado. Excitons em semicondutores, podem possuir uma energia de ligação de alguns poucos  $meV$ : neste caso, podem ser descritos por uma equação de massa efetiva de duas partículas, e são conhecidos como excitons de Wannier-Mott. Excitons de Wannier-Mott são tipicamente encontrados em cristais semicondutores com baixa energia de gap, como o Arseneto de Gálio [21]. Por outro lado, excitons de Frenkel, são conhecidos por terem uma energia de ligação da ordem de 100 a  $300meV$ , onde o potencial do cristal pode ser tratado com uma perturbação em relação a interação de Coulomb. Desta forma, os excitons serão tão pequenos quanto o tamanho da célula unitária do cristal. Em termos simples, o exciton pode ser tratado como um átomo de hidrogênio, exceto é claro por seu tempo de vida finito e sua energia de ligação.

Nesta seção, derivamos o Hamiltoniano de exciton livre (Wannier-Mott), utilizando o formalismo de segunda quantização, onde o Hamiltoniano diagonalizado é legítimo desde que satisfaça a regime de baixa densidade. Introduzimos os operadores de criação e aniquilação de excitons e a dependência da energia com vetor de onda.

### 2.1.1 Quantização do campo de exciton

O Hamiltoniano de um semicondutor em um nível fermiônico é escrito, no espaço real como

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \int \Psi(\mathbf{r})^\dagger \left( -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{r}) \right) \Psi(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \\ & + \frac{1}{2} \int \int \Psi(\mathbf{r})^\dagger \Psi(\mathbf{r}')^\dagger \frac{q_e^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \Psi(\mathbf{r}') \Psi(\mathbf{r}) d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \end{aligned} \quad (2.1)$$

onde  $\Psi(\mathbf{r})$  é o operador de campo de aniquilação [22] do elétron e  $V(\mathbf{r})$  é um potencial externo. Expandindo  $\Psi(\mathbf{r})$  em termos de  $\Phi_{i,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | i, \mathbf{k} \rangle$ , a função de onda de uma única partícula com o número quântico  $\mathbf{k}$  na  $i$ -ésima banda do semicondutor, e em termos do *operador aniquilação do elétron*  $e_{i,\mathbf{k}}$ ,

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{i \in \{c,v\}} \sum_{\mathbf{k}} \Phi_{i,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) e_{i,\mathbf{k}} \quad (2.2)$$

Utilizando o teorema de Bloch, podemos estabelecer

$$\Phi_{i,\mathbf{k}} \propto e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{i,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (2.3)$$

onde  $u_{i,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  possui a mesma simetria de translação do cristal.

Assim, o Hamiltoniano do semicondutor (Equação (2.1)), no espaço recíproco será,

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{i \in \{c,v\}} \sum_{\mathbf{k}} E_i(\mathbf{k}) e_{i,\mathbf{k}}^\dagger e_{i,\mathbf{k}} \\ & + \frac{1}{2} \sum_{i \in \{c,v\}} \sum_{\mathbf{k}, p, q \neq 0} V(\mathbf{q}) e_{i,\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger e_{i,\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger e_{i,p} e_{i,\mathbf{k}} \\ & + \sum_{\mathbf{k}, p, q \neq 0} V(\mathbf{q}) e_{c,\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger e_{v,p-\mathbf{q}}^\dagger e_{v,p} e_{c,\mathbf{k}} \end{aligned} \quad (2.4)$$

onde  $E_i$  segue a relação de dispersão para a  $i$ -ésima banda e  $V(\mathbf{q})$  é a transformada de Fourier da interação de Coulomb.

Podemos simplificar este Hamiltoniano introduzindo o operador fermiônico para o buraco  $h_{\mathbf{k}} = e_{v,-\mathbf{k}}^\dagger$ . Em termos de  $h_{\mathbf{k}}$  e  $e_{\mathbf{k}}$  a Equação (2.4) pode ser escrito como:

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{\mathbf{k}} \left[ E_e(\mathbf{k}) e_{\mathbf{k}}^\dagger e_{\mathbf{k}} + E_h(\mathbf{k}) h_{\mathbf{k}}^\dagger h_{\mathbf{k}} \right] \\ & + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}, p, q \neq 0} V(\mathbf{q}) \left[ e_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger e_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger e_p e_{\mathbf{k}} + h_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger h_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger h_p h_{\mathbf{k}} \right] \\ & - \sum_{\mathbf{k}, p, q \neq 0} V(\mathbf{q}) e_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger h_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger h_p e_{\mathbf{k}} \end{aligned} \quad (2.5)$$



onde a dispersão para o elétron e buraco são respectivamente

$$E_e(\mathbf{k}) = E_{gap} + \frac{(\hbar\mathbf{k})^2}{2m_e^*} \quad (2.6)$$

$$E_h(\mathbf{k}) = \frac{(\hbar\mathbf{k})^2}{2m_h^*} \quad (2.7)$$

No limite de baixas densidades o segundo termo do Hamiltoniano pode ser desprezado, podendo então ser diagonalizado, introduzindo o operador de exciton

$$b_\nu(\mathbf{k}) \equiv \sum_{\mathbf{p}} \phi_\nu(\mathbf{p}) h_{\mathbf{k}/2-\mathbf{p}} e_{\mathbf{k}/2+\mathbf{p}} \quad (2.8)$$

com  $\phi_\nu(\mathbf{p})$  sendo a transformada de Fourier da equação de auto-estados de Wannier. O Hamiltoniano de excitons então torna-se

$$\hat{H}_{ex} = \sum_{\nu, \mathbf{k}} E_{ex}^\nu(\mathbf{k}) b_\nu^\dagger(\mathbf{k}) b_\nu(\mathbf{k}) \quad (2.9)$$

com

$$E_{ex}^\nu(\mathbf{k}) = E_\nu + E_e(\mathbf{k}) + E_h(\mathbf{k}) \quad (2.10)$$

Semelhante ao átomo de hidrogênio, a energia de ligação do exciton é caracterizada por números quânticos  $\nu$ , assim  $E_\nu$  é o espectro de energia dos excitons em  $\mathbf{k} = 0$ .

No limite,  $L \gg a_B$ , o exciton é apenas fracamente perturbado pelo confinamento, onde  $L$  é a espessura do poço quântico e  $a_B$  é o raio de Bohr do exciton. Assim o Hamiltoniano de exciton livre pode ser utilizado como boa aproximação. No limite oposto quando,  $L \sim a_B$ , a função de onda interna do exciton é distorcida devido a diminuição da distância média de separação entre o elétron e o buraco levando ao aumento da energia de ligação.

### 2.1.2 Excitons como Bósons

A relação de comutação entre os operadores de criação e aniquilação, definem se as partículas (ou quase-partículas) podem ser tratadas como bósons ou como férmions. Em particular, os operadores de campo de exciton são tratados como operadores tipo bósons, ou seja, satisfazem a relação

$$[b_\nu(\mathbf{k}), b_\mu^\dagger(\mathbf{q})] = \delta_{\nu, \mu} \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \quad (2.11)$$

Evoluindo diretamente a relação de comutação utilizando a Equação (2.8), obtêm-se

$$[b_\nu(\mathbf{k}), b_\nu^\dagger(\mathbf{k})] = \delta_{\nu, \nu} \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}} - \sum_{\mathbf{p}} |\phi_{1s}(\mathbf{p})|^2 \left( e_{\mathbf{k}}^\dagger e_{\mathbf{q}} + h_{-\mathbf{k}}^\dagger h_{-q} \right) \quad (2.12)$$

Assim a diagonalização do Hamiltoniano de excitons é válida para o regime de baixas densidades. Em particular, para  $\nu = 0$ ,  $\langle [b_0, b_0^\dagger] \rangle = 1 - O(Na_B^2)$ , onde  $N$  é a densidade de excitons e  $a_B$  é o raio de Bohr associado com  $\phi_1s$ . Podemos então tratar excitons como bósons com segurança, no limite  $Na_B^2 \ll 1$ .

Embora características da estatística de Bose-Einstein para excitons e biexcitons já tenha sido reportado [23] para *bulk* cristais de *Ge* e *CuCl*, ainda não existe nenhuma evidência direta de condensado Bose-Einstein de excitons. O fator principal dessa dificuldade para sistemas de excitons, é que o tempo de vida de exciton é muito curto, da ordem de dezenas de picosegundos [24, 25].

## 2.2 Quantização do Campo Eletromagnético

No regime de baixas densidades de fótons, efeitos quânticos são inerentes ao campo eletromagnético. Assim a aplicação da teoria quântica à eletrodinâmica torna-se fundamental para melhor entendimento de interação microscópica entre a luz e a matéria. A quantização do campo então fornece uma análise mais abrangente do que o tratamento clássico, inclusive para própria construção do conceito de fóton. Desta forma, mostraremos nesta seção, a quantização do campo eletromagnético não interagente, onde o Hamiltoniano escrito em termos de operadores de aniquilação e criação, será utilizado na definição do estado polariton.

### 2.2.1 Hamiltoniano do Campo Livre

Considere o campo eletromagnético clássico no espaço vazio, na ausência de qualquer fonte, como cargas ou correntes. O campo então satisfaz as equações de Maxwell, escrita no SI como [26]:

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (2.13)$$

$$\nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (2.14)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (2.15)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.16)$$

Podemos representar o campo eletromagnético livre por potencial vetor, utilizando o *gauge* de Coulomb, o qual satisfaz uma equação de onda homogênea. Como os campos

elétrico e magnético podem ser escritos em termos do potencial, a expansão em termos de ondas planas então se aplica aos campos  $\mathbf{E}$  e  $\mathbf{B}$  e podemos escrever a expansão:

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 V}} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon_{\mathbf{k}} \omega_k \mathcal{E}_{\mathbf{k}} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_k t)} + cc \quad (2.17)$$

$$\mathbf{B} = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 V}} \sum_{\mathbf{k}} \epsilon'_{\mathbf{k}} \omega_k \mathcal{B}_{\mathbf{k}} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_k t)} + cc \quad (2.18)$$

onde  $\omega_k = c|\mathbf{k}|$  e  $\epsilon_{\mathbf{k}}$  é o vetor unitário de polarização. As amplitudes  $\mathcal{E}_{\mathbf{k}}$  e  $\mathcal{B}_{\mathbf{k}}$  não dependem explicitamente de  $\mathbf{r}$  e  $t$ , e  $V$ , é o volume finito do espaço que será cúbico de lado  $L$ . Assim o números de onda permitidos são dados por um conjunto discreto  $L\mathbf{k} = 2\pi(n_x \hat{x} + n_y \hat{y} + n_z \hat{z})$  onde  $n_x, n_y, n_z$  são números inteiros incluindo o zero.

Desde que os vetores de polarização  $\epsilon_{\mathbf{k}}$  e  $\epsilon'_{\mathbf{k}}$  são perpendiculares a  $\mathbf{k}$  [27] as expansões podem ser reescritas como

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 V}} \sum_{\mathbf{k}} \sum_s \epsilon_{\mathbf{k}s} \omega_k \mathcal{E}_{\mathbf{k}s}(t) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + cc \quad (2.19)$$

$$\mathbf{B} = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 V}} \frac{1}{c\mu_0} \sum_{\mathbf{k}} \sum_s (\mathbf{k} \times \epsilon_{\mathbf{k}s}) \omega_k \mathcal{E}_{\mathbf{k}s}(t) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + cc \quad (2.20)$$

onde  $\mathcal{E}_{\mathbf{k}s}(t) = \mathcal{E}_{\mathbf{k}s} e^{-i\omega_k t}$  e os índices  $s = 1, 2$  foram introduzidos para rotular direções de polarização transversal ortogonal ( $\epsilon_{\mathbf{k}s} \cdot \epsilon_{\mathbf{k}s'} = \delta_{s,s'}$ ).

A energia do campo no volume  $V$  pode ser obtida pela integral

$$U = \frac{1}{2} \int_V d^3r \left( \epsilon_0 \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} \cdot \mathbf{B} \right) \quad (2.21)$$

obtendo

$$U = 2 \sum_{\mathbf{k}} \sum_s \omega_k^2 |\mathcal{E}_{\mathbf{k}s}(t)|^2 \quad (2.22)$$

Podemos então definir duas novas variáveis relacionadas com a sobreposição da amplitude do campo e seu conjugado

$$q_{\mathbf{k}s} = \mathcal{E}_{\mathbf{k}s}(t) + \mathcal{E}_{\mathbf{k}s}^*(t) \quad (2.23)$$

$$p_{\mathbf{k}s} = -i\omega_k (\mathcal{E}_{\mathbf{k}s}(t) - \mathcal{E}_{\mathbf{k}s}^*(t)) \quad (2.24)$$

Desta forma,  $q_{\mathbf{k}s}$  e  $p_{\mathbf{k}s}$  satisfazem as equações canônicas de movimento e então podemos identificar a energia  $U$  como o Hamiltoniano  $H$  e reescrever

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}} \sum_s \left( p_{\mathbf{k}s}^2(t) + \omega_k q_{\mathbf{k}s}^2(t) \right) \quad (2.25)$$

mostrando que o campo eletromagnético é equivalente a soma de osciladores harmônicos independentes. Se associarmos as variáveis dinâmicas com operadores no espaço de Hilbert  $q_{\mathbf{k}s}, p_{\mathbf{k}s} \rightarrow \hat{q}_{\mathbf{k}s}, \hat{p}_{\mathbf{k}s}$  os quais não comutam, e realizar os procedimentos análogos ao problema do oscilador harmônico, então definiremos os operadores de criação e aniquilação dados por:

$$\hat{a}_{\mathbf{k}s}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega_k}} (\hat{q}_{\mathbf{k}s}(t) + i\hat{p}_{\mathbf{k}s}(t)) = \sqrt{\frac{2\omega_k}{\hbar}} \hat{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}s}(t) \quad (2.26)$$

$$\hat{a}_{\mathbf{k}s}^\dagger(t) = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega_k}} (\hat{q}_{\mathbf{k}s}(t) - i\hat{p}_{\mathbf{k}s}(t)) = \sqrt{\frac{2\omega_k}{\hbar}} \hat{\mathcal{E}}_{\mathbf{k}s}^\dagger(t) \quad (2.27)$$

que satisfazem as relações de comutação

$$[\hat{a}_{\mathbf{k}s}(t), \hat{a}_{\mathbf{k}'s'}^\dagger(t)] = \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^3 \delta_{s,s'} \quad (2.28)$$

$$[\hat{a}_{\mathbf{k}s}(t), \hat{a}_{\mathbf{k}'s'}(t)] = 0 \quad (2.29)$$

$$[\hat{a}_{\mathbf{k}'s'}^\dagger(t), \hat{a}_{\mathbf{k}'s'}^\dagger(t)] = 0 \quad (2.30)$$

Finalmente podemos expressar o Hamiltoniano como

$$\hat{H} = \sum_{\mathbf{k}} \sum_s \hbar\omega_k \left( \hat{a}_{\mathbf{k}s}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}s} + \frac{1}{2} \right) \quad (2.31)$$

A contribuição de energia  $1/2\hbar\omega_k$  para cada modo de oscilação  $(\mathbf{k}, s)$  é chamada de energia de ponto zero. Uma vez que para medidas físicas apenas diferenças de energia são de interesse, podemos desprezar o termo  $1/2\hbar\omega_k$  evitando assim que a somatória em  $k$  não leve a energia ao infinito. Assim o campo eletromagnético com apenas um modo de polarização será

$$\hat{H}_c = \sum_{\mathbf{k}} \hbar\omega_c(k) \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \quad (2.32)$$

Os operadores  $\hat{a}_{\mathbf{k}s}^\dagger$  e  $\hat{a}_{\mathbf{k}s}$  seguem relações de comutação análogas aos operadores de criação e aniquilação do problema de oscilador harmônico.

### 2.3 Interação Exciton-Fótons e Auto-Interação

O Hamiltoniano de interação é dado por [15]

$$\hat{H}_I = -\frac{q_e}{mc} \sum_i \mathbf{A}(\mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i + \frac{1}{2m} \left( \frac{q_e}{c} \right)^2 \sum_i \mathbf{A}^2(\mathbf{x}_i) \quad (2.33)$$

onde a soma é sobre os elétrons do sistema e  $\mathbf{x}_i$  é o vetor deslocamento tridimensional. Primeiro termo do lado direito pode ser escrito como

$$-\frac{q_e}{c} \sum_i \mathbf{A}(\mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{v}_i, \quad \text{com} \quad \mathbf{v}_i = \frac{1}{i\hbar} [\mathbf{x}_i, \hat{H}_{ex}] \quad (2.34)$$

sendo  $\mathbf{v}_i$  a velocidade do  $i$ -ésimo elétron. Consideraremos apenas luz polarizada ortogonalmente na direção  $\mathbf{z}$  e deixando a amplitude do campo elétrico ser máxima nas paredes da cavidade. Esta escolha de condição de contorno, permite-nos comparar os resultados com dados experimentais.

Assim, em termos do formalismo de segunda quantização

$$-\frac{q_e}{mc} \sum_i \mathbf{A}(\mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i \rightarrow \sum_{\tau} \left( \frac{q_e}{mc} \mathbf{A}(\tau) \right) \cdot (-im\omega_{0\nu} \mathbf{r}_{0\nu}) [d_{\nu}(\tau) - d_{\nu}^{\dagger}(\tau)] \quad (2.35)$$

onde  $\hbar\omega_{0\nu} = E_{\nu} - E_0$  e  $\mathbf{r}_{0\nu}$  é o elemento da matriz de dipolo. O operador  $d_{\nu}$  está relacionado com o operador de exciton a partir da transformação

$$d_{\nu}^{\dagger}(\tau) = N^{-1/2} \sum_{\mathbf{k}} b_{\nu}^{\dagger}(\tau) e^{i\mathbf{k}\cdot\tau} \quad (2.36)$$

Além disso, podemos utilizar o potencial vetor quantizado, para obter

$$-\frac{q_e}{mc} \sum_i \mathbf{A}(\mathbf{x}_i) \cdot \mathbf{p}_i \rightarrow \sum_{\tau} \left( \frac{q_e}{mc} \mathbf{A}(\tau) \right) \cdot (-im\omega_{0\nu} \mathbf{r}_{0\nu}) [d_{\nu}(\tau) - d_{\nu}^{\dagger}(\tau)] \quad (2.37)$$

De forma semelhante o segundo termo no Hamiltoniano (2.33) será

$$\frac{1}{2m} \left( \frac{q_e}{c} \right)^2 \sum_i \mathbf{A}^2(\mathbf{x}_i) \rightarrow \left( \frac{q_e}{c} \right)^2 \frac{2\pi c N}{V} \sum_{\nu\mathbf{k}} \left( \frac{\omega_{0\nu} \mathbf{x}_{0\nu}^2}{k} \right) (a_{\mathbf{k}} a_{-\mathbf{k}} + a_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^{\dagger} + a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} + a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{-\mathbf{k}}^{\dagger}) \quad (2.38)$$

Consequentemente o hamiltoniano de interação de exciton com campo eletromagnético pode ser escrito como

$$\hat{H}_I = \sum_{\nu,\mathbf{k}} iC_{\mathbf{k}\nu} (a_{\mathbf{k}}^{\dagger} + a_{-\mathbf{k}}) (b_{\nu}(\mathbf{k}) - b_{\nu}^{\dagger}(-\mathbf{k})) + \sum_{\nu,\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}\nu} (a_{\mathbf{k}}^{\dagger} + a_{-\mathbf{k}}) (a_{\mathbf{k}} + a_{-\mathbf{k}}^{\dagger}) \quad (2.39)$$

com

$$C_{\mathbf{k}\nu} = \left( \frac{2\pi\hbar N}{Vck} \right)^{1/2} \omega_{0\nu} q_e \mathbf{x}_{0\nu} \quad \text{e} \quad D_{\mathbf{k}\nu} = \frac{C_{\mathbf{k}\nu}^2}{\hbar\omega_{0\nu}} \quad (2.40)$$

Este último termo corresponde ao termo de “auto-interação” do campo, no sentido que apenas excitações fotônicas podem ser geradas: criação e destruição de fótons. Podemos desprezar este termo quando a dispersão é tomada suficientemente próxima a frequência de ressonância do exciton e a largura da cavidade é estreita, como foi mostrado por Savona *et al.* [15].

## 2.4 Exciton-Polaritons

Em nosso sistema, excitons no poço quântico inserido em uma microcavidade, o exciton-polariton é então descrito como um processo em cadeia onde o exciton aniquilado emite um

fóton com a mesma energia, o qual pode ser reabsorvido pelo meio, criando um novo exciton, ou escapar da cavidade devido algum processo de espalhamento. Quando é encontrada a energia exata de ressonância entre o modo do campo e a energia do exciton, o espectro de reflexão exhibe dois distintos picos correspondentes aos dois modos exciton-polariton, conhecidos como *lower polariton* e *upper polariton*. A diferença de energia entre os dois modos é referida como *Rabi splitting*, que caracteriza o regime de acoplamento forte, e o anti-cruzamento da relação de dispersão. Nesta seção, obtemos o Hamiltoniano do exciton-polariton e a curva de dispersão dos dois auto-estados.

### 2.4.1 Modos Upper e Lower Polariton

O Hamiltoniano total do sistema, é dado pela soma dos termos livres (Equações (2.9) e (2.32)) e do termo de interação (Equação (2.39)). Como o exciton está confinado na direção de crescimento do cristal, e livre no plano do poço quântico, apenas o vetor de onda do campo eletromagnético paralelo ao plano de crescimento é responsável pelo acoplamento exciton-fóton. Além disso, a somatória em  $\nu$  pode ser omitida considerando a ressonância com um único estado de exciton. Assim, sem perda de generalidade o Hamiltoniano microscópico de exciton de Wannier-Mott é dado por [23]:

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \hbar\omega_c(\mathbf{k}_{\parallel}) a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}_{\parallel}} + \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \hbar\omega_{ex}(\mathbf{k}_{\parallel}) b_{\nu}^{\dagger}(\mathbf{k}_{\parallel}) b_{\nu}(\mathbf{k}_{\parallel}) \\ & + \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} iC_{\mathbf{k}} (a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} + a_{-\mathbf{k}_{\parallel}}) (b_{\nu}(\mathbf{k}_{\parallel}) - b_{\nu}^{\dagger}(-\mathbf{k}_{\parallel})) \\ & + \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} D_{\mathbf{k}_{\parallel}} (a_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} + a_{-\mathbf{k}_{\parallel}}) (a_{\mathbf{k}_{\parallel}} + a_{-\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}) \end{aligned} \quad (2.41)$$

Devido a simetria de translação do sistema, o momento transversal é conservado, ou seja, o estado de exciton no poço quântico com momento transversal é bem definido  $\hbar\mathbf{k}_{\parallel}$  e está acoplado a um único modo do fóton na cavidade com o mesmo momento transversal  $\hbar\mathbf{k}_{\parallel}$ . No regime linear, diferentes modos de  $\mathbf{k}_{\parallel}$  estão desacoplados. Isto permiti-nos considerar um único modo com mesmo  $\mathbf{k}_{\parallel}$ , uma vez que o modo na cavidade depende da distância de separação entre os espelhos. A simetria do poço quântico permiti-nos escrever  $a_{\mathbf{k}_{\parallel}} = a_{-\mathbf{k}_{\parallel}}$  e  $b(\mathbf{k}_{\parallel}) = b(-\mathbf{k}_{\parallel}) \equiv b_{\mathbf{k}}$ . Podemos omitir o subscrito no vetor de onda, considerando que  $\mathbf{k}$  a partir de agora é paralelo ao plano do poço quântico, e reescrever a Eq. (2.41)

$$\hat{H} = \hbar\omega_c(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} + \hbar\omega_{ex}(\mathbf{k}) b_{\mathbf{k}}^{\dagger} b_{\mathbf{k}} + iC_{\mathbf{k}} (a_{\mathbf{k}}^{\dagger} + a_{\mathbf{k}}) (b_{\mathbf{k}} - b_{\mathbf{k}}^{\dagger}) + D_{\mathbf{k}} (a_{\mathbf{k}}^{\dagger} + a_{\mathbf{k}}) (a_{\mathbf{k}} + a_{\mathbf{k}}^{\dagger}) \quad (2.42)$$

Seguimos então para mais duas simplificações pertinentes ao sistema. O último termo, que descreve a auto-interação do campo, pode ser desprezado desde que a frequência de excitação do fóton seja suficientemente próxima a excitação do exciton e que a largura da cavidade seja bastante estreita, como foi demonstrado por Savona *et al.* [15].

A segunda aproximação pode ser estabelecida por dois argumentos. Para descrever o primeiro, considere  $C_{\mathbf{k}} = 0$ , isto é que não exista acoplamento entre exciton e fóton. Então os operadores de campo satisfazem a equação de movimento de Heisenberg, obtendo a dependência temporal

$$\begin{aligned} a_{\mathbf{k}}(t) &= a_{\mathbf{k}}(0)e^{-i\omega_c t} & \text{e} & & a_{\mathbf{k}}^\dagger(t) &= a_{\mathbf{k}}^\dagger(0)e^{i\omega_c t} \\ b_{\mathbf{k}}(t) &= b_{\mathbf{k}}(0)e^{-i\omega_{ex} t} & \text{e} & & b_{\mathbf{k}}^\dagger(t) &= b_{\mathbf{k}}^\dagger(0)e^{i\omega_{ex} t} \end{aligned} \quad (2.43)$$

Assim, próximo da ressonância ( $\omega_{ex} \approx \omega_c$ ) os termos de interação  $a_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}}^\dagger$  e  $a_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}$  variam rapidamente com frequência  $\pm(\omega_{ex} + \omega_c)$  enquanto que os termos  $a_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}}$  e  $a_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^\dagger$  praticamente não variam com o tempo. Portanto a média dos termos de alta frequência será identicamente nulo e podem ser descartados. O segundo argumento segue por conservação de energia. Os termos  $a_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}}^\dagger$  e  $a_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}$  produzem duas excitações, conseqüentemente não preservam a conservação de energia visto que existe apenas um fóton na cavidade (e portanto apenas um exciton pode ser criado). Esta aproximação é conhecida como *rotating-wave* devido ao estudo do efeito do campo eletromagnético quantizado em uma partícula de spin 1/2 [28].

Considerando  $C_{\mathbf{k}} = \hbar\Omega_{\mathbf{k}}$  onde  $\Omega_{\mathbf{k}}$  agora representa uma nova constante de acoplamento de exciton-polariton, obtemos:

$$\hat{H} = \hbar\omega_c(\mathbf{k})a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{\mathbf{k}} + \hbar\omega_{ex}(\mathbf{k})b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} + i\hbar\Omega_{\mathbf{k}}(a_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} - a_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^\dagger) \quad (2.44)$$

### 2.4.2 Relação de Dispersão

Existem dois auto-estados que descrevem o estado de exciton-polariton neste sistema. O estado de exciton-polariton é formado a partir do estado de exciton e do estado de um fóton. Se um fóton é absorvido pelo poço quântico um exciton é formado e nenhum fóton é encontrado na cavidade. Por outro lado, quando o exciton é espalhado, um fóton é criado podendo permanecer na cavidade e ser reabsorvido, ou sair da cavidade. Portanto, o estado exciton-polariton pode ser escrito como uma sobreposição dos dois possíveis estados na

cavidade, ou seja,

$$|U_k\rangle = x_k^u |X_k\rangle + c_k^u |C_k\rangle \quad (2.45)$$

$$|L_k\rangle = x_k^l |X_k\rangle + c_k^l |C_k\rangle \quad (2.46)$$

Na base de  $|X_k\rangle$  e  $|C_k\rangle$ , o Hamiltoniano na forma matricial será

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} \langle C_k | \hat{H} | C_k \rangle & \langle C_k | \hat{H} | X_k \rangle \\ \langle X_k | \hat{H} | C_k \rangle & \langle X_k | \hat{H} | X_k \rangle \end{pmatrix} = \hbar \begin{pmatrix} \omega_c(\mathbf{k}) & i\Omega_{\mathbf{k}} \\ -i\Omega_{\mathbf{k}} & \omega_{ex}(\mathbf{k}) \end{pmatrix}$$

Os autovalores desta matriz fornecem a relação de dispersão de exciton-polariton

$$\begin{aligned} \omega_u(\mathbf{k}) &= \frac{\omega_c(\mathbf{k}) + \omega_{ex}(\mathbf{k}) + \sqrt{\delta_{\mathbf{k}}^2 + 4\Omega_{\mathbf{k}}^2}}{2} \\ \omega_l(\mathbf{k}) &= \frac{\omega_c(\mathbf{k}) + \omega_{ex}(\mathbf{k}) - \sqrt{\delta_{\mathbf{k}}^2 + 4\Omega_{\mathbf{k}}^2}}{2} \end{aligned} \quad (2.47)$$

onde  $\hbar\delta_{\mathbf{k}} \equiv \hbar(\omega_c(\mathbf{k}) - \omega_{ex}(\mathbf{k}))$  é a dessintonia (*detuning*) da cavidade. A Figura 2.1 mostra o esboço das curvas de dispersão para o exciton, fóton, e os modos exciton-polariton.

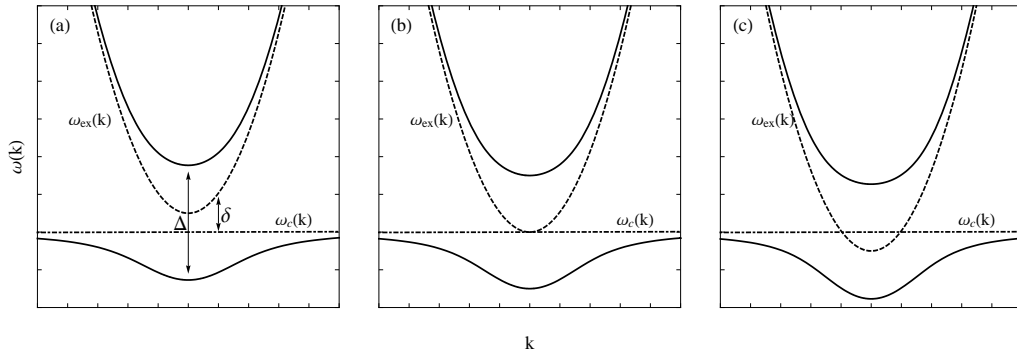


Figura 2.1: Esboço da curva de dispersão do upper e lower polariton com diferentes dessintonias: (a)  $\delta > 0$ , (b)  $\delta = 0$  e (c)  $\delta < 0$ . As curvas tracejada e tracejada-pontilhada representam a dispersão do exciton e fóton desacoplados, respectivamente.

Em uma microcavidade ideal a componente do vetor de onda normal ao plano é dado por  $|\mathbf{k}_z| = 2\pi/L$ . Assim, se o feixe de excitação da microcavidade, forma um ângulo  $\theta$  com o vetor normal ao plano da cavidade, podemos estimar a energia do campo como:

$$\omega_c = \frac{c}{n_c} \sqrt{|\mathbf{k}|^2 + |k_z|^2} \approx \frac{c}{n_c} |k_z| \left( 1 + \frac{|\mathbf{k}|^2}{2|k_z|^2} \right) \equiv \frac{2\pi c}{n_c L} + \frac{\hbar |\mathbf{k}|^2}{2m_c} \quad (2.48)$$

onde  $m_c = \hbar n_c / cL$  é a massa efetiva polaritônica. Além disso, o vetor de onda no plano está relacionado com o ângulo de incidência por simples projeção trigonométrica

$$|\mathbf{k}| = \frac{\omega}{c} \sin \theta \quad (2.49)$$



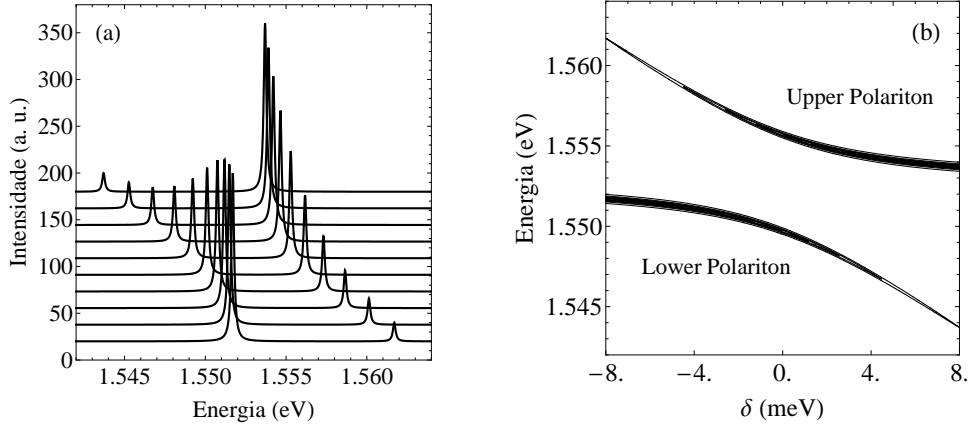


Figura 2.2: (a) Espectro de emissão da microcavidade como função da dessintonia. (b) A projeção do espectro no plano mostra o Rabi splitting entre os dois modos em função da dessintonia. Os parâmetros utilizados são  $\hbar\gamma = 0,1\text{meV}$  e  $\hbar\Omega = 3\text{meV}$ .

Então medindo a dependência angular de ressonância no espectro de transmissão ou reflexão da microcavidade podemos retomar a curva de dispersão do polariton. Em particular, existe um ângulo (ou vetor de onda) sobre a curva de dispersão do lower polariton em que a emissão é amplificada [29]. Neste ângulo, a conservação de energia pode ser expressa como  $E_l(0) + E_l(2k_p) = 2E_l(k_p)$ . Em vista a conservação do vetor de onda, podemos afirmar que a excitação em  $\mathbf{k}_p$  excita simultaneamente os estados  $\mathbf{k}_p = 0$  e  $\mathbf{k}_p = 2\mathbf{k}$ .

Seguindo o formalismo da teoria quântica de campos, podemos diagonalizar o Hamiltoniano utilizamos uma transformação canônica, conhecida como transformação de Hopfield [19], onde

$$\begin{aligned}\hat{p}_{\mathbf{k}}^u &= \varphi_{\mathbf{k}}\hat{b}_{\mathbf{k}} - \chi_{\mathbf{k}}\hat{a}_{\mathbf{k}} \\ \hat{p}_{\mathbf{k}}^l &= \chi_{\mathbf{k}}\hat{b}_{\mathbf{k}} + \varphi_{\mathbf{k}}\hat{a}_{\mathbf{k}}\end{aligned}\quad (2.50)$$

os coeficientes  $\chi_{\mathbf{k}}$  e  $\varphi_{\mathbf{k}}$  são os coeficientes de Hopfield, e satisfazem as igualdades  $|\chi_{\mathbf{k}}|^2 + |\varphi_{\mathbf{k}}|^2 = 1$  e  $\chi_{\mathbf{k}}^*\varphi_{\mathbf{k}} - \chi_{\mathbf{k}}\varphi_{\mathbf{k}}^* = 0$  obtidas a partir das relações de comutação, para os novos operadores de campo que seguem a álgebra bosônica

$$\begin{aligned}[\hat{p}_{\mathbf{k}}^u, \hat{p}_{\mathbf{k}}^{\dagger u}] &= [\hat{p}_{\mathbf{k}}^l, \hat{p}_{\mathbf{k}}^{\dagger l}] = 1 \\ [\hat{p}_{\mathbf{k}}^u, \hat{p}_{\mathbf{k}}^l] &= [\hat{p}_{\mathbf{k}}^u, \hat{p}_{\mathbf{k}}^{\dagger l}] = 0\end{aligned}\quad (2.51)$$

Revertendo a Equação (2.50)

$$\hat{a}_{\mathbf{k}} = \varphi_{\mathbf{k}}^*\hat{p}_{\mathbf{k}}^l + \chi_{\mathbf{k}}^*\hat{p}_{\mathbf{k}}^u$$

$$\hat{b}_{\mathbf{k}} = \varphi_{\mathbf{k}}^* \hat{p}_{\mathbf{k}}^u + \chi_{\mathbf{k}}^* \hat{p}_{\mathbf{k}}^l \quad (2.52)$$

e substituindo em (2.44), obtemos o Hamiltoniano diagonalizado de propagação livre

$$\hat{H} = \hbar\omega_l(\mathbf{k}) \hat{p}_{\mathbf{k}}^{\dagger l} \hat{p}_{\mathbf{k}}^l + \hbar\omega_u(\mathbf{k}) \hat{p}_{\mathbf{k}}^{\dagger u} \hat{p}_{\mathbf{k}}^u \quad (2.53)$$

onde  $\hbar\omega_l(\mathbf{k})$  e  $\hbar\omega_u(\mathbf{k})$  são as energias do lower e upper polariton respectivamente. Podemos então definir a frequência de splitting  $\Delta$  [30] como

$$\Delta \equiv \omega_u(\mathbf{k}) - \omega_l(\mathbf{k}) = \sqrt{\delta_{\mathbf{k}}^2 + 4\Omega_{\mathbf{k}}^2} \quad (2.54)$$

O *splitting* é uma característica do regime de acoplamento forte [17], e é análogo ao fenômeno de *Rabi splitting* de uma cavidade atômica. Este fenômeno possui características quânticas e não pode ser observado em experimentos no regime de acoplamento fraco. Os coeficientes de Hopfield fornecem a amplitude de probabilidade do exciton-polariton está no estado de exciton ou de fóton, e podem ser escritos em termos da relação de dispersão.

Utilizando a equação de movimento de Heisenberg, os operadores de campo  $\hat{a}_{\mathbf{k}}$  e  $\hat{b}_{\mathbf{k}}$  evoluem no tempo como:

$$\frac{d\hat{a}_{\mathbf{k}}}{dt} = -i\omega_c(\mathbf{k})\hat{a}_{\mathbf{k}} + \Omega_{\mathbf{k}}\hat{b}_{\mathbf{k}} \quad (2.55)$$

$$\frac{d\hat{b}_{\mathbf{k}}}{dt} = -i\omega_{ex}(\mathbf{k})\hat{b}_{\mathbf{k}} - \Omega_{\mathbf{k}}\hat{a}_{\mathbf{k}} \quad (2.56)$$

cujas soluções são

$$\begin{aligned} \hat{a}_{\mathbf{k}}(t) &= \frac{[\omega_c(\mathbf{k}) - \omega_l(\mathbf{k})] \hat{a}_{\mathbf{k}}(0) + i\Omega_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}(0)}{\Delta} e^{-i\omega_u(\mathbf{k})t} \\ &+ \frac{[-\omega_c(\mathbf{k}) + \omega_u(\mathbf{k})] \hat{a}_{\mathbf{k}}(0) - i\Omega_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}(0)}{\Delta} e^{-i\omega_l(\mathbf{k})t} \end{aligned} \quad (2.57)$$

$$\begin{aligned} \hat{b}_{\mathbf{k}}(t) &= \frac{[\omega_{ex}(\mathbf{k}) - \omega_l(\mathbf{k})] \hat{b}_{\mathbf{k}}(0) - i\Omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}(0)}{\Delta} e^{-i\omega_u(\mathbf{k})t} \\ &+ \frac{[-\omega_{ex}(\mathbf{k}) + \omega_u(\mathbf{k})] \hat{b}_{\mathbf{k}}(0) + i\Omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}(0)}{\Delta} e^{-i\omega_l(\mathbf{k})t} \end{aligned} \quad (2.58)$$

No domínio da frequência o espectro do sistema é definido como a transformada de Fourier da função de correlação [31].

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\omega\tau} \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger}(\tau) \hat{a}_{\mathbf{k}}(0) \rangle d\tau \quad (2.59)$$

Definindo os estados número de exciton  $|n\rangle_{ex}$  e fóton  $|m\rangle_c$  temos,

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger(t) \hat{a}_{\mathbf{k}}(0) \rangle &= Tr \left[ \hat{\rho} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger(t) \hat{a}_{\mathbf{k}}(0) \right] \\ &= \sum_n \sum_m \rho_{nm} \langle n |_{ex} \langle m |_c \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger(t) \hat{a}_{\mathbf{k}}(0) | m \rangle_c | n \rangle_{ex} \\ &= \bar{m} \left\{ \frac{[\omega_c(\mathbf{k}) - \omega_l(\mathbf{k})]}{\Delta} e^{i\omega_u(\mathbf{k})t} - \frac{[\omega_c(\mathbf{k}) - \omega_u(\mathbf{k})]}{\Delta} e^{i\omega_l(\mathbf{k})t} \right\} \end{aligned} \quad (2.60)$$

sendo  $\bar{m}$  o número médio de de fótons. Supomos que as frequência não dependem do número médio de fótons, ou seja, que os dois osciladores acoplados independem da excitação. Como o tempo de vida do fóton na cavidade é finito adicionamos um termo de amortecimento  $e^{-\gamma t}$ , onde  $\gamma^{-1}$  é o tempo de vida do fóton na cavidade. Consequentemente, encontramos duas linhas Lorentzianas no espectro de emissão.

$$S(\omega) = \frac{2\bar{m}}{\Delta} \frac{(\omega_c - \omega_l) \gamma}{(\omega - \omega_u)^2 + \gamma^2} - \frac{2\bar{m}}{\Delta} \frac{(\omega_c - \omega_u) \gamma}{(\omega - \omega_l)^2 + \gamma^2} \quad (2.61)$$

A Figura 2.3 mostra o esboço do espectro de emissão com os picos centrados nas frequências do upper e lower polariton. O Hamiltoniano do exciton-polariton pode se tornar tão

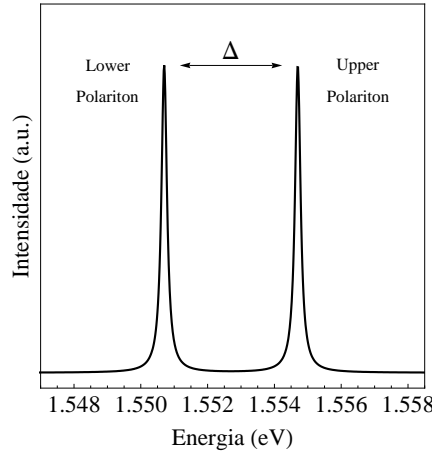


Figura 2.3: Esboço do espectro de emissão da microcavidade. Os dois picos de distribuição Lorentziana, representam os dois modos exciton-polariton.

complexo (ou completo) quanto se queira desde que termos de espalhamento, reservatório e acoplamento sejam inseridos. Podemos acrescentar termos de interação de *pump*, tempo de vida de excitação não-ressonante, acoplamento polariton-fóton, acoplamento polariton-elétron e acoplamento polariton-polariton (que leva a formação do bipolariton), além de efeitos de biexcitons, espalhamento por fônons ou outros modos da cavidade [32].

## Capítulo 3

# Detalhes Experimentais

Neste capítulo, encontram-se algumas das principais características da amostra utilizada, uma microcavidade com um poço quântico, além do arranjo experimental e técnicas de medidas utilizadas durante o trabalho. Uma breve descrição da regra de seleção por conservação de momento angular, também foi incluída, tal como sub-bandas em heteroestruturas.

### 3.1 Sobre a Microcavidade

Uma estrutura típica de uma microcavidade é mostrada na Figura 3.1. Consiste de uma cavidade plana Fabry-Perot formada por dois espelhos de Bragg (ou DBR - Distributed Bragg Reflector). Um espelho de Bragg é uma estrutura periódica feita de dois materiais semicondutores com distintos índices de refração. A espessura das camadas do DBR é escolhida tal que a luz refletida por todas as interfaces interfiram, resultando num espelho com altíssima reflectividade numa faixa espectral específica chamada de *stop-band*. Em estruturas com um alto fator de qualidade, a reflectividade dos espelhos no *stop-band* é da ordem de 99%. Desta forma, é possível confinar um determinado modo do campo eletromagnético manipulando o número e as espessuras das camadas durante o crescimento da heteroestrutura.

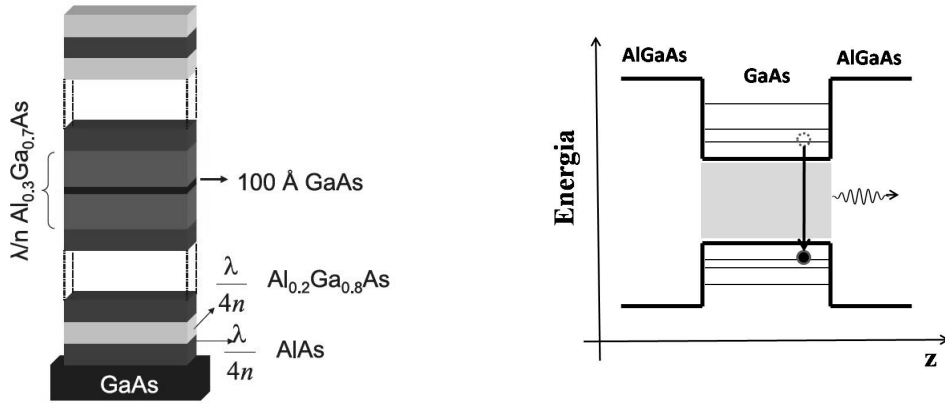


Figura 3.1: Representação de uma microcavidade com poço quântico. O potencial tipo poço quadrado formado por  $Al_{0.30}Ga_{0.70}As$  e  $GaAs$  ao longo da direção de crescimento.

Em nossa amostra, os espelhos DBR's consistem de camadas alternadas de  $AlAs$  e  $Al_{0.20}Ga_{0.80}As$  com espessuras de  $\lambda/(4n)$ , onde  $n$  é o índice de refração da respectiva camada e  $\lambda$  é o comprimento de onda ressonante (neste caso para transições excitônicas  $\sim 800nm$ ). A parte do DBR superior consiste de 22 pares e a inferior de 26 pares e meio. Os detalhes sobre a espessura das camadas da microcavidade podem ser encontrados no Apêndice A.

As espessuras das camadas espaçadoras da microcavidade, são escolhidas de forma que haja um acoplamento entre o modo da cavidade e as energias do exciton na estrutura do meio ativo. Isto proporciona um alto fator de qualidade, apresentando um aumento no tempo de vida do fóton confinado, e conseqüentemente, na eficiência do processo de fotoluminescência.

Entre os espelhos, então é inserido o meio ativo o qual irá interagir com o campo, como por exemplo, uma heteroestrutura formada por dois materiais com diferentes energias de *gap*. Assim é formado um poço quântico para confinar os elétrons e buracos em uma pequena região do espaço (Figura 3.1). A barreira então é formada por uma camada de  $Al_{0.30}Ga_{0.70}As$  com espessura de  $\lambda/n$  o que permite um anti-nó do campo eletromagnético no centro da microcavidade. Nesta posição foi crescido um poço quântico de  $GaAs$  com  $10nm$  de espessura. Desta forma, a energia de ressonância do exciton na microcavidade em  $10K$  é  $\sim 800nm$ . Além disso, a metade superior da camada  $\lambda/n$  não é completamente plana, isso foi feito fazendo a amostra parar de girar durante o crescimento na câmara de MBE (Molecular Beam

Epitaxy). Pode-se pensar então na amostra com um formato de uma cunha, onde há pequenos desvios ( $\sim 1nm$ ) em torno do comprimento de onda ressonante, permitindo sintonizar espacialmente a energia de ressonância.

Como as constantes de rede destes dois materiais são diferentes, a altura do poço e da barreira não é igualmente distribuído. Esta diferença é conhecida como *band offset* que no caso do  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  possui uma razão em torno de 60/40 [33].

### 3.2 Estrutura de Banda do $GaAs$

Como explicado na Seção 3.1, o poço quântico na microcavidade é formada por duas camadas alternadas de dois materiais:  $GaAs$  e  $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ . O exciton será formado por transição inter-bandas do elétron foto-excitado, dependendo da energia de excitação e a energia do *gap* do  $GaAs$ . Assim devemos mostrar algumas características básicas da estrutura de banda do Arseneto de Gálio.

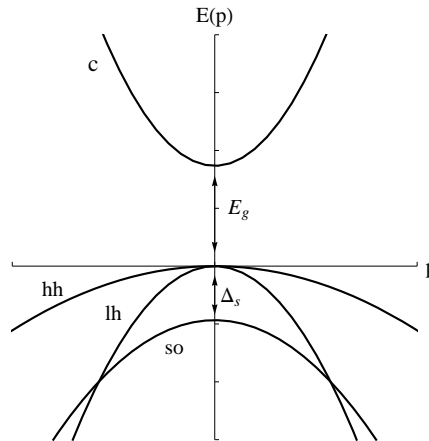


Figura 3.2: Estrutura de banda do  $GaAs$  próximo ao centro da zona de Brillouin.

Próximo ao centro da zona de Brillouin, a estrutura de banda do *bulk* cristal pode ser representada como esboçado na Figura 3.2. A banda de condução (banda c) é isotrópica e duplamente degenerada em spin (a princípio desprezando o *spin splitting*). Já a banda de valência, consiste de duas sub-bandas conhecidas como buracos pesados e buracos leves (*heavy hole* - hh e *light hole* - lh) as quais são anisotrópicas e a banda *split-off* (banda so) a qual é isotrópica. Todas são duplamente degeneradas em spin.

Em geral, em semicondutores, o número de elétrons na banda de condução ou buracos

na banda de valência é sempre menor do que o número de átomos na estrutura. Consequentemente, as propriedades do espectro de energia, tornam-se mais interessantes no mínimo da banda de condução e máximo da banda de valência: no caso do *GaAs* coincidem com o centro da zona de Brillouin. Nesta região, para pequenos  $\mathbf{p}$ 's <sup>1</sup> a função  $E(\mathbf{p})$  pode ser aproximadamente parabólica.

$$E_c = \frac{p^2}{2m_c^*} \quad \text{e} \quad E_v = -\frac{p^2}{2m_v^*} \quad (3.1)$$

Esta é a aproximação de massa efetiva, onde  $m_c^*$  e  $m_v^*$  são as massa efetivas do elétron e buraco respectivamente. Por exemplo, para o *GaAs*  $m_c^* = 0,067m_0$  sendo  $m_0$  a massa do elétron livre.

Durante o processo de absorção inter-bandas de um fóton com energia  $\hbar\omega > E_g$ , o quase-momento  $\mathbf{p}$  é conservado. Contudo, o momento do fóton  $\hbar\mathbf{k} = 2\pi\hbar/\lambda$ , onde  $\lambda$  é o comprimento de onda do fóton, é muito pequeno comparado ao do elétron, e normalmente pode ser desprezado. Nesta aproximação a transição ótica é *vertical*. Por exemplo, um par elétron-buraco pode ser criado envolvendo um buraco na banda *split-off* desde que  $\hbar\omega > E_g + \Delta_s$ .

Devido a processos de emissão e absorção de fônons, os portadores de carga em suas respectivas bandas, sofrem um processo de termalização (relaxação de energia). O equilíbrio térmico entre o elétron e o buraco então é estabelecido por recombinação após um tempo  $\tau$ . Como o tempo de recombinação é muito maior do que o tempo de relaxação de energia, a luminescência é produzida por portadores termalizados e a energia do fóton emitido é próximo da energia do *gap*  $E_g$ .

### 3.3 Regra de Seleção e Sub-bandas

A estrutura de banda mostrada na Figura 3.2, não é preservada quando é imposta um confinamento espacial sobre as cargas. Em um poço quântico, por exemplo, os níveis de energia e autofunções eletrônicas se alteram devido ao confinamento em uma das direções. Então, em nossa amostra, o movimento na direção perpendicular à camada de crescimento estará quantizado, enquanto o movimento no plano da camada de *GaAs* é irrestrito.

---

<sup>1</sup>O estados eletrônicos são caracterizados por seu quase-momento  $\mathbf{p}$  ou pelo quase-vetor de onda  $\mathbf{k} = \mathbf{p}/\hbar$ .

Assim são formadas sub-bandas bidimensionais no espectro de energia dos elétrons:

$$E_n(\mathbf{p}) = E_n^0 + \frac{p_{\parallel}^2}{2m_c^*} \quad (3.2)$$

onde  $E_n^0$  são os níveis de energia para o movimento unidimensional na direção  $z$ , e  $\mathbf{p}_{\parallel}$  é o quase-momento no plano  $xy$ . Na aproximação de poço infinito  $E_n^0 = (\pi n \hbar)^2 / 2m^* L^2$ , sendo  $L$  a largura do poço. No entanto, em um tratamento mais realístico como um poço quadrado finito, os níveis de energia são apenas obtidos por solução numérica. Além disso, a condição de continuidade sobre as paredes do poço devem levar em consideração o fato que o elétron possui diferentes massas efetivas, dentro e fora do poço [34].

No caso de buracos no poço quântico, estas sub-bandas perdem a simplicidade, devido à efeitos de interação spin-orbita, além da diferença de massas efetivas entre as bandas  $hh$ ,  $lh$  e  $so$ . Estas bandas ainda possuem um estranho comportamento de troca de spin devido a reflexão nas paredes do poço [35]. No entanto, a característica mais importante é que a degenerescência entre as bandas  $lh$  e  $hh$  em  $\mathbf{p} = 0$  é quebrada como mostra o resultado obtido por Altarelli *et al.* [36] na Fig. 3.3. Além disso, a diferença de energia entre as bandas depende do largura do poço quântico (detalhes podem ser encontrados nas referências [37] e [38]). A transição inter-bandas, ainda obedece uma importante regra de

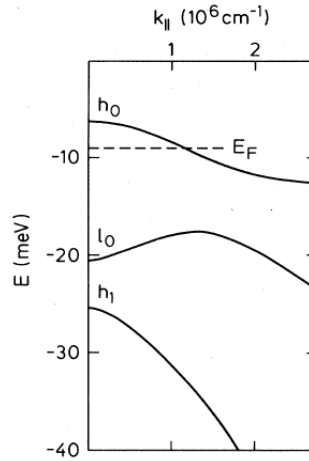


Figura 3.3: Dispersão da sub-banda de valência para um poço quântico de  $GaAs$  de  $11,2nm$  com barreiras de  $Al_xGa_{1-x}As$  com  $x = 0,51$  obtidas por Altarelli e co-autores.

seleção relacionada com conservação de momento angular. De fato, a onda eletromagnética possui momento angular que depende do estado de polarização do campo. Assim, quando o fóton de um campo polarizado é absorvido, seu momento angular é distribuído entre o



elétron e buraco foto-excitados. Um fóton de luz com polarização circular a direita ou a esquerda tem projeção de momento angular sobre a direção de propagação (helicidade, em unidades onde  $\hbar = 1$ ) igual a  $+1$  ou  $-1$ , respectivamente. A banda de valência possui

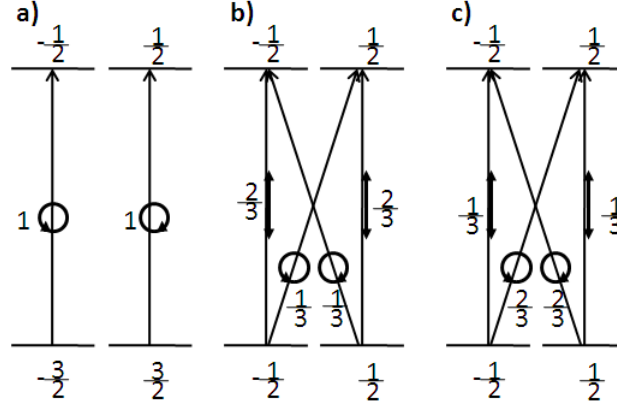


Figura 3.4: Os diagramas a), b) e c) representam as correspondentes transições inter-bandas  $hh - c$ ,  $lh - c$  e  $so - c$ , respectivamente. Os números próximos as setas representam as intensidades de transição relativas.

simetria do tipo P com projeção do momento angular  $J^h = 3/2$ ,  $S_z^h = \pm 1/2, \pm 3/2$ . Já a banda de condução possui simetria do tipo S,  $J^e = 1/2$ , com  $S_z^e = \pm 1/2$ . Assim as transições opticamente permitidas são aquelas em que a variação do momento angular total seja  $\pm 1$ . Isto será detalhado no Capítulo 4.

Como descrito por Meier e Zakharchenya [39], a transição  $hh \leftrightarrow c$  pode ser interpretada como dois dipolos girando em sentido horário e anti-horário no plano perpendicular à direção de propagação (direção de  $\mathbf{p}$ ). As transições  $lh \leftrightarrow c$  e  $sh \leftrightarrow c$  são representadas por dois dipolos oscilando ao longo da direção de  $\mathbf{p}$  e dois dipolos girando no plano perpendicular a  $\mathbf{p}$ , com intensidades relativas diferentes. A Figura 3.4 mostra os diagramas que representam as correspondentes transições inter-bandas  $hh - c$ ,  $lh - c$  e  $so - c$  e as respectivas intensidades de transições relativas.

### 3.4 Gerando Pulsos de Femtosegundos

Para realizar medidas de fotoluminescência resolvidas no tempo, é necessário utilizar um laser pulsado, onde a largura dos pulsos seja menor do que o tempo do processo físico o qual se está medindo. Neste caso, a dinâmica do polariton pode ser explorada com um laser



transparentes para o verde)  $M1$  e  $M2$ . O espelho  $M2$  redireciona o feixe para um par de prismas e  $M1$  para um outro espelho  $M4$  que redireciona para o semi-espelho  $OC$ . A cavidade laser então é composta pelo ciclo de ida e volta entre  $OC$  e o espelho  $M3$ .

O par de prismas é utilizado para produzir dispersão cromática do pulso. O primeiro prisma ( $P1$ ) refrata diferentes componentes do comprimento de onda em ângulos levemente diferentes. O segundo prisma ( $P2$ ) então refrata todas as componentes novamente levando cada componente do comprimento de onda a se propagar paralelamente em diferentes posições. Desta forma, apenas alguns determinados comprimentos de onda podem ser selecionados com uma *slit* ( $S$ ), para serem realimentados pela cavidade laser.

Quando o pulso de luz incide sobre o cristal de  $Ti : Al_2O_3$ , um meio não linear de comprimento  $\zeta$ , o efeito Kerr leva a uma variação na fase [40] de

$$\Delta\phi(t) = -\frac{\omega}{c}n_2I(t)\zeta = -\frac{2\pi}{\lambda}n_2I(t)\zeta \quad (3.3)$$

o qual é maior no eixo do feixe, onde a intensidade é maior, do que nas margens. Consequentemente, a frente de onda se deforma levando à focalização do pulso: auto-focalização.

A princípio, a geração de pulsos utilizando travamento de modos pode ser entendida da seguinte forma: Suponha que existam  $N$  modos de oscilação longitudinal na cavidade laser com mesma amplitude. Então o campo elétrico será dado pela sobreposição dos modos [41]

$$E(t) = E_0 \sum_{n=0}^{N-1} e^{i(\omega_n t + \phi_n)} \quad (3.4)$$

Se todos os modos oscilarem em fase  $\phi_n = \phi_0$  (travando modos), e definindo  $\omega_n = \omega_{N-1} - n\Delta\omega$ , onde  $\Delta\omega = \omega_{n+1} - \omega_n = 2\pi\Delta\nu = (\pi c)/(\eta d)$ , a somatória (3.4) poderá ser escrita como:

$$E(t) = E_0 e^{i\phi_0} \sum_{n=0}^{N-1} e^{i(\omega_{N-1} - n\Delta\omega)t} = E_0 e^{i(\phi_0 + \omega_{N-1}t)} \sum_{n=0}^{N-1} e^{in\Delta\omega t} \quad (3.5)$$

sendo  $\Delta\nu = c/(2\eta d) = 1/\Delta t$  a separação entre os modos da cavidade. Assim, a expressão para  $E(t)$  torna-se

$$E(t) = E_0 e^{i(\phi_0 + \omega_{N-1}t)} \left\{ \frac{1 - e^{iN\Delta\omega t}}{1 - e^{i\Delta\omega t}} \right\} \quad (3.6)$$

A intensidade total será

$$I(t) = E_0^2 \left| \frac{1 - e^{iN\Delta\omega t}}{1 - e^{i\Delta\omega t}} \right|^2 = E_0^2 \frac{Sen^2(N\Delta\omega t/2)}{Sen^2(\Delta\omega t/2)} \quad (3.7)$$

ou seja, pulsos variando no tempo com picos de intensidade periódicos em  $(\Delta\omega t)/2 = 0, \pi, 2\pi, \dots, n\pi$ . A Figura 3.6 esboça a variação da intensidade do pulso obtida a partir

da sobreposição de cinco modos.

Na prática, um fotodetector recebe um feixe de luz que “escapa” da cavidade, e induz

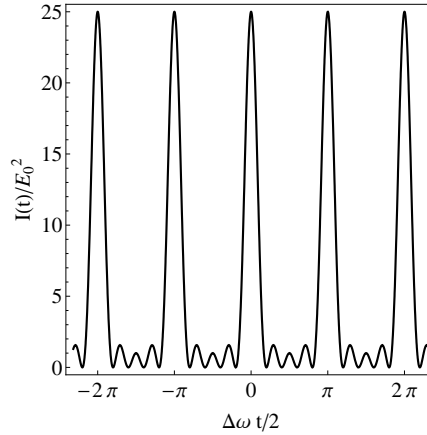


Figura 3.6: Pulsos formados a partir da sobreposição de cinco modos ( $N = 5$ ) com mesma fase.

o segundo prisma a vibrar caso laser ainda não tenha atingido o estado com travamento de modos. A vibração do prisma leva a uma brusca mudança do comprimento da cavidade  $\delta d$ , que por sua vez induz um pico de intensidade no feixe iniciando o processo de travamento dos modos devido ao efeito Kerr.

### 3.5 Técnica Experimental

A formação de exciton-polaritons depende fortemente da temperatura [42]. Assim, para realizar as medidas com devido controle de temperatura, a microcavidade foi inserida em um criostato de dedo frio (*cold finger cryostat*), sob vácuo de  $\sim 10^{-5}$  torr<sup>1</sup>, fixada em uma liga metálica resfriada por contato térmico com hélio líquido. Desta forma, podemos realizar medidas a temperaturas de pelo menos  $5K$ . O criostato está preso em deslocadores e tem a liberdade de deslocar no plano  $xy$ .

Realizamos medidas do tipo *pump-probe* [43], onde um pulso de luz é dividido em dois pulsos secundários, direcionados e colimados para amostra após um atraso temporal relativo, como esboçado na Figura 3.7. Um laser de Ti:Sa (mode-locking) centrado em  $800nm$ , gera pulsos de  $50fs$  a uma taxa de repetição de  $83MHz$ , excitado por um laser de estado sólido ( $Nd : YVO_4$ ) centrado em  $532nm$ . A fotoluminescência da amostra é direcionada para

<sup>1</sup>A unidade de pressão no SI é o pascal (Pa).  $1 Pa = 19,8692 \times 10^{-6}$  atm e  $1 torr = 1/760$  atm

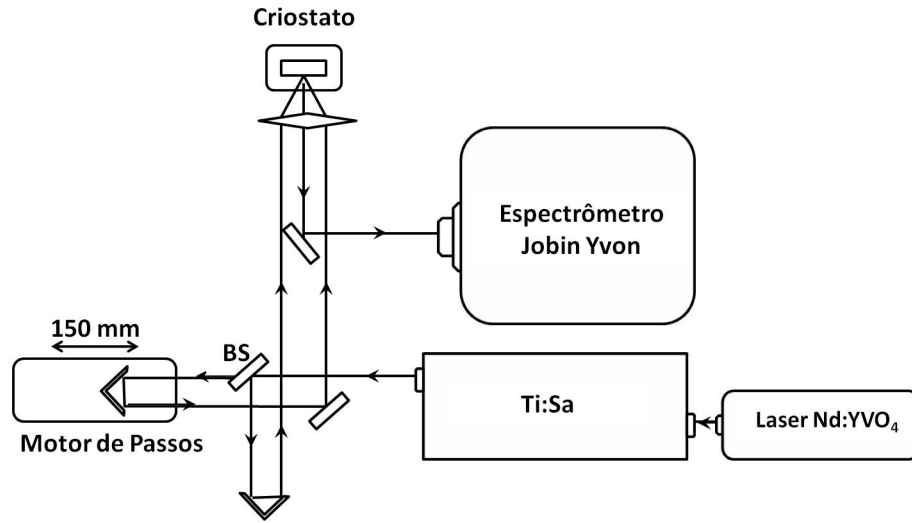


Figura 3.7: Esquema da montagem experimental para realizar medidas de *pump-probe*.

um espectrômetro (Jobin Yvon T6400), com grade de difração 1800 linhas/mm (resolução espectral de  $0,1\text{meV}$  e janela de  $\Delta\lambda = 12\text{nm}$ ) acoplado com uma câmera CCD (charge coupled device) resfriada com nitrogênio líquido.

Após dividir o feixe no *beam split*(BS), o atraso entre os pulsos é controlado por um dos espelhos que está presa a um motor de passos, com autonomia de  $150\text{mm}$  de deslocamento e resolução  $0,05\mu\text{m}$ . Ambos os *spots* dos feixes *pump* e *probe* coincidem na amostra e possuem um ângulo de incidência próximo ao ponto de inflexão da curva de dispersão do lower polariton com dessintonia nula. Esta é a condição de amplificação paramétrica onde a população de estado inicial do polariton ( $\mathbf{k}_p$ ) é redistribuído nos estados *signal* ( $\mathbf{k} = 0$ ) e *idler* ( $\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_p$ ). Neste caso o ângulo de incidência é de  $12^\circ$  e a energia do fóton na cavidade é  $1,55273\text{eV}$  calculado a partir da Equação (2.48). O Rabi splitting na microcavidade é de  $\sim 3,02\text{meV}$ , como mostrado no espectro de emissão na Figura 3.8. Por fim, a polarização dos dois pulsos é controlada, quando necessário, por placas de polarização  $\lambda/2$  e/ou  $\lambda/4$ . Um atenuador também foi inserido no caminho óptico para o controle da potência de excitação.

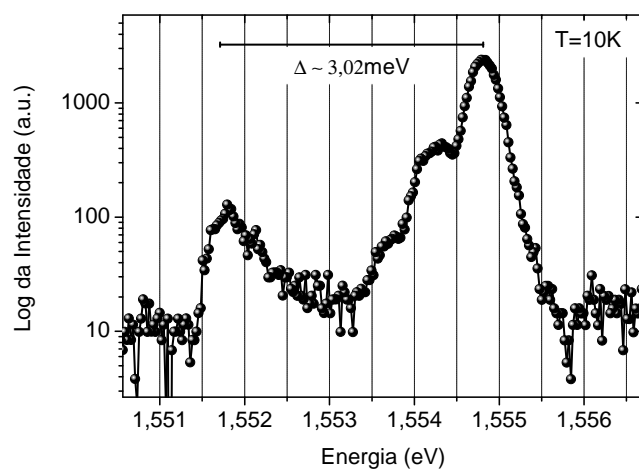


Figura 3.8: Espectro de emissão da microcavidade à temperatura de  $10K$ , mostrando Rabi *splitting* de  $\sim 3,02 \text{ meV}$ .

## Capítulo 4

# Dinâmica de Spin

Se a energia de absorção de um feixe circularmente polarizado é tal que  $E_g < \hbar\omega < E_g + \Delta_s$  os pares elétron-buraco gerados dentro da microcavidade irão herdar características de spin e momento de dipolo relacionado a polarização do feixe de excitação. Como será descrito adiante, estas propriedades de polarização podem ser descritas pela definição de um pseudo-spin que contém informação sobre o spin e a orientação do momento de dipolo do estado exciton-polariton. Após um tempo  $\tau_r$  o par elétron-buraco (um estado fora de equilíbrio) se recombina e toda informação sobre orientação ótica estará contida na polarização da fotoluminescência. Em geral, antes da recombinação, um processo de relaxação de spin ocorre dentro de um intervalo  $\tau_s$ . A relaxação de spin pode geralmente ser entendida como resultado da ação de um campo magnético flutuante no tempo, criando um campo magnético efetivo, originado a partir interação spin-orbita ou interação exchange, por exemplo. Assim a radiação emitida será em parte circularmente polarizada, se a orientação do spin não desaparece inteiramente após o tempo de recombinação. Desta forma, o grau de polarização circular da luz emitida por recombinação serve como um prático e sensível indicador do estado de spin e sua evolução devido a processos de relaxação ou a fatores externos.

Neste capítulo, descreveremos uma classe de fenômenos óticos relacionados com a dinâmica de spin de exciton-polaritons em microcavidades semicondutoras. Incluímos então

os mecanismos principais de relaxação de spin e uma breve descrição teórica utilizando o formalismo da matriz densidade de evolução do pseudo-spin. Alguns aspectos serão cruciais para entendimento dos resultados do Capítulo 5 tal como rotações de Faraday induzida por um campo magnético efetivo.

## 4.1 Orientação Ótica de Spin

No processo de transição inter-bandas em um semiconductor devido a absorção de um fóton, um elétron na banda de condução e um buraco na banda de valência são gerados, e o spin total deste par, inicialmente, é igual ao momento angular do fóton absorvido. Os fótons de um feixe de luz com polarização circular a direita  $\sigma^+$  (esquerda  $\sigma^-$ ) possuem projeção do momento angular na direção do vetor de onda igual a  $+1$  ( $-1$ ) [27]. A estrutura de banda do semiconductor determina, através de *regras de seleção*, a distribuição do momento angular entre o elétron e o buraco foto-excitados. No entanto, os portadores de cargas foto-excitados não estão em um estado termicamente estável, e a recombinação após algum tempo  $\tau_r$  é inevitável. Durante este tempo, a orientação de spin dos portadores muda devido a diferentes processos de relaxação. Como o par elétron e buraco pode se mover junto pelo cristal, existem importantes características de excitons baseados na interação existente entre elétron e buraco, devido as propriedades de spin. Se definirmos o tempo de vida de spin  $T_s$  segue imediatamente que,

$$\frac{1}{T_s} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_s} \quad (4.1)$$

onde  $\tau_r$  é o tempo de vida do exciton e  $\tau_s$  é o tempo de relaxação de spin. Esta equação reflete as duas razões para que a média do spin excitônico seja nulo: a recombinação e a relaxação do spin. Se por exemplo, durante o tempo  $T_s$  o spin realizar revoluções em torno de um campo magnético qualquer, então em condição estacionária a componente média do spin ao longo da direção inicial será muito pequena.

Como os excitons são formados por férmios, tendo projeção do momento angular sobre um dado eixo  $J_z^e = S_z^e = \pm 1/2$  para o elétron na banda de condução com simetria S e  $J_z^b = S_z^b = \pm 1/2, \pm 3/2$  para o buraco na banda de valência com simetria P, o spin do exciton possui projeção  $\pm 1$  e  $\pm 2$ . Assim por conservação de spin, no processo de absorção de fótons os excitons com estados  $\pm 2$  não podem ser criados. Estes estados são chamados



de estados *dark*, e podem ser populados devido algum processo de espalhamento. Por outro lado, os estados com spin  $\pm 1$  podem ser produzidos óticamente, e assim, são conhecidos como estados *light*. Em geral, os estados *dark* podem ser populados devido a processos de espalhamento, e podem influenciar na dinâmica dos estados *light* por interação exchange por exemplo. No entanto, a existência de apenas dois estados óticamente permitidos, leva-nos à formulação da matriz densidade como um sistema de dois níveis. Em termos de *brackets* podemos escrever:

$$|+1\rangle = \left| -\frac{1}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle \quad |-1\rangle = \left| +\frac{1}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \quad (4.2)$$

$$|+2\rangle = \left| +\frac{1}{2}, +\frac{3}{2} \right\rangle \quad |-2\rangle = \left| -\frac{1}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \quad (4.3)$$

Então os estados com polarização linear sequeem diretamente

$$|x\rangle = \frac{|+1\rangle - |-1\rangle}{\sqrt{2}} \quad (4.4)$$

$$|y\rangle = \frac{|+1\rangle + |-1\rangle}{\sqrt{2}} \quad (4.5)$$

Todavia, os excitons possuem um tempo de vida finito, devido a recombinação, quando o elétron volta para o estado na banda de valência. No entanto, durante seu tempo de vida, a orientação do spin reduz devido a diferentes processos de relaxação. Portanto, o grau de polarização circular da emissão serve como um prático e sensível indicador do estado de spin dos portadores de cargas e sua mudança devido a influência de algum processo de relaxação (ou fator externo) sobre o semicondutor.

Desta forma, neste processo de absorção e recombinação duas fases são importantes: a absorção de luz circularmente polarizada produzindo excitons com orientação de spin bem definida e a relaxação de spin durante o tempo de vida do exciton. A princípio, no processo de absorção de um fóton, a polarização linear pode permanecer com um par de elétron-buraco: um fóton com polarização linear pode ser emitido se o elétron recombina com o buraco, mas assim que alguns fótons tem sido absorvidos, a interação exchange entre e-e e h-h torna-se um eficiente mecanismo de depolarização. Assim os estados formados por polarização linear não são bons estados quânticos devido à interação exchange, ao contrário dos estados gerados por polarização circular.

## 4.2 Relaxação de Spin

Em geral, a relaxação de spin surge como resultado da ação de um campo magnético efetivo, criado por flutuações randômicas de um campo magnético gerado por diferentes processos de interação como exchange, spin-orbita e até mesmo por um desequilíbrio do número de ocupação em dois distintos estados [35].

Existem dois importantes parâmetros para caracterizar este campo magnético flutuante: a amplitude ( $|\mathbf{\Omega}_{ef}|$ ) e o tempo de correlação  $\tau_c$ , ou seja, o tempo em que o campo pode ser considerado constante. Desta forma, o spin irá precessar em torno de uma direção randômica do campo magnético efetivo com uma frequência  $\omega_c$  durante o tempo  $\tau_c$ . A direção e o valor absoluto do campo então mudam aleatoriamente após o tempo  $\tau_c$  e o spin irá precessar em torno de uma nova direção do campo.

Rigorosamente falando, a relaxação do pseudo-spin do polariton está conectada com os mecanismos de relaxação do elétron. Assim, relacionamos abaixo os principais mecanismos de relaxação eletrônica.

1. Mecanismo de Elliott-Yaffet[44]: O campo elétrico de impurezas eletricamente carregadas é transformado em um campo eletromagnético efetivo através de interação spin-orbita. Este mecanismo pode induzir transições entre os exciton foto-excitados e os estados *dark*. O campo randômico é formado durante a colisão e assim não pode ser caracterizado por um único tempo de correlação. A taxa de relaxação então será proporcional à concentração de impurezas.
2. Mecanismo de D'yakonov-Perel [45]: causado por interação spin-orbita, induzida por *splitting* de spin da banda de condução de cristais não centro simétricos como o *GaAs*. Em contraste com o mecanismo anterior, o spin gira entre as colisões.
3. Mecanismo de Bir-Aronov-Pikus [46]: envolve a interação exchange de spins entre elétrons e buracos de semicondutores do tipo *p*. Esta taxa de relaxação de spin é proporcional ao número de buracos.

No trabalho de Maialle *et al.* [47] foi mostrado que o mecanismo predominante para excitons confinados em semicondutores não magnéticos é o mecanismo de Bir-Aronov-Pikus. A interação de longo alcance entre elétrons e buracos leva a um *splitting* longitudinal-transversal

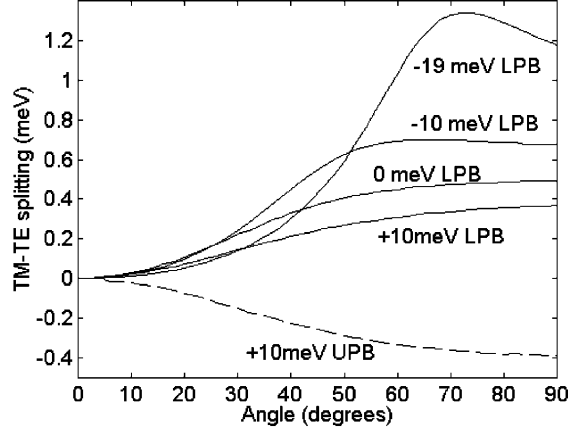


Figura 4.1: *Splitting* longitudinal-transversal para o lower e upper polariton calculados com diferentes dessintonias.

do estado de excitons (ou seja, a distribuição de energia entre excitons tendo momento de dipolo paralelo e perpendicular ao vetor de onda). Este *splitting* é responsável por um rápido processo de relaxação de spin de excitons em poços quânticos. Mas recentemente o campo magnético gerado por este mecanismo ( $\Omega_{LT}$ ) tem sido referido como campo de Maialle [42]. Outros mecanismos tais como o espalhamento exciton-exciton podem ser responsáveis por *flip* de spin, tão bem quanto espalhamento por impurezas ou imperfeições cristalinas [48]. O *splitting* do polariton depende fortemente da dessintonia entre o modo da cavidade e a energia do exciton e, em geral, aumenta com vetor de onda no plano. A Figura 4.1 mostra o *splitting* longitudinal-transversal para o lower polariton e upper polariton calculados com diferentes dessintonias retirada da referência [48]. Podemos perceber que o *splitting* é muito sensível a dessintonia, é nulo em  $\mathbf{k} = 0$ , e tem diferentes comportamentos para o lower e upper polaritons.

### 4.3 Formalismo de Pseudo-spin e Matriz Densidade

Como foi descrito na seção anterior a polarização da luminescência está diretamente relacionada com um determinado estado de spin. Definimos então o grau de polarização da luz emitida com vetor de onda no plano em  $\mathbf{k} = 0$  como:

$$\wp = \frac{I_{\uparrow} - I_{\downarrow}}{I_{\uparrow} + I_{\downarrow}} = \frac{N_{\mathbf{k}=0,\uparrow}(t) - N_{\mathbf{k}=0,\downarrow}(t)}{N_{\mathbf{k}=0,\uparrow}(t) + N_{\mathbf{k}=0,\downarrow}(t)} \quad (4.6)$$

onde  $I_{\uparrow}$  e  $I_{\downarrow}$  representam as intensidades de luz circularmente polarizada a direita e esquerda respectivamente e,  $N_{\mathbf{k}=0,\uparrow}$  e  $N_{\mathbf{k}=0,\downarrow}$ , representam a população de exciton-polaritons com projeção de spins opostos em  $\mathbf{k} = 0$ . As medidas realizadas por Martín *et al.* [49] mostraram que a evolução do grau de polarização possui um comportamento não monolítico. O *splitting* transversal-longitudinal é amplificado devido ao acoplamento com um modo da microcavidade criando um campo magnético efetivo o qual influencia a dinâmica do pseudo-spin do exciton-polariton.

O vetor pseudo-spin  $\mathbf{S}$  é definido [48] sobre dois estados quânticos, e descreve ambos

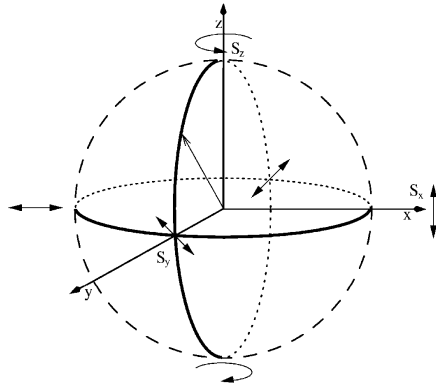


Figura 4.2: Esfera de Poincaré com pseudo-spin. Os pontos no equador da esfera correspondem a diferentes polarizações lineares e os polos correspondem a duas polarizações circulares.

o estado de spin do exciton e sua orientação de momento de dipolo. Qualquer estado de polarização pode ser representado como um ponto na esfera de Poincaré, como mostra a Figura 4.2. A matriz densidade do sistema para um determinado  $\mathbf{k}$  então evolui de acordo com equação de Liouville-von Neumann:

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{\mathbf{k}}}{\partial t} = [H, \rho_{\mathbf{k}}] \quad (4.7)$$

Levando em consideração o pseudo-spin e desprezando o espalhamento por fônons, o Hamiltoniano do polariton é dado por [50]:

$$H = \sum_{\mathbf{k},\sigma} \hbar\omega_l(\mathbf{k}) p_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}\sigma} + \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}',\mathbf{q},\sigma} V_{\mathbf{k},\mathbf{k}',\mathbf{q}}^1 p_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}'-\mathbf{q},\sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}',\sigma} p_{\mathbf{k},\sigma} \quad (4.8)$$

$$+ \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{q}, \sigma} V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^2 p_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}, \sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}, -\sigma}^\dagger p_{\mathbf{k}', \sigma} p_{\mathbf{k}, -\sigma}$$

onde os operadores bosônicos  $p_{\mathbf{k}, \sigma}^\dagger$  ( $p_{\mathbf{k}, \sigma}$ ) descrevem a criação (aniquilação) do lower polariton e a soma em  $\sigma = \{\uparrow, \downarrow\}$  representa os dois graus de liberdade do pseudo-spin. O primeiro termo da Equação (4.8) é o termo de propagação livre, enquanto o segundo e terceiro termos referem-se ao espalhamento de polaritons com spins paralelos e anti-paralelos, respectivamente. Os elementos de matriz  $V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^1$  e  $V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^2$  são a transformada de Fourier do potencial de interação de cada processo de espalhamento. Desde que a interação polariton-polariton é anisotrópica, a maior contribuição é dado pelo termo exchange e assim  $|V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^1| \gg |V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^2|$ .

A Equação (4.7) pode ser rescrita em termos de quantidades observáveis como o número de ocupação

$$N_{\mathbf{k}\uparrow} = Tr [\rho_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger p_{\mathbf{k}\uparrow}] = \langle p_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger p_{\mathbf{k}\uparrow} \rangle \quad (4.9)$$

$$N_{\mathbf{k}\downarrow} = Tr [\rho_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}\downarrow}^\dagger p_{\mathbf{k}\downarrow}] = \langle p_{\mathbf{k}\downarrow}^\dagger p_{\mathbf{k}\downarrow} \rangle \quad (4.10)$$

ou do pseudo-spin,

$$S_{\mathbf{k}, z} = \frac{1}{2} [\langle p_{\mathbf{k}, \uparrow}^\dagger p_{\mathbf{k}, \uparrow} \rangle - \langle p_{\mathbf{k}, \downarrow}^\dagger p_{\mathbf{k}, \downarrow} \rangle] \quad (4.11)$$

$$S_{\mathbf{k}, x} = \frac{1}{2} [\langle p_{\mathbf{k}, x}^\dagger p_{\mathbf{k}, x} \rangle - \langle p_{\mathbf{k}, -x}^\dagger p_{\mathbf{k}, -x} \rangle] \quad (4.12)$$

$$S_{\mathbf{k}, y} = \frac{1}{2} [\langle p_{\mathbf{k}, y}^\dagger p_{\mathbf{k}, y} \rangle - \langle p_{\mathbf{k}, -y}^\dagger p_{\mathbf{k}, -y} \rangle] \quad (4.13)$$

onde as componentes no plano do pseudo-spin são obtidos através dos operadores de polaritons linearmente polarizados

$$p_{\mathbf{k}, x} = \frac{1}{\sqrt{2}} (p_{\mathbf{k}, \uparrow} + p_{\mathbf{k}, \downarrow}), \quad p_{\mathbf{k}, -x} = \frac{1}{\sqrt{2}} (p_{\mathbf{k}, \uparrow} - p_{\mathbf{k}, \downarrow}) \quad (4.14)$$

$$p_{\mathbf{k}, y} = \frac{1}{\sqrt{2}} (p_{\mathbf{k}, \uparrow} + i p_{\mathbf{k}, \downarrow}), \quad p_{\mathbf{k}, -y} = \frac{1}{\sqrt{2}} (p_{\mathbf{k}, \uparrow} - i p_{\mathbf{k}, \downarrow}) \quad (4.15)$$

A Equação (4.11) mostra que a componente do pseudo-spin na direção  $z$  é nula se houver uma distribuição equilibrada de estados up e down. Uma vez conhecida a população de polaritons e a distribuição de pseudo-spin o grau de polarização circular ou linear da fotoemissão pode ser encontrado diretamente a partir da Equação (4.6). No caso mais simples onde todos os polaritons estão no mesmo estado quântico (na forma condensada em  $\mathbf{k} = 0$  por exemplo) com variação de vetor de onda nulo, o Hamiltoniano (4.8) pode ser reescrito como:

$$H = \hbar\omega_l p_\uparrow^\dagger p_\uparrow + V^1 (p_\uparrow^\dagger p_\uparrow^\dagger p_\uparrow p_\uparrow + p_\downarrow^\dagger p_\downarrow^\dagger p_\downarrow p_\downarrow) + 2V^2 (p_\uparrow^\dagger p_\uparrow p_\downarrow^\dagger p_\downarrow) \quad (4.16)$$

Desta forma, o comutador entre  $p_{\uparrow}^{\dagger}p_{\uparrow}$  e  $p_{\downarrow}^{\dagger}p_{\downarrow}$  e o Hamiltoniano acima leva a conservação do número de ocupação uma vez que  $[p_{\uparrow}^{\dagger}p_{\uparrow}, H] = 0$  e  $[p_{\downarrow}^{\dagger}p_{\downarrow}, H] = 0$ . Por outro lado, a componente no plano não é conservada. Das equações (4.16) e (4.7) a equação de movimento para o operador  $p_{\uparrow}^{\dagger}p_{\downarrow}$  será,

$$\frac{\partial \langle p_{\uparrow}^{\dagger}p_{\downarrow} \rangle}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} 2(V^1 - V^2) [\langle p_{\downarrow}^{\dagger}p_{\downarrow}p_{\downarrow}^{\dagger}p_{\uparrow} \rangle - \langle p_{\uparrow}^{\dagger}p_{\uparrow}p_{\downarrow}^{\dagger}p_{\downarrow} \rangle] \quad (4.17)$$

Utilizando aproximação de campo médio, os dois termos com correlação de quarta ordem podem ser desacoplados, com  $\bar{A} = \langle p_{\downarrow}^{\dagger}p_{\uparrow} \rangle$ , obtendo

$$\frac{\partial \langle p_{\uparrow}^{\dagger}p_{\downarrow} \rangle}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} 2(V^1 - V^2) (N_{\downarrow} - N_{\uparrow}) \bar{A} \quad (4.18)$$

que nada mais é do que a equação de precessão de pseudo-spin sobre um campo magnético efetivo  $\mathbf{\Omega}_{int}$  orientado ao longo do eixo de crescimento da microcavidade, cujo o valor absoluto é

$$g\mu_B \mathbf{\Omega}_{int} = 2(V^1 - V^2) (N_{\downarrow} - N_{\uparrow}) \quad (4.19)$$

onde  $\mu_B$  é o *magneton* de Bohr e  $g$  é o fator giromagnético. Como o vetor de onda da fotoemissão também está na direção de crescimento da estrutura, o efeito do campo  $\mathbf{\Omega}_{int}$  pode ser percebido devido a rotação do plano de polarização da fotoluminescência. Este efeito é conhecido como efeito Faraday (ou rotação de Faraday). A rotação do plano de polarização é proporcional a intensidade da componente do campo magnético aplicado na direção do feixe de luz <sup>1</sup>. Assim o desbalanço de população de  $N_{\downarrow}$  e  $N_{\uparrow}$  leva a rotações de Faraday oticamente induzidas.

Portanto, em geral, o campo magnético efetivo que atua sobre o pseudo-spin possui duas componentes:  $\mathbf{\Omega}_{ef,\mathbf{k}} = \mathbf{\Omega}_{LT,\mathbf{k}} + \mathbf{\Omega}_{int,\mathbf{k}}$ . A componente no plano ( $\mathbf{\Omega}_{LT,\mathbf{k}}$ ) é governada pelo *splitting* longitudinal-transversal causado pela interação de longa distância entre o elétron e o buraco. A componente paralela ao eixo de crescimento  $\mathbf{\Omega}_{int,\mathbf{k}}$  aumenta devido a anisotropia da interação polariton-polariton e depende do desbalanço da população de polaritons nos estados up e down.

No próximo capítulo, mostraremos resultados de medidas de *pump-probe* onde a precessão do pseudo-spin manifesta-se diretamente na intensidade da fotoluminescência da microcavidade.

---

<sup>1</sup>Uma descrição detalhada sobre o efeito Faraday pode ser encontrada na Ref. [51]

## Capítulo 5

# Resultados e Conclusões

Neste capítulo mostraremos os resultados obtidos a partir de medidas de fotoluminescência resolvida no tempo utilizando a técnica de *pump-probe*. Neste método são utilizados dois pulsos de luz ultra curtos. O primeiro, pulso *pump*, excita a amostra em um tempo inicial  $t = 0$ . O segundo pulso atrasado em relação ao primeiro, cruza a amostra perturbada e atua como uma sonda: assim chamado de pulso *probe*. Geralmente, a amostra pode ser analisada comparando as modificações de intensidade, fase ou vetor de onda do pulso *probe* após o cruzamento da amostra, antes e depois da ação do feixe *pump*. Ou de forma alternativa, observando os efeitos criados pelo próprio *probe* antes e depois da ação do *pump*. Nas medidas que realizamos, a segunda opção é mais apropriada. Os dois feixes paralelos passam por uma lente convergente excitando a amostra com vetores de onda  $-\mathbf{k}_p$  e  $\mathbf{k}_p$  coincidindo sobre o mesmo *spot* com a amostra posicionada sobre o foco da lente. Com o alinhamento adequado ambos feixes incidem na amostra com o ângulo de  $\sim 12^\circ$  garantindo a amplificação paramétrica (veja Seção 2.4). A princípio, os dois feixes possuem o mesmo eixo de polarização linear produzindo uma distribuição equilibrada dos números de ocupação média  $\langle N_\downarrow \rangle$  e  $\langle N_\uparrow \rangle$ .

Embora a Figura 4.1 tenha sido obtida com uma microcavidade com múltiplos poços quânticos de *CdTe*, (por isso o Rabi *splitting*  $\sim 10\text{meV}$  maior do que a nossa amostra com

apenas  $\sim 3meV$  de *splitting*), acreditamos que o campo efetivo  $\mathbf{\Omega}_{LT}$ , não tenha efeito significativo sobre a dinâmica do pseudo-spin, uma vez que o *splitting* longitudinal-transversal é pequeno para baixos ângulos de excitação. Assim os efeitos relacionados com a dinâmica do pseudo-spin, deve estar associado ao campo magnético efetivo gerado pelo desbalanço do número de ocupação de spins up e down. Com excitação linear, algum mecanismo físico deve estar associado a perda de simetria na geração dos estados. Desta forma, como descrito por Shen [52], o pump ótico pode ser responsável pelo desequilíbrio no número de ocupação em um sistema de dois níveis (como em nossa amostra). O resultado é a formação de um campo magnético efetivo, que pode ser observado pelo efeito Faraday. O pump ótico também pode induzir a rotação do plano de polarização em múltiplos poços quânticos de *GaAs/AlGaAs* [53], embora a relação entre o efeito Faraday e a excitação não-linear não seja inteiramente conhecida. Portanto, será considerada apenas a hipótese de que  $\mathbf{\Omega}_{ef}$  seja inicialmente induzido pelo pulso de excitação.

O atraso relativo entre os pulsos é obtido movimentando os espelhos presos a um motor de passos controlado remotamente, e um *beam split* (BS), separa o feixe primário na razão de 60%/40%. Assim, quando o *pump* (definido arbitrariamente com vetor de onda  $\mathbf{k}_p$ ) incide sobre a amostra, o estado  $\mathbf{k} = 0$  é populado e fotoluminescência normal à amostra é coletada por um espelho e direcionada para o espectrômetro. O estado *idler* também é populado com vetor de onda  $\mathbf{k} = 2\mathbf{k}_p$  gerando emissão em um ângulo fora da normal. No entanto, o polariton no estado *idler* pode sofrer espalhamento por fônons acústicos, termalizando antes do decaimento. Assim, a fotoluminescência da microcavidade forma um cone de luz com intensidade concentrada no eixo principal. Mais detalhes sobre o perfil da intensidade de emissão podem ser encontrados no trabalho de Moreira [54].

A incidência do *probe* (com  $-\mathbf{k}_p$ ) também popula o estado *signal*. Desta forma, dependendo do tempo de atraso entre os pulsos o estado  $\mathbf{k} = 0$  estará super-populado. Nesta situação, o sistema é reduzido a um gás de quase-partículas bosônicas fortemente interagentes, levando a processos de espalhamento. O espalhamento polariton-polariton pode amplificar o desequilíbrio no número de ocupação, ocasionando um campo magnético efetivo paralelo ao eixo de crescimento da microcavidade (veja Seção 4.2). Na próxima seção, mostraremos os resultados obtidos com variação da dessintonia. Esperamos encontrar uma relação explícita entre o tempo de coerência do campo magnético efetivo e a dessintonia. Como já descrito no



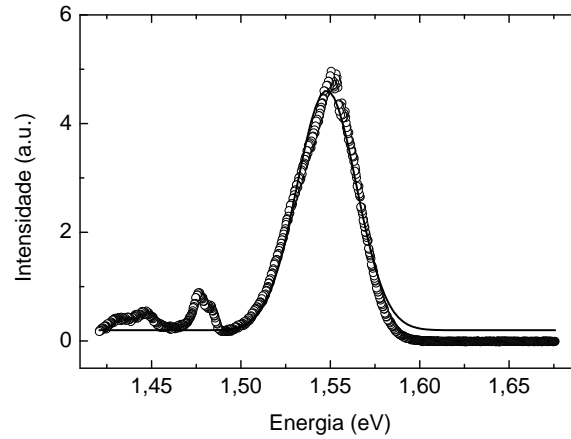


Figura 5.1: Espectro do pulso laser. A linha contínua representa o *fitting* gaussiano com  $\text{FWHM}=38,96\text{meV}$ .

Capítulo 3, é possível variar a energia do modo eletromagnético na microcavidade variando o ponto de excitação (*spot*) no plano da amostra. A dessintonia então será nula quando em uma determinada posição da microcavidade a energia do campo for ressonante com a energia do exciton no poço quântico. Uma vez encontrada esta posição, dessintonias positivas ou negativas foram obtidas variando a posição da microcavidade na direção do eixo  $x$  paralelo a mesa ótica (veja Seção 3.5).

Um detalhe importante em experimentos envolvendo fenômenos ultra rápidos, é a largura temporal do pulso. A Figura 5.1 mostra o espectro do pulso de luz com *fitting* de uma função gaussiana. A largura a meia altura da curva é  $38,96\text{meV}$  levando a uma largura temporal de  $\sim 106\text{fs}$  diferente da largura temporal do pulso na saída do laser  $\sim 50\text{fs}$ . Isso se deve ao fato do pulso sofrer dispersão ao passar pelas componentes óticas do experimento como BS e lentes. Ainda assim continuamos uma ordem de grandeza abaixo do tempo de vida do polariton que é da ordem picossegundos.

## 5.1 Medidas com Variação da Dessintonia

Observamos a emissão do polariton como função da dessintonia. A Figura 5.2 mostra o gráfico tridimensional e as linhas de contorno da evolução temporal da fotoluminescência para uma dessintonia negativa. Para um longo atraso temporal entre os pulsos, a taxa de emissão permanece constante. Em  $\tau = 0$ , a sobreposição dos pulsos leva a formação de

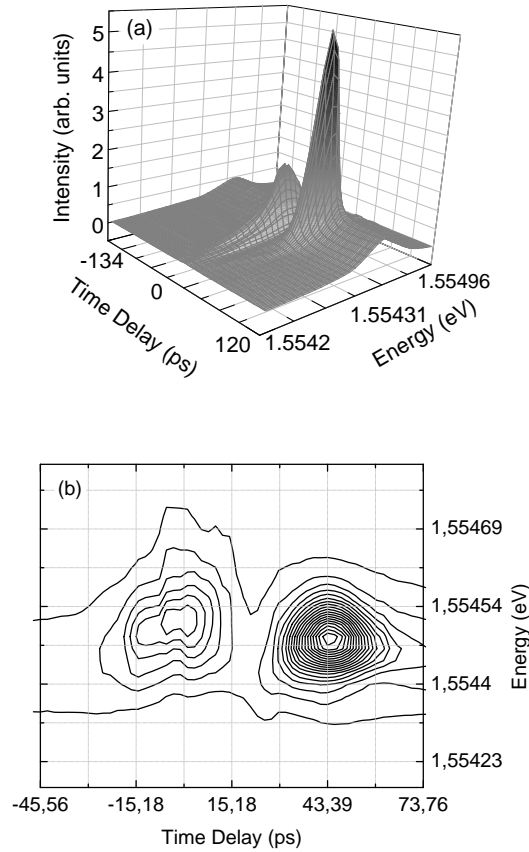


Figura 5.2: (a) Gráfico tridimensional e (b) linhas de contorno da intensidade resultantes da medidas de fotoluminescência resolvida no tempo com  $\delta = -1,72\text{meV}$ .

uma alta densidade de exciton-polaritons na microcavidade aumentando a intensidade de fotoluminescência delineado pelo primeiro pico. Todavia, devido a processos de relaxação de spin, alguns exciton-polaritons não decaem imediatamente e um segundo pico aparece após um tempo  $\tau_c$ .

A hipótese principal, é que o pulso de excitação induza a separação dos níveis de energia do poço quântico em sub-bandas de spin criando um desbalanço na população de spins.

A Figura 5.4 mostra o resultado da variação da intensidade espectral integrada em função do tempo de atraso. Duas diferentes características podem ser observadas comparando os gráficos a) e b): 1) com dessintonia negativa o segundo pico de emissão é mais intenso do que o primeiro. Isso sugere que um número maior de polaritons é submetido ao processo de precessão do pseudo-spin. 2) o tempo de relaxação do pseudo-spin ( $\tau_c$ ) depende diretamente da dessintonia. De fato, este resultado era esperado desde que o *splitting* longitudinal-transversal sofre forte influência com a dessintonia, como já explicado na Seção 4.2. A

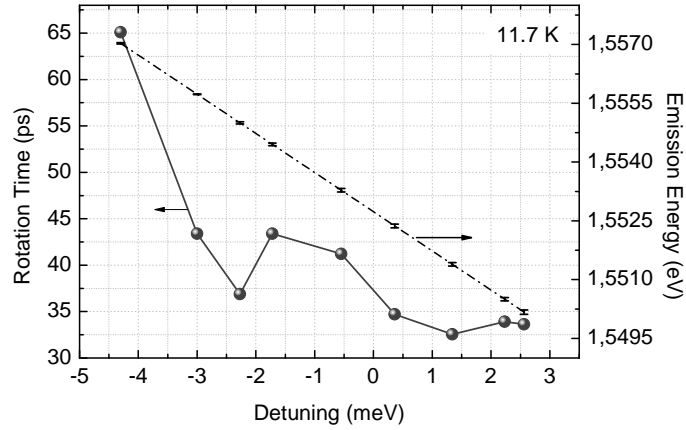


Figura 5.3: Medida do tempo de precessão versus dessintonia a uma temperatura de 11,7K. Também é mostrada a relação linear entre a dessintonia e a energia de emissão (eixo a direita).

largura a meia altura de cada pico fornece uma estimativa para o tempo de vida do polariton  $\sim 10$ ps. A Figura 5.3 fornece uma relação mais detalhada entre o tempo de precessão do pseudo-spin e a dessintonia.

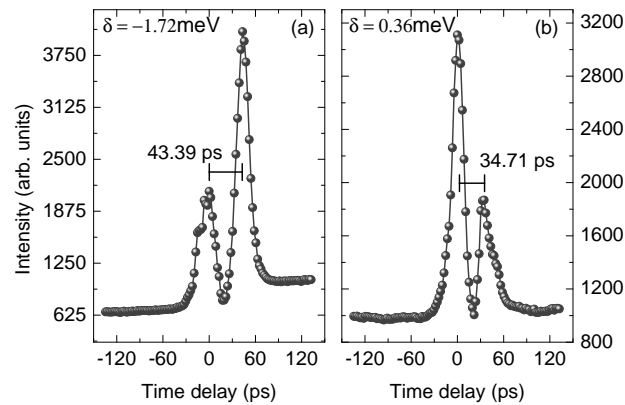


Figura 5.4: Medida da intensidade integrada versus o tempo de atraso. Diferentes tempos de relaxação são observados para dessintonia negativa (a)  $\delta = -1,72$ meV e dessintonia positiva (b)  $\delta = 0,36$ meV.

## 5.2 Variação da Potência de Excitação

Analizamos a dependência com a potência de excitação. Resfriando a microcavidade a uma temperatura de 12,9K, a variação da potência foi obtida girando o plano do atenuador. Quanto maior a potência de excitação maior será o número de exciton-polaritons criados na microcavidade. Desta forma, o desbalanço no número de ocupação amplificado por diferentes potências induz a diferentes períodos de precessão do pseudo-spin como mostrado na Figura 5.5, a partir do deslocamento da posição do segundo pico. A Figura 5.5 foi obtida integrando cada espectro em um intervalo fixo, e relacionando com o atraso temporal relativo entre os pulsos.

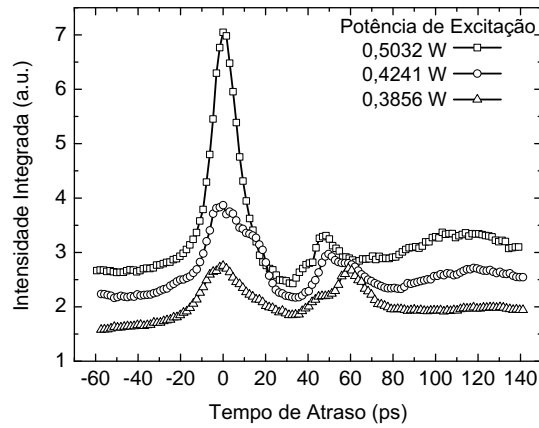


Figura 5.5: Medida da variação temporal da área espectral em função do tempo de atraso para diferentes potências.

## 5.3 Considerações Finais

Esta dissertação está focalizada no trabalho de pesquisa sobre a dinâmica de pseudo-spin do exciton-polariton formado em uma microcavidade semicondutora com um único poço quântico. Apresentamos uma descrição sucinta dos principais fundamentos do conceito de exciton-polariton baseada na teoria quântica de muitos corpos, permitindo-nos uma melhor compreensão das características físicas que mostram-se diante da interação entre a luz e a matéria.

Verificamos experimentalmente que o parâmetro de *detuning* serve como um importante

parâmetro físico no controle do tempo de precessão do pseudo-spin do polariton. Em particular, consideramos que o principal mecanismo de relaxação de spin está relacionado com o desequilíbrio no número de ocupação dos estados *up* e *down* gerando um campo magnético efetivo responsável pela precessão do pseudo-spin. Um comportamento similar, foi encontrado para medidas com variação da potência de excitação. Os resultados aqui exibidos, podem ser aperfeiçoados no sentido que a medida simultânea do estado de polarização da fotoluminescência da microcavidade seja feito. Desta forma, a hipótese de um campo efetivo nulo na direção perpendicular ao plano do poço poderá ser testada analisando uma possível rotação no plano de polarização.

Por estes e outros motivos, estes dispositivos semicondutores são apontados como uma possível tecnologia de dispositivos opto-eletrônicos baseados em spin, podendo ser aproveitados em comunicação ótica a curta distância, uma vez que o estado de spin está intrinsecamente ligado à polarização da fotoluminescente. A coerência bosônica também é uma característica que pode ser explorada.

# Apêndice A

Neste apêndice descreveremos alguns detalhes da microcavidade crescida pela empresa IQE (USA) utilizando tecnologia epitaxial de crescimento de cristais.

Perfil	Grupo	Rep.	Mols (%)	Espessura(Å)	Dopante	Conc.
GaAs				50	Be	$1,0 \times 10^{18}$
AlGaAs			20	539	Nenhum	
AlAs				688	Nenhum	
AlGaAs	2	×21	20	590	Nenhum	
AlAs	2	×21		688	Nenhum	
AlGaAs			30	1154	Nenhum	
GaAs				100	Nenhum	
AlGaAs(sem rotação)			30	1154	Nenhum	
AlAs				688	Nenhum	
AlGaAs	1	× 26	20	590	Nenhum	
AlAs	1	× 26		688	Nenhum	
GaAs				5.000	Nenhum	
3" N+GaAs Substrato				$625 \pm 25 \mu m$	Si	

# Referências Bibliográficas

- [1] KAVOKIN, A. Exciton-polaritons in microcavities: present and future. *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, Springer Verlag, Berlin, v. 89, n. 2, p. 241–246, Mai 2007.
- [2] SHELYKH, I. et al. Semiconductor microcavity as a spin-dependent optoelectronic device. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 70, n. 3, p. 035320, Jul 2004.
- [3] KAVOKIN, A.; MALPUECH, G. *Thin films and nanostructures: Cavity polaritons*. Oxford: Academic Press, 2003. 246 p.
- [4] WEISBUCH, C. et al. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Physical Review Letters*, American Physical Society, New York, v. 69, n. 23, p. 3314–3317, Dez 1992.
- [5] SAVONA, V.; PIERMAROCCHI, C. Microcavity Polaritons: Homogeneous and Inhomogeneous Broadening in the Strong Coupling Regime. *Physica Status Solidi(a)*, Akademie Verlag, Berlin, v. 164, n. 1, p. 45–51, Ago 1997.
- [6] BAUMBERG, J. J. et al. Parametric oscillation in a vertical microcavity: A polariton condensate or micro-optical parametric oscillation. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 62, n. 24, p. R16247–R16250, Dez 2000.
- [7] STEVENSON, R. M. et al. Continuous wave observation of massive polariton redistribution by stimulated scattering in semiconductor microcavities. *Physical Review Letters*, American Physical Society, New York, v. 85, n. 17, p. 3680–3683, Out 2000.
- [8] SAVONA, V.; SARCHI, D. Bose-Einstein condensation of microcavity polaritons. *Physica Status Solidi (b)*, Akademie Verlag, Berlin, v. 242, n. 11, p. 2290–2301, Jul 2005.

- [9] KASPRZAK, J. et al. Bose–Einstein condensation of exciton polaritons. *Nature*, Nature Publishing Group, London, v. 443, n. 7110, p. 409–414, Jul 2006.
- [10] WEIHS, G. et al. Exciton–polariton lasing in a microcavity. *Semiconductor Science and Technology*, Institute of Physics Publishing, London, v. 18, n. 10, p. S386–S394, Set 2003.
- [11] YAMAMOTO, Y. et al. Quantum electrodynamic effects in semiconductor microcavities-microlasers and coherent exciton-polariton emission. *Le Journal de Physique IV*, EDP Sciences, Les Ulis, v. 3, n. C5, p. 39 – 46, Out 1993.
- [12] UTSUNOMIYA, S. et al. Observation of Bogoliubov excitations in exciton-polariton condensates. *Nature Physics*, Nature Publishing Group, London, v. 4, n. 9, p. 700–705, Ago 2008.
- [13] MARIE, X. et al. Coherent control of exciton polaritons in a semiconductor microcavity. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 59, n. 4, p. 2494–2497, Jan 1999.
- [14] OSTATNICKÝ, T.; SHELYKH, I. A.; KAVOKIN, A. V. Theory of polarization-controlled polariton logic gates. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 81, n. 12, p. 125319, Mar 2010.
- [15] SAVONA, V. et al. Quantum theory of quantum-well polaritons in semiconductor microcavities. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 49, n. 13, p. 8774–8779, Abr 1994.
- [16] JACOBSON, J. et al. Observation of exciton-polariton oscillating emission in a single-quantum-well semiconductor microcavity. *Physics Review A*, American Physical Society, New York, v. 51, n. 3, p. 2542–2544, Mar 1995.
- [17] SAVONA, V. et al. Quantum well excitons in semiconductor microcavities: unified treatment of weak and strong coupling regimes. *Solid State Communications*, Elsevier, New York, v. 93, n. 9, p. 733–740, Mar 1995.
- [18] BASSANI, F.; RUGGIERO, F.; QUATTROPANI, A. Microscopic quantum theory of exciton polaritons with spatial dispersion. *II Nuovo Cimento D*, Italian Physical Society, Bologna, Italia, v. 7, n. 5, p. 700–716, Mai 1986.



- [19] HOPFIELD, J. J. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals. *Physics Review*, American Physical Society, New York, v. 112, n. 5, p. 1555–1567, Dez 1958.
- [20] AGRANOVICH, V. Dispersion of electromagnetic waves in crystals. *Soviet Physics - JETP*, American Institute of Physics, New York, v. 10, n. 2, p. 307–313, Fev 1960.
- [21] STREETMAN, B.; BANERJEE, S. *Solid state electronic devices*. 6. ed. New Jersey: Prentice-Hall, 1990. 608 p.
- [22] NEGELE, J.; ORLAND, H. *Quantum many-particle systems*. Reading: Addison-Wesley, 1988. 459 p. (Frontiers in physics series; v.68).
- [23] YAMAMOTO, Y.; TASSONE, F.; CAO, H. *Semiconductor cavity quantum electrodynamics*. New York: Berlin: Springer Verlag, 2000. 154 p. (Springer tracts in modern physics ; v 169).
- [24] FRANCESCO, L. A.; BASSANI, F. Radiative lifetime of free excitons in quantum wells. *Solid state communications*, Elsevier, New York, v. 77, n. 9, p. 641–645, Mar 1991.
- [25] DEVEAUD, B. et al. Enhanced radiative recombination of free excitons in GaAs quantum wells. *Physical Review Letters*, American Physical Society, New York, v. 67, n. 17, p. 2355–2358, Out 1991.
- [26] JACKSON, J. D. *Classical electrodynamics*. 3. ed. New York: John Wiley, 1998. 808 p.
- [27] MANDEL, L.; WOLF, E. *Optical coherence and quantum optics*. New York: Cambridge University Press, 1995. 1166 p.
- [28] LOUISELL, W. *Quantum statistical properties of radiation*. New York: John Wiley, 1990. 528 p.
- [29] SAVVIDIS, P. G. et al. Angle-resonant stimulated polariton amplifier. *Physical Review Letters*, American Physical Society, New York, v. 84, n. 7, p. 1547–1550, Fev 2000.
- [30] PAU, S. et al. Microcavity exciton-polariton splitting in the linear regime. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 51, n. 20, p. 14437–14447, Mai 1995.

- [31] MEYSTRE, P.; SARGENT, M. *Elements of quantum optics*. 3. ed. Berlin: Springer Verlag, 1999. 432 p.
- [32] KAVOKIN, A. et al. *Microcavities*. Oxford: Oxford University Press, 2008. 432 p. (Semiconductor Science and Technology).
- [33] DEBBAR, N.; BISWAS, D.; BHATTACHARYA, P. Conduction-band offsets in pseudomorphic  $In_xGa_{1-x}As/Al_{0.2}Ga_{0.8}As$  quantum wells ( $0.07 \leq x \leq 0.18$ ) measured by deep-level transient spectroscopy. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 40, n. 2, p. 1058–1063, Jul 1989.
- [34] YU, P.; CARDONA, M. *Fundamentals of semiconductors: physics and materials properties*. Berlin: Springer Verlag, 1996. 617 p.
- [35] DYAKONOV, M. *Spin physics in semiconductors*. Berlin: Springer Verlag, 2008. 439 p. (Springer Series in Solid-State Sciences 157).
- [36] ALTARELLI, M.; EKENBERG, U.; FASOLINO, A. Calculations of hole subbands in semiconductor quantum wells and superlattices. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 32, n. 8, p. 5138–5143, Out 1985.
- [37] GRUNDMANN, M. *The physics of semiconductors: an introduction including devices and nanophysics*. New York: Springer, 2006. 689 p.
- [38] SINGH, J. *Physics of Semiconductors and their Heterostructures*. New York: Mcgraw-Hill College, 1993. 864 p. (Mcgraw Hill Series in Electrical and Computer Engineering).
- [39] MEIER, F.; ZAKHARCHENYA, B. *Optical orientation*. Amsterdam: Oxford, 1984. 532 p.
- [40] WEINER, A. M. *Ultrafast Optics*. Hoboken: John Wiley, 2009. 580 p.
- [41] SILFVAST, W. *Laser fundamentals*. 2. ed. Cambridge: Cambridge University Press, 2004. 642 p.
- [42] DEVEAUD, B. *The Physics of Semiconductor Microcavities: from fundamentals to nanoscale devices*. Weinheim: Wiley-Vch Verlag, 2007. 307 p.

- [43] RULLIERE, C. *Femtosecond laser pulses: principles and experiments*. 2. ed. New York: Springer Verlag, 2005. 426 p.
- [44] ELLIOTT, R. J. Theory of the effect of spin-orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors. *Physics Review*, American Physical Society, New York, v. 96, n. 2, p. 266–279, Out 1954.
- [45] D'YAKONOV, M. I.; PEREL', V. I. Spin relaxation of conduction electrons in noncentrosymmetric semiconductors. *Soviet Physics - Solid State*, American Institute of Physics, New York, v. 13, n. 12, p. 3023–3026, Jun 1972.
- [46] BIR, G. L.; ARONOV, A. G.; PIKUS, G. E. Spin relaxation of electrons due to scattering by holes. *Soviet Physics - JETP*, American Institute of Physics, New York, v. 42, n. 4, p. 705–712, Mai 1975.
- [47] MAIALLE, M. Z.; SILVA, E. A. de Andrada e; SHAM, L. J. Exciton spin dynamics in quantum wells. *Physical Review B*, American Physical Society, New York, v. 47, n. 23, p. 15776–15788, Jun 1993.
- [48] KAVOKIN, K. V. et al. Quantum theory of spin dynamics of exciton-polaritons in microcavities. *Physical Review Letters*, American Physical Society, New York, v. 92, n. 1, p. 017401, Jan 2004.
- [49] MARTÍN, M. D. et al. Polarization control of the nonlinear emission of semiconductor microcavities. *Physical Review Letters*, American Physical Society, New York, v. 89, n. 7, p. 077402, Jul 2002.
- [50] SOLNYSHKOV, D. et al. Nonlinear effects in spin relaxation of cavity polaritons. *Semiconductors*, American Institute of Physics, Woodbury, v. 41, n. 9, p. 1080–1091, Set 2007.
- [51] GUENTHER, R. *Modern optics*. New York: Wiley New York, 1990. 696 p.
- [52] SHEN, Y. *The principles of nonlinear optics*. New York: John Wiley, 1984. 563 p.
- [53] KURODA, T.; HASHIMOTO, Y.; MINAMI, F. Photo-induced Faraday rotation in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells. *Journal of Luminescence*, Elsevier, v. 94, p. 551–554, 2001.

- [54] MOREIRA, L. M. *Bipolaritons em uma microcavidade semicondutora*. Belo Horizonte: Produção científica Departamento de Física UFMG, 2006. 56 p. (Dissertação de Mestrado).