

Este exemplar corresponde a  
edição final de tese de douto-  
ramento defendida pelo aluno  
José Brás Barreto de Oliveira e apro-  
vada pela comissão julgadora.  
26/08/96

**PROPRIEDADES ÓPTICAS DE**  
**ÉXCITONS E ACEITADORES DE**  
**Be CONFINADOS EM MÚLTIPLOS**  
**POÇOS QUÂNTICOS DE GaAs/Ga<sub>0,7</sub>Al<sub>0,3</sub>As**

*José Brás Barreto de Oliveira*

*Eliermes Arraes Meneses*

*(orientador)*

*Tese apresentada ao Instituto de  
Física "Gleb Wataghin" da  
UNICAMP para a obtenção do  
título de doutor em Física.*

*Campinas - São Paulo*

*1996*

*Dedico este trabalho  
à Mary,  
ao Mateus e  
ao Cesário.*

## *Agradecimentos*

Manifesto meus agradecimentos

ao Mateus e a Mary, pela compreensão em relação às muitas horas “roubadas”;

ao Prof. Eliermes, pela dedicada orientação e constante apoio em todos os aspectos;

à Profa. Euzi C. F. Silva, por ter cedido as amostras que possibilitaram a realização do trabalho e pelas discussões;

ao Prof. Luiz Eduardo Oliveira, por ter cedido programa Fortran e auxiliado nas discussões relativas ao estudo de aceitadores;

ao Departamento de Física da UNESP-Bauru, pela concessão de afastamento parcial durante a execução do trabalho;

aos colegas do Grupo de Propriedades Ópticas, pela amizade e frequente colaboração e

à Capes - PICD, pelo apoio financeiro.

*Enganam-se profundamente aqueles  
que, vivenciando as transformações  
do século XX, insistem em pressupor  
a neutralidade da Ciência.*

## *RESUMO*

Neste trabalho estudamos as propriedades ópticas de éxcitons e de aceitadores de Be, confinados num sistema de múltiplos poços quânticos de GaAs/Ga<sub>0.7</sub>Al<sub>0.3</sub>As, usando as técnicas de fotoluminescência e fotoluminescência de excitação. Observamos a emissão relacionada aos éxcitons ligados os quais acreditamos estar ligados a defeitos ionizados localizados na interface. A dimensão lateral média das microrugosidades das interfaces foi determinada usando medidas de magneto-fotoluminescência e a aplicabilidade do modelo de Singh-Bajaj foi testada. Analisamos o efeito de ilhas planas e extensas, presentes na interface, sobre as energias de ligação e as energias dos estados excitados dos aceitadores de Be confinados. Calculamos, ainda, a forma de linha da fotoluminescência, associada à transição “free-to-bound”, comparando com nossos resultados experimentais.

## *ABSTRACT*

In this work we have studied the optical properties of excitons and Be acceptors, confined in a GaAs/Ga<sub>0.7</sub>Al<sub>0.3</sub>As multiple quantum well system, using photoluminescence and photoluminescence excitation techniques. We observed an emission related to the bound excitons which we believe are bound at the ionized interface defects. The average lateral dimensions of interface microroughness was determined from magneto-photoluminescence measurements and the applicability of the Singh-Bajaj's model was tested. We have performed an analysis of the effect of flat islands, localized at interfaces, on the binding energies and excited states energies of the confined Be acceptors. Also, we have calculated the photoluminescence line shape, associated to the free-to-bound transition, and confronted it with our experimental results.

# CONTEÚDO

I. Introdução Geral.....	9
II. Aspectos Teóricos	
II.1 - Éxcitons Confinados em Poços Quânticos.....	12
II.2 - A Forma de Linha da Fotoluminescência e Defeitos de Interface.....	15
II.3 - Aceitadores de Be Confinados em Poços Quânticos.....	20
III. Procedimentos Experimentais	
III.1 - Breve Descrição das Técnicas Experimentais.....	27
III.2 - Montagem Experimental Básica.....	28
III.3 - Variações da Montagem Básica.....	30
IV. Éxcitons Confinados: Resultados e Discussões	
IV.1 - Descrição da Amostra Estudada.....	33
IV.2 - Caracterização das Transições Excitônicas dos Poços Quânticos.....	34
IV.3 - Análise do Espectro de Fotoluminescência: Éxciton Ligado.....	42
IV.3.a - Fotoluminescência em função da Temperatura e da Potência de Excitação.....	44
IV.3.b - Discussão Sobre a Origem do Pico de Baixa Energia.....	47
IV.3.c - Análise da Forma de Linha da Fotoluminescência.....	50
IV.4 - Sobre a Natureza do Éxciton Ligado.....	52
IV.5 - Resultados de Magneto-Óptica: Uma Análise da Interface.....	61
V. Aceitadores de Be Confinados: Resultados e Discussões	
V.1 - Descrição da Amostra Estudada.....	66
V.2 - Transições Excitônicas Relacionadas aos Poços Quânticos.....	67

V.3 - Transições “Free-to-Bound” (FB): Energia de Ligação dos Aceitadores de Be.....	74
V.4 - Estados Excitados dos Aceitadores de Be.....	79
V.5 - Forma de Linha da Transição “Free-to-Bound” .....	83
VI. Conclusões Gerais.....	88

## **RELAÇÃO DE FIGURAS**

**Figura II.1:** Esquema mostrando as variações de monocamada que ocorrem nas interfaces dos poços quânticos: a) Microrrugosidades com dimensões laterais menores que as dimensões dos éxcitons resultam em alargamento da linha de PL (parte da esquerda) e b) Ilhas planas e extensas provocam um “splitting” do espectro de PL (parte da direita).

**Figura II.2:** Resultados obtidos para as sub-bandas e os estados fundamentais (1S) e excitados (2S) para buracos pesados ( $\Gamma_6$ ) e buracos leves ( $\Gamma_7$ ). Figura extraída da referência [Masselink 1985].

**Figura II.3** - Ilustração do modelo THT. Após a recombinação do éxciton ligado o aceitador permanece num estado excitado (figura da direita). A emissão se dará com uma energia E menor, onde a diferença é a energia dispendida para excitar o aceitador. Figura extraída da referência [Holtz 1993].

**Figura III.1:** Esquema da montagem experimental típica usada nas medidas de PL. O laser mostrado é o de  $\text{Ar}^+$  ou o de Ti-Sa dependendo da medida.

**Figura III.2:** Esquema da montagem usada nas medidas de PL com dupla excitação. Neste caso o feixe do laser de  $\text{Ar}^+$  está sendo modulado.

**Figura III.3:** Esquema da montagem usada nas medidas de magneto-óptica.

**Figura IV.1:** Desenho esquemático da amostra de GaAs/Ga<sub>0.7</sub>Al<sub>0.3</sub>As a que se referem os dados apresentados no capítulos IV.

**Figura IV.2:** Espectros de PL (excitação em 1.631 eV) e de PLE (detecção em 1.5627 eV) mostrando as transições ópticas relacionadas aos níveis do poço.

**Figura IV.3:** Regiões do espectro de PLE destacadas. Na parte (a) pode-se observar os estados excitados,  $HH_1(2S)$  em 1.5748 eV e  $LH_1(2S)$  em 1.5911 eV. Na parte (b) observamos as transições  $E_1-HH_3$  (1.652 eV),  $E_2-LH_1$  (1.715 eV) e  $E_2-HH_2$  (1.722 eV).

**Figura IV.4:** PLE mostrando os estados excitados  $HH_1(2S)$  e  $LH(2S)$ . A ação do campo magnético, aplicado perpendicularmente à superfície da amostra, destaca a presença das transições 2S. Em cada espectro a detecção foi feita no pico fundamental da PL ( $E_1-HH_1$ ).

**Figura IV.5:** Medidas de PL na região de energias acima da transição fundamental do poço quântico. A parte (a) mostra espectros de PL para altas temperaturas e potência de excitação de  $0.42 \text{ W/cm}^2$  onde aparecem as transições dos estados excitados e do LH, devido ao populamento térmico. A parte (b) mostra os mesmos espectros para  $T = 2 \text{ K}$  e diferentes potências de excitação; o espectro superior (potência de  $42 \text{ W/cm}^2$ ) mostra a transição LH (ver texto).

**Figura IV.6:** Espectros de PL obtidos com diferentes energias de excitação. Para excitação de 2.41 eV observa-se um pico abaixo da transição  $E_1-HH_1$ , ausente para excitação de 1.689 eV. Os espectros, que são deslocados de 0.5 meV entre si, foram alinhados para facilitar a comparação.

**Figura IV.7:** Espectros de PL em função da temperatura da amostra para excitação com o laser de Argônio (2.41 eV) e densidade de potência de  $11.0 \text{ mW/cm}^2$ .

**Figura IV.8:** Gráfico das intensidades de PL contra  $1/kT$  para os picos A e B da figura IV.7. As curvas foram traçadas a partir de ajuste usando  $I_{PL} = I_0/(1+\exp[E_a/kT])$ .

**Figura IV.9:** Espectros de PL obtidos em  $T = 2 \text{ K}$  onde a potência de excitação foi variada em 4 ordens de grandeza. Observa-se a ausência do pico A (de menor energia) para altas potências (espectro inferior) devido ao processo de saturação.

**Figura IV.10:** Deconvolução de espectro de PL obtido em  $T = 2$  K com energia de excitação de 2.41 eV. Os ajustes foram feitos considerando-se: a) duas Lorentzianas, b) duas Gaussianas e c) uma Lorentziana para o BE e uma Gaussiana para o FE.

**Figura IV.11:** Espectros de PL em função da temperatura para excitação com energia de 1.689 eV (menor que o “gap” da barreira). Verifica-se que há um processo de ativação térmica presente na região do pico do BE.

**Figura IV.12:** Espectros de PL obtidos para diferentes energias de excitação, em  $T = 2$  K e  $P = 3.3$  m W/cm<sup>2</sup>. O “gap” da barreira vale 1.951 eV.

**Figura IV.13:** Espectros de PL em escala logarítmica. O espectro (a) foi destacado da figura IV.12 e o espectro (b) foi destacado da figura IV.11, as energias de excitação foram 1.771 e 1.689 eV, respectivamente.

**Figura IV.14:** Deconvolução de um espectro de PL onde  $T = 2.0$  K e a energia de excitação usada foi menor que o “gap” da barreira (1.771 eV). Observa-se a presença da emissão associada ao BE.

**Figura IV.15:** Intensidades integradas da fotoluminescência em função da energia de excitação para cada pico (FE e BE) e total. As medidas foram obtidas em  $T = 2$  K. A figura no canto superior direito mostra a relação entre as intensidades dos picos (FE e BE) em função da energia de excitação. A curva traçada representa um ajuste linear.

**Figura IV.16:** Espectros de PL para diferentes condições de excitação em  $T = 2$  K e baixa potência. a) excitação com laser de Ar (2.41 eV) e Ti-Sa (1.631 eV) e detecção da emissão proveniente dos éxcitons gerados pelo laser de menor energia; b) idem, com detecção da emissão proveniente dos éxcitons gerados pelo laser de maior energia e c) excitação apenas com o laser de menor energia (ver texto).

**Figura IV.17:** Energias dos picos FE e BE em função do campo magnético  $B$ , aplicado perpendicularmente ao plano da amostra.

**Figura IV.18:** Dimensão lateral do éxciton,  $R_{ex}$ , em função do campo magnético. Os valores foram calculados a partir dos deslocamentos diamagnéticos, através da expressão (21). A curva traçada representa um ajuste linear.

**Figura IV.19:** Larguras de linha da PL do éxciton livre (FE) em função do campo magnético. Os pontos foram obtidos diretamente dos espectros. A curva foi traçada como um ajuste quadrático dos pontos calculados, cálculos estes feitos a partir do deslocamento diamagnético e usando as equações (13) e (21).

**Figura V.1 -** Esquema da amostra estudada no capítulo V mostrando um dos poços com a respectiva dopagem.

**Figura V.2:** Espectros de PL obtidos em diferentes temperaturas, com excitação de  $0.71 \text{ W/cm}^2$  e energia de  $2.41 \text{ eV}$ .

**Figura V.3:** Intensidade integrada da PL versus o inverso da energia térmica  $kT$ . As curvas traçadas foram obtidas a partir de ajuste usando a equação  $I_{PL} = I_0/[1+C\exp(E_a / kT)]$ .

**Figura V.4:** Medidas de PL obtidas em  $T = 2 \text{ K}$ , com excitação de  $2.41 \text{ eV}$  e em diferentes potências de excitação.

**Figura V.5:** Espectros de PLE para diferentes energias de detecção. A temperatura durante a medida foi de  $2 \text{ K}$  e a intensidade da excitação de  $0.5 \text{ W/cm}^2$ .

**Figura V.6:** Deconvolução de um espectro de PL usando-se três curvas Gaussianas. O sucesso do ajuste indica a predominância dos efeitos das flutuações estatísticas nesta amostra.

**Figura V.7:** Transições FB obtidas em diferentes energias de excitação. Observar em qual dos poços os portadores são criados em cada caso comparando as energias de excitação indicadas com o espectro superior da figura V.8, abaixo.

**Figura V.8:** Espectros de PLE com diferentes energias de detecção na região das transições FB.

**Figura V.9:** Espectros de PL para diferentes energias de excitação onde aparecem o pico do GaAs (1.513 eV) e os picos associados às transições “free-to bound” e  $\Gamma_6$  (1S) -  $\Gamma_7$  (2S).

**Figura V.10:** Espectros de PL mostrando o pico THT associado à transição  $\Gamma_6$  (1S) -  $\Gamma_6$  (2S).

**Figura V.11:** Forma de linha experimental (————) e teórica (— — —) da transição “free-to-bound” para os poços A, B e C.

**Figura V.12:** Linhas de PL calculadas : a) para dopagem uniforme e diferentes energias de Fermi e b) para  $E_F = 1.0$  meV e diferentes perfis de dopagem. Em ambos os casos considerou-se  $T = 2$  K.

## ***RELAÇÃO DE TABELAS***

**Tabela IV.1:** Valores das massas efetivas usadas nos cálculos dos sub-níveis dos poços quânticos, dadas em unidades da massa de repouso do elétron,  $m_0$ .

**Tabela IV.2:** Valores das energias de transição óptica, medidas a partir do espectro de PLE, em comparação com os valores calculados. No caso da transição  $E_1 - HH_3$  não foi considerado o valor da energia de ligação do éxciton. Usou-se uma largura de poço de  $80 \text{ \AA}$  e  $x = 0.3$ .

**Tabela IV.3:** Comparação entre os valores experimentais e os calculados para a diferença entre os estados 1S e os estados 2S dos éxcitons  $HH_1$  e  $LH_1$ .

**Tabela V.1:** Largura de cada um dos poços, obtidas após cálculo das energias de transição óptica e comparação com o espectro de PLE.

**Tabela V.2:** Valores das energias de ligação experimental dos aceitadores de Be em comparação com os valores teóricos obtidos da referência [Masselink 1985].

**Tabela V.3:** Valores teóricos e experimentais da transição  $\Gamma_6$  (1S) -  $\Gamma_7$  (2S). Os valores experimentais foram obtidos usando o modelo THT e os valores teóricos foram extraídos da referência [Masselink 1985].

# *CAPÍTULO I*

## *INTRODUÇÃO GERAL*

A Física dos Materiais representa uma das áreas mais profícuas da ciência moderna devido, certamente, às diversas possibilidades de aplicação tecnológica e à constituição de sistemas altamente interessantes ao estudo de novos fenômenos físicos. Os Materiais Semicondutores e mais especificamente as heteroestruturas semicondutoras ocupam um lugar de destaque dentro desta área da Física.

Na década de 70, com o advento da técnica de crescimento “Molecular Beam Epitaxy” (MBE) [Esaki 1970] foi possível demonstrar, de forma direta, a ocorrência dos fenômenos quânticos nas estruturas de filmes finos de semicondutores que puderam ser construídas [Dingle 1975]. A partir de então assistiu-se a uma explosão no número de trabalhos relacionados ao assunto [Weisbuch 1991]. A possibilidade de se construir estruturas com as mais diversas arquiteturas e com qualidade muito superior ampliou sobremaneira os horizontes nesta área. Técnicas como a “Metal-Organic Chemical Vapor Deposition” (MOCVD) e, mais recentemente, a “Chemical Beam Epitaxy” (CBE) também contribuíram neste processo.

O leque de aplicações em dispositivos opto-eletrônicos é muito amplo. Podemos citar a classe dos “Field Effect Transistors” (FET) como o “Two-Dimensional Gas FET” (TEGFET), “Modulation Doped FET” (MODFET), o “Metal-Oxide-Silicon FET” (MOSFET); fotodetetores; lasers e os “Self Electro-Optic Effect Devices” (SEED) [Bacher 1993 e Weisbuch 1991].

Há vários fenômenos, nesta área, que permanecem sem uma explicação adequada e carecem de investigação dentre os quais podemos citar: o efeito Hall quântico fracionário [Prange 1990 e Fendley 1995], a dinâmica de éxcitons [Damen 1990], efeitos de muitos corpos como a singularidade do nível de Fermi [Brener 1995] e os processos de “spin-flip” [Sapega 1994].

O presente trabalho aborda dois tópicos importantes relacionados aos sistemas de poços quânticos; são as propriedades ópticas de éxcitons e de aceitadores de Be, confinados em poços quânticos. Ambos os tópicos são estudados em um sistema de Múltiplos Poços Quânticos de GaAs/Ga<sub>0.7</sub>Al<sub>0.3</sub>As, com 20 períodos, crescidas por MBE. As amostras foram crescidas no Instituto Max Planck (Stuttgart), no grupo do Dr. K. Ploog. As técnicas experimentais usadas foram basicamente a fotoluminescência (PL) e a fotoluminescência de excitação (PLE); foram feitas algumas variações como por exemplo, medidas de PL e PLE sob a ação de campo magnético.

As propriedades ópticas de éxcitons num poço quântico são influenciadas pelas características estruturais das interfaces [Deveaud 1987], o que os credencia como instrumentos de teste destas interfaces. São questões relevantes, entre outras, os processos de captura de portadores pelo poço [Bacher 1993], a dinâmica dos éxcitons envolvendo ilhas planas e extensas na interface [Fujiwara 1991 e Liu 1993] e os processos de localização de éxcitons [Srinivas 1994 e Takahashi 1994].

Em nosso estudo de éxcitons confinados analisamos a origem de um éxciton ligado e, através do efeito da ação do campo magnético sobre os éxcitons livres, realizamos uma análise da interface da amostra usando o modelo de Singh e Bajaj [Singh 1984].

A possibilidade de se dopar os materiais intencionalmente e com perfis bem controlados ampliou sobremaneira os estudos das propriedades de impurezas nos semicondutores. O trabalho pioneiro de Miller [Miller 1982a] abriu caminho para uma série de trabalhos teóricos [Masselink 1985, Oliveira 1990 e Fraizzoli 1990] e experimentais [Holtz 1989a e Holtz 1993] sobre aceitadores confinados em poços quânticos. Em geral, o interesse reside em caracterizar adequadamente a estrutura eletrônica dos aceitadores o que exige esforços maiores que no caso dos doadores, devido à complexidade da banda de valência.

O aspecto principal de nosso trabalho, no que se refere aos aceitadores de Be confinados, é o efeito da presença de ilhas planas e extensas na interface. Obtivemos, experimentalmente, os valores das energias de ligação dos aceitadores e as

energias de seus estados excitados, os quais são comparados com cálculos teóricos da literatura. Calculamos, também, a forma de linha da luminescência relacionada com a transição “free-to-bound” (FB), isto é, a transição envolvendo um elétron livre e um aceitador e comparamos com nossos resultados experimentais.

O trabalho está apresentado da seguinte maneira: no capítulo II serão abordados alguns aspectos teóricos relevantes para a análise e interpretação de nossos resultados experimentais; os procedimentos realizados nas experiências serão descritos no capítulo III; os capítulos IV e V apresentarão os resultados experimentais, bem como as análises e discussões, para o estudo de éxcitons e aceitadores de Be confinados, respectivamente, e o capítulo VI se destinará à apresentação sumária das conclusões do trabalho.

# CAPÍTULO II

## ASPECTOS TEÓRICOS

Este capítulo será dedicado à discussão de alguns tópicos teóricos a serem usados na interpretação de nossos resultados experimentais. Na seção II.1 trataremos basicamente das transições excitônicas de poços quânticos. A forma de linha da fotoluminescência e a influência de defeitos de interface sobre o espectro de emissão serão abordados na seção II.2. Na seção II.3 serão discutidas as propriedades de aceitadores em poços quânticos.

### II.1 - ÉXCITONS CONFINADOS EM POÇOS QUÂNTICOS

Para encontrar os valores das energias das transições excitônicas num poço quântico devemos obter o "gap" efetivo do poço e a energia de ligação do éxciton.

O tratamento por função envelope, baseada na aproximação de massa efetiva, é relativamente simples e eficiente no cálculo das energias dos sub-níveis no poço. O aspecto central consiste em descrever as condições de contorno apropriadas para as funções de onda do poço e da barreira na interface. Ao contrário de métodos como o "tight-binding" e do pseudo-potencial este não faz nenhuma referência direta às características microscópicas dos materiais. [Bastard 1988]

Inicialmente deve-se expandir a função de onda, para cada material A e B que constituem a interface, usando as funções periódicas Bloch  $u_{l, \vec{k}_0}(\vec{r})$  e as funções envelopes  $f_l(\vec{r})$ , teremos:

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_l f_l^{(A, B)}(\vec{r}) u_{l, \vec{k}_0}(\vec{r}) \quad (1)$$

Restringindo o estudo da hetero-estrutura às bandas  $\Gamma$  dos materiais o problema consiste em resolver um sistema de equações diferenciais de 2ª ordem 8x8, o qual pode ser fatorado em dois sistemas 4x4 (ver equação 20, pg 71, em [Bastard, 1988]).

Considerando uma super-rede de período  $d = L_A + L_B$  onde  $L_A$  e  $L_B$  são as larguras dos poços e barreiras, respectivamente, a função envelope pode ser escrita como:

$$\chi_I(z, d) = e^{iqd} \chi_I(z) \quad (2)$$

onde  $z$  é a direção de crescimento e  $q$  é o vetor de onda da super-rede.

As funções envelope nos materiais A e B são combinações lineares de ondas planas. Como existe duas condições de contorno em cada interface são quatro equações lineares com parâmetros desconhecidos a serem determinados.

No caso de uma estrutura do tipo I (material de menor “gap” com “band edges” abaixo que o material de maior “gap”), como é o caso do sistema GaAs/GaAlAs, e tomando-se o ponto  $\vec{K} = 0$ , a relação de dispersão da super-rede fica sendo:

$$\cos(qd) = \cos(K_A L_A) \cosh(K_B L_B) - \frac{1}{2} \left( \xi - \frac{1}{\xi} \right) \sin(K_A L_A) \sinh(K_B L_B) \quad (3)$$

onde  $\xi = i \frac{K_A m_B^*}{K_B m_A^*}$  e  $m_A^*$  e  $m_B^*$  são as massas efetivas em cada material.

Para um poço quântico isolado, onde  $L_B$  é relativamente grande, a equação se reduz ao resultado obtido pelo modelo de Ben Daniel-Duke [Daniel 1966]:

$$\cos(K_A L_A) - \frac{1}{2} \left( \xi - \frac{1}{\xi} \right) \sin(K_A L_A) = 0 \quad (4)$$

Andreani e colaboradores [Andreani 1987 e Andreani 1990] resolvem exatamente a equação de massa efetiva com múltiplas bandas para a função envelope e

podem levar em conta, assim, a mistura das bandas de valência (importante principalmente para  $\vec{K} \neq 0$ ) e também efeitos de compressão.

A mistura das bandas de valência altera tanto a energia de ligação quanto o “oscillator strength” do éxciton. Além disso outros efeitos são importantes e devem ser considerados: o acoplamento Coulombiano entre éxcitons de diferentes sub-bandas a não-parabolicidade da banda de condução e a diferença nos valores das constantes dielétricas dos materiais [Ekemberg 1987 e Kumagai 1989].

Estes efeitos são todos considerados na referência [Andreani 1990]. Neste trabalho o Hamiltoniano, na aproximação de massa-efetiva, é um operador matricial 4x4 escrito como:

$$H_{s,l} = E_c(K_e)\delta_{s,l} + T_{s,l}(K_h) + [V_e(z_e) + V_h(z_h)]\delta_{s,l} + [V_c(\vec{r}_e - \vec{r}_h) + V_{im}(\vec{r}_e + \vec{r}_h)]\delta_{s,l} \quad (5)$$

onde  $E_c(K_e)$  é a relação de dispersão da banda de condução,  $T_{s,l}(K_h)$  é o Hamiltoniano de Luttinger que trata da banda de valência,  $V_e(z_e)$  e  $V_h(z_h)$  são os potenciais de confinamento para elétrons e buracos, respectivamente,  $V_e(\vec{r}_e - \vec{r}_h)$  é o potencial Coulombiano e  $V_{im}(\vec{r}_e + \vec{r}_h)$  é o potencial devido à carga imagem.

A não parabolicidade é considerada, no trabalho de Andreani, escrevendo a relação de dispersão apropriada que resulta em massas efetivas renormalizadas. As diferenças das constantes dielétricas é levada em conta usando-se uma série infinita de cargas imagens. Ambos efeitos concorrem para aumentar a energia de ligação dos éxcitons.

A referência [Andreani 1990] apresenta resultados para os estados fundamentais e excitados para a primeira sub-banda, tanto para o buraco pesado como para o buraco leve (ver figuras 4, 5 e 6 daquele trabalho).

Num trabalho de 1994, Oelgart e colaboradores [Oelgart 1994] encontraram expressões parametrizadas que reproduzem os resultados teóricos para as transições fundamentais de um poço e para as energias de ligação dos éxcitons da referência [Andreani 1990].

As energias dos sub-níveis e as energias de ligação dos éxcitons são ajustadas, respectivamente, pelas equações:

$$E_{e, hh, lh}(L_W, x) = \sum_{k=0}^3 \sum_{j=1}^4 A_{jk} \frac{x^k}{(L_W + L_0)^j} \quad (6)$$

$$E_b^{lh, hh}(L_W, x) = \sum_{k=0}^2 \sum_{j=1}^4 A_{jk} \frac{x^k}{(L_W + L_0)^j} \quad (7)$$

Deve-se notar que os cálculos são feitos para diferentes concentrações de Al (x) e diferentes larguras de poço  $L_W$ .  $A_{jk}$  são coeficientes de interpolação e  $L_0$  é um parâmetro de ajuste. Estes valores são encontrados nas tabelas II e IV da referência [Oelgart 1994].

As regiões de aplicabilidade das equações são:  $25 \leq L_W \leq 120$  Å e  $0.1 \leq x \leq 0.5$  para as energias de transição (equação 6) e  $30 \leq L_W \leq 200$  Å e  $0.25 \leq x \leq 1.00$  para as energias de ligação (equação 7). O erro máximo no primeiro caso chega a 0.3 meV e no segundo a 0.2 meV, segundo os autores.

## ***II.2 - A FORMA DE LINHA DA FOTOLUMINESCÊNCIA E DEFEITOS DE INTERFACE.***

Os éxcitons são ótimos sensores na análise da interface de estruturas semicondutoras, particularmente dos sistemas de poços quânticos, pois suas propriedades ópticas são sensíveis a estes defeitos.

A luminescência intrínseca de um poço quântico ocorre, via de regra, a partir da recombinação de um elétron do primeiro nível da banda de condução com um buraco do primeiro nível de buraco pesado na banda de valência. Devido ao confinamento, em baixas temperaturas, as transições excitônicas prevalecem sobre as

transições relacionadas aos portadores livres; as transições excitônicas persistem, inclusive, a temperatura ambiente [Christen 1990].

Os éxcitons são formados a partir de portadores foto-gerados na barreira, quando a energia de excitação excede ao “gap” desta, ou a partir de portadores foto-gerados diretamente no poço, quando a energia de excitação for menor que o referido “gap”. No primeiro caso haverá um processo de relaxação onde a energia será dissipada por interação com fônons ópticos e acústicos, a captura dos portadores no poço e a formação dos pares excitônicos decorrente da interação Coulombiana. Quando os portadores são foto-gerados diretamente no poço haverá emissão de fônons ópticos, se a energia a ser dissipada exceder a energia destes, ou apenas de fônons acústicos, caso a energia excedente for menor que a energia dos fônons ópticos.

Em situações de altas temperaturas ou altas potências de excitação observa-se também emissão relacionada aos estados excitados (2S) dos éxcitons, bem como aos níveis de buraco leve [Oelgart 1994], conforme discutiremos na seção IV.2.

A linha de luminescência de um poço quântico é formada a partir de três contribuições básicas: distribuição térmica dos portadores, alargamento Gaussiano devido às flutuações estatísticas e alargamento Lorentziano decorrente da interação de estado final. Christen e Bimberg [Christen 1990], mostraram que também é necessário considerar a dispersão da energia dos éxcitons em razão da não conservação do vetor de onda.

### **A) Alargamento Lorentziano**

Quando ocorre a recombinação aparece um buraco e um elétron nas funções distribuição dos elétrons (BC) e dos buracos (BV), respectivamente. O restabelecimento das funções distribuição ocorrem dentro de um tempo de espalhamento finito, de forma que o processo de recombinação está associado a um tempo de vida,  $\tau$ , finito.

A chamada interação de estado final resulta num alargamento Lorentziano de cada nível dado por  $\Gamma = h / \tau$ , onde  $h$  é a constante de Planck. Seguindo a referência [Christen 1990] a taxa de emissão espontânea será escrita como:

$$R(h\nu) \approx \int_0^{\infty} \Theta(E' - E_g) f(\varepsilon'_c) [1 - f(\varepsilon'_v)] L(h\nu, E') dE' \quad (8)$$

onde  $\Theta$  é a função degrau,  $E_g$  é a energia do "gap" efetivo do poço,  $f$  são as probabilidades de ocupação dos estados de energia  $\varepsilon$  e  $L$  é a Função de Lorentz.

Supondo que o parâmetro de alargamento  $\Gamma(E')$  é proporcional ao número de portadores com energia maior que  $E'$  e assumindo a distribuição estatística de Boltzmann encontra-se uma forma de linha dada por:

$$I(h\nu) \approx \int_0^{\infty} \frac{\exp(-2y)}{0(x-y)^2 + \gamma^2 \exp(-2y)} dy \quad (9)$$

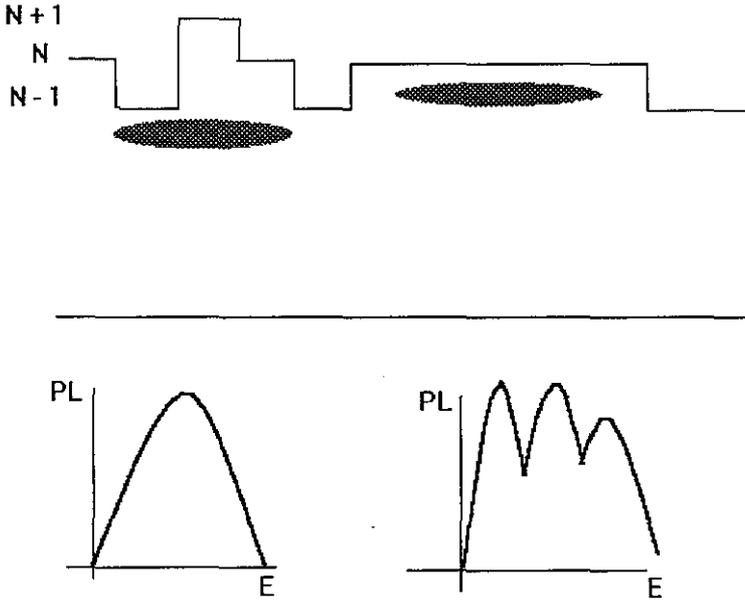
onde:  $\gamma = \Gamma_0 / 2kT_c$  sendo  $\Gamma_0$  o parâmetro de alargamento e  $T_c$  é a temperatura dos portadores;  $y = (E' - E_g) / kT_c$  e  $x = (h\nu - E_g) / kT_c$ .  $k$  é a constante de Boltzmann.

## B) Alargamento Gaussiano

Variações na largura do poço bem como flutuações na composição da liga resultam numa flutuação estatística do gap do poço  $E_g$ , o que pode ser descrito por uma certa função distribuição  $P(E_g, \langle E_g \rangle)$ .

A figura II.1, abaixo, ilustra as variações de monocamada que ocorrem nas larguras dos poços quânticos.

Quando as extensões laterais das rugosidades são menores que as dimensões do éxciton o efeito é um alargamento na linha de luminescência (parte da esquerda). Por outro lado quando quando ocorre a formação de ilhas planas e com extensão lateral maior que as dimensões dos éxcitons observa-se, no espectro de emissão (PL), picos correspondentes aos poços de diferentes larguras (parte da direita). Em geral costuma-se interromper o crescimento na interface, por alguns segundos, como forma de se obter tais ilhas [Kopf 1991].



*Figura II.1: Esquema mostrando as variações de monocamada que ocorrem nas interfaces dos poços quânticos: a) Microrugosidades com dimensões laterais menores que as dimensões dos éxcitons resultam em alargamento da linha de PL (parte da esquerda) e b) Ilhas planas e extensas resultam num “splitting” do espectro de PL (parte da direita).*

De acordo com o modelo proposto por Singh e Bajaj [Singh 1984 e Singh 1985] a função distribuição  $P(E_g, \langle E_g \rangle)$  é bem descrita por uma Gaussiana:

$$P(E_g, \langle E_g \rangle) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_E} \exp \left[ -\frac{(E_g - \langle E_g \rangle)^2}{2\sigma_E^2} \right] \quad (10)$$

onde  $\sigma_E$  é o desvio padrão da distribuição.

Singh e Bajaj relacionam  $\sigma_E$  com parâmetros microscópicos da interface da seguinte forma:

$$\sigma_E = \frac{\delta_1 \delta_2}{2a_B} \sqrt{p(1-p)} \frac{\partial E_g}{\partial L_z} \quad (11)$$

onde  $L_z$  é a largura do poço,  $\delta_1$  e  $\delta_2$  são a altura e a extensão lateral média da microrrugosidade,  $a_B$  é o Raio de Bohr do éxciton e  $p$  é um parâmetro que se relaciona com a distribuição das microrrugosidades pela interface e assume em geral o valor 0.5 [Aksenov 1995].

O alargamento devido à flutuação na composição da liga é escrita de forma semelhante em termos de um desvio padrão  $\sigma_{\text{Liga}}$ .

A forma de linha é escrita como [Christen 1990]:

$$I(h\nu, \langle E_g \rangle) \approx \text{erfc} \left[ \frac{\langle E_g \rangle - h\nu}{\sqrt{2}\sigma_E} \right] f(\varepsilon_c) [1 - f(\varepsilon_v)]. \quad (12)$$

Se considerarmos, aproximadamente, a energia de um poço de barreira infinita,  $E = \pi^2 \hbar^2 / 2\mu_z L_z^2$ , onde  $\mu_z$  é a massa efetiva na direção perpendicular à superfície dos poços e considerarmos que a largura de linha da distribuição Gaussiana é 2.35 vezes o desvio padrão  $\sigma_E$  [Schubert 1984] obtemos, a partir da equação 11, que a largura de linha da PL fica sendo:

$$\sigma = 1.18 \frac{\pi^2 \hbar^2 \delta_1 \delta_2}{\mu_z R_{ex} L_z^3} \sqrt{p(1-p)} \quad (13)$$

onde  $a_B$  foi trocado por  $R_{ex}$  que é dado por  $R_{ex} = \langle \Psi | x^2 + y^2 | \Psi \rangle$  e representa a extensão lateral do éxciton [Aksenov 1995].

Usaremos a relação acima, na seção IV.5, para avaliar as dimensões laterais ( $\delta_2$ ) das micro-rugosidades em nossa amostra.

### *II.3 - ACEITADORES CONFINADOS EM POÇOS QUÂNTICOS*

As propriedades ópticas extrínsecas de poços quânticos vêm sendo bastante estudadas desde o início da década de 80. O trabalho pioneiro de Miller [Miller 1982a] deu início a uma série de trabalhos sobre impurezas rasas nestes sistemas.

Inicialmente tais estudos se relacionavam com impurezas residuais, como o Carbono, no caso de aceitadores. No entanto, com o desenvolvimento e aperfeiçoamento das técnicas de crescimento epitaxial, pôde-se estudar outros tipo de impurezas através de dopagem intencional. Além disso foi possível controlar os tipos de estruturas estudadas, dopando regiões específicas do poço, por exemplo.

Do ponto de vista teórico doadores e aceitadores confinados em poços quânticos vêm sendo estudados desde o início da década passada também [Bastard 1981, Mailhiot 1982 e Greene 1983]. Os estudos experimentais têm se pautado pelo uso de técnicas tais como PL [Miller 1982a], PL-Seletiva [Holtz 1989a] magneto-óptica [Liu 1988], absorção de infra-vermelho [Reeder 1988] e espalhamento Raman ressonante [Gammon 1986 e Holtz 1989b].

O tratamento teórico dos aceitadores é mais difícil, em relação ao tratamento dos doadores, devido à maior complexidade apresentada pela banda de valência.

Bastard [Bastard 1981] tratou inicialmente o caso de impurezas hidrogenóides confinadas num poço de barreiras infinitas usando aproximação de massa efetiva de uma banda. Este tipo de cálculo apresenta bons resultados para doadores; falha entretanto em descrever a banda de valência, descrição esta necessária para tratar aceitadores [Fraizzoli 1990]. Mailhiot [Mailhiot 1982], Greene [Greene 1983] e respectivos colaboradores apresentam cálculos para o caso de barreira finita.

Quem primeiro considerou a mistura das bandas de valência foi Masselink e colaboradores [Masselink 1983 e Masselink 1985] através de uma aproximação de massa efetiva de quatro bandas. Pasquarello e co-autores [Pasquarello 1989] usaram a mesma aproximação mas com uma base de funções diferente.

## A. Energia dos Aceitadores

Apresentaremos a seguir o tratamento, com os respectivos resultados, para as energias de aceitadores de Be confinados, obtidos pelos autores da referência [Masselink 1985].

O trabalho de Masselink se refere ao sistema GaAs/GaAlAs e foi usado 35 e 65% para a descontinuidade do “band-gap” e  $\Delta E_g$  (eV) = 1.247 x. Isto nos permitirá usar tais resultados teóricos para comparar com nossos dados experimentais.

A banda de valência em “Bulk” apresenta degenerescência 4 no ponto  $\Gamma$  da Zona de Brillouin, quando se considera a interação spin-órbita. Distante do ponto  $\Gamma$  ocorre a separação das bandas HH e LH. Num poço quântico a degenerescência é levantada e estas bandas são separadas mesmo no ponto  $\Gamma$ .

Masselink parte do Hamiltoniano de Luttinger [Luttinger 1956] para o “bulk”, dado por:

$$H = \frac{1}{2m_0} \left( \gamma_1 + \frac{5}{2} \gamma_2 \right) p^2 - \frac{\gamma_2}{m_0} \left( p_x^2 J_x^2 + p_y^2 J_y^2 + p_z^2 J_z^2 \right) - \frac{2\gamma_3}{m_0} \left( \{p_x p_y\} \{J_x J_y\} + \{p_y p_z\} \{J_y J_z\} + \{p_z p_x\} \{J_z J_x\} \right) - \frac{e^2}{\epsilon_0 r} \quad (14)$$

onde  $\mathbf{p}$  é o operador momento linear;  $J$  é o operador momento angular;  $\gamma_1, \gamma_2$  e  $\gamma_3$  são os parâmetros de Luttinger e  $e^2 / \epsilon_0 r$  é o termo de potencial Coulombiano. As outras grandezas têm o seu significado usual. Na equação acima temos  $\{ab\} = (ab + ba)/2$ .

O potencial de confinamento do poço é definido como sendo:

$$H_{QW} = \begin{cases} 0 \rightarrow |z| < W/2 \\ V \rightarrow |z| \geq W/2 \end{cases} \quad (15)$$

quando se trata de impurezas no centro do poço.  $W$  é a largura do poço e  $z = 0$  corresponde ao seu centro.

A introdução do potencial de confinamento associado ao poço quântico reduz a simetria, o que simplifica sobremaneira o problema se os cálculos forem tratados à luz da teoria de grupos [Masselink 1985]. O número de parâmetros variacionais a serem determinados se reduz de 169 para 35.

A função variacional para os estados  $\Gamma_7$  (LH) é apresentada abaixo:

$$\langle r|Y\rangle = \sum_{n=0}^4 n_{\Gamma_7}^{-1/2} \sum_{i=1}^7 C_n(i) e^{-a(x^2+y^2+uz^2)} \quad (16)$$

$C_n(i)$  são os parâmetros variacionais, u trata da anisotropia da função de onda e  $n_{\Gamma_7}^{-1/2}$  são os “spinores” apropriados. Para os estados  $\Gamma_6$  (HH) o procedimento é o mesmo.

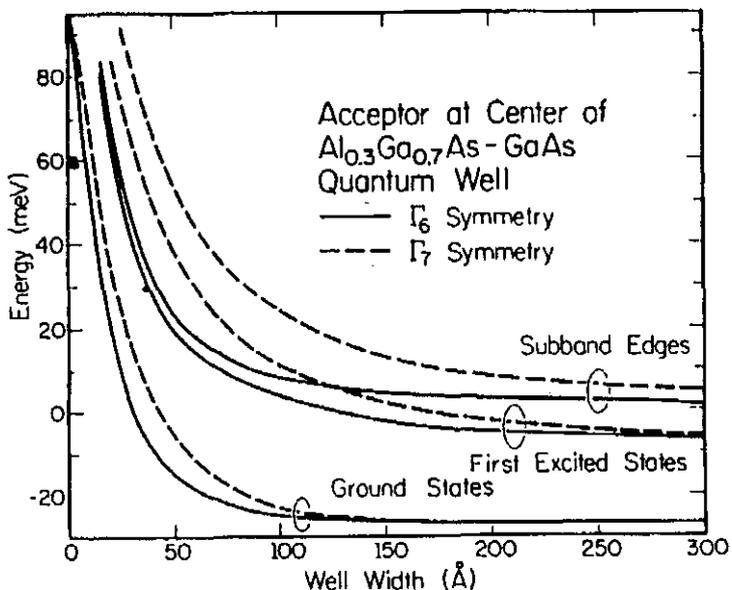
Para considerar impurezas localizadas em posições arbitrárias no poço deve-se alterar o Hamiltoniano (15) e redefinir o parâmetro u da equação (16).

As energias de ligação dos aceitadores são determinadas tomando-se como referências as sub-bandas do poço.

A figura II.2 apresenta os resultados obtidos na referência [Masselink 1985] para os estados fundamentais (1S) e excitados (2S), tanto para buracos leves ( $\Gamma_7$ ) quanto pesados ( $\Gamma_6$ ). Estes resultados se referem a um aceitador ideal localizado no centro do poço do sistema GaAs/Ga<sub>0,7</sub>Al<sub>0,3</sub>As. Nossos dados experimentais serão comparados com os resultados teóricos desta figura II.2.

Para considerar aceitadores reais usa-se um termo adicional ao Hamiltoniano na forma  $H_{\text{aceit}} = U \exp(-r/r_0)^2$  onde  $r_0 = 1.0 \text{ \AA}$  e U é escolhido de forma que a energia de ligação resulte no valor conhecido para o Rydberg efetivo no “bulk”; em 28 meV para aceitadores de Be no GaAs, por exemplo.

A aproximação de massa efetiva apresenta dificuldades quando se trata de poços quânticos de larguras muito reduzidas. Neste caso é mais conveniente se usar o método “tight-binding” efetivo [Einevoll 1990].



*Figura II.2: Resultados obtidos para as sub-bandas e os estados fundamentais (1S) e excitados (2S) para buracos pesados ( $\Gamma_6$ ) e buracos leves ( $\Gamma_7$ ). Figura extraída da referência [Masselink 1985].*

## B. Forma de Linha da Fotoluminescência Associada ao Aceitador

O cálculo desenvolvido no trabalho de Masselink bem como os outros cálculos baseados na aproximação de massa efetiva com 4 bandas têm o mérito de proporcionar valores confiáveis para as energias dos aceitadores; apresentam no entanto uma limitação no que se refere à distribuição de cargas no poço, pois consideram posições específicas para as impurezas.

Em alguns aspectos é vantajoso tratar da forma de linha da PL que se origina da chamada transição "free-to-bound" (FB). Esta transição está associada à recombinação de um elétron livre da banda de condução para um aceitador neutro da banda de valência [Meynadier 1985 e Oliveira 1990].

Seguiremos o desenvolvimento da referência [Oliveira 1990] que se baseia na aproximação de massa efetiva de uma banda. Neste procedimento  $m^*$  é definida de forma a proporcionar o Rydberg efetivo para o bulk.

A probabilidade de transição por unidade de tempo, entre os estados inicial (i) e final (f) das bandas de condução e valência, respectivamente, é dada por:

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_i |\langle f | H_{\text{int}} | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (17)$$

onde  $H_{\text{int}}$  é o Hamiltoniano de interação que relaciona o operador momento e o campo elétrico da radiação.

Para um poço quântico de GaAs/GaAlAs de largura  $L$  e para uma impureza localizada na posição  $z_i$ , em relação ao centro do poço, temos:

$$W_L(z_i, \omega) = W_o \frac{1}{2} \left[ \frac{a_o^*}{a_o} \left[ \frac{m_c^*}{m_o} \right] \right] N_b^2 a_o^* \frac{N^2 J^2}{a_o^3} Y(\hbar\omega - \varepsilon_g + E(L, z_i)) \quad (18)$$

onde  $a_o^*$  é o raio de Bohr efetivo,  $Y$  é a função degrau e  $N$  e  $N_b$  são fatores de normalização associados às funções que descrevem as bandas aceitadora e de valência, respectivamente.

O termo  $J$  depende da posição da impureza  $z_i$ ; de um parâmetro variacional  $\lambda$  e do vetor de onda  $k_{\perp}(\omega)$ , relacionado com a energia do "gap" efetivo do poço;  $\omega$  é a frequência.  $J$  é obtido a partir da Matriz  $\langle f | H_{\text{int}} | i \rangle$ . Para maiores detalhes consultar o trabalho de Oliveira e Gondar [Oliveira 1990].

Considerando temperaturas baixas o suficiente tal que cada estado aceitador possui um buraco e tomando uma distribuição de impurezas no poço descrita pela função  $N_a(z_i)$ , a forma de linha da emissão FB é escrita como:

$$L(\omega) = \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} dz_i N_a(z_i) W_L(z_i, \omega) f(\varepsilon_K) \quad (19)$$

$f(\varepsilon_k)$  é a distribuição de Fermi-Dirac. Esta função depende do quase-nível de Fermi para o gás de elétrons em "equilíbrio" estacionário, e é dada por:

$$f(\varepsilon_k) = \frac{1}{\left\{1 + \exp\left[\beta(\hbar\omega - \varepsilon_g + E_i - E_f)\right]\right\}} \quad (20)$$

onde  $\beta = 1/kT$  é o inverso da energia térmica.

A largura de linha da PL, para a transição FB, dependerá basicamente da largura da banda aceitadora, que está associada à distribuição de cargas no poço, ao nível de Fermi e à temperatura. Um esquema das transições pode ser encontrado na figura 1 da referência [Oliveira 1990]; deve-se salientar que naquele trabalho os autores não consideraram nenhum tipo de alargamento como os discutidos na seção II.2.

### C. Níveis Excitados de Aceitadores: O Modelo “Two-Hole-Transition”

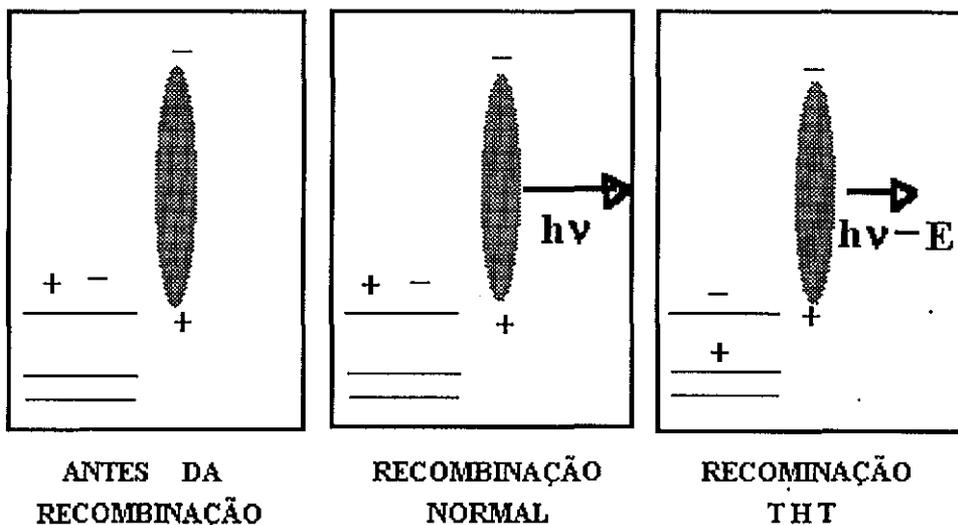
É conhecida a formação de éxcitons ligados a impurezas aceitadoras no poço, as quais podem estar neutras ou ionizadas. A energia de ligação destes éxcitons depende da largura do poço [Miller 1982b].

Quando ocorre a recombinação do éxciton ligado há uma probabilidade pequena, mas não nula, de que o aceitador permaneça num estado excitado, após a recombinação. Esta transição é chamada “Two-Hole-Transition” (THT) [Holtz 1989a e Holtz 1989b]. A figura II.2, abaixo, apresenta uma ilustração esquemática do modelo.

Quando a recombinação envolver um éxciton ligado a uma impureza doadora temos a chamada “Two-Electron-Transition” (TET). [Holtz 1989a e Holtz 1993]

As transições THT e TET podem, então, ser usadas na determinação das energias dos estados excitados dos aceitadores e doadores, respectivamente. Basta tomar a diferença entre estas transições e as respectivas transições normais dos éxcitons ligados.

A energia dos estados excitados de aceitadores podem também ser determinadas a partir de espalhamento Raman. Neste caso a radiação espalhada terá energia com um valor que é  $\Delta E$  menor que a radiação incidente. Esta diferença corresponde à diferença entre o estado fundamental (1S) e excitado (2S) do aceitador [Holtz 1989a e Holtz 1989b].



*Figura II.3 - Ilustração do modelo THT. Após a recombinação do éxciton ligado o aceitador permanece num estado excitado (figura da direita). A emissão se dará com uma energia  $E$  menor, onde a diferença é a energia dispendida para excitar o aceitador. Figura extraída da referência [Holtz 1993].*

Em materiais tipo “bulk” são favorecidas as transições que envolvem estados com mesma paridade. Em poços quânticos, no entanto, devido à redução da simetria, pode-se observar todas as transições [Masselink 1985].

# *CAPÍTULO III*

## *PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS*

### *III.1 - BREVE DESCRIÇÃO DAS TÉCNICAS EXPERIMENTAIS*

No desenvolvimento do trabalho foram usadas, basicamente, as técnicas de PL e PLE. Estas técnicas são complementares entre si e indispensáveis na caracterização de semicondutores, particularmente das estruturas do tipo poços quânticos. Na parte em que estudamos as microrugosidades das interfaces dos poços quânticos (seção IV.5) realizamos medidas de PL sob a ação de um campo magnético, as quais denominamos medidas de magneto-PL. Ao estudarmos as propriedades de aceitadores confinados (seções V.3 e V.4), procuramos excitar a amostra usando radiação com energias escolhidas de forma sistemática, chamamos estas medidas de PL Seletiva.

Na PL o experimento consiste em medir a intensidade da radiação emitida pela amostra em função da sua energia. Usaremos frequentemente o termo espectro de emissão para se referir ao espectro de PL.

Um fóton incidente sobre a amostra é absorvido, se tiver energia maior que um certo valor mínimo (limiar de absorção), gerando um par elétron-buraco (e-h). No caso de poços quânticos os portadores podem ser foto-gerados diretamente no poço ou também na barreira dependendo da energia da radiação incidente ser menor ou maior que o "gap" da barreira.

Quando os portadores são foto-gerados na barreira parte deles recombinam radiativamente ali ou sofrem processos de recombinação não-radiativa. Uma quantidade substancial dos portadores são capturados pelo poço após dissiparem energia pela emissão de fônons ópticos e/ou acústicos; uma vez no poço relaxam, via de regra, para os estados fundamentais, ou seja, o primeiro nível de elétron ( $E_1$ ) na banda de condução e o primeiro nível de buraco pesado ( $HH_1$ ) na banda de valência. Os tempos envolvidos no processo são da ordem de pico-segundos. [Kusano 1989].

O potencial Coulombiano que faz elétrons e buracos interagirem entre si dá origem a estados excitônicos do tipo hidrogenóides. Há resultados que mostram que os éxcitons se formam antes da completa relaxação dos portadores, em tempos da ordem de 20 ps [Damem 1990]. A energia da radiação emitida a partir da aniquilação de um éxciton será menor que o "gap" efetivo do poço quântico (diferença entre os estados  $E_1$  e  $HH_1$ ); a diferença corresponde exatamente à energia de ligação do éxciton. Nos poços quânticos o confinamento dos portadores favorece a formação de éxcitons, observáveis mesmo a temperatura ambiente [Christen 1990].

Em regimes de alta potência de excitação ou altas temperaturas é possível observar também emissões relacionadas com os portadores livres (sem a formação de éxcitons), com os estados de buracos leves e com os estados excitados ( $2S$ ) do éxciton. Este assunto será objeto de discussão na seção IV.2.

Em alguns casos, além da emissão intrínseca ao poço, ocorre a emissão de radiação relacionada com impurezas, isto é, emissão extrínseca ao poço.

Nas medidas de PLE a radiação é sempre detectada com a mesma energia (espectrômetro fixo) e a energia da radiação de excitação é variada continuamente para energias maiores que a energia de detecção. Quando a energia do feixe de excitação coincide com uma transição do poço ocorre um incremento na absorção, decorrente desta condição de ressonância. Em geral, o espectro de PLE (excitação) corresponde ao espectro de absorção; no entanto deve-se tomar cuidado ao fazer tal associação quando estão presentes vários canais de recombinação

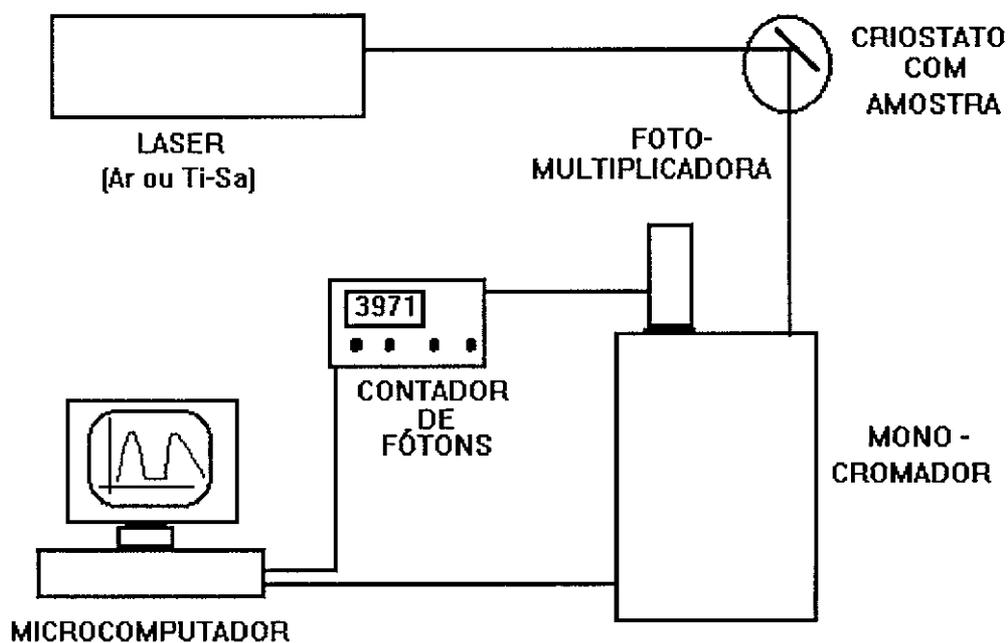
### *III.2 - MONTAGEM EXPERIMENTAL BÁSICA*

Em nossas medidas de PL usamos, em geral, um laser de  $Ar^+$  modelo 2080 da Spectra, emitindo em 5145 Å (2.41 eV) e em alguns casos um laser sintonizável de Ti-Sa da Spectra, modelo 3900 S, emitindo entre 7000 - 8500 Å (1.458 - 1.777 eV). As medidas de PLE foram sempre obtidas com o laser de Ti-Sa. Em todas as medidas usamos radiação CW (não pulsada) e com polarização linear.

No laser de Ti-Sa, o bombeio é obtido com o mesmo laser de Ar<sup>+</sup> e a seleção da energia da radiação é feita através de um filtro bi-refringente, posicionado na cavidade do laser. O controle da orientação do filtro é feito através de um motor síncrono.

Todas as medidas foram realizadas num criostato de imersão em He, usando o aparato típico de lentes, filtros e espelhos. A radiação emitida pela amostra foi espalhada por um monocromador duplo Spex de 1.0 m; detectada através de uma fotomultiplicadora tipo S-20 e a intensidade medida por um sistema contador de fótons. O controle do monocromador (nas medidas de PL), controle do motor síncrono (medidas de PLE) e armazenamento dos dados sempre foram feitas através de um micro-computador tipo PC, programado em linguagem Basic. A figura III.1 mostra esquematicamente a montagem típica usada nos experimentos.

Uma descrição do aparato experimental pode ser encontrado em trabalhos anteriores desenvolvidos em nossos laboratórios [Mendonça 1993 e Plentz 1993].



*Figura III.1: Esquema da montagem experimental típica usada nas medidas de PL. O laser mostrado é o de Ar<sup>+</sup> ou o de Ti-Sa dependendo da medida.*

### III.3 - VARIAÇÕES DA MONTAGEM BÁSICA

Em algumas partes do trabalho usamos montagens diferentes da básica, descrita acima, as quais discutiremos brevemente a seguir.

#### a) Dupla Excitação

Com o objetivo de analisar a influência da excitação sobre as propriedades ópticas dos éxcitons confinados realizamos medidas de PL de dupla excitação. Estes dados são apresentados na seção IV.4.a. Neste procedimento fizemos incidir na mesma região da amostra os feixes dos lasers de  $\text{Ar}^+$  e Ti-Sa. A montagem deste experimento difere da mostrada na figura III.1 pelo fato de que o feixe do  $\text{Ar}^+$  foi separado em dois, através de um separador de feixes, um deles foi levado até a amostra e o outro foi usado para bombear o laser de Ti-Sa.

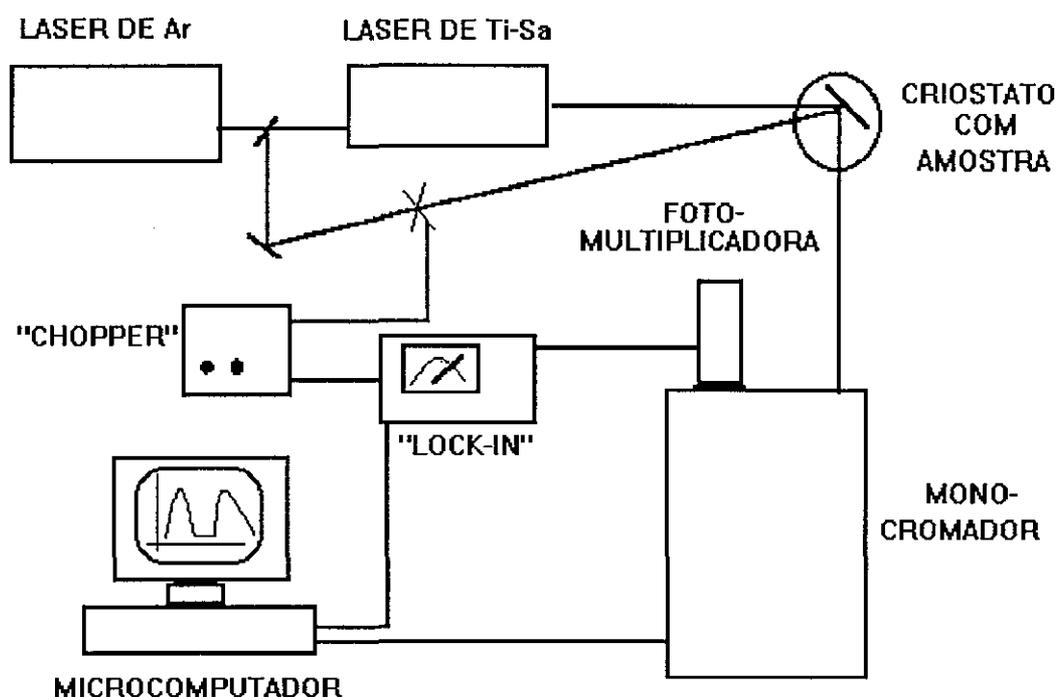


Figura III.2: Esquema da montagem usada nas medidas de PL com dupla excitação. Neste caso o feixe do laser de  $\text{Ar}^+$  está sendo modulado.

Nesta montagem, ao invés do sistema contador de fótons, as medidas foram feitas com um amplificador "lock-in". Usando um "chopper", colocado ora no feixe do laser de Ar<sup>+</sup> ora no feixe do laser de Ti-Sa, foi possível detectar a emissão proveniente de éxcitons criados por cada um dos feixes em particular, devido à modulação dos feixes. O esquema correspondente a esta montagem aparece na figura III.2, acima.

### *b) Medidas com Lâmpada*

Com o objetivo de estudar o comportamento da PL em diferentes energias de excitação (seção IV.4) usamos uma lâmpada branca de Hg de 1 KW, pois o laser de Ti-Sa não atingia a energia de que necessitávamos.

A seleção da radiação neste caso foi feita por meio de um monocromador de 0.3 m; a radiação emitida foi espalhada por um monocromador Spex, simples, de 0.5 m e a intensidade foi medida com um eletrômetro. Nos outros aspectos a montagem é a mesma da descrita anteriormente.

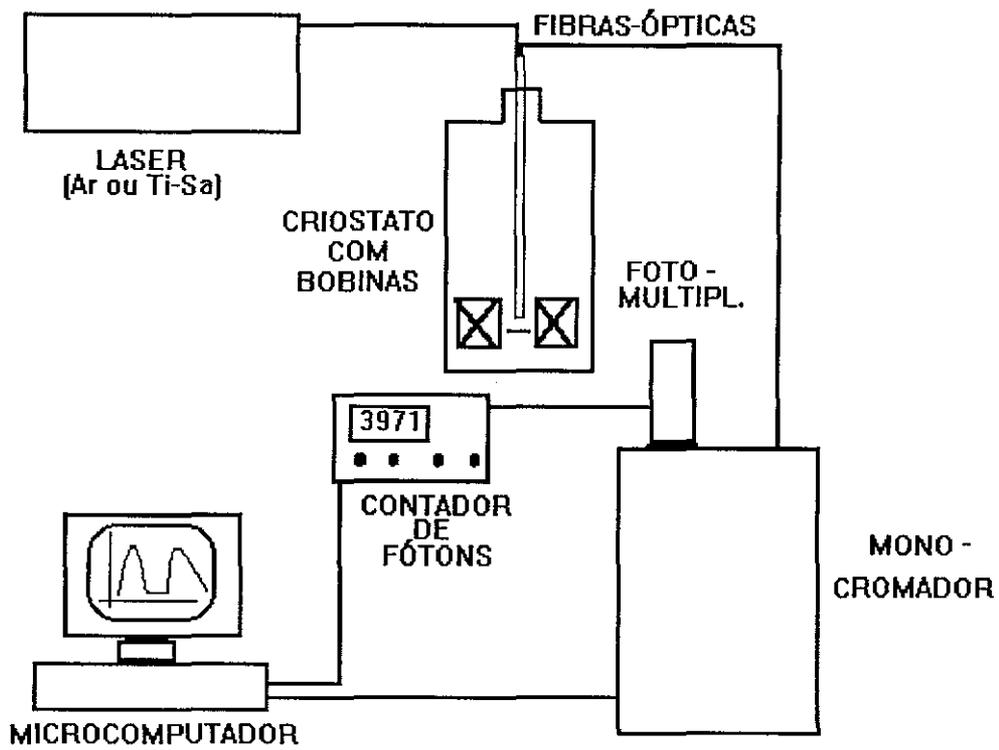
### *c) Medidas de Magneto-Óptica.*

Realizamos medidas de PLE (seção IV.2) e de PL (seção IV.5) sob a ação de um campo magnético, aplicado perpendicularmente ao plano da amostra e paralelamente ao feixe de excitação (configuração de Faraday).

Estas medidas foram realizadas num criostato de imersão em He Líquido, que contém uma bobina supercondutora de Nb<sub>3</sub>Sn com capacidade de gerar campos magnéticos entre 0 e 13 T.

Tanto a excitação quanto a coleta da radiação emitida pela amostra foram feitas através de um sistema de fibras-ópticas. Este aparato consiste de uma fibra de diâmetro maior que conduz o feixe de excitação e que está envolvida por um feixe de fibras de menor diâmetro, as quais têm a função de coletar a radiação emitida pela amostra.

As outras partes da montagem, tanto nas medidas de PL quanto nas medidas de PLE, têm as mesmas características já descritas. A figura III.3 mostra um esquema do aparato usado nas medidas com campo magnético.



*Figura III.3: Esquema da montagem usada nas medidas de magneto-óptica.*

## *CAPÍTULO IV*

### *ÉXCITONS CONFINADOS EM POÇOS QUÂNTICOS DE GaAs/GaAlAs : RESULTADOS E DISCUSSÕES*

Neste capítulo estudaremos algumas propriedades ópticas de éxcitons confinados em poços quânticos. A discussão principal abordará a natureza e origem de um pico, observado no espectro de luminescência, com energia menor que o pico correspondente à transição fundamental do poço, ou seja, a transição do primeiro nível de elétron,  $E_1$ , para o primeiro nível de buraco pesado,  $HH_1$ .

Na seção IV.1 descrevemos as propriedades da amostra a ser estudada. Resultados de PL e PLE serão mostrados na seção IV.2, cujo objetivo será o de caracterizar as transições excitônicas do poço. Nesta seção apresentaremos, também, resultados referentes aos estados excitados (2S) dos éxcitons. As seções IV.3 e IV.4 mostrarão resultados de PL em função da potência e energia de excitação e da temperatura, os quais servirão para uma discussão sobre a natureza do pico bem como sobre a origem do complexo, responsável por esta emissão. Finalmente em IV.5 serão apresentados resultados de magneto-luminescência que permitirão fazer uma análise quantitativa das microrugosidades da interface.

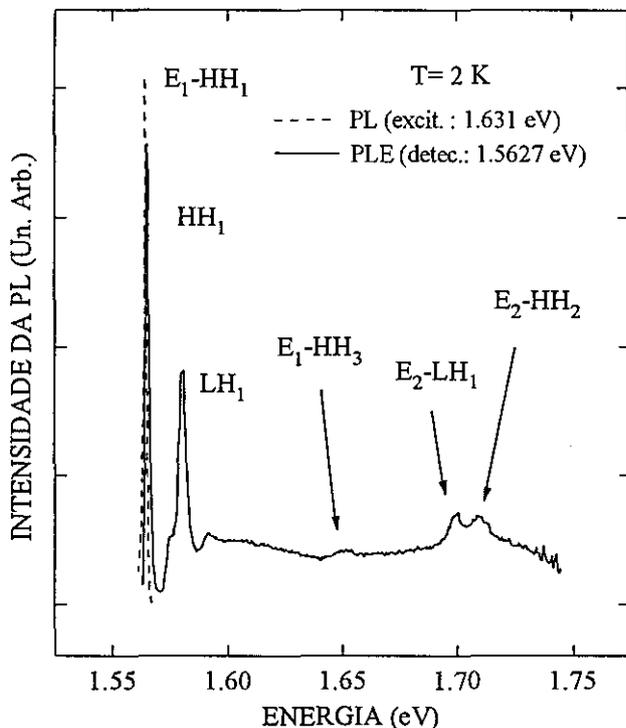
#### *IV.1 - DESCRIÇÃO DA AMOSTRA ESTUDADA*

A amostra estudada neste capítulo consiste num sistema de múltiplos poços quânticos de GaAs/Ga<sub>0.7</sub>Al<sub>0.3</sub>As, com 20 períodos, crescida por MBE. A amostra foi crescida sobre um substrato de GaAs(100), seguido de uma camada buffer com aproximadamente 1 $\mu$ m. Os poços e as barreiras possuem larguras de 80 e 300 Å, respectivamente.



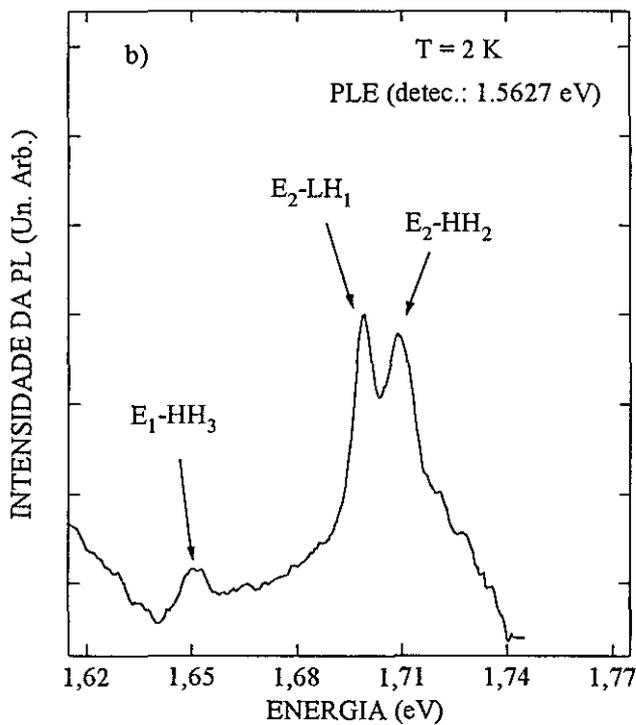
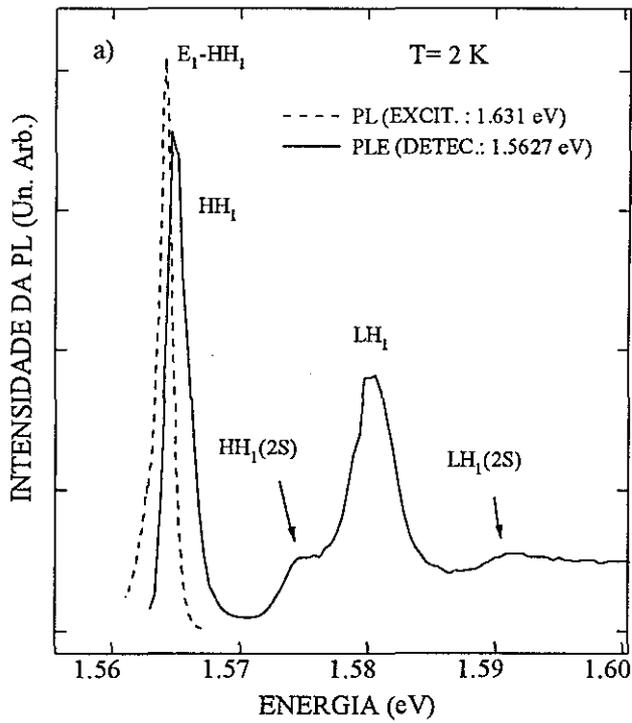
transição é observada no espectro de PLE com energia de 1.5649 eV. Encontramos, portanto, um deslocamento de Stokes de 0.7 meV. Estes resultados demonstram a boa qualidade de nossa amostra, embora indique a presença de defeitos na interface.

Destacamos ainda, no espectro de PLE, o pico da transição relacionada ao primeiro nível de buraco leve,  $LH_1$ , com energia em 1.5802 eV.



*Figura IV.2: Espectros de PL (excitação em 1.631 eV) e de PLE (detecção em 1.5627 eV) mostrando as transições ópticas relacionadas aos níveis do poço.*

Na figura IV.3 são mostradas duas regiões do espectro de PLE ampliadas. Na parte (a) aparece a região do LH que mostra estruturas associadas aos níveis excitados (2S) dos éxcitons de buraco leve ( $LH_1$ ) e pesado ( $HH_1$ ), com energias em 1.5911 e 1.5748, respectivamente. As transições 2S serão discutidas da parte B desta seção. Em IV.3.b temos a região de mais alta energia onde observamos picos em 1.6506, 1.6994 e 1.7096 eV os quais associamos às transições  $E_1-HH_3$ ,  $E_2-LH_1$  e  $E_2-HH_2$ , respectivamente



*Figura IV.3: Regiões do espectro de PLE destacadas. Na parte (a) pode-se observar os estados excitados,  $HH_1(2S)$  em 1.5748 eV e  $LH_1(2S)$  em 1.5911 eV. Na parte (b) observamos as transições  $E_1-HH_3$  (1.652 eV),  $E_2-LH_1$  (1.715 eV) e  $E_2-HH_2$  (1.722 eV)*

As energias dos sub-níveis fundamentais do poço foram obtidas a partir da equação 6 apresentada na seção II.1. As energias de ligação dos éxcitons,  $E_{\text{ex}}$  foram encontradas através da equação 7, no caso dos éxcitons  $E_1\text{-HH}_1$  e  $E_1\text{-LH}_1$ . Estas equações ajustam os resultados teóricos de Andreani e colaboradores [Andreani 1990], conforme foi discutido no capítulo II.

Para os éxcitons relacionados aos sub-níveis de mais alta energia resolvemos a equação de Schroedinger para uma barreira finita e extraímos os valores de da tabela III da referência [Oelgart 1994]. Nestes cálculos não foram considerados os efeitos decorrentes da não- parabolicidade da banda de condução nem das diferenças nos valores das constantes dielétricas.

Usamos nos cálculos uma largura de poço de 80 Å e o valor medido para a concentração de Al, ou seja 30 % ( $x = 0.3$ ).

Nos cálculos dos sub-níveis do poço usamos os valores de massa efetiva dados na tabela IV.1 abaixo. As massas efetivas para a banda de valência foram determinadas usando-se  $m_{\text{hh}}^* = m_0(\gamma_1 - 2\gamma_2)^{-1}$  e  $m_{\text{lh}}^* = m_0(\gamma_1 + 2\gamma_2)^{-1}$  onde  $m_0$  é a massa de repouso de elétron e  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  são os parâmetros de Luttinger [Weisbuch 1991].

Os parâmetros de Luttinger da liga  $\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As}$  foram determinados através de interpolação linear a partir dos valores para o GaAs ( $\gamma_1 = 6.85$  e  $\gamma_2 = 2.10$ ) e para o AlAs ( $\gamma_1 = 3.45$  e  $\gamma_2 = 0.68$ ) dados na referência [Landolt-Börnstein 1982]. A massa efetiva para o elétron na liga foi encontrada através da expressão  $m_e^* = 0.0665 + 0.0835 x$  [Oelgart 1994].

Massa Efetiva	GaAs( $m_0$ )	$\text{Ga}_{0.7}\text{Al}_{0.3}\text{As}$ ( $m_0$ )
$m_e^*$	0.0665	0.091
$m_{\text{hh}}^*$	0.3774	0.4030
$m_{\text{lh}}^*$	0.0905	0.1093

*Tabela IV.1: Valores das massas efetivas usadas nos cálculos dos sub-níveis dos poços quânticos, dadas em unidades da massa de repouso do elétron,  $m_0$ .*

Na tabela IV.2 apresentamos os valores calculados e os experimentais para efeito de comparação.

No caso das duas transições fundamentais há uma boa concordância entre os valores calculados e os obtidos experimentalmente. No entanto, as equações de Oelgart falham em prever a diferença entre transições LH<sub>1</sub> e HH<sub>1</sub> o que sugere que possa haver algum erro nos coeficientes apresentados para o cálculo dos sub-níveis LH (ver seção II.1)

No valor calculado para a transição E<sub>1</sub> - HH<sub>3</sub> usamos apenas as diferenças entre as energias dos sub-níveis, pois não se dispunha da energia de ligação do éxciton; como espera-se uma energia de ligação menor que 5 meV podemos afirmar que há uma boa concordância neste caso também.

Transição	$\Delta E_b^*$ (meV)	En. calcul. (eV)	En. Exper. (eV)
E <sub>1</sub> - HH <sub>1</sub>	10.4	1.563	1.565
E <sub>1</sub> - LH <sub>1</sub>	13.0	1.581	1.580
E <sub>1</sub> - HH <sub>3</sub>	?	1.652*	1.651
E <sub>2</sub> - LH <sub>1</sub>	6.0	1.715	1.700
E <sub>2</sub> - HH <sub>2</sub>	5.5	1.722	1.709

\* Energia calculada sem considerar a energia de ligação do éxciton

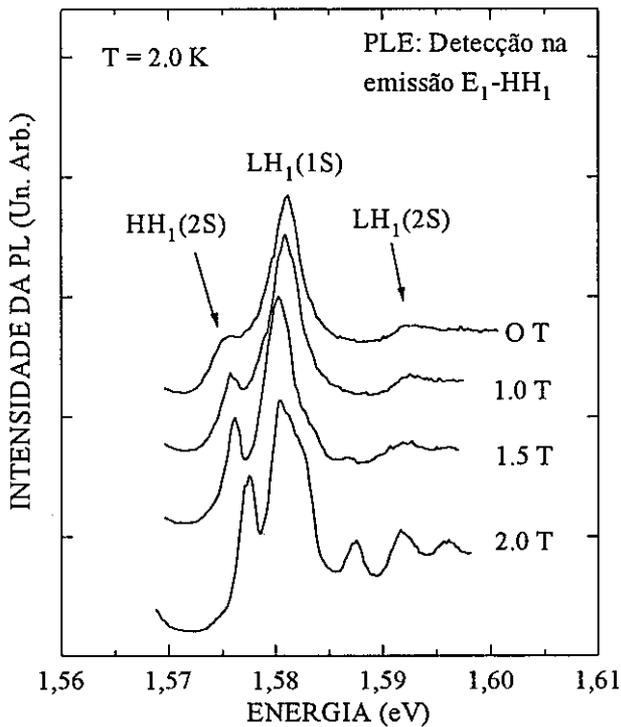
*Tabela IV.2: Valores das energias de transição óptica, medidas a partir do espectro de PLE, em comparação com os valores calculados. No caso da transição E<sub>1</sub> - HH<sub>3</sub> não foi considerado o valor da energia de ligação do éxciton. Usou-se uma largura de poço de 80 Å e x = 0.3.*

Para as transições assinaladas como E<sub>2</sub> - LH<sub>1</sub> e E<sub>2</sub> - HH<sub>2</sub> podemos notar que há uma acentuada discrepância entre nossos resultados e os valores calculados. A razão provável para tal diferença pode ser creditada ao fato de não estarmos considerando a não-parabolicidade da banda de condução, efeito este que afeta de forma mais direta justamente as sub-bandas de mais altas energias [Oelgart 1994].

## B. Transições Relacionadas aos Estados Excitados do Éxciton

Outro aspecto que merece nossa atenção são os estados excitados dos éxcitons  $HH_1$  e  $LH_1$ . Na figura IV.3.a podemos verificar a presença de duas estruturas no espectro de PLE, uma abaixo e outra acima do pico relacionado ao  $LH_1$ , as quais associamos aos estados excitados (2S) do éxciton  $HH_1$  e  $LH_1$ , respectivamente [Miller 1985].

A estrutura associada ao  $HH_1(2S)$  aparece pouco resolvida em relação ao contínuo e pode suscitar dúvidas em relação à sua presença. Apresentamos na figura IV.4 espectros de PLE, obtidos sob a ação de um campo magnético aplicado perpendicularmente à superfície da amostra. Com a ação do campo magnético a força de oscilador do nível 2S do éxciton  $HH_1$  aumenta e assim o pico correspondente destaca-se em relação ao contínuo, sendo possível observá-lo claramente.



*Figura IV.4: PLE mostrando os estados excitados  $HH_1(2S)$  e  $LH(2S)$ . A ação do campo magnético, aplicado perpendicularmente à superfície da amostra, destaca a presença das transições 2S. Em cada espectro a detecção foi feita no pico fundamental da PL ( $E_1-HH_1$ ).*

Podemos encontrar a diferença de energia  $\Delta E_b^x(1S,2S)$  entre os estados fundamentais (1S) e excitados (2S) para os éxcitons  $LH_1$  e  $HH_1$  apenas tomando as diferenças entre os respectivos picos no espectro de PLE. O valor teórico de  $\Delta E_b^x(1S,2S)$  é obtido como a diferença entre os valores teóricos para as energias de ligação. Para os estados 1S estas já foram encontrados pela equação 7, e são mostradas da Tabela IV.2, acima. Os valores de  $E_b^x$  para os estados 2S foram calculados por Andreani e co-autores no trabalho da referência [Andreani 1990]. Da figura 6 daquele trabalho encontramos 1.75 e 2.54 meV para os éxcitons HH e LH, respectivamente.

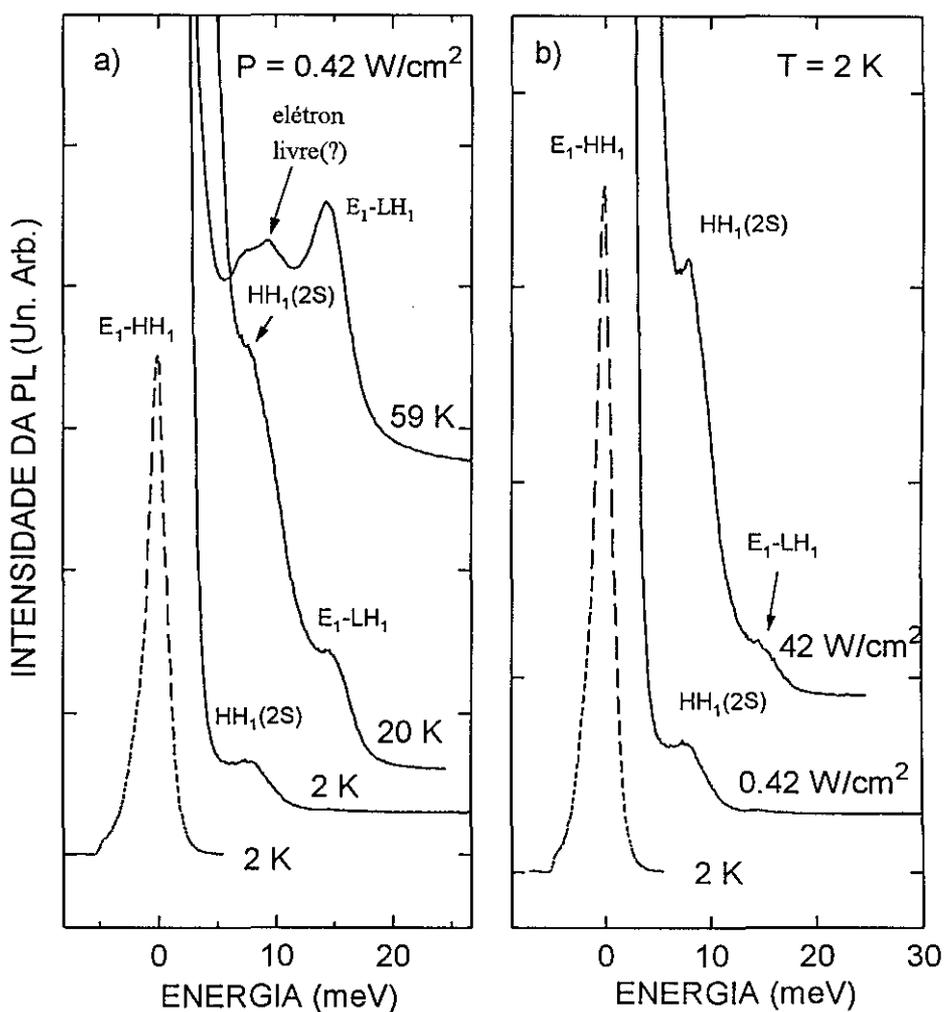
A tabela IV.3 resume estes resultados mostrando uma comparação entre os valores experimentais e os teóricos, para a grandeza  $\Delta E_b^x(1S,2S)$ . Pode-se concluir que a concordância é bastante razoável.

Éxciton	$E_b^x(1S)$ (meV)	$E_b^x(2S)$ (meV)	$\Delta E_b^x(1S,2S)$ (meV) (Teórico)	$\Delta E_b^x(1S,2S)$ (meV) (Experimental)
$HH_1$	10.4	1.8	8.6	9.9
$LH_1$	13.0	2.5	10.5	10.9

*Tabela IV.3: Comparação entre os valores experimentais e os calculados para a diferença entre os estados 1S e os estados 2S dos éxcitons  $HH_1$  e  $LH_1$ .*

Realizamos medidas de PL na região de energias acima da transição fundamental do poço, ou seja, da transição  $E_1$ - $HH_1$ , usando diferentes densidades de potência de excitação e temperaturas. Estas medidas foram realizadas excitando-se a amostra com um feixe com energia de 1.562 eV. Os resultados estão resumidos na figura IV.5. No eixo das energias desta figura o zero foi fixado como sendo a energia da transição  $E_1$ - $HH_1$ .

Na parte (a) da figura temos os dados para uma densidade de potência de excitação de  $0.42 \text{ mW/cm}^2$  e diferentes temperaturas.



*Figura IV.5: Medidas de PL na região de energias acima da transição fundamental do poço quântico. A parte (a) mostra espectros de PL para altas temperaturas e potência de excitação de  $0.42 \text{ W/cm}^2$  onde aparecem as transições dos estados excitados e do LH, devido ao populamento térmico. A parte (b) mostra os mesmos espectros para  $T = 2 \text{ K}$  e diferentes potências de excitação; o espectro superior (potência de  $42 \text{ W/cm}^2$ ) mostra a transição LH (ver texto).*

Para  $T = 2 \text{ K}$  observamos um pico em  $8.0 \text{ meV}$ , em relação à transição  $E_1\text{-HH}_1$ , cuja intensidade diminui quando a temperatura aumenta. Este pico está relacionado, em nosso ponto de vista, ao estado excitado (2S) do éxciton  $\text{HH}_1$ . O valor de  $8.0 \text{ meV}$  concorda razoavelmente com os valores obtidos no espectro de PLE (ver

dados na Tabela IV.3). A queda na intensidade do pico e o seu desaparecimento em altas temperaturas ocorre devido à ionização térmica; este comportamento é esperado considerando-se que a energia de ligação deste estado vale 1.8 meV, conforme mostra a Tabela IV.3.

Observamos ainda, para  $T = 59$  K (espectro superior), um pico relativamente largo com energia de 9.5 meV em relação à linha da transição fundamental. Relacionamos, tentativamente, este pico com às transições de elétrons livres para o primeiro nível de buraco pesado. De acordo com esta identificação o valor de 9.5 meV corresponderia à energia de ligação do éxciton  $HH_1$ . O valor calculado para esta energia de ligação é de 10.4 meV, o que dá suporte a esta interpretação.

Verifica-se também, na parte (a) da figura, que para  $T = 20$  K surge um pico em aproximadamente 15.0 meV, cuja intensidade aumenta com a temperatura. Este pico está relacionado à recombinação do éxciton de buraco leve; sua observação é possível devido ao populamento térmico do estado  $LH_1$  [Oelgart 1994]. O valor de 15.0 meV concorda exatamente com o valor obtido no espectro de PLE.

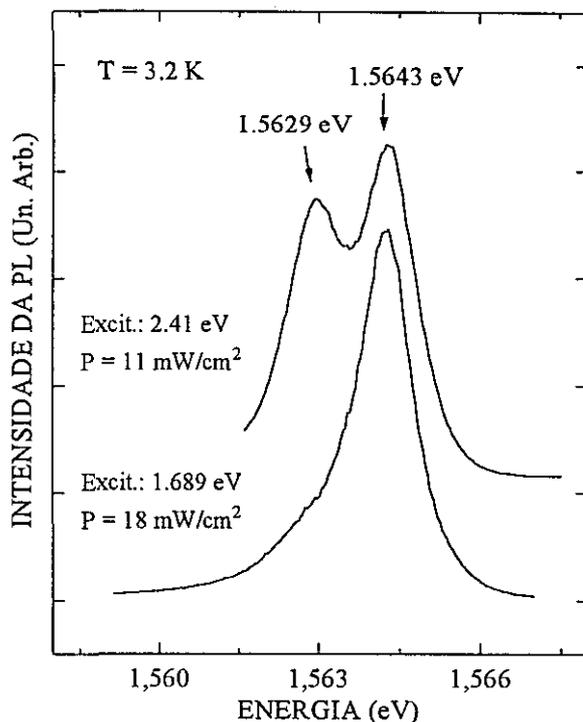
Na parte (b) da figura IV.5 são mostrados espectros onde usou-se densidades de potências de  $0.42$  W/cm<sup>2</sup> (espectro inferior) e  $42$  W/cm<sup>2</sup> (espectro superior). Ambas as medidas foram realizadas em  $T = 2$  K. Verifica-se que o pico associado ao éxciton  $E_1 - LH_1$  aparece mais nitidamente quando se usa alta potência de excitação. Neste caso, em que estamos no regime de baixas temperaturas, o populamento do nível  $LH_1$  ocorre por causa da alta densidade de éxcitons foto-gerados no poço.

### ***VI.3- ANÁLISE DO ESPECTRO DE FOTOLUMINÊSCENCIA : ÉXCITON LIGADO***

No espectro de PL da figura IV.1, obtido com excitação em 1.562 eV (laser de Ti-Sa), há apenas um pico. No entanto ao excitarmos a amostra com energia de 2.41eV (laser de Ar) verificamos a presença de um novo pico com energia de 1.4

meV abaixo da energia da transição fundamental,  $E_1$ - $HH_1$ . A figura IV.6 mostra os dois espectros para efeito de comparação.

Chamaremos os picos de menor e maior energia de picos A e B, respectivamente. Nos referiremos também ao pico B como o pico do éxciton livre (FE).



*Figura IV.6: Espectros de PL obtidos com diferentes energias de excitação. Para excitação de 2.41 eV observa-se um pico abaixo da transição  $E_1$ - $HH_1$ , ausente para excitação de 1.689 eV. Os espectros, que são deslocados de 0.5 meV, entre si foram alinhados para facilitar a comparação.*

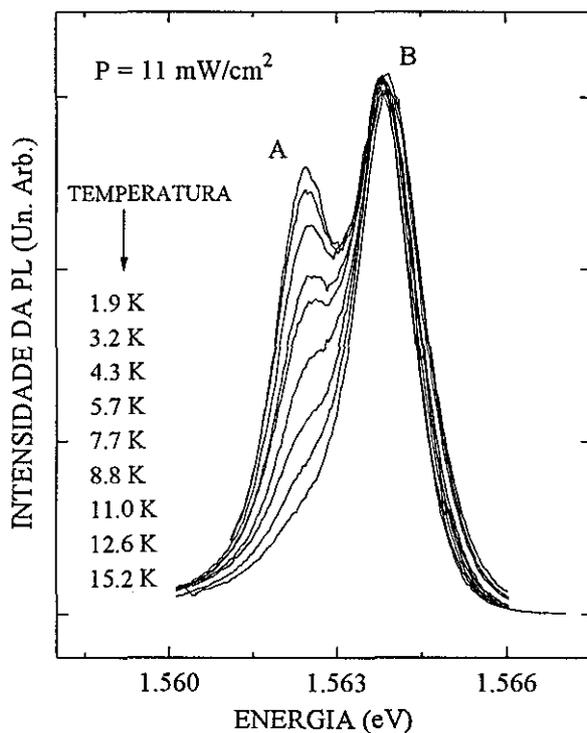
Há algumas hipóteses para se explicar a origem do pico observado, tais como:

- a) "splitting" devido à interação de troca,
- b) variação de monocamadas na interface,
- c) bi-éxcitons e
- d) éxcitons ligados.

Nesta seção mostraremos resultados de PL em função da temperatura, potência de excitação e em função da energia de excitação, além de uma análise da forma de linha da PL, que nos permitirão relacionar a linha observada aos éxcitons ligados.

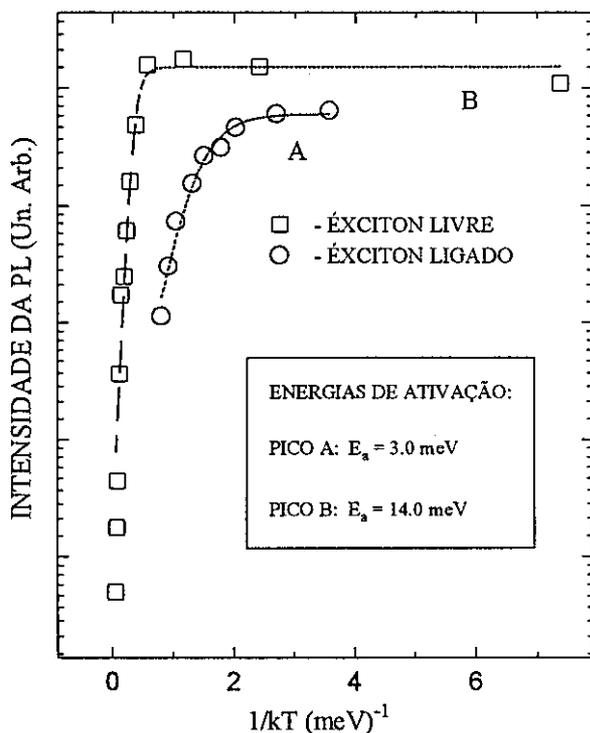
#### *IV.3.a - Fotoluminescência em Função da Temperatura e da Potência de Excitação*

Realizamos medidas de PL desde 3.2 K até 200 K excitando a amostra com energia de 2.41 eV, maior que o “gap” da barreira portanto. A densidade de potência usada foi de  $11 \text{ mW/cm}^2$ . Na figura IV.7 mostramos os espectros para temperaturas entre 1.9 e 15.2 K.



*Figura IV.7: Espectros de PL em função da temperatura da amostra para excitação com o laser de Argônio (2.41 eV) e densidade de potência de  $11.0 \text{ mW/cm}^2$ .*

Observa-se que a intensidade do pico de menor energia diminui bruscamente com o aumento da temperatura, desaparecendo para temperaturas de aproximadamente 15.0 K.



*Figura IV.8:* Gráfico das intensidades de PL contra  $1/kT$  para os picos A e B da figura IV.7. As curvas foram traçadas a partir de ajuste usando  $I_{PL} = I_0/(1+\exp[E_a/kT])$ .

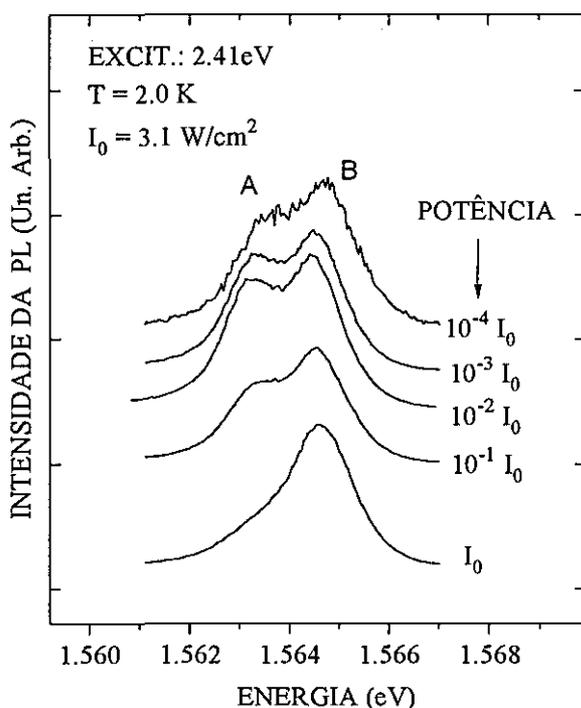
Mostramos na figura IV.8 o gráfico das intensidades da PL versus  $1/kT$ , onde  $k$  é a constante de Boltzmann (0.0862 meV/Kelvin). As intensidades de cada pico foram obtidas através da deconvolução dos espectros. As curvas mostradas correspondem a um ajuste obtido com a equação:

$$I_{PL} = \frac{I_0}{1 + C \exp[-E_a / kT]}$$

onde  $I_0$  é a intensidade da PL em baixas temperaturas,  $C$  é uma constante relacionada ao nível de Fermi e  $E_a$  é a energia de ativação térmica [Bebb 1972].

A partir dos ajustes obtivemos 14.0 meV para a energia de ativação térmica do éxciton livre que é um valor compatível com a sua energia de ligação (ver seção IV.2). Para o complexo que dá origem ao pico A, de menor energia, obtivemos 3.0 meV. Embora este valor de energia seja diferente é compatível com a energia de ativação óptica de 1.4 meV (figura IV.4).

Na região de baixas temperaturas nota-se um ligeiro acréscimo na intensidade do pico B (éxciton livre) quando a temperatura aumenta. Isto ocorre devido à ionização térmica do complexo relacionado ao pico A.



*Figura IV.9: Espectros de PL obtidos em  $T = 2 \text{ K}$  onde a potência de excitação foi variada em 4 ordens de grandeza. Observa-se a ausência do pico A (de menor energia) para altas potências (espectro inferior) devido ao processo de saturação.*

Com o objetivo de identificar este pico de menor energia (A) foram feitas medidas de PL em função da potência de excitação. As medidas foram realizadas na condição em que os portadores são criados na barreira (excitação com energia de 2.41 eV) e variou-se a potência em 4 ordens de grandeza. Os espectros obtidos aparecem na figura IV.9, abaixo.

As medidas mostram que o pico de menor energia desaparece para densidades de potência altas. Este comportamento é típico das transições ópticas relacionadas aos éxcitons ligados e se deve à saturação proveniente do número reduzido de centros espalhadores (impurezas e/ou defeitos) que dão origem ao complexo éxciton ligado.

#### *IV.3. b - Discussão sobre a origem do pico de baixa energia*

Como já foi comentado, anteriormente, o pico A que aparece com energia abaixo da transição fundamental do poço, pode estar, em princípio, relacionado com a interação de troca, variação de monocamadas na interface, bi-éxcitons ou éxcitons ligados. Apresentaremos abaixo os argumentos que nos permitem relacionar o referido pico com os éxcitons ligados e descartar as outras possibilidades.

##### **a) Interação de Troca**

A emissão do éxciton livre pode sofrer um "splitting" resultando num dubleto, mesmo na ausência de campo magnético, como decorrência da interação de troca, onde estados  $j = 1/2$  (elétrons) e  $j = 3/2$  (buracos) se combinam para formar estados  $j = 1$  e  $j = 2$ . Em GaAs "bulk" este "splitting" é da ordem de 0.02 meV e pode chegar a 6 meV para poços quânticos com larguras da ordem de 15 Å. [Bauer 1987]

Para um poço de 80 Å espera-se um "splitting" de aproximadamente 1.3 meV [Bauer 1987], próximo, portanto, do valor de 1.4 meV observado em nossa amostra. Estes valores também são coerentes com os valores calculados por Chen e colaboradores [Chen 1988] como mostra a figura 3 desta referência.

Potemsky [Potemsky 1989 e Potemsky 1990] e colaboradores usaram altos campos magnéticos e radiação circularmente polarizada para, levantando a

degenerescência do nível de buraco pesado, identificar o dubleto observado por eles e associá-lo à interação de troca. Os autores também encontram valores próximos aos citados acima.

Há no entanto algumas diferenças entre nossos resultados e aqueles das referências [Bauer 1987 e Potemsky 1990] que devem ser destacadas.

1 - Potemsky observou o dubleto tanto no espectro de PL como no espectro de PLE e de foto-reflectância permitindo-o descartar a associação com os éxcitons ligados. Em nosso caso, ao contrário, o dubleto não aparece no espectro de PLE, mas apenas no espectro de PL.

2 - Tanto Bauer quanto Potemsky apontam que a intensidade dos dois picos do dubleto não se altera com a potência de excitação. Na figura IV.9 observa-se claramente esta variação em nossas medidas.

3 - Nas medidas da referência [Potemsky 1990] a amostra foi excitada com energia de 1.65 eV (abaixo do "gap" da barreira). Em nosso caso o pico de menor energia tem presença mais marcante apenas quando se excita a amostra com altas energias. Discutiremos esta questão mais detalhadamente na seção IV.4.

Com base nos pontos levantados acima concluímos que, embora o valor de energia do pico A seja compatível com aqueles esperados para o "splitting" devido à interação de troca, somos obrigados a descartar esta associação.

## **B) Variação de Monocamadas na Interface**

A formação de ilhas planas e extensas na interface levam ao aparecimento de diferentes picos nos espectros de emissão e excitação, decorrente da presença de diferentes potenciais de confinamento, conforme foi discutido na seção II.2.

Três pontos nos levam a descartar esta possibilidade:

1) Não observamos, no espectro de PLE, nenhum vestígio do confinamento do éxciton no “novo poço” com largura diferente.

2) Sendo o poço quântico de GaAs a variação de uma monocamada resultaria numa variação na largura do poço de 2.83 Å; para um poço de 80 Å esperaríamos, segundo nossos cálculos, uma diferença de aproximadamente 2.7 meV entre os picos, isto é, o dobro do encontrado em nossas medidas.

3) Por último, se o pico de menor energia (Pico A) estivesse relacionado ao confinamento em ilhas, não esperaríamos uma diferença tão marcante ao se variar a energia de excitação.

Desta forma, embora as medidas de PL em função da temperatura e da potência possam ser compatibilizadas com a interpretação de variação de monocamadas, os três pontos acima nos levam a ignorar esta possibilidade.

### c) Bi-Éxcitons

O surgimento de um dubleto na emissão do éxciton livre, associado à formação de bi-éxcitons, foi observada primeiramente por Miller [Miller 1982b]. As energias de ligação deste complexo dependem da largura do poço quântico e foram calculadas por Kleinman [Kleinman 1983].

O fato marcante dos bi-éxcitons é que sua formação é favorecida para altas densidades de éxcitons criados, isto é, para altas densidades de potência de excitação [Charbonneau 1988]. Nossos resultados, mostrados na figura IV.9, explicitam que a partícula responsável pela emissão em questão tem características opostas aos bi-éxcitons. Assim devemos descartá-los, também, como possível explicação para nossos resultados.

### d) Éxcitons-Ligados

Um éxciton pode estar ligado ao potencial coulombiano de impurezas ou defeitos no poço ou na barreira e também em defeitos na interface. A energia dispendida na ligação do éxciton é subtraída da energia do éxciton livre, dando origem a uma nova emissão observada no espectro de fotoluminescência [Bastard 1988].

A não observação de uma nova estrutura, no espectro de excitação (figura IV.2), quando se detecta o sinal com energia próxima àquela em que o pico A aparece, o comportamento com a temperatura (figura IV.7) e a saturação que ocorre para altas potências de excitação (figura IV.9) são compatíveis com o comportamento de um éxciton ligado [Potemsky 1990 e Miller 1982a]

Esta compatibilidade, aliada à dificuldade em conciliar nossos resultados com as três possibilidades anteriores nos leva a concluir que:

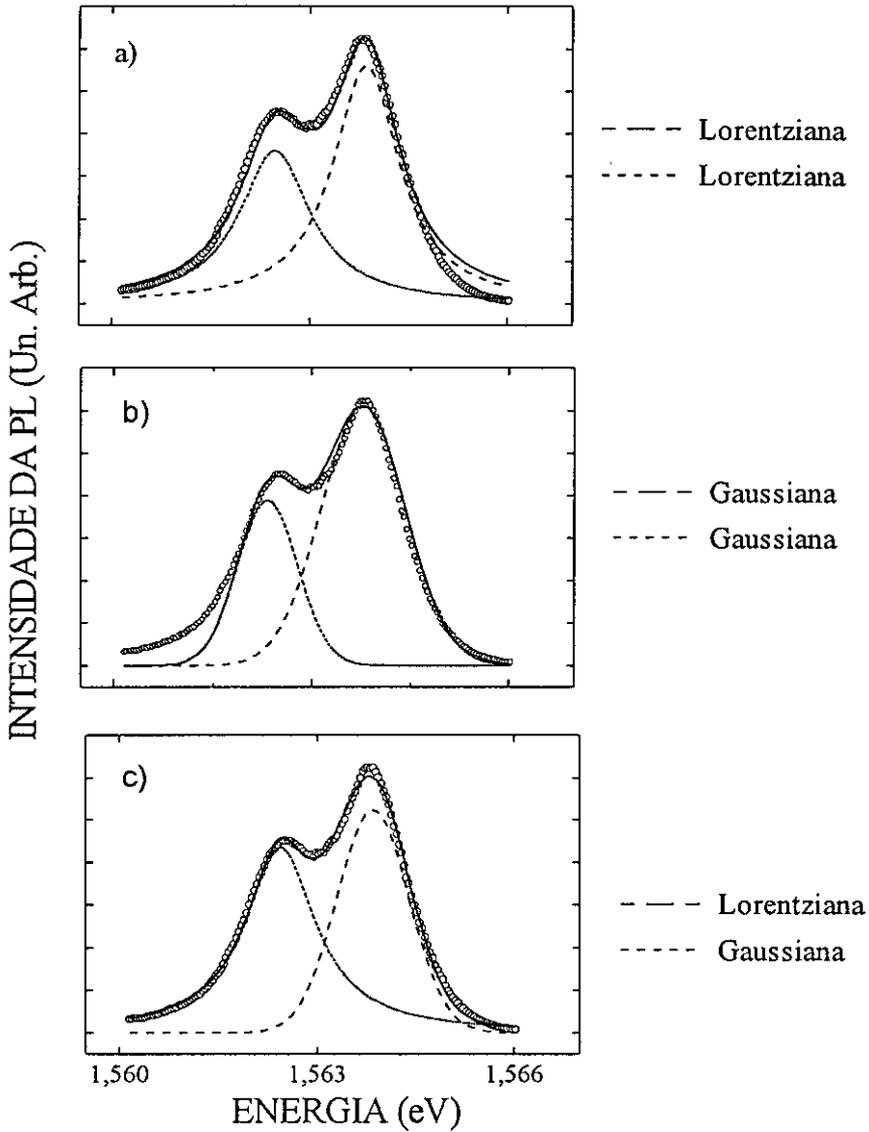
“em nossa amostra, o pico observado com energia abaixo da transição fundamental do poço ( $E_1-HH_1$ ) corresponde à emissão de um éxciton ligado”

Uma análise da forma de linha da luminescência, apresentada logo abaixo, dá suporte à esta nossa interpretação. Daqui para diante chamaremos o pico A de pico do éxciton ligado, ou simplesmente pico BE.

### *IV.3.c - Análise da Forma de Linha da Fotoluminescência*

O espectro de emissão de um éxciton é obtido a partir da convolução de três componentes básicos: uma função que representa o alargamento Lorentziano decorrente da interação de estado final, outra representando o alargamento Gaussiano advindo das flutuações estatísticas das larguras do poço e na composição da liga e por último a função distribuição dos estados [Bimberg 1986 e Christen 1990]. A seção II.2 apresenta uma discussão mais detalhada

A figura IV.10 mostra a deconvolução de um espectro de PL em que aparecem ambos os picos; as condições de medidas foram  $T = 2$  K,  $P = 18$  mW/cm<sup>2</sup> e excitação em 2.41 eV. Na parte (a) tentou-se ajustar o espectro através de duas curvas Lorentzianas, na parte (b) duas Gaussianas e na parte (c) o ajuste foi feito usando-se uma Lorentziana para o pico associado ao BE (menor energia) e uma Gaussiana para o pico do FE (maior energia). Os ajustes foram feitos supondo-se Lorentzianas ou Gaussianas puras.



*Figura IV.10: Deconvolução de espectro de PL obtido em  $T = 2$  K com energia de excitação de 2.41 eV. Os ajustes foram feitos considerando-se: a) duas Lorentzianas, b) duas Gaussianas e c) uma Lorentziana para o BE e uma Gaussiana para o FE.*

Fica evidente da figura que usando-se duas Lorentzianas (a) ou duas Gaussianas (b) o ajuste falha para as regiões de altas energias ou baixas energias, respectivamente. O espectro pode ser ajustado muito bem caso consideremos a convolução de uma Lorentziana (pico do BE) e uma Gaussiana (pico do FE).

O éxciton ligado apresenta menor mobilidade devido à sua ligação ao centro espalhador (defeito ou impureza) sendo razoável supor que esta partícula é pouco sensível às flutuações na composição da liga, bem como às variações das larguras do poço. A consequência é uma predominância da interação de estado final (alargamento Lorentziano).

Ao contrário, o éxciton livre pode se deslocar com maior facilidade pelo poço, sendo mais sensível às flutuações estatísticas. Isto implica na predominância do alargamento Gaussiano [Bimberg 1986 e Singh 1985].

Concluimos assim ser possível conciliar a forma de linha da luminescência com a nossa interpretação de que estamos lidando com éxcitons livres (pico B) e éxcitons ligado (pico A). Colocando de outra maneira podemos afirmar que a análise da forma de linha da PL sustenta nossa interpretação.

Num trabalho de 1994 Srinivas e colaboradores [Srinivas 1994] observaram um pico no espectro de luminescência, o qual só aparece quando se excita a amostra com energias acima do "gap" da barreira, como ocorre para nossa amostra. Com base neste fato os autores afirmam estar observando a emissão de um éxciton ligado a um defeito ionizado na barreira. Nossos espectros mostrados na figura IV.6 apontam, aparentemente, para a mesma conclusão.

Na seção seguinte iremos estudar a natureza do éxciton ligado centrando a discussão no comportamento da emissão para diferentes energias de excitação. Nossa questão inicial é saber se o pico do éxciton ligado aparece ou não quando os éxcitons são criados ressonantemente no poço. Nossa análise leva-nos a questionar a interpretação dos autores da referência [Srinivas 1994].

#### ***IV. 4 - SOBRE A NATUREZA DO ÉXCITON LIGADO***

Existe uma diferença básica entre excitar a amostra com energias abaixo e acima do "gap" da barreira que é a presença ou não do processo de relaxação dos portadores da barreira para o poço.

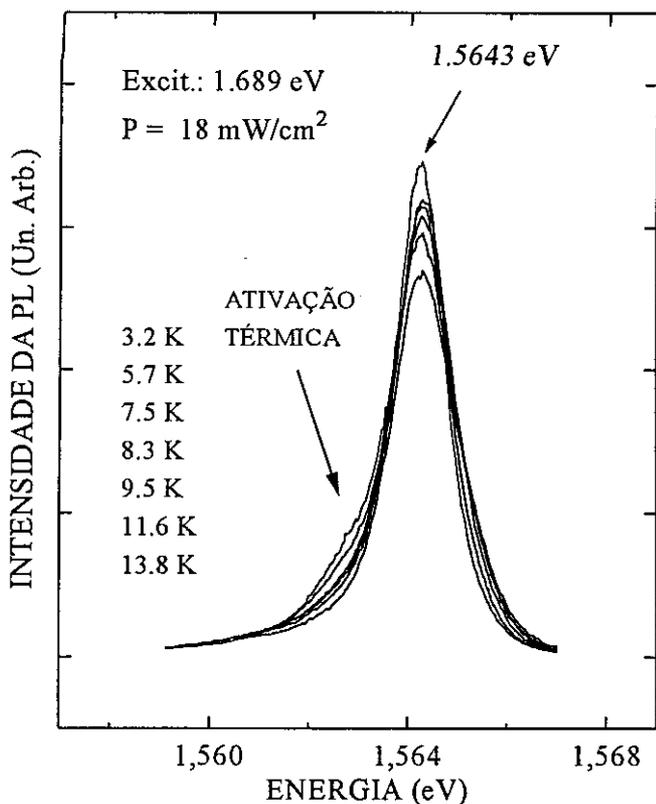
Quando os portadores foto-gerados possuem energia maior que 1.951 eV, para o caso de nossa amostra, elétrons e buracos sofrem um processo de relaxação para o poço, formam os éxcitons e recombinam. Parte dos elétrons se recombinam não radiativamente ou são presos por impurezas e/ou defeitos e parte deles podem também se recombinar radiativamente na própria barreira [Kusano 1989]. O processo de relaxação para o poço se dá principalmente pela emissão de fônons ópticos e é bastante eficiente. Os tempos de relaxação são da ordem de pico-segundos [Damen 1990]. Alguns autores usam um modelo hidrodinâmico para tratar a captura dos portadores no poço [Bacher 1993].

Uma vez no poço os elétrons deverão sofrer ainda outros processos de espalhamento até encontrar, em sua maioria, o estado fundamental  $E_1$ . Os espalhamentos ocorrem com fônons ópticos e também acústicos. A maior parte dos portadores irão formar os éxcitons HH e LH, devido ao potencial Coulombiano atrativo entre elétrons e buracos, embora parte das partículas poderão se recombinar como portadores livres.

No caso em que a excitação é feita com energia abaixo do "gap" da barreira a liga se torna transparente à radiação. Os portadores são então foto-gerados diretamente no poço, podendo haver ou não ressonância com os níveis quânticos. Os mecanismos de relaxação envolvem os fônons acústicos e eventualmente também os ópticos quando a energia a ser dissipada exceder a energia destes fônons, que é de 36.7 meV para o GaAs. Se houver ressonância com algum nível do poço a absorção sofrerá um incremento substancial.

Vejamos agora alguns resultados de medidas que procuram elucidar o comportamento do éxciton ligado quando se varia a energia de excitação.

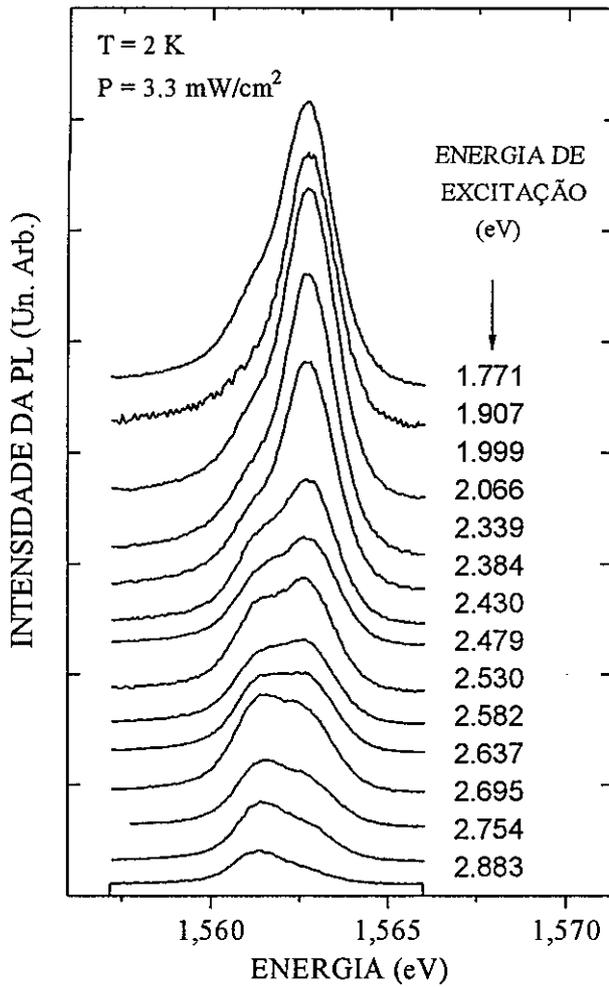
A figura IV.11 mostra espectros de PL obtidos em diferentes temperaturas onde a densidade de potência usada foi de apenas 18 mW/cm<sup>2</sup>, isto é, fora do regime de saturação, e a energia da excitação foi de 1.689 eV. Verifica-se que há uma diferença marcante em relação aos espectros da figura IV.7; o pico do éxciton ligado não está presente, aparentemente. Entretanto, observa-se que na região de baixas energias a intensidade da emissão diminui conforme se aumenta a temperatura, indicando a ocorrência de um processo de ativação térmica.



*Figura IV.11: Espectros de PL em função da temperatura para excitação com energia de 1.689 eV (menor que o “gap” da barreira). Verifica-se que há um processo de ativação térmica presente na região do pico do BE.*

Na figura IV.12, abaixo, são mostrados uma série de espectros de PL obtidos com diferentes energias de excitação, desde 1.771 até 2.883 eV. A temperatura usada foi de 2 K e a densidade de potência de excitação foi de 3 mW/cm<sup>2</sup>. O objetivo é dirimir a dúvida sobre a presença ou não da emissão associada ao BE, quando os portadores são criados no poço e não na barreira.

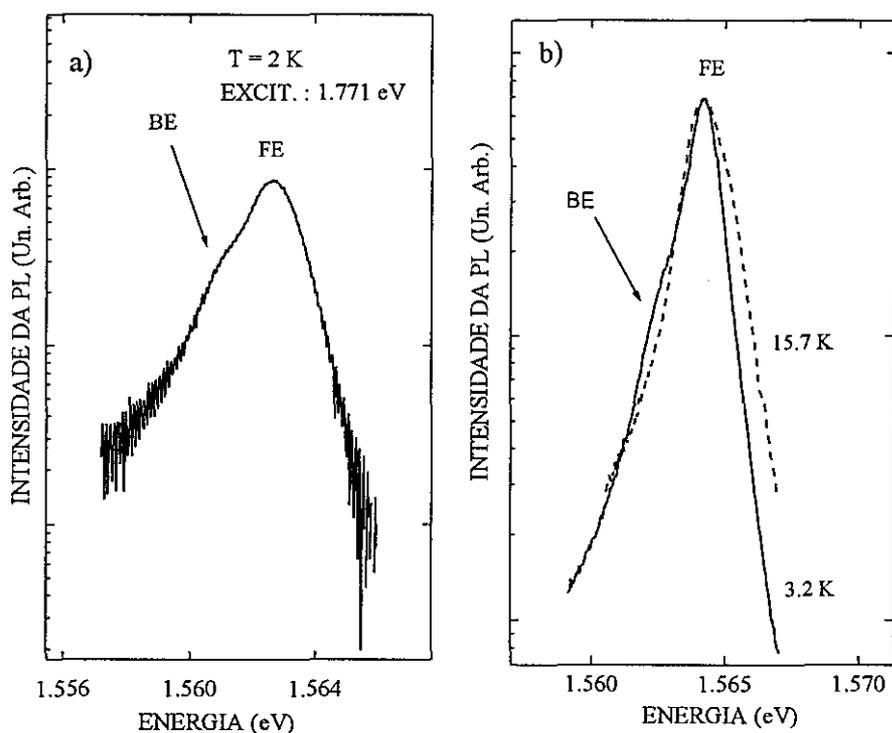
Estas medidas foram realizadas usando-se uma lâmpada halogênica branca com potência de 1000 W. A energia do feixe de excitação foi selecionada através de um monocromador de 0.3 m.



*Figura IV.12: Espectros de PL obtidos para diferentes energias de excitação, em  $T = 2 \text{ K}$  e  $P = 3.3 \text{ m W/cm}^2$ . O “gap” da barreira vale  $1.951 \text{ eV}$ .*

O primeiro aspecto a destacar é que não ocorre uma alteração brusca dos espectros quando comparamos aqueles que foram obtidos com energia abaixo ou acima da barreira (observar a parte superior do espectro e lembrar que o “gap” da barreira vale  $1.951 \text{ eV}$ ). A variação é monotônica. O segundo aspecto importante é que há uma evidente assimetria no espectro obtido com energia de  $1.771 \text{ eV}$ . Estes dois fatos indicam que o pico de menor energia, o qual associamos ao éxciton ligado, se faz presente mesmo quando se excita a amostra com energias menores que a barreira.

Afim de ampliar nossa análise plotamos na figura IV.13 alguns espectros com o eixo das intensidades em escala logarítmica, este procedimento faz destacar as estruturas de baixa intensidade.

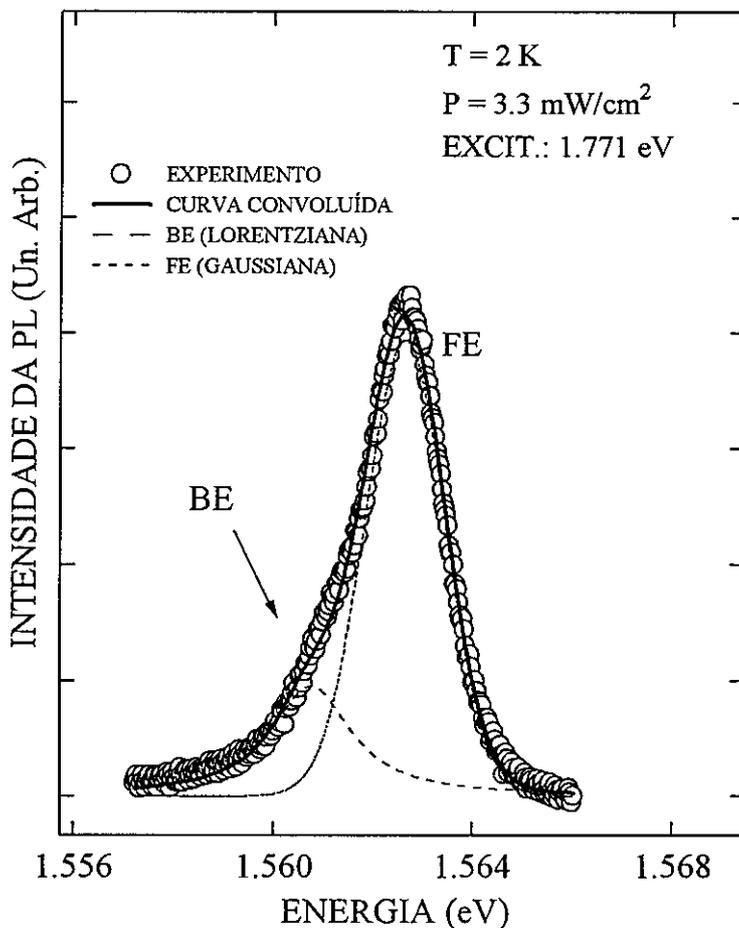


*Figura IV.13: Espectros de PL em escala logarítmica. O espectro (a) foi destacado da figura IV.12 e o espectro (b) foi destacado da figura IV.11; as energias de excitação foram 1.771 e 1.689 eV, respectivamente.*

Em IV.13.a temos o espectro superior da figura IV.12, onde o feixe de excitação tinha energia de 1.771 eV. Esta figura mostra de forma contundente a presença de uma estrutura abaixo do pico relacionado aos éxcitons livres.

Na parte (b) da mesma figura nós mostramos dois espectros, retirados na figura IV.11, para temperaturas de 3.2 e 15.7 K e cujo feixe de excitação tinha energia de 1.689 eV. Podemos confirmar que há uma estrutura presente abaixo do pico FE e que ocorre um processo de ativação térmica.

O espectro mostrado em IV.13.a pode ser perfeitamente ajustado caso o consideremos uma convolução de uma Lorentziana (BE) e uma Gaussiana (FE), conforme mostra a figura IV.14.



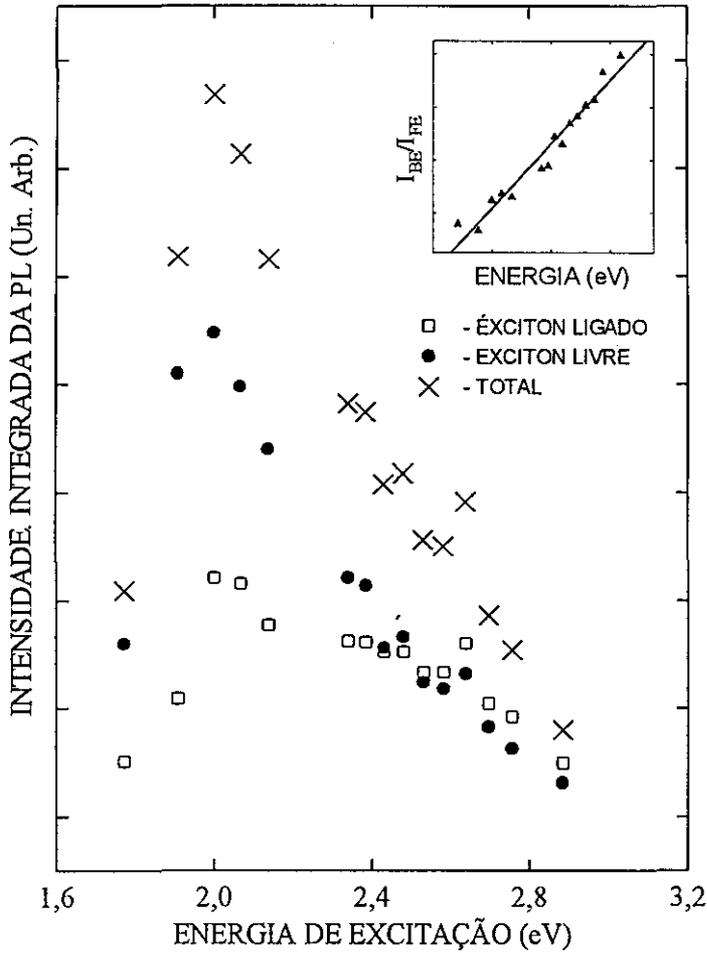
*Figura IV.14: Deconvolução de um espectro de PL onde  $T = 2.0 \text{ K}$  e a energia de excitação usada foi menor que o "gap" da barreira (1.771 eV). Observa-se a presença da emissão associada ao BE.*

Com base nestes dados podemos afirmar que a presença da emissão do éxciton ligado ocorre mesmo quando excitamos a amostra com energias abaixo do "gap" da liga. Este nosso resultado difere, portanto, daquele apresentado por Srinivas e colaboradores [Srinivas 1994] e nos leva a questionar a interpretação apresentada.

Lembremos que os autores daquele trabalho afirmam que "devido ao fato do pico de menor energia aparecer apenas quando se excita a amostra com energia acima do gap da barreira, o éxciton deve estar ligado a um defeito ionizado na barreira"; como no trabalho em questão foi analisado apenas dois espectros, um com energia abaixo e outro com energia acima do "gap" da barreira os autores incorreram, muito provavelmente, num erro de interpretação.

Nossos resultados permitem concluir que:

“o pico de luminescência com energia abaixo da emissão fundamental do poço está associado a um éxciton ligado. Este complexo tem origem a partir da ionização de defeitos na interface”



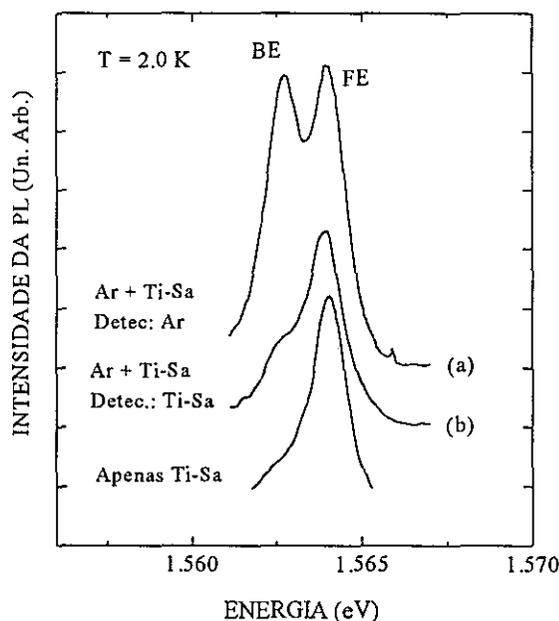
*Figura IV.15: Intensidades integradas da fotoluminescência em função da energia de excitação para cada pico (FE e BE) e total. As medidas foram obtidas em  $T = 2 K$ . A figura no canto superior direito mostra a relação entre as intensidades dos picos (FE e BE) em função da energia de excitação. A curva traçada representa um ajuste linear.*

Como se pode verificar na figura IV.12 as intensidades relativas dos pico varia drasticamente quando variamos a energia de excitação. São mostradas na figura

IV.15 as intensidades integradas de cada pico bem como a intensidade total, em função da energia de excitação. As intensidades foram obtidas após os espectros terem sido deconvoluídos, por uma Gaussiana (FE) e uma Lorentziana (BE), conforme discussão anterior.

Para energias maiores que 1.951 eV a barreira deixa de ser transparente e passa a absorver, aumentando o volume absorvedor. O resultado é um incremento na intensidade total da emissão. Os dados da figura IV.15 mostram que a intensidade aumenta até energias de excitação da ordem de 2.0 eV, diminuindo para energias maiores. A queda das intensidades para energias maiores é decorrência do aumento das emissões não radiativas.

Com o objetivo de aprofundar nossa investigação realizamos um experimento que consistiu em incidir sobre a mesma região da amostra um feixe do laser de Argônio (2.41 eV) e um feixe do laser de Ti-Sa (1.631 eV). Desta forma pudemos criar, simultaneamente, portadores na barreira e no poço.



**Figura IV.16:** Espectros de PL para diferentes condições de excitação em  $T = 2\text{ K}$  e baixa potência. a) excitação com laser de Ar (2.41 eV) e Ti-Sa (1.631 eV) e detecção da emissão proveniente dos éxcitons gerados pelo laser de menor energia; b) idem, com detecção da emissão proveniente dos éxcitons gerados pelo laser de maior energia e c) excitação apenas com o laser de menor energia (ver texto).

Com o objetivo de aprofundar nossa investigação, realizamos um experimento que consistiu em incidir sobre a mesma região da amostra um feixe do laser de Argônio (2.41 eV) e um feixe do laser de Ti-Sa (1.631 eV). Desta forma pudemos criar, simultaneamente, portadores na barreira e no poço.

Com a ajuda de um amplificador “lock-in” e um “chopper” nós pudemos detectar a emissão proveniente, ora dos éxcitons que se formaram a partir de portadores criados diretamente no poço e ora daqueles que se formaram a partir de portadores criados na barreira e que foram capturados pelo poço. É possível conseguir isto interceptando-se o feixe apropriado com o “chopper” (ver seção III.3).

Os espectros obtidos com esta detecção seletiva são apresentados na figura IV.16. As densidades de potência usadas foram de 7 e 31 mW/cm<sup>2</sup> para os feixes do Argônio e Ti-Sa, respectivamente, e assim estivemos sempre no regime de baixa densidade de éxcitons.

No espectro superior (a) fizemos incidir ambos os feixes e detectamos a emissão relacionada aos éxcitons criados pelo feixe de Ar, ou seja, o “chopper” foi colocado no feixe deste laser. Notamos neste espectro a presença nítida dos dois picos, do éxciton livre (1.564 eV) e do éxciton ligado (1.5627 eV).

No espectro intermediário, (b), também fizemos incidir ambos os feixes e o “chopper” foi colocado no feixe do laser de Ti-Sa. Desta forma o sinal detectado corresponde apenas aos éxcitons foto-gerados pelo feixe com energia de 1.631 eV, ou seja, aqueles criados diretamente no poço. Podemos constatar neste espectro a presença nítida do pico de menor energia (éxciton ligado), embora com intensidade relativa menor que no espectro superior, (a).

Finalmente no espectro inferior, (c), temos a situação em que apenas o feixe de Ti-Sa está incidindo sobre a amostra. Neste caso observamos apenas uma assimetria do espectro na região de menor energia, semelhante ao que já fora observado antes.

Os espectros (a) e (c) confirmam o resultado da figura IV.4. O aspecto novo fica por conta do espectro intermediário, (b).

Comparando os três espectros conclui-se de forma inequívoca que a presença do feixe de maior energia (2.41 eV) tem um efeito facilitador na formação

dos éxcitons ligados, mesmo quando estes são formados a partir de cargas foto-geradas diretamente no poço quântico.

Nossos dados indicam que criando-se os portadores com maior energia aumenta-se a probabilidade de que elétrons sejam capturados por defeitos, ionizando-os. Aumenta-se assim a probabilidade de formação do complexo BE, mesmo que estes sejam formados a partir de pares elétron-buraco criados com energias menores (comparar espectros (b) e (c)).

Por outro lado, verifica-se também que a formação dos complexos BE é mais efetiva quando os éxcitons são formados a partir de pares gerados com energias maiores. Isto pode ser notado comparando-se os espectros (a) e (b) e também pelos resultados da figura IV.15.

Em conclusão, o comportamento do espectro de emissão de nossa amostra está relacionado com os mecanismos de relaxação dos portadores e éxcitons, bem como aos processos de captura de portadores por defeitos na interface. Um estudo adequado desta dinâmica requer medidas com resolução temporal.

#### *IV.5 - RESULTADOS DE MAGNETO-ÓPTICA: UMA ANÁLISE DA INTERFACE.*

Como já foi discutido anteriormente os éxcitons constituem uma ferramenta útil no estudo de interfaces, devido ao fato de suas propriedades ópticas serem sensíveis a defeitos desta região da amostra. Nesta seção apresentaremos resultados de magneto-óptica que nos permitem avaliar as dimensões das microrugosidades das interfaces de nossa amostra.

A análise da forma de linha da luminescência é fundamental para o estudo das propriedades excitônicas em poços quânticos [Christen 1990 e Bimberg 1986]. Uma análise equivocada da forma de linha da emissão pode induzir a erros na interpretação de resultados experimentais.

Como foi discutido na seção II.2 o espectro de luminescência é obtido a partir da convolução de uma curva Lorentziana e uma curva Gaussiana, acrescidas da distribuição estatística dos estados.

As interfaces apresentam uma série de rugosidades, geralmente com profundidade de uma monocamada, cujo efeito é provocar uma flutuação na largura,  $L_z$ , dos poços. Segundo o modelo proposto por Singh e Bajaj [Singh 1984 e Singh 1985] esta flutuação é bem descrita, estatisticamente, por uma distribuição Gaussiana. De acordo com este modelo o desvio padrão da distribuição Gaussiana se relaciona com parâmetros associados à interface

A equação 13 relaciona a largura de linha da PL a meia altura com parâmetros microscópicos e com a dimensão lateral do éxciton,  $R_{ex} = \langle \Psi | x^2 + y^2 | \Psi \rangle$ , como:

$$\sigma = 1.18 \frac{\pi^2 \hbar^2}{\mu_z L_z^3} \frac{\delta_1 \delta_2}{R_{ex}} \sqrt{p(1-p)} \quad (20)$$

O significado das grandezas podem ser encontrados na seção II.2.

Aplicando-se um campo magnético, perpendicularmente ao plano da amostra, ocorre uma redução no valor de  $R_{ex}$  como consequência do “confinamento” adicional. Espera-se portanto, de acordo com a expressão acima, um alargamento da linha de emissão (PL). Ossau e colaboradores [Ossau 1986] relacionam  $R_{ex}$  com o shift diamagnético do estado fundamental,  $\Delta E(1S)$ , como:

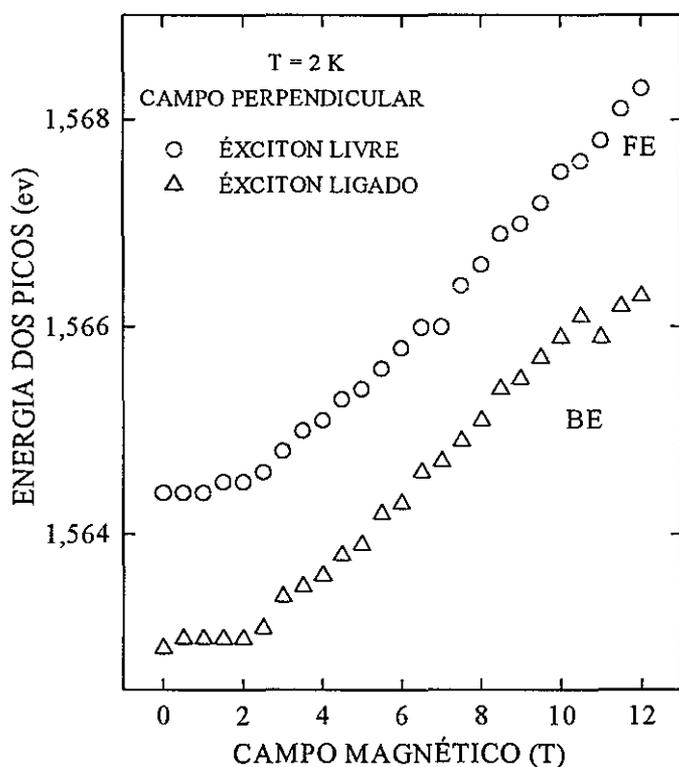
$$\Delta E(1S) = \frac{e^2 B^2}{8 \mu_{xy}} R_{ex}^2 \quad (21)$$

onde  $\mu_{xy}$  é a massa reduzida no plano x-y (considerando-se  $z$  a direção de crescimento).

Esta relação é a mesma tanto para o estado de buraco pesado quanto para o de buraco leve desde que se use a massa reduzida apropriada.

Realizamos medidas de magneto-PL para campos entre 0 e 12 T, de acordo com a montagem descrita no capítulo anterior. Os espectros de PL foram deconvoluídos através de uma Lorentziana (BE) e uma Gaussiana (FE) puras, como já fora discutido antes (ver seção anterior). Desta forma foi possível acompanhar, além da variação das energias dos picos, a variação das larguras de cada linha de emissão (FE e BE) em função do campo magnético.

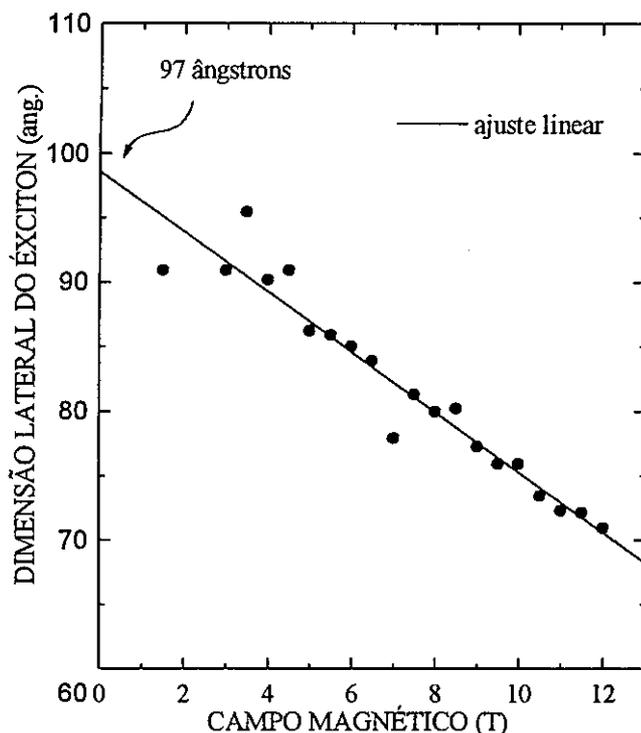
A figura IV.17 mostra a energia dos picos FE e BE em função de  $B$ . Podemos verificar um comportamento quadrático para regiões de baixo campo e um comportamento linear na região de altos campos, como esperado [Akimoto 1967 e Sugawara 1992].



*Figura IV.17: Energias dos picos FE e BE em função do campo magnético  $B$ , aplicado perpendicularmente ao plano da amostra.*

Usando a equação (21) calculamos  $R_{ex}$  para cada valor de campo. Os resultados são mostrados na figura IV.18. A curva traçada na figura representa um ajuste linear dos pontos obtidos.

Extrapolando a reta para  $B = 0$  obtém-se o valor de  $97 \text{ \AA}$  para  $R_{\text{ex}}$ . O valor esperado para o éxciton bi-dimensional é  $(3/8)a_B^2$  onde  $a_B$  é o raio de Bohr tri-dimensional. Tomando-se  $145 \text{ \AA}$  para o raio de Bohr do GaAs [Ossau 1986] obtém-se o valor de  $89 \text{ \AA}$  para  $R_{\text{ex}}$ . Verifica-se, assim, uma boa concordância.



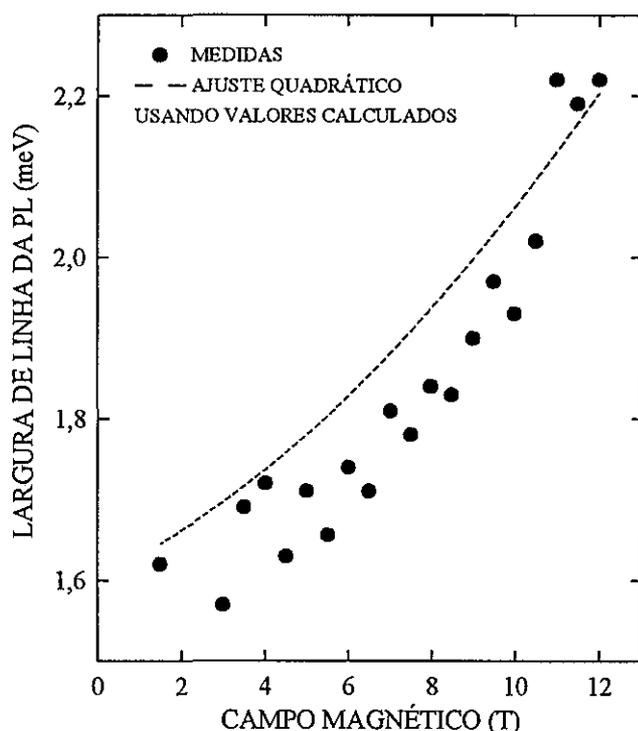
*Figura IV.18: Dimensão lateral do éxciton,  $R_{\text{ex}}$  em função do campo magnético. Os valores foram calculados a partir dos deslocamentos diamagnéticos, através da expressão (21). A curva traçada representa um ajuste linear.*

A largura de linha do pico FE em  $B = 0$ , obtida a partir da deconvolução do espectro, foi de  $1.603 \text{ meV}$ . Usando-se o valor de  $R_{\text{ex}}$  para campo nulo ( $97 \text{ \AA}$ ) podemos determinar, por meio da equação (13), a dimensão lateral média,  $\delta_2$ , das microrrugosidades na interface.

O valor encontrado foi  $37 \text{ \AA}$ . Este valor é compatível com valores entre  $30$  e  $50 \text{ \AA}$  determinados por meio de Microscopia Eletrônica de Transmissão (TEM) [Ourzmad 1989 e Warwick 1992] para o mesmo sistema de poços quânticos, isto é, o sistema GaAs/GaAlAs.

Tomando-se agora o valor de  $\delta_2$  (37 Å), juntamente com os valores de  $R_{ex}$  em função de B (figura IV.18), podemos encontrar as larguras das linhas de PL do FE em função do campo magnético, usando-se a equação (20). Tomando-se os pontos obtidos desta forma traçamos uma curva fazendo um ajuste polinomial quadrático (curva tracejada).

Na mesma figura apresentamos o valores das larguras de linha medidas diretamente dos espectros deconvoluídos (pontos cheios).



*Figura IV.19: Larguras de linha da PL do éxciton livre (FE) em função do campo magnético. Os pontos foram obtidos diretamente dos espectros. A curva foi traçada como um ajuste quadrático dos pontos calculados, cálculos estes feitos a partir do deslocamento diamagnético e usando as equações (20) e (21).*

A figura acima nos mostra que os alargamentos da linha de PL com o campo magnético apresentam uma boa concordância com os alargamentos previstos pela teoria de Singh e Bajaj [Singh 1985]. Concluimos que apesar da simplicidade desta teoria, ela descreve adequadamente o efeito das microrrugosidades sobre as propriedades ópticas dos éxcitons em nossa amostra.

# *CAPÍTULO V*

## *ACEITADORES DE Be CONFINADOS: RESULTADOS E DISCUSSÕES*

Neste capítulo serão apresentados os resultados, com as respectivas discussões, sobre propriedades ópticas de Be confinados num sistema de múltiplos poços quânticos. O aspecto principal desta parte do trabalho está relacionado com as transições ópticas de aceitadores, confinados em diferentes potenciais devido à formação de ilhas na interface da amostra.

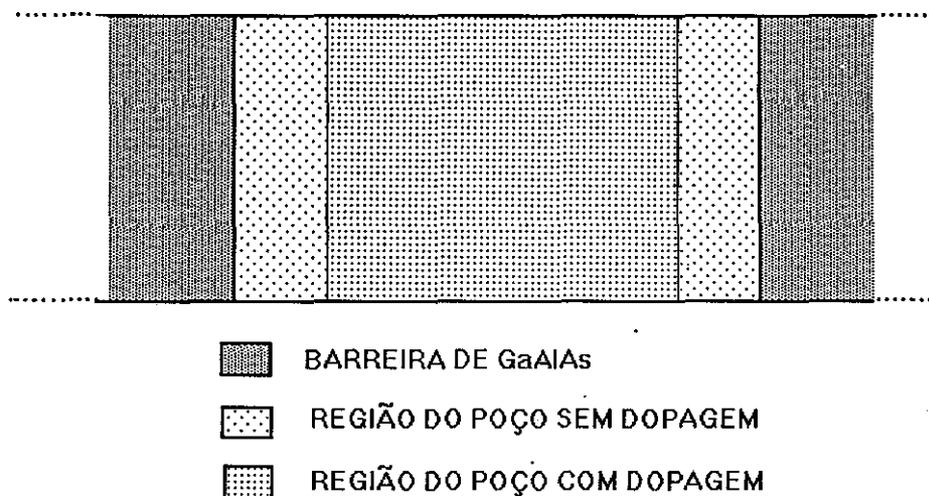
Na seção V.1 apresentaremos, como no capítulo anterior, uma descrição da amostra estudada. As propriedades ópticas excitônicas e intrínsecas ao poço serão abordadas na seção V.2. A seção V.3 será destinada à análise das transições ópticas “free-to-bound”. Por último, na seção V.4, trataremos dos resultados relacionados aos níveis excitados dos aceitadores confinados.

### *V.1 - DESCRIÇÃO DA AMOSTRA ESTUDADA*

A amostra a que se refere os resultados e discussões apresentados neste capítulo tem a mesma estrutura da amostra estudada no capítulo anterior. Consiste, portanto, de um sistema de múltiplos poços quânticos, com 20 períodos, crescidos por MBE sobre um substrato SI-GaAs (100). A estrutura foi mostrada na figura IV.1 (seção II.1).

Esta amostra difere da anterior apenas quanto à dopagem e à largura dos poços. Enquanto a anterior não apresentava nenhum tipo de dopagem intencional, a amostra atual foi dopada com átomos de Be na região central dos poços. A largura dos poços é de aproximadamente 45 Å, valor este determinado a partir das medidas de PLE. A barreira possui largura de 300 Å, como na outra amostra.

A amostra foi dopada em toda a região central do poço exceto duas monocamadas próximas a cada interface. Este procedimento visava diminuir os defeitos na interface. Há portanto regiões de 5.66 Å sem dopagem próximas a cada interface; a porcentagem dopada dependerá, portanto, da largura dos poços. A concentração nominal de Be usada foi de  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . A figura V.1, abaixo, apresenta um esquema da amostra onde aparecem apenas um dos poços.



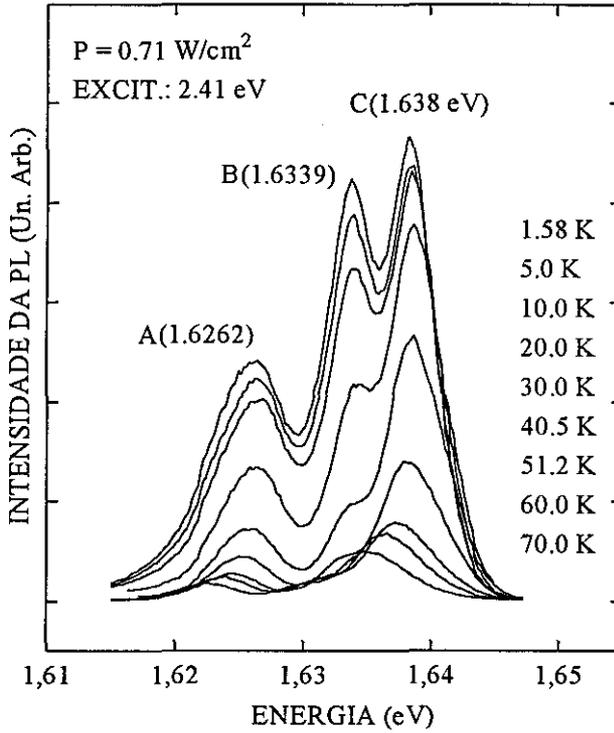
*Figura V.1 - Esquema da amostra estudada neste capítulo V mostrando um dos poços com a respectiva dopagem.*

## V.2 - TRANSIÇÕES EXCITÔNICAS RELACIONADAS AOS POÇOS QUÂNTICOS

Foram realizadas medidas de PL e PLE, em diferentes condições, com o objetivo de identificar as transições ópticas do poço.

A figura V.2 mostra espectros de PL obtidos em diferentes temperaturas, onde notamos claramente a presença de três picos com energias de 1.6262, 1.6339 e 1.638 eV. Em  $T = 2 \text{ K}$  estes picos apresentam larguras de linha a meia altura (FWHM) de 8.5, 3.8 e 4.2 meV, respectivamente, o que indica a presença de defeitos de interface. Nosso objetivo nesta seção será o de identificar a origem destes picos, os quais chamaremos de picos A, B e C, respectivamente.

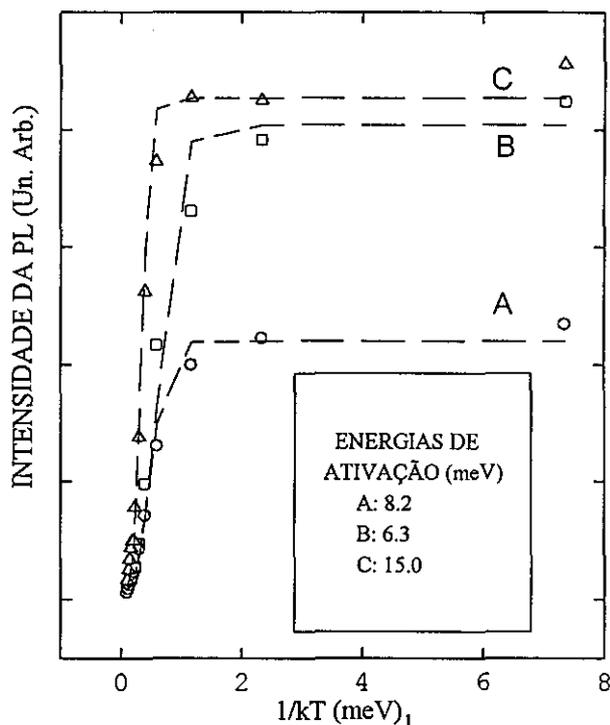
Nota-se que há uma alteração na intensidade relativa dos picos. No entanto, medidas em altas temperaturas mostram que os três picos persistem até temperaturas próximas à temperatura ambiente.



*Figura V.2: Espectros de PL obtidos em diferentes temperaturas, com excitação de 0,71 W/cm<sup>2</sup> e energia de 2,41 eV.*

Após deconvoluir o espectro em três curvas Gaussianas, o que será discutido adiante, as intensidades integradas foram plotadas contra o inverso da energia térmica,  $kT$ , o que é mostrado na figura V.3, abaixo.

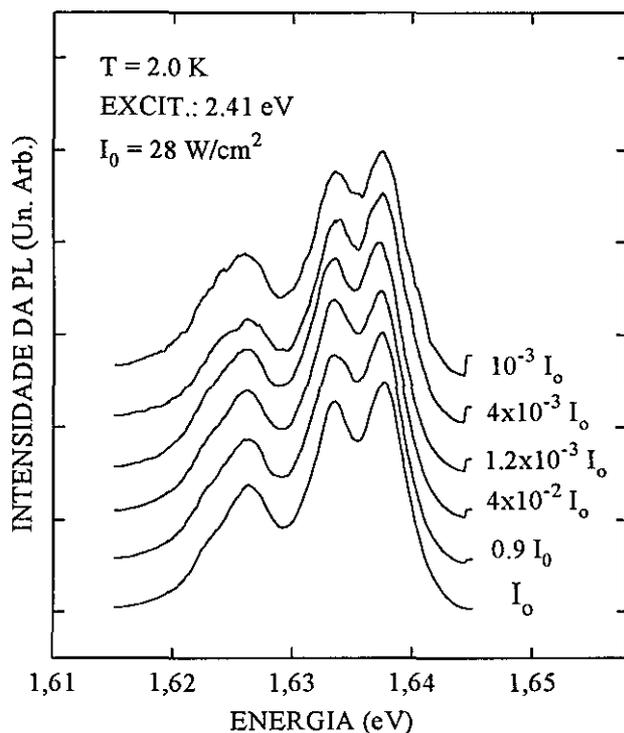
As curvas apresentadas na figura foram obtidas a partir de ajuste usando a equação  $I_{PL} = I_0/[1+C\exp(E_a / kT)]$  [Bebb 1972]. O valor obtido para as energias de ativação térmica foram 8,2, 6,3 e 15,0 meV para os picos A, B, e C, respectivamente. Discutiremos adiante a compatibilidade entre estes valores e nossa interpretação para a origem dos picos.



*Figura V.3: Intensidade integrada da PL versus o inverso da energia térmica  $kT$ . As curvas traçadas foram obtidas a partir de ajuste usando a equação  $I_{PL} = I_0/[1+Cexp(E_a/kT)]$ .*

Realizamos medidas de PL para diferentes potências de excitação onde variou-se a intensidade do feixe em três ordens de grandeza. A temperatura usada foi de 2 K e a amostra foi excitada por um feixe de laser de argônio (2.41 eV). Estes dados são apresentados na figura V.4.

Nota-se que não há nenhuma variação na intensidade relativa dos picos, nos espectros de emissão. Este comportamento indica que estas emissões não se referem a éxcitons ligados ou bi-éxcitons, pois se assim fosse esperaríamos, respectivamente, uma queda ou um aumento na intensidade do pico com o aumento da potência. A associação de algum dos picos a éxcitons ligados fica também prejudicada quando analisamos o comportamento com a temperatura, pois não ocorre a ionização térmica como foi observado na amostra estudada no capítulo anterior

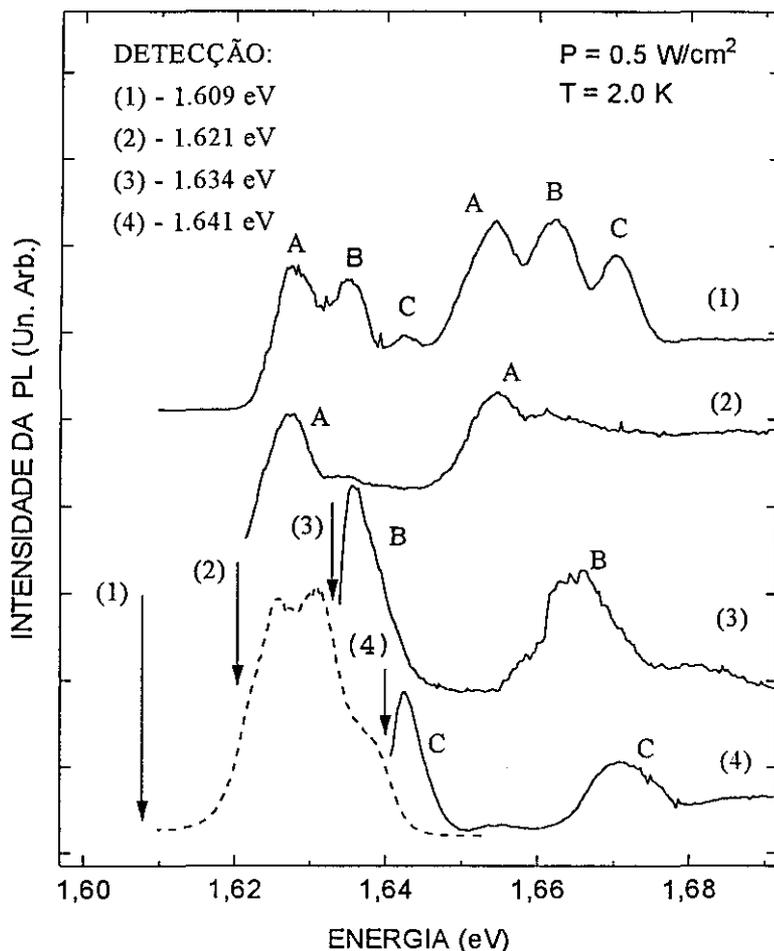


*Figura V.4: Medidas de PL obtidas em  $T = 2\text{ K}$ , com excitação de  $2.41\text{ eV}$  e em diferentes potências de excitação.*

Realizamos, também, medidas de PLE para detecções em diferentes energias, em temperatura de  $2\text{ K}$  e com intensidade de  $0.5\text{ W/cm}^2$ . Os espectros de excitação obtidos são aqueles da figura V.5.

No espectro superior (1) aparecem seis estruturas muito bem definidas. Este resultado aliado aos espectros de PL apresentados acima, os quais nos obrigam a descartar éxcitons ligados e bi-éxcitons, nos leva a concluir que nesta amostra temos três poços com larguras diferentes, decorrente da variação de monocamadas na interface (ver discussão da seção II.2). Denominamos acima os picos de A, B e C. Esta mesma nomenclatura será usada para cada um dos respectivos poços.

O “splitting” devido à interação de troca, que era uma possível explicação para o espectro de PL da amostra estudada no capítulo IV, foi também descartado neste caso porque a separação, em energia, entre os picos discorda completamente do esperado.



*Figura V.5: Espectros de PLE para diferentes energias de detecção. A temperatura durante a medida foi de 2 K e a intensidade da excitação de  $0.5 \text{ W/cm}^2$ .*

Associamos os três picos da esquerda às transições do primeiro nível de elétron (Banda de Condução) para o primeiro nível de buraco pesado (Banda de Valência), ou seja a transição  $E_1\text{-HH}_1$ . Os três picos da direita correspondem às transições para o primeiro nível de buraco leve, isto é a transição  $E_1\text{-LH}_1$ .

Os deslocamentos de Stokes obtidos são de 1.9, 4.0 e 4.6 meV para os poços A, B e C, respectivamente, mostrando a influência dos defeitos de interface na amostra. Deve-se salientar que há uma certa imprecisão nestes valores devido à largura dos picos.

Uma possível explicação para a excessiva presença de defeitos nesta amostra, se comparado com a amostra estudada no capítulo anterior, é que o processo de incorporação de Be no poço tenha influenciado a qualidade das interfaces, a despeito de não se dopar as duas monocamadas próximas a elas.

Nos espectros denominados (1), (2) e (3) o espectômetro foi posicionado, respectivamente, nas energias 1.621, 1.634 e 1.641 eV. Desta forma detectou-se a emissão de cada um dos poços, seletivamente.

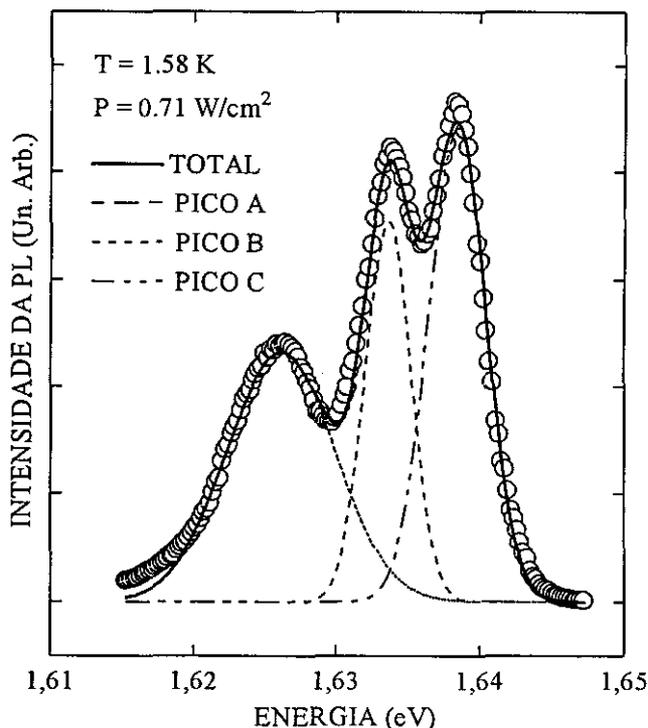
Observando-se o espectro (2) notamos que ao se fixar o monocromador na energia do pico A, as transições correspondentes ao pico de emissão A se destacam no espectro de PLE, tanto para a região do HH como para a região do LH. O mesmo ocorre quando fixamos o espectrômetro nas energias dos picos de emissão B e C; destacam-se, no espectro de PLE, os picos B e C em ambas as regiões (HH e LH).

A figura V.6 apresenta a deconvolução com três curvas Gaussianas de um espectro de PL, que foi obtido em  $T = 1.58$  K e com densidade de potência de  $0.71$  W/cm<sup>2</sup>. Pode-se notar que a escolha de Gaussianas resulta num bom ajuste do espectro.

O resultado da figura V.6 indica a predominância dos efeitos de flutuações estatísticas em relação aos efeitos devido à interação de estado-final para os três poços (ver discussão das seções II.2 e IV.2) e serve de suporte à nossa interpretação dada aos três picos observados.

Outro dado que pode ser usado para reforçar nosso argumento são as energias de ativação térmica obtidas a partir de ajuste e mostradas na figura V.3. Os valores são 8.17, 6.25 e 15.0 meV para os poços A, B e C, respectivamente.

Éxcitons confinados em ilhas que correspondem ao poço A, de menor energia, podem ser transferidos para ilhas que correspondem ao poço B, de largura e energia intermediárias, através da ativação térmica; o mesmo ocorre com éxcitons confinados em ilhas B que podem ser transferidos para ilhas C, isto é, poço de menor largura.



*Figura V.6: Deconvolução de um espectro de PL usando-se três curvas Gaussianas. O sucesso do ajuste indica a predominância dos efeitos das flutuações estatísticas nesta amostra.*

Tomando-se a diferenças de energia para os pares de picos A-B e B-C (ver espectro superior na figura V.5) encontramos aproximadamente 7.2 meV para ambos os pares. Este valor é compatível com os valores obtidos para as energias de ativação térmica dos poços A e B, confirmando nossa interpretação de transferência de éxcitons entre ilhas.

Os éxcitons do poço C, por sua vez, não podem ser transferidos para outros, já que não há poços mais estreitos (ou de maior energia). Neste caso, então, a energia de ativação térmica (15.0 meV) tem valor próximo à energia de ligação dos éxcitons (ver seção IV.2).

POÇO	LARGURA (Å)
A	45.2
B	42.5
C	39.6

*Tabela V.1: Largura de cada um dos poços, obtidas após cálculo das energias de transição óptica e comparação com o espectro de PLE.*

Realizamos o cálculo das energias das transições  $E_1$ - $HH_1$  usando as equações (6) e (7) da seção II.1 e comparamos com as energias do espectro (1) da figura V.5. Usando a concentração de Alumínio de 30 % ( $x = 0.3$ ) e variando a largura dos poços encontramos que os poços A, B e C possuem larguras de aproximadamente 45.2, 42.5 e 39.6 Å, respectivamente. A Tabela V.1 resume os resultados.

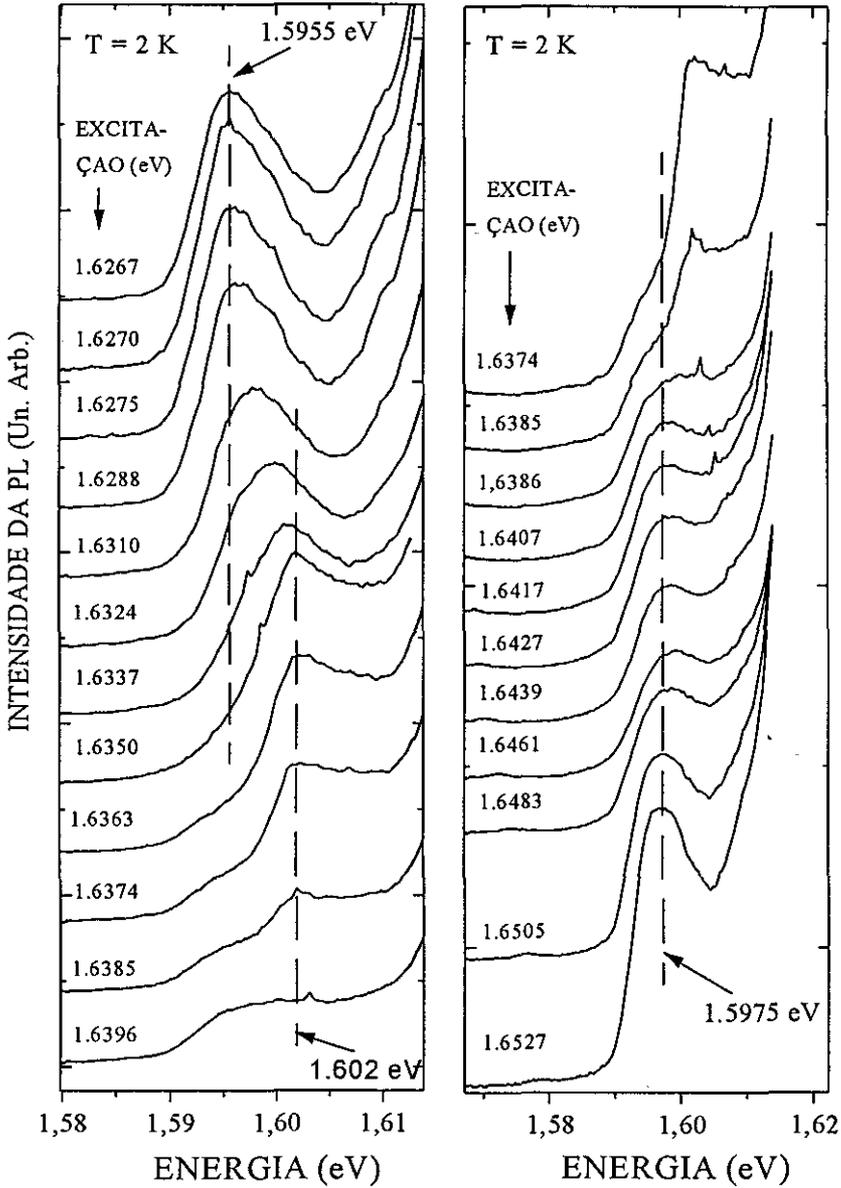
### ***V.3 - TRANSIÇÕES “FREE-TO-BOUND”: ENERGIA DE LIGAÇÃO DOS ACEITADORES DE Be.***

Ao se investigar o espectro de emissão (PL) na região de energias abaixo das transições excitônicas observamos um pico o qual nós associamos com a recombinação de um elétron livre na banda de condução com um aceitador na banda de valência, isto é, a chamada transição “free-to-bound”, a qual temos chamado de transição FB (ver seção II.3).

O que nos chamou a atenção, inicialmente, foi que a posição deste pico variava com a energia de excitação. Assim foram feitas medidas de PL Seletiva, na região de baixas energias, onde a amostra foi excitada seletivamente através de um laser de Ti-Sa. Procurou-se variar a energia de excitação de forma a se criar portadores em cada um dos três poços, preferencialmente.

Os espectros obtidos são apresentados na figura V.7. Deve-se atentar para as energias de excitação usadas em cada espectro, as quais são indicadas na figura

e, observando o espectro PLE mostrado na parte superior da figura V.8, notar em qual dos poços os portadores são criados em cada caso.



*Figura V.7: Transições FB obtidas em diferentes energias de excitação. Observar em qual dos poços os portadores são criados em cada caso comparando as energias de excitação indicadas com o espectro superior da figura V.8, abaixo.*

As larguras dos picos são de aproximadamente 7 meV. A questão da forma de linha será discutida na seção V.4, adiante.

No gráfico da direita, parte superior, os espectros foram obtidos excitando-se a amostra em ressonância com o pico A (HH) do espectro de PLE (ver figura V.8), ou seja, os portadores foram criados, preferencialmente, no poço A. Nota-se que as posições do máximo dos picos é de aproximadamente 1.595 eV. Desta forma afirmamos que esta energia corresponde à transição FB relacionada com aceitadores confinados no poço quântico com largura de 45.2 Å (Poço A).

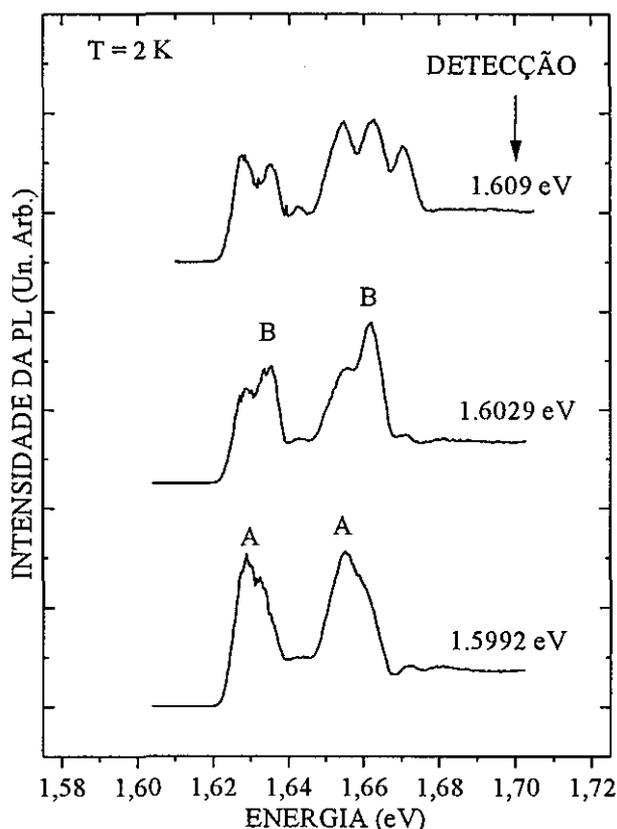
Aumentando-se a energia de excitação o pico FB desloca-se para altas energias e quando a excitação fica em ressonância com a energia do pico B (HH) do espectro de PLE (ver figura V.8), a posição do máximo dos picos FB é de aproximadamente 1.602 eV. Este é o valor da transição FB relacionada com os portadores confinados no poço B, com largura de 42.5 Å.

No gráfico da esquerda (parte inferior) as energias de excitação são próximas à energia do pico C (HH) do espectro de PLE (figura V.8) e o máximo dos picos FB está em aproximadamente 1.597 eV.

Ao observar o espectro superior da figura V.8 nota-se que o pico C (HH) tem baixa intensidade e está convoluído com as caudas dos picos B (HH) e A (LH). Isto impede de se criar portadores no poço C de forma seletiva. Em nosso ponto de vista, ao se excitar a amostra nesta região de energias está-se criando portadores principalmente nos poços A e B. Desta forma os picos FB observados correspondem, neste caso, à mistura da recombinação associada aos aceitadores confinados nos poços A e B.

A emissão relacionada com aceitadores no poço C foi observada também quando excitamos a amostra em ressonância com a energia do pico C, na região LH. Este espectro não aparece aqui, pois optamos por mostrar apenas aqueles onde a excitação foi feita na região HH. Ele é mostrado, porém, nas figuras V.9 e V.11 (gráfico da direita). A posição da transição FB é em aproximadamente 1.610 eV, para o poço C.

A figura V.8 mostra três espectros de PLE obtidos para detecção em diferentes energias. O espectro superior, obtido com detecção em 1.609 eV, mostra os seis picos que já foram abordados na seção anterior e vêm sendo usando como referência em nossa análise.



*Figura V.8: Espectros de PLE com diferentes energias de detecção na região das transições FB.*

De acordo com nossa interpretação, ao fixarmos o espectrômetro nesta energia (1.609 eV), é possível coletar emissão proveniente de todos os poços. Estamos medindo as emissões FB do poço C, mas também do poço B, já que os picos são largos e há uma superposição deles; por outro lado estamos detectando também a emissão proveniente da transição fundamental,  $E_1$ -HH1, do poço A pois em 1.609 eV há a presença da cauda de menor energia desta transição excitônica (ver espectros de PL da figura V.2, por exemplo).

No espectro intermediário o espectrômetro foi fixado em 1.6029 eV, transição FB do poço B, e o pico destacado no espectro de PLE é justamente o pico B. No espectro inferior a energia de detecção é de 1.5992 eV e o pico destacado é o pico A. Estes dados confirmam nossa interpretação baseada em aceitadores confinados em poços de diferentes larguras.

“Em resumo, observamos a emissão “free-to-bound” associada a aceitadores de Be confinados em poços de diferentes larguras. A presença destes poços é decorrente da presença de ilhas planas e extensas, formadas a partir da variação de monocamadas na interface. Até onde nos consta da literatura esta é a primeira vez que se observa tal efeito.”

Como foi discutido na seção II.3, usando as energias da transição FB, podemos obter a energia de ligação dos aceitadores de Be,  $E_{Be}$ , a qual é medida em relação ao “gap” efetivo do poço [Miller 1982a] que é dado, por sua vez, pela posição do pico de PLE acrescido da energia de ligação do éxciton. Temos assim:

$$E_{Be}^b = E_{PLE} + E_{bx} - E_{FB}$$

Desta forma a partir das transições FB, das medidas de PLE e das energias de ligação dos éxcitons, calculadas com a equação (7), foram obtidas as energias de ligação para os aceitadores confinados em cada um dos poços, de diferentes larguras, presentes em nossa amostra.

Os dados são mostrados na tabela V.2 onde são comparados com valores teóricos, os quais foram obtidos a partir da digitalização da figura 8 da referência [Masselink 1985].

POÇO	$E_{FB}$ (meV) (TEÓRICO)	$E_{FB}$ (meV) (EXPERIMENTAL)
A (45.2 Å)	44.2	41.3
B (42.5 Å)	45.6	42.1
C (39.6 Å)	48.0	43.4

*Tabela V.2: Valores das energias de ligação experimental dos aceitadores de Be em comparação com os valores teóricos obtidos da referência [Masselink 1985].*

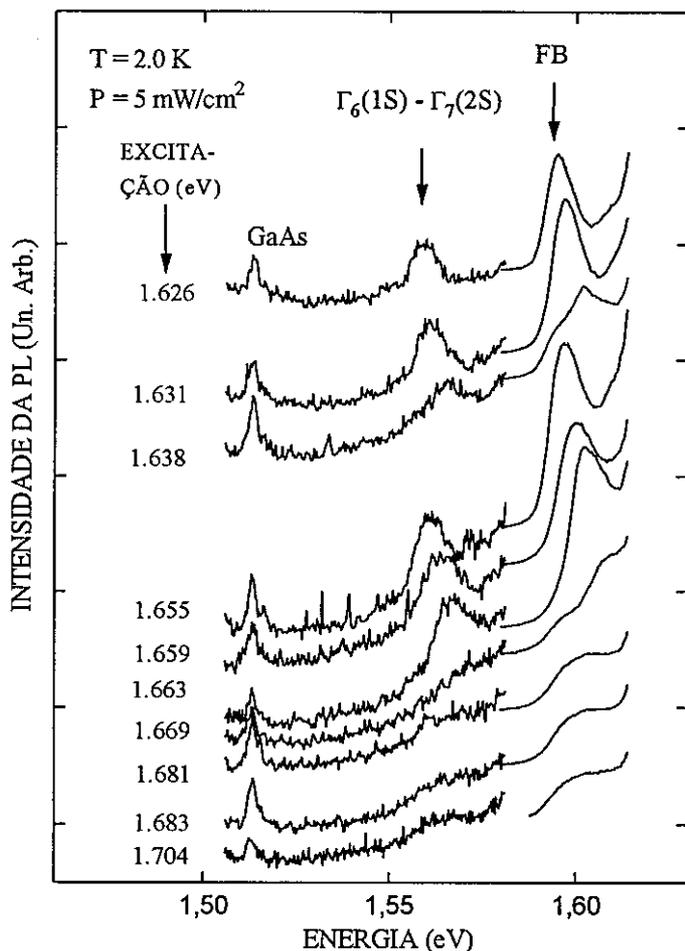
A diferença entre os valores teóricos e experimentais mostrados na tabela acima podem ser considerados aceitáveis se compararmos com trabalhos anteriores (Holtz 1989a e Holtz 1989b). O fato de estarmos trabalhando com picos relativamente largos introduz uma incerteza no valor experimental. A questão da energia de ligação voltará a ser discutida na seção V.5.

#### **V.4: ESTADOS EXCITADOS DOS ACEITADORES DE Be**

Na seção II.3 nos referimos ao modelo “Two-Hole-Transition” (THT) o qual pode ser usado para determinar as energias dos estados excitados dos aceitadores. De acordo com este modelo, durante a recombinação do éxciton ligado ao aceitador, há uma probabilidade não nula de que o aceitador permaneça num estado excitado, após a recombinação [Holtz 1993].

Uma investigação do espectro de PL, na região de energias abaixo da transição FB, mostra uma estrutura pouco intensa a qual identificamos como uma transição THT.

Selecionamos alguns espectros, obtidos para diferentes energias de excitação, os quais são mostrados na figura V.9. Nesta figura aparecem os picos associados ao GaAs “bulk”, com energia de 1.513 eV, à transição THT e à transição FB.



*Figura V.9: Espectros de PL para diferentes energias de excitação onde aparecem o pico do GaAs (1.513 eV) e os picos associados às transições “free-to bound” e  $\Gamma_6(1S) - \Gamma_7(2S)$ .*

Como pode ser visto na figura, a energia do pico THT varia com a energia de excitação da mesma forma que a energias do pico relacionado à transição FB. Verifica-se que as diferenças de energia entre os picos THT e FB são aproximadamente constante. Isto indica que estamos observando, novamente, a emissão associada a aceitadores confinados em poços com diferentes larguras.

Para se obter a diferença de energia entre o estado fundamental (1S) e o estado excitado (2S) do aceitador deve-se tomar a diferença de energia entre os picos THT e do éxciton ligado (BE) ao aceitador.

Não observamos o pico BE devido ao fato de que, em nossa amostra, as larguras dos poços são relativamente pequenas, o que faz aumentar a intensidade da emissão do éxciton livre em relação à emissão do BE. Além disso a concentração de Be é baixa ( $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ). Desta forma, determinamos a posição do pico BE descontando, do pico do éxciton livre ( $E_1\text{-HH}_1$ ), o valor da energia de ligação do BE calculada por Miller [Miller 1982b].

Na parte superior da figura V.9 temos os espectros obtidos com energia de excitação de 1.626 eV (pico do poço A com largura de 45.2 Å) e com energia de 1.638 eV (pico do poço B com largura de 42.5 Å); os picos THT em cada um destes espectros têm energia de 1.559 e 1.566 eV, respectivamente. É importante comentar que para analisar adequadamente as energias de excitação usadas deve-se consultar a figura V.8 (espectro superior).

Na parte intermediária da figura temos os espectros obtidos para excitação na região do buraco leve (LH). Pode-se notar que as energias do pico THT são próximas daquelas obtidas com excitação na região do buraco pesado, que aparecem na parte superior desta figura V.9.

Para excitação em ressonância com o pico C (HH ou LH), isto é, quando os portadores são foto-gerados preferencialmente no poço C, o pico THT não fica bem definido. Desta forma iremos calcular a energia dos estados excitados apenas para os poços A e B.

Analisando a posição dos picos foi possível identificar a transição THT, mostrada na figura V.9, como estando associada à transição do primeiro nível (1S) do aceitador de buraco pesado (simetria  $\Gamma_6$ ) para o segundo nível (2S) de buraco leve (simetria  $\Gamma_7$ ), isto é, à transição  $\Gamma_6$  (1S) -  $\Gamma_7$  (2S).

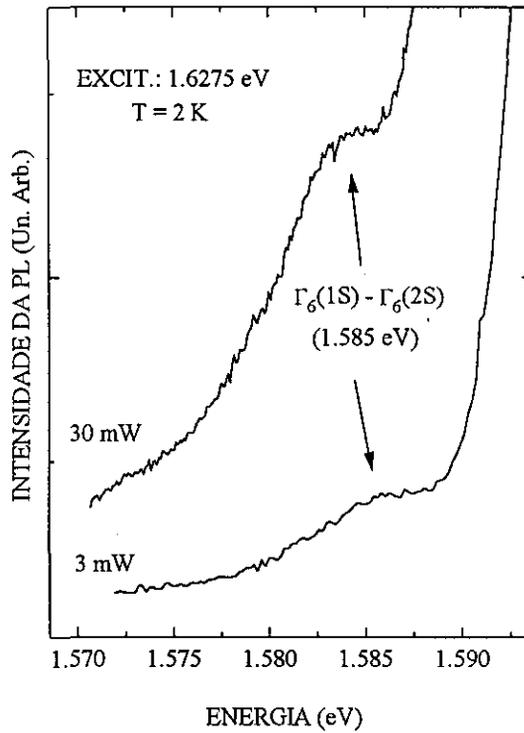
O valor teórico desta transição pode ser obtido da figura II.2, que corresponde aos cálculos da referência [Masselink 1985].

A tabela V.3, abaixo, resume os resultados. Pode-se concluir que há uma boa concordância entre os valores teóricos e experimentais, o que confirma a associação proposta.

POÇO	$E_{BE}^*$ (eV)	$E_{PL}$ (eV)	$E_{THT}$ (meV)	$\Gamma_6(1S) - \Gamma_7(2S)$ - Experimental - (meV)	$\Gamma_6(1S) - \Gamma_7(2S)$ - Teórico - (meV)
A(45.2 Å)	6.5	1.626	1.559	60.5	57.0
B(42.5 Å)	6.7	1.634	1.566	61.3	59.0
C(39.6 Å)	7.0	1.638	?	-	-

\* obtido da referência [Miller 1982b].

*Tabela V.3: Valores teóricos e experimentais da transição  $\Gamma_6(1S) - \Gamma_7(2S)$ . Os valores experimentais foram obtidos usando o modelo THT e os valores teóricos foram extraídos da referência [Masselink 1985].*



*Figura V.10: Espectros de PL mostrando o pico THT associado à transição  $\Gamma_6(1S) - \Gamma_6(2S)$ .*

Além da transição THT que foi mostrada na figura V.9 foi observada uma outra, com energia de 1.585 eV, a qual aparece apenas para excitação ressonante com o pico A, ou em outras palavras, apenas quando os portadores são foto-gerados no poço A, que possui largura de 45.2 Å. Este pico é mostrado na figura V.10 em dois espectros, obtidos para diferentes potências de excitação.

Em nossa interpretação o pico observado corresponde à transição do primeiro nível (1S) para o segundo nível (2S) do buraco pesado ( $\Gamma_6$ ) do aceitador, isto é, à transição  $\Gamma_6$  (1S) -  $\Gamma_6$  (2S).

Seguindo o mesmo procedimento anterior e usando o valor de 6.5 meV para a energia de ligação do éxciton ligado ao aceitador e o valor do pico de PL para o poço A (1.626 eV), retirados da tabela V.3, encontramos 34.7 meV para a transição  $\Gamma_6$  (1S) -  $\Gamma_6$  (2S).

Por outro lado o valor teórico extraído da figura II.2 [Masselink 1985] é de 32.7 meV. Novamente podemos afirmar que a concordância entre nosso valor experimental e o teórico é bastante razoável. Em resumo:

“ Observamos, pela primeira vez, transições THT relacionadas com os estados excitados  $\Gamma_6(2S)$  e  $\Gamma_7(2S)$  de aceptadores de Be, confinados em poços de diferentes larguras, como consequência da presença de ilhas planas e extensas na interface dos poços quânticos. Os picos observados foram associados às transições  $\Gamma_6$  (1S)  $\rightarrow$   $\Gamma_7$  (2S) e  $\Gamma_6$  (1S)  $\rightarrow$   $\Gamma_6$  (2S). Os valores de energia, obtidos experimentalmente, concordam com os valores teóricos”.

#### **V.5 - FORMA DE LINHA DA TRANSIÇÃO “FREE-TO-BOUND”**

Nós calculamos a forma de linha para a transição FB para os três poços A, B e C. Os cálculos foram feitos seguindo o trabalho de Oliveira e Gondar [Oliveira 1990] conforme foi discutido na seção II.2.

O programa usado foi cedido pelo Prof. Luíz Eduardo Oliveira e foi adaptado para o nosso caso específico. As modificações introduzidas foram a massa efetiva apropriada para aceitadores de Be, as energias das sub-bandas dos poços e a distribuição de impurezas ao longo do poço.

A massa efetiva usada foi de 0.32 que resulta no Rydberg efetivo para o Be no GaAs “bulk” (28 meV), se considerarmos o valor de 12.53 para a constante dielétrica do GaAs [Fraizzoli 1993]. As energias das sub-bandas foram calculadas num programa em separado.

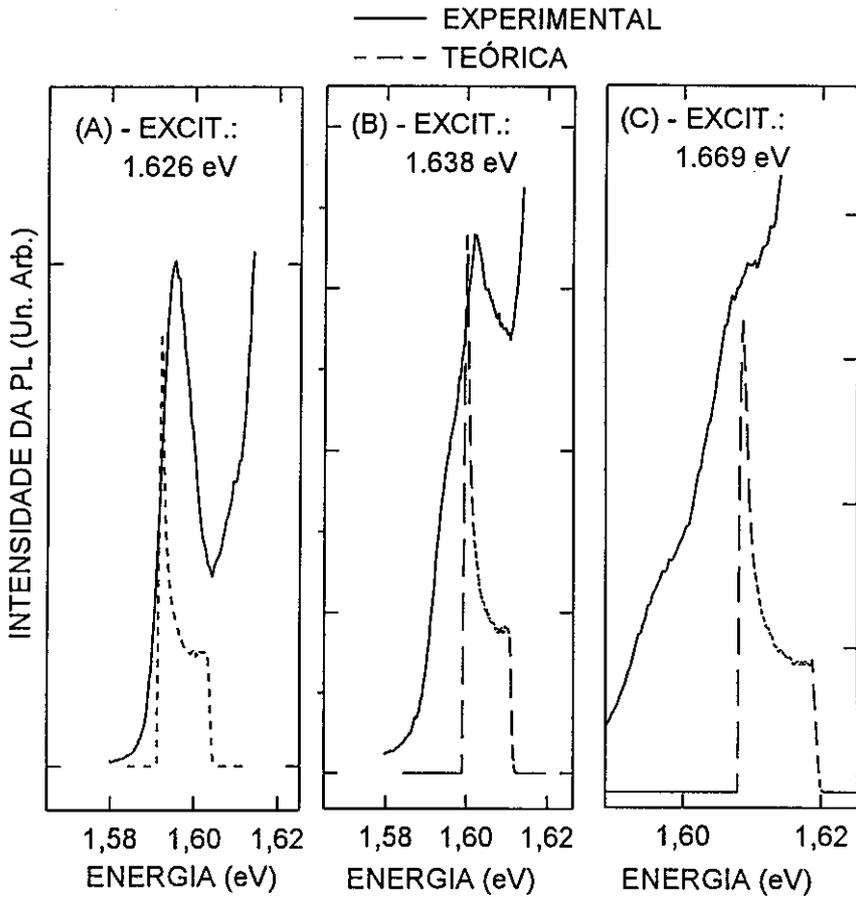
Nominalmente, a amostra possui dopagem uniforme na região central do poço, conforme foi descrito na seção V.1, sendo que sempre foram deixadas sem dopagem duas camadas próximas às interfaces. Em nossos cálculos consideramos então que 5.66 Å (2 monocamadas de GaAs) próximos a cada interface não possuíam dopagem, enquanto o restante do poço possuía dopagem uniforme. Como nossa amostra possui poços de diferentes larguras a porcentagem de região dopada em cada um é ligeiramente diferente.

A figura V.11 apresenta os espectros experimentais, juntamente com os teóricos, para cada um dos poços presentes em nossa amostra, os espectros experimentais foram escolhidos dentre aqueles apresentados na figura V.9.

Na figura da esquerda temos o espectro FB obtido com a amostra sendo excitada com energia de 1.626 eV (portadores foto-gerados no poço A). A figura central apresenta o espectro onde a excitação foi feita com energia de 1.638 eV (poço B) e na figura da direita a energia foi de 1.669 eV (poço C).

Comparando o máximo dos picos em cada figura encontramos uma diferença de aproximadamente 3.0 e 2.0 meV, para os poços A (figura da esquerda) e poço B (figura central), respectivamente. Para o poço C (figura da direita) praticamente não há diferença.

Podemos afirmar, assim, que os cálculos realizados foram eficientes em prever a posição, em energia, das transições FB para cada poço. Como esta posição está associada à energia de ligação dos aceitadores de Be pode-se concluir que os cálculos realizados prevêm adequadamente as energias de ligação dos aceitadores.



*Figura V.11: Forma de linha experimental (—) e teórica (- - -) da transição “free-to-bound” para os poços A, B e C.*

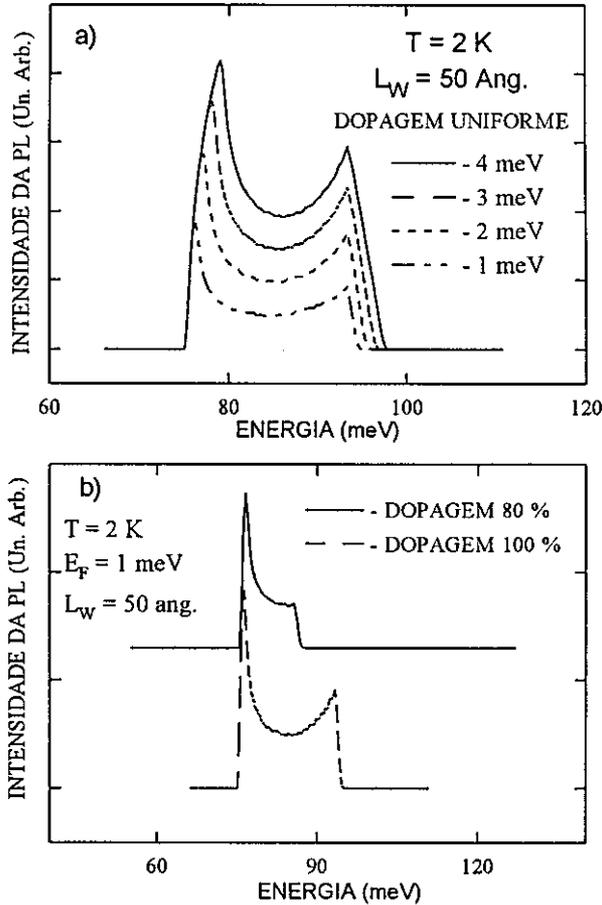
Quanto à forma de linha verifica-se que as curvas teóricas são estreitas em comparação às curvas experimentais, nos três casos.

Como foi comentado no capítulo II, seção II.3, o quase-nível de Fermi e a banda de aceitadores são fatores que influenciam na largura da linha da luminescência FB, além da temperatura da amostra (ver figura 1, da referência [Oliveira 1990]).

A largura da banda de aceitadores varia de acordo com o perfil das impurezas no poço. O nível de Fermi depende da intensidade do feixe de radiação (densidade de potência) usada na medida.

A figura V.12 mostra linhas de PL calculadas em diferentes situações; em ambos os casos usou-se  $T = 2$  K.

Na parte (a) as curvas foram obtidas para diferentes energias do quase-nível de Fermi e com dopagem uniforme, isto é, ao longo de todo o poço. Em cada espectro o pico da direita corresponde à emissão associada aos aceitadores próximos à interface enquanto o da esquerda corresponde à emissão associada aos aceitadores presentes na região central do poço.



*Figura V.12: Linhas de PL calculadas : a) para dopagem uniforme e diferentes energias de Fermi e b) para  $E_F = 1.0$  meV e diferentes perfis de dopagem. Em ambos os casos considerou-se  $T = 2$  K.*

Podemos notar que a variando o quase-nível de Fermi entre 1 e 4 meV a largura dos picos se alteram dentro desta faixa de energia. Por outro lado de acordo

com trabalho teórico de Oliveira e Leyva [Oliveira 1993] mesmo para altas potências de excitação, em  $T = 2$  K, a energia do quase-nível de Fermi é da ordem de 1.0 meV ou menor. Com base nisto podemos afirmar que o responsável pela disparidade entre a curva teórica e experimental não se deve, provavelmente, ao valor da energia do quase-nível de Fermi.

Na parte (b) o espectro superior representa a situação em que apenas 80% do poço quântico foi dopado e o inferior a situação em que todo o poço (100 %) foi dopado; em ambos os casos a energia do quase-nível de Fermi foi fixada em 1.0 meV. Pode-se notar claramente que no poço com 80% de dopagem o efeito sobre a linha de PL é o desaparecimento do pico associado à emissão dos aceitadores localizados nas proximidades da barreira (região de maior energia), não havendo alteração no restante do espectro. Fica evidente, portanto, que variações no perfil de dopagem não seriam suficientes para explicar as diferenças das curvas teórica e experimental.

Como já foi apontado na seção II.3, neste cálculo da forma de linha, não se está considerando nenhum tipo de alargamento devido às flutuações estatísticas e devido à interação de estado-final. Com base na discussão acima podemos concluir que, em nossa amostra, estes efeitos devem ser levados em consideração caso se queira descrever adequadamente a forma de linha da fotoluminescência relacionada à transição FB.

Em resumo, podemos concluir que:

“a) os cálculos realizados, de acordo com o modelo descrito na seção II.3, são bastante eficientes em prever as energias de ligação dos aceitadores e

b) nossos resultados experimentais mostram que devem ser considerados alargamentos devido às flutuações estatísticas, principalmente o alargamento Gaussiano, na descrição da forma de linha da PL.”

# *CAPÍTULO VI*

## *CONCLUSÕES GERAIS*

O presente trabalho tratou das propriedades ópticas de um sistema de Múltiplos Poços Quânticos de GaAs/Ga<sub>0,7</sub>Al<sub>0,3</sub>As, com 20 períodos, onde as amostras foram crescidas pela técnica MBE. Foram estudadas duas amostras. Uma delas não possuía nenhum tipo de dopagem intencional, seja na barreira ou no poço e a outra contava com uma dopagem de Be na região central do poço. As técnicas experimentais usadas foram a PL e a PLE.

Na primeira parte do trabalho, que trata da amostra sem dopagem, a ênfase recaiu sobre a natureza de um éxciton ligado e sobre as propriedades da interface da amostra.

As propriedades excitônicas da amostra foram caracterizadas através da determinação experimental das transições ópticas e sua comparação com os valores esperados teoricamente; determinamos também os valores das energias dos estados excitados (2S) dos éxcitons, os quais estão em concordância com os previstos pela teoria.

Observamos, no espectro de PL desta primeira amostra, uma linha com energia menor que a linha do éxciton livre, a qual foi associada a um éxciton ligado. Esta associação foi feita a partir de medidas de PLE, e PL em função da temperatura e da potência de excitação e uma análise da forma de linha. Um estudo do comportamento do espectro de PL, para diferentes energias de excitação, nos levou a propor que o éxciton ligado está preso a defeitos ionizados e localizados na interface em contraposição à interpretação de outros autores [Srinivas 1994].

Realizamos medidas de PL em função de um campo magnético, aplicado perpendicularmente à superfície da amostra, e analisamos o pico relacionado ao éxciton livre. Usando a dimensão lateral do éxciton e a largura de linha da PL em  $B = 0$  foi possível avaliar as dimensões das microrugosidades na interface, através do modelo de Singh e Bajaj [Singh 1985]. O valor encontrado foi de 37 Å concordando

com resultados de Microscopia Eletrônica de Transmissão, presentes na literatura [Warwick 1992]. Além disso acompanhamos a variação da largura de linha da PL em função do campo magnético e comparamos com os previstos pela teoria de Singh e Bajaj. Concluímos que o modelo descreve bem a influência dos parâmetros estruturais da interface sobre as propriedades de emissão dos éxcitons.

No estudo da segunda amostra, com dopagem de Be no poço, enfatizamos a influência de ilhas planas e extensas, presentes na interface, sobre as propriedades ópticas dos aceitadores.

Medidas de PLE e de PL em função da temperatura e da potência de excitação mostraram a presença de três poços com diferentes larguras. Isto ocorre devido à formação de ilhas na interface em decorrência da variação de monocamadas.

Observamos a transição “free-to-bound” associada aos aceitadores sob a ação dos diferentes potenciais de confinamento e extraímos a energia de ligação dos aceitadores em cada caso. Usando o modelo THT medimos as energias dos estados excitados (2S) dos aceitadores confinados. Em ambos os casos os valores experimentais foram comparados com as previsões teóricas de Masselink e colaboradores [Masselink 1985], obtendo-se uma boa concordância.

Calculamos a forma de linha da PL associada à transição “free-to-bound”, usando a aproximação de massa efetiva e comparamos com nossos resultados experimentais. Encontramos ótima concordância em relação a posição dos picos, ou seja, em relação às energias de ligação dos aceitadores. Nossos resultados também mostraram a necessidade de se considerar efeitos de alargamento do tipo Gaussiano para compor a largura da linha da PL.

Em resumo, nosso trabalho possibilitou testar algumas previsões teóricas e acrescentou novos resultados relacionados com éxcitons e com aceitadores de Be confinados em poços quânticos.

## ***BIBLIOGRAFIA***

- [Akimoto 1967] - O. Akimoto and H. Hasegawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **22**, 181 (1967).
- [Aksenov 1995] - I. Aksenov, J. Kusano, Y. Aoyagi, T. Sugano, T. Yasuda, and Y. Segawa, *Phys. Rev. B* **51**, 4278 (1995).
- [Andreani 1987] - L. C. Andreani, A. Pasquarello, and F. Bassani, *Phys. Rev. B* **36**, 5887 (1987).
- [Andreani 1990] - L. C. Andreani and A. Pasquarello, *Phys. Rev. B* **42**, 8928 (1990).
- [Bacher 1993] - G. Bacher, C. Hartmann, H. Schweizer, T. Held, G. Mahler, and H. Nickel, *Phys. Rev. B* **47**, 9545 (1993).
- [Bastard 1981] - G. Bastard, *Phys. Rev. B* **24**, 4714 (1981).
- [Bastard 1988] - G. Bastard, “Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures”, *Les Éditions de Physique*, Paris, 1988.
- [Bauer 1987] - R. Bauer, D. Bimberg, J. Christen, D. Oertel, D. Mars, J. N. Miller, T. Fukunaga, and H. Nakashima, in: *Proc. 18 th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors*, Stockholm, 1986, Ed. O. Engstrom (World Scientific, Singapore, 1987) p. 525.
- [Bebb 1972] - H. B. Bebb and E. W. Willians in “Semiconductors and Semimetals”, vol 8, p. 161, edited by R. K. Willardson and A. C. Beer, Academic Press, Ney York, 1972.

[Bimberg 1986] - D. Bimberg, D. Mars, J. N. Miller, R. Bauer, and D. Oertel, *J. Vac. Sci. Technol. B* **4**, 1014 (1986).

[Brener 1995] - I. Brener, W. H. Knox, W. Schaefer, *Phys. Rev. B* **51**, 2005 (1995).

[Charbonneau 1988] - S. Charbonneau, T. Steiner, M. L. W. Thewalt, E. S. Koteles, J. Y. Chi, and B. Elman, *Phys. Rev. B* **38**, 3583 (1988).

[Chen 1988] - Y. Chen, B. Gil, P. Lefebvre, and H. Mathieu, *Phys. Rev. B* **37**, 6429 (1988).

[Christen 1990] - J. Christen and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **42**, 7213 (1990).

[Damen 1990] - T. C. Damen, J. Shah, D. Y. Oberli, D. S. Chemla, J. E. Cunningham, and J. M. Kuo, *Phys. Rev. B* **42**, 7434 (1990).

[Daniel 1966] - D. J. Daniel and C. B. Duke, *Phys. Rev.* **152**, 683 (1966).

[Deveaud 1987] - B. Deveaud, T. C. Damen, and J. Shah, *App. Phys. Lett.* **51**, 828 (1987).

[Dingle 1975] - R. Dingle, *Festkorperprobleme* **15**, 21 (1975).

[Einevoll 1990] - G. T. Einevoll and Y-C. Chang, *Phys. Rev. B* **41**, 1447 (1990).

[Ekemberg 1987] - U. Ekemberg and M. Altarelli, *Phys. Rev. B* **35**, 7585 (1987).

[Esaki 1970] - L. Esaki and R. Tsu, *IBM J. Rev.* **14**, 61 (1970).

[Fendley 1995] - P. Fendley, A. W. W. Ludwig, and H. Seleur, Phys. Rev. B **52**, 8934 (1995).

[Fraizzoli 1990] - S. Fraizzoli and A. Pasquarelo, Phys. Rev. B **42**, 5349 (1990).

[Fujiwara 1991] - K. Fujiwara, H. Katahama, K. Kanamoto, R. Cingolani, and K. Ploog, Phys. Rev. B **43**, 13978 (1991).

[Gammon 1986] - D. Gammon, R. Merlin, W. T. Masselink, and H. Morkoç, Phys. Rev. B **33**, 2919 (1986).

[Greene 1983] - R. L. Greene and K. K. Bajaj, Solid State Commun. **45**, 825 (1983).

[Holtz 1989a] - P. O. Holtz, M. Sundaram, R. Simes, J. L. Merz, A. C. Gossard, and J.H. English, Phys. Rev. B **39**, 13293 (1989).

[Holtz 1989b] - P. O. Holtz, M. Sundaram, K. Doughty, J. L. Merz, and A. C. Gossard, Phys. Rev. B **40**, 12338 (1989).

[Holtz 1993] - P. O. Holtz, Q. X. Zhao, A. C. Ferreira, B. Monemar, M. Sundaram, J. L. Merz, and A. C. Gossard, Phys. Rev. B **48**, 8872 (1993).

[Kleinman 1983] - D. A. Kleinman, Phys. Rev. B **28**, 871 (1983).

[Kopf 1991] - R. F. Kopf, E. F. Schubert, T. D. Harris, and R. S. Becker, App. Phys. Lett. **58**, 631 (1991).

[Kumagai 1989] - M. Kumagai and T. Takagahara, Phys. Rev. B **40**, 12359 (1989).

- [Kusano 1989] - J. Kusano, Y. Segawa, Y. Aoyagi, S. Namba, and H. Okamoto, Phys. Rev. B **40**, 1685 (1989).
- [Landolt-Börnstein 1982] - Landolt-Börnstein, "Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, edited by O. Madelung, Springer, Berlin, 1982.
- [Liu 1988] - X. Liu, A. Petrou, A. L. Moreti, F. A. Chambers, and G. P. Devane, Superlat. Microstruct. **4**, 141 (1988).
- [Liu 1993] - X. Liu, S. Nilsson, L. Samuelson, W. Seifert, and P. L. Souza, Phys. Rev. B **47**, 2203 (1993).
- [Luttinger 1956] - J. M. Luttinger, Phys. Rev. **102**, 1030 (1956).
- [Mailhiot 1982] - C. Mailhiot, Y-C. Chang, and T. C. McGill, Phys. Rev. B **26**, 4449 (1982).
- [Masselink 1983] - W. T. Masselink, Y-C. Chang, and H. C. Morkoç, Phys. Rev. B **28**, 7373 (1983).
- [Masselink 1985] - W. T. Masselink, Y-C. Chang, and H. C. Morkoç, Phys. Rev. B **32**, 5190 (1985).
- [Mendonça 1993] - C. A. C. Mendonça, Tese de Doutorado, IFGW-UNICAMP (1993).
- [Meynadier 1985] - M. H. Meynadier, J. A. Brum, C. Delalande, and M. Voos, J. Appl. Phys. **58**, 4307 (1985).

- [Miller 1982a] - R. C. Miller, A. C. Gossard, W. T. Tsang, and O. Munteanu, Phys. Rev. B, **25**, 3871 (1982).
- [Miller 1982 b] - R. C. Miller, A. C. Gossard, W. T. Tsang and O. Munteanu, Solid State Commun., **43**, 519 (1982).
- [Miller 1985] - R. C. Miller and D. A. Kleinman, J. of Luminescence **30**, 520 (1985).
- [Oelgart 1994] - G. Oelgart, B. Orschel, L. C. Andreani, and H. Rhan, Phys. Rev. B **49**, 10456 (1994).
- [Oliveira 1990] - L E. Oliveira and J. L-Gondar, Phys. Rev. B **41**, 3719 (1990).
- [Oliveira 1993] - L. E. Oliveira and M. D. Leyva, Phys. Rev. B **48**, 15092 (1993).
- [Ossau 1986] - W. Ossau, B. Jakel, E. Bangert, and G. Landwehr, Surf. Sci. **174**, 189 (1986).
- [Ourzmad 1989] - A. Ourzmad, D. W. Taylor, J. Cunningham, and C. W. Tu, Phys. Rev. Lett, **62**, 933 (1989).
- [Pasquarello 1989] - A. Pasquarello, L. C. Andreani, and R. Buczko, Phys. Rev. B **40**, 5602 (1989).
- [Plentz 1993] - F. O. Plentz, Tese de Doutorado, IFGW-UNICAMP (1993).
- [Potemski 1989] - M. Potemski, J. C. Maan, A. Fasolino, K. Ploog, and G. Weimann, Phys. Rev. Lett. **21**, 2409 (1989).

- [Potemski 1990] - M. Potemski, J. C. Maan, A. Fasolino, K. Ploog, and G. Weimann, *Surf. Sci.* **229**, 151 (1990).
- [Prange 1990] - R. E. Prange and S. M. Girvin, "The Quantum Hall Effects", Springer, New York, 1990.
- [Reeder 1988] - A. A. Reeder, B. D. McCombe, F. A. Chambers, and G. P. Devane, *Phys. Rev. B* **38**, 4318 (1988).
- [Sapega 1994] - V. F. Sapega, T. Rulf, M. Cardona, K. Ploog, E. L. Ivchenko, and D. N. Mirlin, *Phys. Rev. B.* **50**, 2510 (1994).
- [Schubert 1984] - E. F. Schubert, E. O. Gobel, Y. Horikoshi, K. Ploog, and H. J. Quesser, *Phys. Rev. B* **30**, 813 (1984).
- [Singh 1984] - J. Singh, K. K. Bajaj, and S. Chaudhuri, *App. Phys. Lett.* **44**, 805 (1984).
- [Singh 1985] - J. Singh and K. K. Bajaj, *J. Appl. Phys.* **57**, 5433 (1985).
- [Srinivas 1994] - V. Srinivas, Y. J. Chen, and C. E. C. Wood, *Solid State Commun.* **89**, 611 (1994)
- [Sugawara 1992] - M. Sugawara, *Phys. Rev. B* **45**, 11423 (1992).
- [Takahashi 1994] - Y. Takahashi, S. S. Kano, K. Muraki, S. Fukatsu, Y. Shiraki, and R. Ito, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1845 (1994).
- [Warwick 1992] - C. A. Warwick and R. P. Kopf, *App. Phys. Lett.*, **60**, 386 (1992).

[Weisbuch 1991] - C. Weisbuch and B. Vinter, "Quantum Semiconductor Structures - Fundamentals and Applications", Academic Press, Boston, 1991.