Relaxação de Spin em Poços Quânticos de Semicondutores

Adriana Lúcia Cerri Triques

Orientador: José Antônio Brum

Este exemplar consuponde a verião final da tese de doutorado de Adeiana hicia Cere; Triques, defendida + aprovada pela Comissão Examinadoro. desembro, 1996

Tese apresentada ao Instituto de Física "Gleb Wataghin" da Universidade Estadual de Campinas como parte dos requisitos à obtenção do título de Doutor em Ciências dezembro de 1996

7.05-



PARECER DE APROVAÇÃO DEFESA DE TESE DE DOUTORADO DE ADRIANA LÚCIA CERRI TRIQUES

DATA: 03 / 12 / 96

BANCA EXAMINADORA:

ZBZ

- Prof. Dr. JOSÉ ANTONIO BRUM (Orientador)

1 and tigin loenes burnaries

- Prof. Dr. PAULO SÉRGIO SOARES GUIMARÃES

- Prof. Dr. MARCELO ZOÉGA MAIALLE

00,) 11 de

- Prof. Dr. FERNANDO CERDEIRA

- Prof. Dr. CARLOS HENRIOUE DE BRITO CRUZ

Secretaria de Pós-Graduação Caixa Postal 6165

Este trabalho contou com o apoio financeiro do CNPq e FAEP-UNICAMP

Resumo

Nesta tese, estudamos a relaxação de spin de excitons em poços quânticos de semicondutores.

Iniciamos o estudo com um cálculo da dispersão do centro-de-massa do exciton no plano do poço quântico, incluindo o acoplamento entre as bandas de buraco leve e pesado no Hamiltoniano de Luttinger. Estudamos a mistura de estados de spin decorrente do acoplamento entre os excitons, discutindo a importância do acoplamento na relaxação de spin do exciton.

Na sequência, estudamos a relaxação de spin através da medida da polarização da fotoluminescência em poços quânticos de semicondutores. Utilizamos as técnicas de fotoluminescência e a fotoluminescência de excitação com luz circularmente polarizada, nos modos contínuo e resolvido no tempo. Neste trabalho, abordamos duas situações físicas. Na primeira situação, investigamos uma amostra onde a localização excitônica é forte, e a relaxação de spin é completamente determinada pela dinâmica dos excitons localizados. Os resultados mostraram que a localização do exciton leva a uma relaxação do spin excitônico lenta. Na segunda situação, estudamos estados excitados na presença de um gás de elétrons. Na amostra estudada, o nível de Fermi se encontra pouco acima da segunda subbanda de condução. Os resultados evidenciaram uma conservação do spin dos elétrons com energias próximas à do nível de Fermi, a despeito da presença do gás de elétrons no sistema.

Abstract

We study the exciton spin relaxation in semiconductor quantum wells.

First, we calculate the exciton in-plane center-of-mass dispersion within the Luttinger Hamiltonian approximation. We study the coupling among the different exciton spins and discuss its importance in the exciton-spin relaxation.

Next, we study experimentally the spin relaxation in semiconductor quantum wells through measurements of photoluminescence polarization. We perform both continuous-wave and time-resolved circularly-polarized photoluminescence and photoluminescence excitation. We treat two different systems. In the first one, we investigate a sample that exibits a strong exciton localization. The excitonic spin relaxation is dominated by the localized exciton dynamics, which induces a slow spin-relaxation process. In the second system, we study excited states in the presence of a highdensity electron gas. The Fermi level is just above the second conduction subband. The results show that the photo-created electrons near the Fermi level conserve their spin despite the presence of the electron gas.

Conteúdo

R	Resumo					
A	Abstract					
Conteúdo						
1	Introdução					
2	âmica Excitônica em Poços Quânticos	8				
	2.1	Introdução	8			
	2.2 Formação de Excitons		9			
	2.3	Relaxação e termalização	11			
		2.3.1 Relaxação de fase	11			
		2.3.2 Relaxação de momento	12			
		2.3.3 Relaxação de spin	13			
	2.4	Recombinação Radiativa	19			
3	Dispersão do Centro-de-massa Excitônico em Poços Quânticos 3.1 Introdução					
	3.2	.2 Excitons Acoplados				
		3.2.1 Desenvolvimento teórico	25			

		3.2.2	Curvas de dispersão	32			
		3.2.3	Tensão: transição excitônica indireta	43			
	3.3	Mistura de Spin no Exciton Acoplado					
4	Rela	axação	de Spin do Exciton: Efeito da Localização	53			
	4.1 Introdução						
	4.2 Regras de Seleção das Transições						
	4.3	4.3 Experimental					
		4.3.1	Amostra	59			
		4.3.2	Técnicas Experimentais	60			
	4.4 Resultados						
		4.4.1	Espectroscopia em contínuo: polarização de spin excitônico	71			
		4.4.2	Espectroscopia resolvida no tempo: dinâmica de relaxação do				
			spin excitônico	77			
	4.5	j Discussões e Conclusões					
5	Pola	olarização de spin na proximidade do nível de Fermi em poço do-					
	pado tipo-n						
	5.1 Introdução						
	5.2	5.2 Amostra e Técnica Espectroscópica					
	5.3	5.3 Resultados					
		5.3.1	Dependência com a energia de excitação	91			
		5.3.2	Dependência com a energia de luminescência	97			
		5.3.3	Dependência com a potência de excitação	100			
		5.3.4	Resultados para amostra passivada	102			
	5.4	Discussões e conclusões					

v

Bibliografia

vi

Capítulo 1

Introdução

Em um cristal semicondutor puro, o estado excitado de mais baixa energia é o estado excitônico fundamental. Este estado surge a partir da excitação de um elétron da banda de valência para a banda de condução. A interação Coulombiana entre o elétron na banda de condução e os (N-1) elétrons na banda de valência (onde N é o número total de elétrons no sistema) é responsável pela formação de estados ligados, com energia menor que a energia do "gap" do material semicondutor, que são os estados excitônicos[1]. Este é um problema de muitos corpos que pode ser tratado de maneira simplificada utilizando-se o conceito de buraco para representar os (N-1) elétrons de valência em uma descrição de massa efetiva[2]. Dentro desta formulação, o exciton é uma quasi-partícula formada por um elétron e um buraco, ligados pelo potencial de Coulomb. O movimento do centro-de-massa (CM) do exciton é livre e descrito por uma onda plana com vetor de onda \vec{K}_{CM} . O exciton é, portanto, um estado extendido no cristal. Apenas o movimento reduzido do par elétron-buraco apresenta estados ligados.

A partir da idéia proposta por Esaki e Tsu em 1970[3], toda uma nova série de estruturas de semicondutores começaram a ser investigadas. O crescimento epitaxial de camadas monoatômicas permite a formação de interfaces livres de defeitos entre semicondutores diferentes com a mesma estrutura cristalina. Entre estas novas estruturas, destacamos os poços quânticos ("quantum wells"-QW), onde uma camada de certo material semicondutor com espessura da ordem de dezenas de Angstrons é crescida entre camadas de outro material semicondutor com "gap" maior. A descontinuidade do "gap" nas interfaces da estrutura pode ser interpretada, no modelo de função envelope[4,5], como formando um poço quântico de potencial para os estados de condução e valência. Quando o poço para os estados de condução se forma no mesmo material que para os estados de valência, então dizemos que a heteroestrutura é do tipo I. O confinamento espacial de elétrons e buracos em QW tipo I acarreta em um aumento da energia de ligação do exciton[6]. Este efeito faz com que os estados excitônicos sejam os dominantes nas transições ópticas fundamentais, mesmo à temperatura ambiente[7,8] e sob influência de campos elétricos externos perpendiculares ao plano do poço[9, 10]. Fortes transições excitônicas são observadas nos espectros ópticos a baixas temperaturas em amostras de alta qualidade inclusive para subbandas excitadas, a despeito da degenerescência destes estados com o contínuo excitônico em subbandas de menor energia[11]. Os espectros de fotoluminescência e sua evolução temporal são determinados pelas propriedades dos estados excitônicos e pela dinâmica de formação e relaxação dos excitons[12-15].

A quebra da degenerescência das bandas de buraco leve ("light-hole"-lh) e pesado ("heavy-hole"-hh) em $\vec{k}_h = 0$ induzida pelo potencial do QW[16,17] leva à formação de duas famílias de excitons, uma para o exciton de buraco pesado e outra para o exciton de buraco leve[18]. Cada família possui várias séries de excitons, associadas à diversas subbandas de elétrons e buracos (pesados ou leves).

Observou-se inicialmente que uma descrição parabólica para as bandas de buraco leve e pesado no plano do poço fornecia uma boa descrição dos estados excitônicos para $\vec{K}_{CM} = 0$ [6, 10, 19, 20]. O acoplamento entre as bandas de buraco leve e pesado leva a uma forte não-parabolicidade nas dispersões das bandas no plano do poço[21,22]. Embora a energia de ligação do exciton seja pouco afetada pela nãoparabolicidade das bandas de buraco[23-25], o acoplamento entre estados do movimento relativo com diferentes simetrias é fortemente afetado pelo acoplamento entre as bandas de buraco[18,26-30]. Como resultado, transições opticamente proibidas passam a ser permitidas, devido ao acoplamento entre as diversas simetrias[30-33].

A dispersão do CM do exciton no plano também é fortemente afetada pelo acoplamento das bandas de buraco. Boa parte da não parabolicidade das bandas de buraco é transferida para a dispersão excitônica[34-37]. Diversos resultados interessantes e práticos surgem do tratamento do exciton não parabólico, tais como a formação de estados excitônicos de transição indireta[34,36] e a mistura de estados de spin do exciton[37]. Estes efeitos devem influenciar na dinâmica de relaxação de spin dos excitons em poços quânticos de semicondutor. O acoplamento entre os estados excitônicos leva a um acoplamento entre os estados de spins diferentes, permitindo a relaxação do spin à medida em que os portadores ou o exciton relaxam para os estados de mais baixa energia. A maneira como o acoplamento do CM do exciton influencia na relaxação do spin depende de cada sistema físico em particular.

Com o surgimento de técnicas espectroscópicas com alta resolução temporal, diversos problemas envolvendo a dinâmica excitônica em QW de semicondutor vêm merecendo grande atenção atualmente. Entre eles, citamos: a dinâmica de formação do exciton, com momento do centro-de-massa $\vec{K}_{CM} \neq 0$, e sua relaxação para estados com $\vec{K}_{CM} = 0$ [14, 15, 38, 39], o acoplamento do exciton com modos eletromagnéticos confinados em microcavidades de semicondutor, que dá origem ao exciton-polariton de microcavidade[40-46], o surgimento de transição excitônica indireta[47], a localização do exciton em rugosidades das interfaces do QW[48-51] e a relaxação de spin do exciton[39, 52]. Na maioria destes problemas, os processos envolvidos dependem fortemente da dispersão do CM do exciton no plano do QW. O cálculo das curvas de dispersão do exciton acoplado no plano é, portanto, de fundamental importância para o estudo da dinâmica excitônica em heteroestruturas de semicondutor.

Na primeira parte desta tese apresentaremos os resultados do cálculo da dispersão do centro-de-massa do exciton no plano do poço quântico, levando em conta o acoplamento entre as bandas de buraco leve e pesado no Hamiltoniano de Luttinger[53]. Analisamos como o acoplamento entre os excitons pode modificar a dinâmica excitônica em sistemas quasi-bidimensionais. Em particular, analisamos a mistura de estados de spin decorrente do acoplamento entre os excitons, discutindo a importância do acoplamento na relaxação de spin do exciton. Na segunda parte serão apresentados resultados experimentais acerca da relaxação de spin em poços quânticos de semicondutores.

A relaxação de spin é um dos diversos processos básicos envolvidos na complexa dinâmica de relaxação e recombinação de portadores livres e excitons em heteroestruturas de semicondutor[39], o que tem levado o tema a ser objeto de crescente interesse nos últimos anos[39, 52, 54–92].

A despeito do esforço realizado na direção da compreensão e determinação dos mecanismos de relaxação de spin excitônico e de portadores em heteroestruturas de semicondutor, o tema permanece ainda em discussão, com diversas questões em aberto, basicamente devido à forte dependência dos processos de relaxação com as amostras estudadas[93]. O grau de localização dos portadores varia de amostra para amostra e pode ser o responsável pela vasta gama de resultados observados na literatura.

A localização espacial de excitons e portadores em defeitos de interface modifica a dinâmica de relaxação de momento e deve alterar a dinâmica de relaxação de spin. Os estados localizados de excitons são formados a partir de estados excitônicos com diferentes valores de \tilde{K}_{CM} . Isto implica em um acoplamento diferenciado entre os spins dos excitons localizados em relação aos excitons livres. Até o momento, não existe um modelo teórico abordando a problemática da relaxação de spin de excitons localizados. Nosso cálculo do exciton acoplado introduz novos resultados importantes para o entendimento da mistura de spin nos estados excitônicos. Entretanto, o problema do exciton localizado envolve uma complexidade física além da abordada em nossos cálculos. Para uma interpretação quantitativa dos resultados experimentais, uma teoria para a relaxação de spin de excitons localizados incluindo o acoplamento entre os excitons seria necessária.

Os efeitos de localização espacial dos excitons na relaxação de spin começaram a ser investigados muito recentemente em amostras que apresentam um deslocamento Stokes ("Stokes shift") entre os espectros de fotoluminescência ("photoluminescence"-PL) e excitação de fotoluminescência ("photoluminescence excitation"-PLE) da ordem de poucos meV. Trabalhos recentes apresentaram estudos da dinâmica de spin em função das condições de crescimento, da temperatura da amostra, das energias de excitação e detecção, e da densidade de portadores fotoinjetados em amostras onde a localização excitônica é fraca[67, 76, 79, 83, 85]. Os resultados não são conclusivos, possivelmente devido à marcante contribuição dos excitons livres na dinâmica de excitons fracamente localizados.

Nesta tese, estudamos experimentalmente a relaxação de spin de excitons. As técnicas utilizadas foram a PL e a PLE com polarização circular da luz nos regimes contínuo ("continuous wave"-CW) e resolvido no tempo. Um dos problemas abordados foi a situação onde localização excitônica é forte, e a relaxação de spin é completamente determinada pela dinâmica de excitons localizados[87]. Outra situação interessante explorada envolve os estados excitados na presença de um gás de elétrons. Neste caso, a blindagem enfraquece a interação Coulombiana e a relaxação

de spin é dominada pela relaxação dos portadores. Para tratarmos este caso, estudamos a relaxação de spin em um poço quântico dopado tipo-n. Na amostra estudada, o nível de Fermi encontra-se um pouco acima da subbanda de condução correspondente ao segundo estado confinado dentro do QW. Este sistema permite o estudo da relaxação de spin em duas situações distintas: alta concentração de elétrons no primeiro estado confinado, e baixa concentração de elétrons no segundo estado confinado.

Esta tese está organizada da seguinte forma:

- No Capítulo 2, introduzimos conceitos básicos sobre os processos envolvidos na dinâmica excitônica.
- O Capítulo 3 se refere aos cálculos da dispersão do centro-de-massa do exciton acoplado. Discutimos os efeitos do acoplamento dos excitons nas curvas de dispersão calculadas. Apresentamos resultados na presença de um campo elétrico aplicado perpendicularmente ao plano do poço e estudamos o caso onde uma transição excitônica indireta é obtida. Por fim, estudamos os efeitos do acoplamento dos estados excitônicos na mistura de spin do exciton, dando uma visão sobre o papel do acoplamento na relaxação de spin excitônico em um QW.
- No Capítulo 4 apresentamos um estudo experimental da dinâmica de relaxação de spin do exciton fortemente localizado. Estudamos o comportamento do sistema a diversas temperaturas e a diversas energias de excitação. Apresentamos os resultados experimentais para os tempos de relaxação de spin do exciton, que são analisados dentro de um modelo simplificado que leva em conta a localização do exciton.
- O Capítulo 5 é dedicado ao estudo da polarização de spin de portadores em um sistema com forte dopagem tipo-n. Estudamos a dependência da polarização de spin como função da energia de luminescência, evidenciando a contribuição

dos elétrons criados opticamente para a polarização da luminescência nas proximidades do nível de Fermi.

• No Capítulo 6 são apresentadas as conclusões finais do trabalho.

Capítulo 2

Dinâmica Excitônica em Poços Quânticos

2.1 Introdução

Os mecanismos que levam à formação de excitons em sólidos e os processos de relaxação excitônica constituem um problema existente desde a própria concepção do exciton. Este problema só começou a ser investigado nos últimos anos, graças, principalmente, ao avanço das técnicas espectroscópicas com alta resolução temporal.

Neste Capítulo faremos uma breve introdução sobre a dinâmica excitônica em QW de semicondutores. Daremos especial atenção aos processos ópticos lineares envolvidos nesta dinâmica, pois são os que nos interessarão no decorrer deste trabalho. A descrição dos processos será dividida em três partes: i) a de formação dos excitons a partir da excitação óptica; ii) a de relaxação e a termalização; iii) a recombinação radiativa. Uma descrição completa e detalhada pode ser encontrada em [14, 39] e suas referências.

2.2 Formação de Excitons

Os processos de formação de excitons dependem do tipo de excitação realizada. Podemos classificá-las em dois tipos diferentes: excitação ressonante e excitação não ressonante.

Na excitação não ressonante, são excitados estados da banda de condução com energia acima da energia do "gap" do material. Os portadores gerados com energia acima do "gap" são portadores "quentes" que termalizam rapidamente pra estados de menor energia, a partir dos quais decaem para estados excitônicos com grandes vetores de onda \vec{K}_{CM} na direção do plano do QW, através da emissão de fônons acústicos. Para excitons livres, este processo ocorre em um intervalo de tempo da ordem de 20 ps, e independe da energia de excitação[14]. Para excitons ligados, entretanto, observou-se um tempo de formação mais longo, da ordem de 190 ps[94]. Na Figura 2.1 mostramos esquematicamente como ocorre este processo, tanto do ponto de vista de elétrons e buracos, quanto do ponto de vista do exciton.

No lado esquerdo da Figura estão representadas as dispersões das subbandas de elétron e buraco e as transições que ocorrem antes da formação do exciton. No lado direito da Figura, representamos as dispersões dos estados excitônicos, onde a parte hachurada representa os estados do contínuo do exciton, formados pelos pares elétron-buraco correlacionados com energia acima da energia do "gap". As transições indicadas por setas verticais representam a absorção de luz.

O processo de excitação não ressonante dá origem, portanto, a estados excitônicos com grandes vetores de onda \vec{K}_{CM} .

Na excitação ressonante, ao contrário, a absorção ocorre nos estados excitônicos propriamente ditos. Esquematicamente, esta situação pode ser visualizada na Figura 2.2. Esta situação é diversa da excitação não ressonante, pois são formados estados excitônicos com pequenos vetores de onda, uma vez que o momento transferido à



Figura 2.1: Processo de formação do exciton em QW por excitação não ressonante. Lado esquerdo: dispersões das subbandas; lado direito: exciton.

excitação é o momento do fóton \vec{k}_f , que é extremamente pequeno (da ordem de 10^{-3} Å^{-1}). Os excitons criados em estados com $\vec{K}_{CM} = \vec{k}_f$ terão, então, uma energia cinética inicial não nula E_0 (tipicamente, $E_0 \approx 0.1 \text{ meV}$)[39]. No lado esquerdo, apresentamos a dispersão do exciton, indicando a excitação óptica por uma seta vertical na origem. No lado direito, mostramos uma amplificação da mesma figura, enfatizando o papel do vetor de onda não nulo do fóton na excitação.

No caso de uma excitação ressonante contínua, a fonte de excitação tem uma largura espectral desprezível em relação a E_0 . Os excitons são criados com uma energia E_0 dentro da largura de linha homogênea característica $\Gamma_h = k_B T$. A distribuição de excitons é não termalizada com a rede, tendo uma temperatura tipicamente abaixo da temperatura T do cristal (para T>1.2 K).

No caso de excitação ressonante pulsada, os excitons são gerados em estados coerentes distribuídos em um grande intervalo de energia, dado pela largura espectral



Figura 2.2: Excitação ressonante de excitons em QW. Lado esquerdo: dispersão excitônica mostrando absorção ressonante; lado direito: amplificação da figura, evidenciando o papel do momento \vec{k}_f do fóton e a energia cinética inicial E_0 do exciton.

do pulso de excitação.

2.3 Relaxação e termalização

Os processos de relaxação e termalização do excitons são diferentes para os diferentes tipos de excitação, ressonante e não ressonante.

2.3.1 Relaxação de fase

No caso da excitação ressonante, a distribuição inicial dos excitons é anisotrópica no espaço de fase, pois é excitada com um momento em uma direção determinada, $\vec{K}_{CM} = \vec{k}_f$. Espalhamentos elásticos por impurezas, rugosidades de interface e fônons acústicos com energia muito baixa podem ser responsáveis por uma redistribuição desta população no espaço de fase do exciton. Este processo de defasamento tem um tempo característico T_2 cuja relação com a largura homogênea Γ_h da transição é: $T_2 = \frac{2\hbar}{\Gamma_h}$. Este tempo é tipicamente da ordem de poucos picossegundos para amostas de boa qualidade, para as quais a largura de linha homogênea é da ordem de décimos de meV[39].

Na excitação não ressonante, a relaxação de fase dos portadores fotoexcitados ocorre em um tempo característico mais curto que o tempo de formação do exciton.

2.3.2 Relaxação de momento

A relaxação de momento, por outro lado, é um processo mais lento, no qual estão envolvidos espalhamentos por fônons de mais alta energia.

Para os excitons gerados ressonantemente a baixas temperaturas, os únicos processos de espalhamento importantes são os de absorção de fônons, principalmente os dos ramos acústicos. O tempo característico de espalhamento por potencial de deformação é da ordem de uma dezena de picossegundos para um poço de 150 Å, a uma temperatura de 10 K, e depende diretamente da largura do poço e inversamente da temperatura da amostra[39].

No caso de excitação não ressonante, os excitons são formados em estados com grandes valores de \vec{K}_{CM} , por espalhamento com fônons a partir de estados de condução e valência próximos aos extremos das bandas. A distribuição destes excitons é isotrópica no espaço de fase, pois foi gerada a partir de espalhamentos que ocorrem em todas às direções. A partir da interação exciton-exciton e do espalhamento com fônons acústicos, esta distribuição relaxa em direção aos estados com $\vec{K}_{CM} = 0$, a partir dos quais pode haver recombinação radiativa. O tempo de relaxação dos excitons a partir de $\vec{K}_{CM} \neq 0$ para estados com $\vec{K}_{CM} = 0$ é da ordem de centenas de picossegundos[14]. Devido à interação exciton-exciton, a distribuição dos excitons continua não termalizada. Os excitons continuam a relaxar até que a população excitônica não térmica tenha se recombinado[14].

2.3.3 Relaxação de spin

Durante os processos de relaxação do par elétron-buraco para os estados próximos aos extremos das bandas, formação de excitons com $\vec{K}_{CM} \neq 0$ e relaxação para estados com $\vec{K}_{CM} = 0$ e também durante a relaxação de fase dos excitons, tanto os portadores livres quanto os excitons podem sofrer uma mudança no seu estado de spin original, processo que é conhecido por *relaxação de spin*.

Basicamente, o problema pode ser entendido da seguinte maneira: em uma primeira aproximação consideramos dispersões parabólicas para o exciton ou para as bandas de condução e valência. Nesta aproximação, o spin total é um bom número quântico; o sistema, uma vez preparado em um determinado autoestado, ali permanecerá, se não houver interação com campos externos. Portanto, para que a troca de spin ("spin-flip") possa ser observada é necessário considerar termos além da aproximação parabólica na descrição das relações de dispersão do sistema.

A relaxação de spin excitônico em semicondutores é um processo bastante complicado, no qual estão envolvidos os processos de formação do exciton, o "spin-flip" do elétron, do buraco e do par elétron-buraco propriamente dito, a relaxação de momento e efeitos de muitos corpos.

Em QW de semicondutores, o confinamento dos portadores na região do poço altera significativamente as propriedades eletrônicas e a cinética dos portadores e do exciton em relação ao material "bulk". Em particular, os efeitos que afetam a relaxação de spin de excitons e portadores são[93]:

 a) a quebra da degenerescência no topo das bandas de valência, que retarda a relaxação de spin de buracos nas vizinhanças do topo das bandas[62]; b) a mistura das bandas de valência[21] no Hamiltoniano de Luttinger[53], que acopla estados de buraco leve e pesado para $\vec{k}_{\perp} \neq 0$ (onde \vec{k}_{\perp} é o momento na direção do plano do poço), permitindo a relaxação de spin através da relaxação de momento[63, 66, 77];

c) o aumento da mobilidade dos portadores, que afeta os processos de "spin-flip"
 que ocorrem devido a mecanismos de relaxação de momento;

d) o aumento da superposição entre as funções de onda dos elétrons e buracos devido ao confinamento quântico espacial, que aumenta a interação de troca no exciton, e leva a um aumento na relaxação de spin excitônico[52].

Em linhas gerais, na dinâmica de relaxação de spin do exciton, seja via "spin-flip" do exciton como um todo, seja via "spin-flip" dos portadores no par elétron-buraco correlacionado, existe uma dependência direta com o espaço de fase envolvido no processo e com a dinâmica de relaxação de momento, tanto do exciton quanto dos portadores no exciton. O mesmo ocorre em relação à relaxação de spin de portadores livres em amostras dopadas. No caso de uma amostra dopada tipo-n (tipo-p), a alta densidade de elétrons (buracos) no gás faz com que as populações sejam igualmente distribuídas entre estados de spin opostos. O spin total do gás de elétrons (buracos) é zero, e a relaxação de spin no meio é determinada pela relaxação do portador minoritário.

A seguir, descrevemos brevemente os processos de relaxação de spin de elétrons, buracos e excitons.

Elétrons

Os elétrons na banda de condução podem trocar seu spin durante a relaxação de momento, através do acoplamento spin-órbita, da quebra de simetria de inversão e da interação de troca. Existem diversos mecanismos conhecidos de relaxação de spin do elétron[95]. Um deles é o mecanismo Elliot-Yafet (EY)[96]. Este mecanismo leva em conta o acoplamento entre os estados de condução e os estados de valência através do acoplamento spin-órbita nos termos $\vec{k} \cdot \vec{p}$ [97]. O espalhamento por impurezas ou fônons conecta os diferentes estados de spin do elétron, permitindo assim a sua relaxação de spin. O mecanismo EY é pouco eficiente se comparado com outros mecanismos de relaxação de spin (descritos abaixo) em semicondutores "bulk"[89]. Não existem estudos que levem em conta este mecanismo em sistemas tipo QW.

Os mecanismos mais eficientes na relaxação de spin de elétrons são os mecanismos D'Yakonov-Perel' (DP)[57,98] e Bir-Aronov-Pikus (BAP)[99]. Em um trabalho recentemente publicado[89], Maialle mostrou que a relaxação de spin do elétron em semicondutores "bulk" é dominada pelo mecanismo BAP, enquanto que em QW os dois mecanismos competem, sendo o DP mais eficiente para elétrons próximos ao fundo da subbanda, e o BAP, para elétrons com energia mais alta.

O mecanismo DP advém da própria estrutura de banda do cristal. Para semicondutores com estrutura cristalina que não apresenta centro de inversão (como os compostos III-V com estrutura cristalina tipo blenda de zinco), existe uma quebra da degenerescência dos estados pares e ímpares. Estes estados não degenerados e acoplados resultam de uma mistura de estados com spin $s_e = +\frac{1}{2}$ e $s_e = -\frac{1}{2}$. A relaxação de momento leva o elétron de um estado a outro com diferentes misturas de spin, produzindo a relaxação de spin.

O mecanismo DP no "bulk" tem uma dependência linear com \vec{k} , enquanto que em QW, a dependência com \vec{k}_{\perp} é cúbica, o que torna o processo de relaxação de spin no QW cerca de quatro vezes mais rápido que no "bulk"[68].

O mecanismo BAP é responsável pela relaxação de spin dos elétrons (buracos) em sistemas dopados tipo-p (tipo-n), devido ao espalhamento com a população de buracos (elétrons) através da interação de troca de longo alcance.

Essa interação tem uma dependência com o momento do centro-de-massa do par elétron-buraco, \vec{K} [88]. No caso do "bulk", a interação assume um valor finito para \vec{K} tendendo a zero. Por isso o mecanismo BAP é o mecanismo dominante no "bulk". No caso de QW, a interação de troca tem uma dependência linear com \vec{K}_{\pm} .

Buracos

No caso dos buracos, a mistura das bandas devido à forte interação spin-órbita é responsável pela troca do spin quando os buracos relaxam dentro da banda ou quando há um espalhamento interbandas.

O Hamiltoniano das bandas de valência Γ_8 na aproximação quadrática e isotrópica para o "bulk" é chamado Hamiltoniano de Luttinger, e dado por[53, 100]:

$$H_{\Gamma_8} = \alpha k^2 + \beta (\vec{k} \cdot \vec{J})^2 \tag{2.1}$$

Em semicondutores "bulk", particulamente os do grupo III-V, a interação spinórbita é forte, as bandas de buraco leve e pesado $(J = \frac{3}{2})$ são degeneradas no ponto Γ da zona de Brillouin ($\vec{k} = 0$) e o spin não é um bom número quântico. Neste caso, a relaxação de spin de buracos com energia próxima à do topo da banda de valência é extremamente eficiente, e o tempo de relaxação pode ser considerado como instantâneo comparado ao do elétron.

Em QW, o potencial de confinamento na direção de crescimento \hat{z} leva à quebra da degenerescência das bandas de valência no ponto Γ . Se diagonalizarmos \vec{J} na direção \hat{z} , então para $\vec{k}_{\perp} = 0$ as bandas são desacopladas e os estados são autovetores do operador J_z . Estes autoestados são duplamente degenerados (degenerescência de Kramers) e são caracterizados pelos números quânticos $m_J^{hh} = \pm \frac{3}{2}$, para os buracos pesados e $m_J^{lh} = \pm \frac{1}{2}$, para os buracos leves. Para $\vec{k}_{\perp} \neq 0$, existe um acoplamento entre os estados com diferentes momentos angulares e m_J deixa de ser um bom número quântico. Para cada vetor de onda no plano, existe um acoplamento diferente entres os estados. Portanto, é através da relaxação de momento dos buracos que se dá a relaxação de spin dos buracos.

Para poços quânticos simétricos, a paridade é um bom número quântico. O problema pode então ser redefinido em termos de uma base cujos estados podem ser classificados em pares e ímpares[62,63]. Diversos mecanismos de relaxação de spin de buracos foram estudados por Uenoyama e Sham[62,63] em poços simétricos, dopados e não dopados. Dentre eles, foram estudados os espalhamentos com fônons ópticos e fônons acústicos e o "shake-up" do mar de elétrons (para o caso de poços dopados tipo-n). Os autores separaram as contribuições dos processos de relaxação de momento em mecanismos que conservam e que trocam a paridade da função de onda dos buracos. Dentro deste tratamento, o tempo característico de relaxação de momento é dado por:

$$\frac{1}{\tau_k} = \frac{1}{\tau_+} + \frac{1}{\tau_-} \tag{2.2}$$

onde τ_+ e τ_- são os tempos característicos de relaxação de momento devidos a processos que conservam e que trocam a paridade da função de onda, respectivamente. Eles mostraram que o processo que contribui de forma dominante para a relaxação de spin dos buracos é a relaxação de momento por espalhamento com fônons acústicos, onde foram consideradas as interações piezoelétrica e por potencial de deformação. A maior contribuição é devida a processos que conservam a paridade do estado.

Ferreira e Bastard[77] consideraram mecanismos que quebram a degenerescência de paridade nos QW. Recordando o modelo DP para elétrons na banda de condução, introduziram no Hamiltoniano de Luttinger correções lineares em \vec{k}_{\perp} devidas à ausência de um centro de inversão em cristais com estrutura blenda de zinco. Consideraram também, termos cúbicos em \vec{k}_{\perp} , devidos a assimetrias no potencial de confinamento do poço provenientes de imperfeições nas interfaces. Os autores calcularam o tempo total τ_s de relaxação de spin de buracos no poço devido a estas correções, obtendo que:

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{1}{\tau_{DP}} + \frac{1}{\tau_{sf}}$$
(2.3)

onde τ_{DP} é o tempo de relaxação de spin devido à quebra de degenerescência de paridade devido num mecanismo DP, e τ_{sf} é o tempo de relaxação de spin devido a processos de espalhamento de momento que não conservam a paridade da função de onda.

O principal resultado, corroborado tanto pelas teorias quanto pelos experimentos, é que a quebra de degenerescência das bandas de buraco leve e pesado leva a um atraso da relaxação do spin dos buracos em QW em relação ao "bulk".

Excitons

Os excitons podem relaxar seu spin através de dois canais de relaxação diferentes: um deles envolve a relaxação do spin do exciton propriamente dito, $S_{exc} = s_e + m_J^h$; o outro é através da relaxação de spin do elétron e/ou do buraco, s_e e m_J^h , separadamente.

Como ressaltado acima, tanto para o elétron como para o buraco, os diversos mecanismos de "spin-flip" dependem fortemente da relaxação de momento dos portadores. O espalhamento de momento leva a partícula de um estado, com uma determinada mistura de spin, a outro com uma mistura de spin diversa, levando à relaxação do estado de spin inicial do sistema. Devido à restrição do espaço de fase dos portadores que compõem o exciton ($\vec{k}_{e,h} = \sqrt{\frac{2m_{e,h}E_{exc}}{\hbar}}$, onde E_{exc} é a energia de ligação do exciton), a relaxação de spin dos portadores em separado dentro do exciton é pouco eficiente em relação à relaxação de spin do exciton como um todo.

A relaxação de spin do exciton como um todo é dada pela interação de troca, originária da indistinguibilidade entre o elétron na banda de condução e os demais elétrons na banda de valência. Esta interação pode ser dividida em duas contribuições: interação de curto alcance, que envolve grandes valores de \vec{K}_{CM} , e interação de longo alcance, que envolve pequenos valores de \vec{K}_{CM} . Maialle e colaboradores[52] calcularam a contribuição de ambos os termos na relaxação de spin do exciton em QW. Os cálculos foram restritos ao exciton de buraco pesado. A mistura entre as bandas de buraco pesado e leve, essencial para permitir a relaxação, foi considerada em conta em perturbação. A interação de curto alcance leva ao acoplamento dos excitons de buraco leve e pesado, mas conserva o spin total do exciton. É necessária a inclusão da interação spin-órbita no cálculo, de modo a se observar a relaxação de spin. Este termo tem uma dependência linear com \vec{K}_{CM} . O acoplamento entre os excitons com diferentes estados de spin ocorre através da relaxação de momento do exciton, e o mecanismo de relaxação de spin é análogo ao do "motional narrowing"[101].

2.4 Recombinação Radiativa

O acoplamento com o campo eletromagnético leva à recombinação radiativa do exciton, conduzindo o sistema ao estado fundamental. O exciton acoplado ao campo eletromagnético constitui um sistema fechado que é conhecido como o *polariton*[102].

No caso tridimensional (3D), o acoplamento ocorre apenas com determinados modos do campo, para os quais o vetor de onda \vec{k}_f é igual ao vetor de onda do CM do exciton 3D, \vec{K}_{CM}^{3D} . Isto significa que existem alguns modos discretos para o polariton 3D. Ele é um autoestado do sistema infinito e livre de impurezas e, portanto, seu tempo de vida é infinito. A recombinação radiativa só ocorre na superfície do cristal, quando a simetria do cristal é destruída, abrindo um canal para o decaimento radiativo. Além deste mecanismo, a recombinação pode ocorrer também a partir da colisão com defeitos e vibrações dentro do cristal. O tempo de recombinação radiativa típico para o exciton no GaAs "bulk" é de nanossegundos[103].

No caso de QW, entretanto, o potencial do poço quebra a simetria translacional ao longo da direção de crescimento 2. A conservação de momento ocorre apenas ao longo do plano do poço. Assim, o exciton pode se acoplar com todos os modos para os quais a componente do vetor de onda do campo ao longo do plano do poço, $\vec{k}_{\perp f}$, seja igual ao vetor de onda do centro-de-massa do exciton no plano \vec{K}_{CM} . Nenhuma restrição existe para a componente k_{zf} do vetor de onda do campo, o que cria uma densidade contínua de estados possíveis para o campo, ao qual o exciton se acopla. Embora ainda existam apenas alguns modos discretos para o polariton, alguns deles podem se acoplar entre si através desta densidade de estados contínua do campo eletromagnético. Surge um canal de decaimento para o polariton através deste acoplamento. Os polaritons no caso quasi-bidimensional (quasi-2D) podem ser classificados em polaritons ressonantes, para os quais $\mid ec{K}_{CM} \mid \leq \mid ec{k}_{f} \mid$, e polaritons de superfície, para os quais $|\vec{K}_{CM}| > |\vec{k}_f|$ [104]. Os polaritons de superfície são análogos aos polaritons 3D, para os quais não existe um canal de decaimento senão na superfície da amostra. Os polaritons ressonantes, por outro lado, são os que decaem radiativamente através do acoplamento com os modos de menor energia.

O tempo de decaimento calculado para os polaritons ressonantes é da ordem de algumas dezenas de picossegundos. O tempo de decaimento da luminescência medido experimentalmente, entretanto, chega a ser da ordem de centenas de picossegundos[105] dependendo da temperatura, largura do poço e do tipo de excitação. A discrepância entre os resultados vem justamente da existência de populações de ambos os tipos de polaritons em QW[50]. No caso de excitação não ressonante de excitons, existe uma predominância dos polaritons de superfície, uma vez que os excitons são gerados nos estados com grandes valores de \vec{K}_{CM} , longe, portanto, dos estados radiativos. Neste caso, o tempo de recombinação radiativa do exciton é da ordem de centenas de picossegundos. No caso da excitação ressonante, a maioria dos excitons são criados diretamente nos estados radiativos. Neste caso, os tempos de vida radiativo podem ser muito mais curtos, chegando a 10 ps[15]

Capítulo 3

Dispersão do Centro-de-massa Excitônico em Poços Quânticos

3.1 Introdução

Na maioria dos sistemas semicondutores de interesse, a energia de ligação do exciton é pequena (cerca de 5 meV para o GaAs "bulk"[106]), o exciton é um estado delocalizado no cristal (exciton de Wannier[107]) e o problema pode ser descrito dentro da aproximação da massa efetiva[2]. O problema do exciton de Wannier no caso de bandas de valência degeneradas foi tratado pela primeira vez na aproximação da massa efetiva por Dresselhaus[108]. A ausência de uma transformação única para o CM do exciton devido à degenerescência das bandas de valência leva à impossibilidade de separação dos movimentos relativo e do CM. Tendo em vista esta problemática, Altarelli e Lipari[109] propuseram uma transformada de CM apropriada para o cálculo da dispersão do CM do exciton em semicondutores "bulk" com bandas de valência degenerada. As soluções mostraram que a degenerescência e o acoplamento das bandas de valência acarretam numa dispersão altamente anisotrópica e não-parabólica para o CM do exciton.

Em estruturas de material semicondutor tipo QW, utilizamos a aproximação $k \cdot \vec{p}$ para descrever os estados eletrônicos[17]. Os estados confinados pelo potencial do poço são descritos pelo método da função envelope[4, 5]. O potencial de barreira quebra a simetria cúbica, introduzindo uma simetria axial no problema. Como consequência, a degenerescência das bandas de buraco pesado e leve no ponto Γ $(k_h = 0)$ é quebrada. O caráter "p" das bandas de buraco nestes semicondutores faz com que a quebra de degenerescência leve ao efeito de reversão das massas no plano $(m_{\perp hh} < m_{\perp lh}, \text{ onde } \perp \text{ indica a direção perpendicular à de crescimento da estrutura,}$ ou seja, a direção do plano do QW[16]) [17]. Em sistemas onde a separação em energia entre as bandas é pequena, ocorre um forte acoplamento entre elas, levando a um anticruzamento nas curvas de dispersão e a uma hibridização dos estados de buraco leve e pesado na formação do estado final [21, 22, 110-112]. Existe um grande número de trabalhos dedicados à investigação dos efeitos da mistura de bandas de valência na energia de ligação do exciton e na força de oscilador dos estados excitônicos[23-27, 29]. Os resultados mostram que, enquanto a energia de ligação não é fortemente afetada pela mistura de bandas de valência, a força de oscilador de certas transições proibidas aumenta quando da inclusão da mistura de buracos leve e pesado. Este resultado se deve ao acoplamento entre os estados do movimento reduzido excitônico com diferentes simetrias, que redistribui a força de oscilador entre eles. Foram também investigados os efeitos da aplicação de campos magnético e elétrico na energia e força do oscilador para os estados excitônicos[29, 30], corroborando os resultados experimentais que mostraram o acoplamento de excitons de buraco leve e pesado[31].

O movimento do exciton no plano do poço é dominado pela dispersão das bandas de valência e é fortemente afetado pelo acoplamento entre as bandas de buraco leve e pesado[34-37]. Este problema foi discutido pela primeira vez em QWs tensionados por Chu e colaboradores[34]. Seu modelo, entretanto, não leva adequadamente em conta o acoplamento de excitons com diferentes simetrias do movimento no plano. Este ponto é abordado em nosso trabalho de maneira mais adequada.

Neste Capítulo apresentamos os resultados do cálculo da dispersão do CM do exciton em QW de semicondutor, incluindo o acoplamento entre as bandas de valência na formulação do Hamiltonano do exciton. A descrição do problema é feita através da aproximação da massa efetiva e da função envelope e o acoplamento das bandas de valência será descrito pelo Hamiltoniano de Luttinger[53, 100].

Dois casos são tratados em particular: estruturas não tensionadas de GaAs/AlGaAse estruturas de $InP/In_xGa_{1-x}As$ onde a concentração de Índio determina o grau de tensão no poço e a consequente transição entre exciton direto e indireto. No caso do GaAs/AlGaAs, onde o acoplamento spin-órbita é forte e a banda split-off (SO) se encontra a 340 meV de energia das bandas de buraco leve e pesado, desprezamos a mistura destas com a banda SO; consideramos o Hamiltoniano de Luttinger 4x4 que inclui apenas as bandas de buraco leve e pesado. No caso de heteroestruturas com parâmetro de rede descasado, a tensão introduz um acoplamento entre as bandas de buraco leve e de SO; nesta situação, a mistura de bandas de valência é governada pelo Hamiltoniano de Luttinger 6x6 que inclui a banda SO.

Em nosso trabalho, estaremos escolhendo uma transformação do CM do exciton similar à proposta por Altarelli e Lipari [109]. A não-parabolicidade da banda de condução é desprezada no nosso cálculo, assim como a interação de troca, por serem correções de menor efeito na energia de ligação do exciton e na sua dispersão em comparação ao efeito da mistura das bandas de valência. Como veremos, a inclusão da mistura de estados da banda de valência é essencial para a descrição correta do exciton através das curvas de dispersão do CM no plano do QW. Analisamos também os efeitos de dobradura ("warping") e da aplicação de um campo elétrico externo na dispersão excitônica. Por fim, estudamos a mistura de spin resultante do acoplamento entre os diferentes estados excitônicos, traçando a dependência com \vec{K}_{CM} do valor médio do spin para o exciton acoplado. Desta maneira, procuramos determinar o efeito do acoplamento dos excitons na relaxação do spin excitônico quando da formação dos excitons com $\vec{K}_{CM} \neq 0$ e subsequente relaxação para $\vec{K}_{CM} =$ 0. Observamos que a mistura de spin no exciton pode ser efetiva mesmo na situação de excitação ressonante.

3.2 Excitons Acoplados

3.2.1 Desenvolvimento teórico

Desejamos tratar a dispersão do CM do exciton em um QW de semicondutor incluindo a mistura das bandas de valência. Considerando um forte confinamento do movimento dos portadores na direção de crescimento do QW (direção \hat{z}), escolhemos escrever o Hamiltoniano do sistema na base de funções de Bloch | J, J_z que diagonaliza exatamente o problema das subbandas de valência nesta direção.

Temos a seguinte formulação Hamiltoniana para o exciton:

$$H_{exc} = H_e(z_e)\mathbf{1} + H_h(z_h)\mathbf{1} + V_{Coul}(|\vec{r_e} - \vec{r_h}|)\mathbf{1} + H_L(\vec{r_h})$$
(3.1)

 $H_e(z_e) \in H_h(z_h)$ descrevem o movimento confinado dos portadores e $H_L(\vec{r_h})$ é o Hamiltonano de Luttinger, que acopla as bandas de buraco leve e pesado através dos seus elementos fora da diagonal. $V_{Coul}(|\vec{r_e} - \vec{r_h}|)$ é a interação Coulombiana. Esta interação acopla o movimento relativo no plano do poço ao movimento confinado na direção \hat{z} . Assumimos, como uma primeira aproximação, que o movimento na direção \hat{z} é dominado pelo potencial de confinamento do poço, de modo que nesta direção o movimento é descrito pelas autofunções do poço (as funções envelope $f_n(z_e)$ e $g_m(z_h)$ para elétron e buraco, respectivamente). Para o movimento no plano, por outro lado, fazemos a transformação do CM, separando a cinética do par elétronburaco (e-h) em movimento reduzido e movimento do CM. Desta forma, o problema inicial de dois corpos correlacionados (elétron e buraco sob atração Coulombiana) passa a ser dividido em dois problemas, um para o movimento reduzido (com coordenada $\vec{\rho} = (x_e - x_h, y_e - y_h, 0)$) e outro para o movimento do CM (com coordenada $\vec{R}_{CM} = (X_{CM}, Y_{CM}, 0)$), com um acoplamento entre eles que é dado pelos termos não diagonais do Hamiltoniano de Luttinger. O Hamiltoniano do exciton na base $\{|\frac{3}{2}, +\frac{3}{2}\rangle, |\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle, |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle\}$, é reescrito, então, na forma:

$$H_{exc} = H_e(z_e)\mathbf{1} + V_{Coul}(|z_e - z_h|, \rho)\mathbf{1} + H^{(1)}(z_h, \vec{\rho}) + H^{(2)}(z_h, \vec{\rho}, \vec{R}_{CM})$$
(3.2)

onde

$$H_e(z_e) = E_g - \frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{\partial^2}{\partial z_e^2} + V_e Y\left(z_e^2 - \frac{L^2}{4}\right)$$
(3.3)

$$V_{Coul}(|z_e - z_h|, \rho) = \frac{-e^2}{\kappa \sqrt{(z_e - z_h)^2 + \rho^2}}$$
(3.4)

$$\vec{\rho} = (x_e - x_h, y_e - y_h) = (x, y) \tag{3.5}$$

$$\vec{R}_{CM} = \alpha \vec{r_e} + \beta \vec{r_h} = (X_{CM}, Y_{CM})$$
(3.6)

$$H^{(1)}(z_h, \vec{\rho}) = \begin{bmatrix} a_+ & c & b & 0 \\ c^* & a_- & 0 & -b \\ b^* & 0 & a_- & c \\ 0 & -b^* & c^* & a_+ \end{bmatrix}$$
(3.7)

$$a_{\pm} = \frac{\hbar^2}{2m_0} (-\gamma_1 \pm 2\gamma_2) \frac{\partial^2}{\partial z_h^2} + V_h Y \left(z_h^2 - \frac{L^2}{4} \right) - \frac{\hbar^2}{2m_0} \left(\frac{m_0}{m_e} + \gamma_1 \pm \gamma_2 \right) \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right)$$
(3.8)

$$b = -\left(\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{m_0}\right)\gamma_3\frac{\partial}{\partial z_h}\left(\frac{\partial}{\partial x} - i\frac{\partial}{\partial y}\right)$$
(3.9)

$$c = -\left(\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{2m_0}\right) \left[\gamma_2 \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) - 2i\gamma_3 \frac{\partial^2}{\partial x \partial y}\right]$$
(3.10)

$$H^{(2)}(z_h, \vec{\rho}, \vec{R_{CM}}) = \begin{bmatrix} A_+ & C & B & 0 \\ C^* & A_- & 0 & -B \\ B^* & 0 & A_- & C \\ 0 & -B^* & C^* & A_+ \end{bmatrix}$$
(3.11)

.

$$A_{\pm} = -\frac{\hbar^2}{2m_0} \left(\alpha^2 \frac{m_0}{m_e} + \beta^2 (\gamma_1 \pm \gamma_2) \right) \left(\frac{\partial^2}{\partial X_{CM}^2} + \frac{\partial^2}{\partial Y_{CM}^2} \right)$$
$$-\frac{\hbar^2}{m_0} \left(\alpha \frac{m_0}{m_e} - \beta (\gamma_1 \pm 2\gamma_2) \right) \left(\frac{\partial^2}{\partial x \partial X_{CM}} + \frac{\partial^2}{\partial y \partial Y_{CM}} \right)$$
(3.12)

$$B = \left(\frac{\sqrt{3}\hbar^2}{m_0}\right)\beta\gamma_3\frac{\partial}{\partial z_h}\left(\frac{\partial}{\partial X_{CM}} - i\frac{\partial}{\partial Y_{CM}}\right)$$
(3.13)

$$C = -\left(\frac{\sqrt{3}\hbar^{2}}{2m_{0}}\right)(\gamma_{2} + \gamma_{3})\left[\beta^{2}\left(\frac{\partial}{\partial X_{CM}} - i\frac{\partial}{\partial Y_{CM}}\right)^{2} - 2\beta\left(\frac{\partial}{\partial X_{CM}} - i\frac{\partial}{\partial Y_{CM}}\right)\left(\frac{\partial}{\partial x} - i\frac{\partial}{\partial y}\right)\right] + (\gamma_{2} - \gamma_{3})\left[\beta^{2}\left(\frac{\partial}{\partial X_{CM}} + i\frac{\partial}{\partial Y_{CM}}\right)^{2} - 2\beta\left(\frac{\partial}{\partial X_{CM}} + i\frac{\partial}{\partial Y_{CM}}\right)\left(\frac{\partial}{\partial x} + i\frac{\partial}{\partial y}\right)\right]$$
(3.14)

Y(x) é a função degral (Y(x)=0 para x<0 e Y(x)=1 para X>0). L é a largura do poço, κ é a constante dielétrica do material, $\gamma_1, \gamma_2 \in \gamma_3$ são os parâmetros de Luttinger
e m_0 é a massa do elétron livre. Nas equações acima e no que se segue, desprezamos a descontinuidade dos parâmetros efetivos m_e , γ_1 , γ_2 , γ_3 e κ na interface e assumimos seus valores como sendo os do material que forma o poço.

 $\alpha \in \beta$ são parâmetros da transformada de CM utilizada que leva em conta o acoplamento entre as bandas de buraco[109]. Os termos fora da diagonal em $H^{(1)}$ e $H^{(2)}$ são responsáveis pelo acoplamento entre os excitons das subbandas de buraco leve e pesado. Portanto, não existe uma transformação simples de coordenadas para o CM do exciton acoplado, uma vez que os excitons de buraco leve e pesado estão misturados. Podemos escrever \vec{R}_{CM} em termos das transformadas de CM para os excitons de buraco pesado e leve não acoplados:

$$\vec{R}_{CM} = A\left(\frac{m_e \vec{r}_e + m_{\perp hh} \vec{r}_h}{m_e + m_{\perp hh}}\right) + B\left(\frac{m_e \vec{r}_e + m_{\perp lh} \vec{r}_h}{m_e + m_{\perp lh}}\right)$$
(3.15)

onde $m_{\perp hh}$ e $m_{\perp lh}$ são as massas efetivas diagonais dos buracos pesado e leve no plano, respectivamente, que são dadas por:

$$m_{\perp hh} = \frac{m_0}{\gamma_1 + \gamma_2} \tag{3.16}$$

$$m_{\perp lh} = \frac{m_0}{\gamma_1 - \gamma_2} \tag{3.17}$$

A transformação 3.15 é equaivalente à 3.6. Em princípio, não exite uma escolha predeterminada para $\alpha \in \beta$. A única restrição imposta a estes parâmetros é que:

$$\alpha + \beta \neq 0 \tag{3.18}$$

de modo que o vetor de onda do CM do exciton, \vec{K}_{CM} , seja um bom número

quântico[109,113]. Escolhemos $\alpha + \beta = 1$ para que o jacobiano da transformação seja unitário[109].

A base de funções de onda para o problema é formada por funções do tipo:

$$\Phi_{nm}^{ij} = f_n(z_e)g_m(z_h)\Psi_{ij}(\vec{\rho},\lambda_j)\frac{exp[i\vec{K}_{CM}\cdot\vec{R}_{CM}]}{\sqrt{S}}$$
(3.19)

onde $f_n(z_e)$ e $g_m(z_h)$ são as funções envelope, que descrevem o movimento confinado do elétron e do buraco no poço, e $\Psi_{ij}(\vec{\rho}, \lambda_j)$ é a base de funções de onda para o movimento relativo no plano. O movimento do CM é descrito por uma onda plana com vetor de onda \vec{K}_{CM} . S é a área da amostra.

Ekenberg e Altarelli[27] mostraram que os estados do contínuo excitônico são responsáveis pela maior parte dos efeitos do acoplamento. Portanto, a base Ψ_{ij} deve incluir estes estados. Com este intuito, escolhemos uma base não ortogonal de funções com simetrias tipo hidrogenóides 2-D para descrever o movimento no plano:

$$\Psi_s(\vec{\rho}, \lambda_s) = N_s exp(-\frac{\rho}{\lambda_s}) \tag{3.20}$$

$$\Psi_{\pm p}(\vec{\rho}, \lambda_{\pm p}) = N_p \rho exp(-\frac{\rho}{\lambda_{\pm p}} \pm i\theta)$$
(3.21)

$$\Psi_{\pm d}(\vec{\rho}, \lambda_{\pm d}) = N_d \rho^2 exp(-\frac{\rho}{\lambda_{\pm d}} \pm 2i\theta)$$
(3.22)

$$\Psi_{\pm f}(\vec{\rho}, \lambda_{\pm f}) = N_f \rho^3 exp(-\frac{\rho}{\lambda_{\pm f}} \pm 3i\theta)$$
(3.23)

Esta base permite uma boa descrição dos primeiros estados ligados e também possui flexibilidade suficiente para descrever a influência do contínuo no acoplamento entre os estados ligados dos excitons[29]. Os valores dos parâmetros λ_j são escolhidos dentro de um intervalo com significado físico (de 10 Å a 1000 Å), seguindo uma progressão geométrica.

Assim, a função de onda do exciton é dada por:

$$\Psi_{exc}(z_e, z_h, \vec{\rho}, \vec{R}_{CM}) = f_n(z_e) \begin{bmatrix} \sum_{m,j,\lambda_j} c_{m,j,\lambda_j}^1 g_m^+(z_h) \Psi_j(\vec{\rho}, \lambda_j) \\ \sum_{n,j,\lambda_j} c_{n,j,\lambda_j}^2 g_m^-(z_h) \Psi_j(\vec{\rho}, \lambda_j) \\ \sum_{m,j,\lambda_j} c_{m,j,\lambda_j}^4 g_m^+(z_h) \Psi_j(\vec{\rho}, \lambda_j) \end{bmatrix} \frac{exp[i\vec{K}_{CM} \cdot \vec{R}_{CM}]}{\sqrt{S}}$$

$$(3.24)$$

onde os c^i_{m,j,λ_j} são os coeficientes da expansão da função de onda do movimento reduzido na base não ortogonal escolhida. Os superíndices "+" e "-" das funções $g_m(z_h)$ indicam as soluções do poço para os buracos pesado e leve, respectivamente.

Os coeficientes c_{m,j,λ_j}^i são parâmetros variacionais com os quais minimizamos a energia do exciton. Isto é equivalente a um problema de autovalores generalizado para cada valor de \vec{K}_{CM} , cujas soluções nos dão as curvas de dispersão do CM do exciton.

A solução do problema descrito pelo Hamiltoniano 3.2 a partir das funções dadas por 3.24 carrega os acoplamentos entre os diversos estados excitônicos. Além do acoplamento entre as diversas simetrias do movimento reduzido no plano dentro da mesma subbanda de buraco, existe ainda o acoplamento das soluções no plano entre as diferentes subbandas de buraco leve e pesado. O primeiro tipo de mistura de estados vem do acoplamento entre os movimentos reduzido e do CM, dado pelos termos A_{\pm} do hamiltoniano $H^{(2)}(z_h, \vec{\rho}, \vec{R}_{CM})$; neste caso, o acoplamento se dá dentro do mesmo estado de poço e o mesmo tipo de banda de valência. Na verdade, este acoplamento é uma consequência da nossa escolha de transformada de CM. Ele não tem maior significado físico, e com uma transformada unitária apropriada pode ser diagonalizado exatamente, desacoplando as diferentes simetrias[113]. O segundo tipo de mistura advém do acoplamento entre as bandas de buraco leve e pesado, dado pelos termos fora da diagonal no Hamiltoniano de Luttinger (C e B); neste caso, o acoplamento se dá entre os mesmos estados de poço e entre estados de poço diferentes, para bandas de buraco diferentes. Um outro tipo de acoplamento entre estados excitônicos, que advém do caráter tridimensional da interação Coulombiana, é o acoplamento entre excitons de mesmo tipo (pesado ou leve) mas em estados de poço diferentes. Esta mistura de estados só é importante no caso de ressonância entre um estado excitônico ligado e um estado do contínuo, resultando em uma ressonância de Fano[35, 114, 115]. No caso de dois estados ligados, este acoplamento só é importante para poços muito largos, situação que não será tratada neste trabalho.

3.2.2 Curvas de dispersão

Apresentamos, a seguir, as curvas de dispersão de diversos estados excitônicos obtidos como resultado dos cálculos acima descritos. O sistema considerado nesta secção é constituído por um QW de GaAs de espessura L colocado entre barreiras de $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$. Os parâmetros utilizados nos cálculos foram[116]: $m_e = 0.067m_0$, $\gamma_1 = 6.85$, $\gamma_2 = 2.1$, $\gamma_3 = 2.9$, $\kappa = 13.8$. Consideramos uma descontinuidade de banda de 60% da descontinuidade do "gap" para a banda de condução.

Uma vez que estamos tratando com soluções do sistema acoplado, não existem mais estados excitônicos de buraco pesado ou leve, mas apenas estados misturados. Por facilidade de linguagem, porém, continuaremos a identificá-los por "exciton de buraco pesado" e "exciton de buraco leve" ao longo da descrição e análise dos resultados que se seguem. Esta denominação refere-se ao caráter dominante da função de onda para $\vec{K}_{CM} = 0$.

Observamos que a inclusão dos estados com simetria d é essencial para uma boa descrição dos estados com simetria s. Isso se deve ao acoplamento entre as simetrias do movimento reduzido no plano do poço. A inclusão dos estados com simetria f, embora aumente precisão dos resultados, não são essenciais para a descrição dos estados s. Utilizando uma base com 4 subbandas de buraco pesado e 4 de buraco leve, e 5 valores diferentes de λ , obtivemos uma precisão de 0,1 meV nos cálculos.

Na Figura 3.1 mostramos as dispersões do CM no plano para os dois primeiros estados excitônicos, para uma largura de poço de 200 Å.



Figura 3.1: Dispersão do CM do exciton em um poço de GaAs/AlGaAs com largura L=200 Å. Linhas tracejadas: \vec{K}_{CM} na direção (100); linhas pontilhadas: \vec{K}_{CM} na direção (110); linhas sólidas: aproximação axial.

As curvas tracejadas e tracejada-pontilhadas representam as dispersões para \bar{K}_{CM} nas direções (100) e (110) no plano do poço, respectivamente. As curvas sólidas representam as soluções na aproximação axial (onde γ_2 e γ_3 são substituídos pelo valor médio $\frac{\gamma_2 + \gamma_3}{2}$ nas Equações 3.10 e 3.14). Observa-se que o exciton fundamental apresenta uma massa mais pesada para o movimento na direção (110) do plano do poço que para o movimento na direção (100). Entretanto, o efeito do "warping" no plano é pequeno. Em linhas gerais e para os propósitos deste trabalho, a dispersão do CM do exciton pode ser bem descrita na aproximação axial. Esta aproximação representa acuradamente os efeitos da mistura das bandas de valência nas curvas de dispersão do exciton, como pode ser visto nas curvas sólidas na Figura 3.1. Este resultado é semelhante ao obtido para as dispersões das subbandas de valência[117] Portanto, daqui para adiante todos os resultados apresentados serão os obtidos dentro da aproximação axial.

A Figura 3.2 apresenta as dispersões tanto para as subbandas de condução e de valência (lado esquerdo da figura) quanto para o CM do exciton (lado direito da figura), para $\vec{k}_{\perp} \in \vec{K}_{CM}$ na direção (100) na aproximação axial. Na parte inferior, as linhas tracejadas representam as dispersões das bandas de valência na aproximação parabólica (bandas desacopladas, quando os termos fora da diagonal no Hamiltoniano de Luttinger são considerados nulos), enquanto que as curvas sólidas mostam as subbandas de valência leve e pesada acopladas, cuja forte não-parabolicidade e o efeito "tipo costas de camelo" ("camel-back") na dispersão do buraco leve advêm da reversão das massas no plano e do acoplamento entre as bandas[22]. No lado direito da Figura, as linhas tracejadas representam as dispersões dos dois primeiros estados excitônicos na aproximação de excitons desacoplados (excitons de buraco pesado e de buraco leve). As curvas sólidas mostram as diversas soluções do exciton acoplado (Hamiltoniano 3.2), originárias dos estados de elétron e buraco da parte esquerda da

Figura. Nesta Figura, podemos identificar, nas duas primeiras curvas de dispersão, o "estado excitônico de buraco pesado 1s- el-hhl:1s" -e o " estado excitônico de buraco leve 1s- el-lh1:1s". As demais curvas de maior energia são os estados ligados do exciton com diversas simetrias. A curva pontilhada é o primeiro estado do contínuo do exciton, e a parte hachurada representa os demais estados do contínuo excitônico.



Figura 3.2: Curvas de dispersão na aproximação axial para L=200 Å. Lado direito: dispersão do CM do exciton. Lado esquerdo: dispersão das subbandas de condução e valência. Linhas sólidas: estados acoplados; linhas tracejadas: aproximação parabólica; linha pontilhada e área hachurada: estados do contínuo excitônico.

A primeira característica marcante dessas curvas é a forte não-parabolicidade da dispersão do CM do exciton. A comparação das dispersões dos excitons acoplados (linhas sólidas) com as dispersões na aproximação do exciton não acoplado (linhas tracejadas) mostra claramente que a inclusão do acoplamento entre os excitons é imprescindível para uma boa descrição dos estados excitônicos e, consequentemente, para uma adequada interpretação dos mecanismos envolvidos na dinâmica excitônica. Observa-se que a energia de ligação do exciton também é afetada pelo acoplamento entre os estados e está de acordo com trabalhos conhecidos da literatura[29].

Os efeitos da mistura observados na dispersão das bandas de valência estão basicamente refletidos na dispersão do CM do exciton. Este comportamento é esperado, uma vez que o movimento do CM é determinado pela massa do CM do exciton $(M_{exc} = m_e + m_h)$ e, portanto, dominado pela massa mais pesada, no caso, a massa do buraco (m_h) . Desta maneira, a dispersão do CM excitônico deverá "acompanhar" aproximadamente a dispersão da subbanda do buraco.

Uma segunda característica importante do exciton acoplado é a formação da estrutura tipo "costas de camelo" para a dispersão do "exciton de buraco leve - e1-lh1:1s" que se observa claramente na Figura 3.2. Esta representa uma situação de transição excitônica indireta para o "exciton de buraco leve". Isto significa que a recombinação radiativa deste tipo de exciton poderá ser lenta em certas condições. Esta situação foi explorada em sistemas tensionados[34, 36, 47], e será discutida na secção seguinte.

O efeito da reversão das massas no plano $(m_{\perp lh} > m_{\perp hh})$ faz com que a energia de ligação do "exciton de buraco leve" seja maior que a do "exciton de buraco pesado". Isto leva a uma maior proximidade entre os referidos estados excitônicos a $\vec{K}_{CM} = 0$ do que entre as correspondentes subbandas de valência a $\vec{k}_h = 0$. Poder-se-ia esperar, como consequência desse fato, um aumento do efeito de mistura de bandas na dispersão excitônica em relação àquela para as bandas de valência. Este não é o caso, entretanto, como pode-se observar no gráfico da Figura 3.3. Nesta Figura, graficamos a dispersão do primeiro estado excitônico (dado pela linha sólida) e da primeira subbanda de buraco pesado (representado pela linha tracejada), para L=200 Å; para facilitar a comparação, a curva da dispersão da subbanda de buraco pesado foi reescalada e colocada na mesma origem que a curva da dispersão excitônica.



Figura 3.3: Comparação entre as dispersões dos estados fundamentais do exciton e da subbanda de valência, na aproximação axial, para L=200 Å. Linha sólida: dispersão do CM do exciton fundamental; linha tracejada: dispersão da banda de buraco pesado. A curva da subbanda de valência foi deslocada em energia de modo a haver a coincidência a $\vec{k}_h = 0$ com a energia do exciton em $\vec{K}_{CM} = 0$).

Observa-se que a curva de dispersão do "exciton de buraco pesado" segue basicamente o mesmo comportamento que a da subbanda do buraco pesado. A massa do exciton, porém, é mais pesada e o efeito de não-parabolicidade na sua dispersão é suavizado em relação ao da banda de buraco pesado. A maior proximidade entre os estados excitônicos "de buraco leve e pesado" não se reflete, portanto, numa não-parabolicidade mais acentuada das curvas de dispersão excitônicas. Este fato advém da contribuição da dispersão parabólica dos estados da banda de condução na formação dos estados excitônicos.

Na Figura 3.4, mostramos os resultados do cálculo dos primeiros estados excitônicos para diversas larguras do poço (L=50 Å, 100 Å, 150 Å e 200 Å). Novamente, as curvas sólidas são as soluções para o exciton acoplado e as curvas tracejadas, para os excitons 1s de buraco pesado e leve desacoplados.



Figura 3.4: Dispersão do CM do exciton para diversas larguras de QW. Linhas sólidas: excitons acoplados; linhas tracejadas: aproximação parabólica.

Observa-se que, quanto maior a largura do poço, maior a não-parabolicidade das curvas do exciton acoplado, e menor o valor do \vec{K}_{CM} para o qual o anticruzamento dos estados acontece. Isso se deve à menor separação em energia das subbandas e,

portanto, a um maior acoplamento entre os estados excitônicos em função do aumento da largura do poço. Observa-se também que a formação do exciton "de buraco leve" indireto ocorre para poços com largura L≥150 Å. Uma comparação com a dispersão das bandas de valência (não mostrada na Figura) mostrou que o perfil tipo "costas de camelo" para a dispersão do buraco leve aparece para poços com largura menor que no caso do exciton, devido à suavização da não-parabolicidade para a dispersão do "exciton de buraco leve".

A Figura 3.5 mostra o gráfico da massa efetiva do estado fundamental do exciton acoplado em função da largura do poço.



Figura 3.5: Massa efetiva média do exciton em função da largura do poço. A média é obtida a partir de um ajuste parabólico da curva de dispersão. Linha sólida: média sobre um intervalo de energia de 36 meV; linha tracejada: média sobre um intervalo de energia de 5 meV.

Os valores das massas efetivas foram obtidos a partir de um ajuste parabólico para

a dispersão do exciton fundamental dentro de uma certa faixa de energia. Os resultados representam uma média sobre os estados dentro da referida região de energia. Para a curva sólida, a faixa de energia escolhida foi de 36 meV, e representa a situação onde o exciton excitado não ressonantemente se encontra no limite para relaxação através da emissão de fônons LO imediatamente após a excitação óptica. Para a curva tracejada, a faixa de energia abrangida no ajuste foi de 5 meV, correspondendo à situação o exciton se forma a partir do espalhamento de portadores após relaxarem até os extremos das bandas. Estas médias nos dão uma idéia geral dos efeitos do acoplamento na dinâmica de excitons, sendo o segundo caso o dominante[14,94].

Para poços estreitos, o acoplamento é pequeno, e observamos que a massa efetiva dos excitons com pequeno valor de \vec{K}_{CM} (média sobre 5 meV) é muito próxima da massa do exciton de buraco pesado do poço na aproximação parabólica diagonal, onde uma transformada de CM simples nos dá: $M_{exc} = m_e + m_{\perp hh} = 0.18 m_0$. Quanto maior a largura do poço, maior o acoplamento, e maior a massa destes excitons. A partir de 100 Å, a massa destes excitons começa a aumentar abruptamente. Isto reflete o fato de que os estados da região de anticruzamento das dispersões dos "excitons de buraco pesado e leve" começa a ser incluída no ajuste parabólico. Para poços com largura de cerca de 120 Å, a massa destes excitons atinge o mesmo valor da massa do exciton no cristal "bulk" (0.44 m_0). Para poços com largura de 200 Å, a massa excitônica atinge um valor de $0.8 m_0$, quase duas vezes maior que a do "bulk". Para esta largura de poço, entretanto, o acoplamento já é suficientemente forte para que o ajuste parabólico, mesmo para este exciton, se torne uma aproximação por demais grosseira. Os excitons com grande valor de \bar{k}_{CM} (média sobre 36 meV), por outro lado, são menos sensíveis à largura do poço. Isso se deve ao fato de que a faixa de energia considerada neste caso abrange, mesmo para poços estreitos, a região do anticruzamento das curvas dos "excitons de buraco leve e pesado" que caracteriza o

acoplamento entre eles.

Efeito de campo elétrico aplicado na direção de crescimento

A aplicação de um campo elétrico ao longo da direção de crescimento do poço (\hat{z}) quebra a simetria por inversão $\hat{z} \rightarrow -\hat{z}$ do QW. Como consequência, a degenerescência por simetria de inversão das subbandas de valência é quebrada para os estados com $\vec{k}_h \neq 0$ do movimento no plano[22]. Em semicondutores do grupo III-V esta quebra de simetria já existe devido à diferença entre os átomos do cátion e do ânion, mas este efeito é fraco. A degenerescência de Kramers (simetria por reversão temporal) permanece[30]. As Figuras 3.6 (a) e (b) mostram, respectivamente, as dispersões no plano das subbandas de valência acopladas e do CM do exciton acoplado sob influência de um campo elétrico F=100 kV/cm aplicado perpendicularmente ao plano do QW com largura L=200 Å.

A dispersão do exciton apresenta uma quebra da degenerescência para $\vec{K}_{CM} \neq 0$, como consequência da quebra da simetria por inversão em \hat{z} . Os estados com $\vec{K}_{CM} =$ 0, porém, mantêm sua degenerescência. Embora haja duas dispersões diferentes para os buracos (Figura 3.6 (a)), não existem dois excitons diferentes a $\vec{K}_{CM} = 0$, uma vez que estas subbandas estão acopladas e a interação Coulombiana não deve alterar a simetria da estrutura a $\vec{k} = 0$ [30].

A Figura 3.7 mostra as curvas de dispersão do exciton para diversos valores de campo elétrico aplicado em um poço de largura L=150 Å.

Observa-se que a quebra de degenerescência a $\vec{K}_{CM} \neq 0$ diminui com o aumento do campo. Embora a anisotropia da dispersão aumente com o campo, a separação entre as subbandas de buraco pesado e leve aumenta ($\Delta E(F) \propto m_h$ [22]), diminuindo a interação.

Na Figura 3.8 graficamos a massa efetiva média do exciton como uma função do



Figura 3.6: (a): Dispersão da banda de valência; (b): Dispersão do CM do exciton. Campo elétrico aplicado: F=100 kV/cm. L=200 Å.

campo elétrico, para L=150 Å.

Da mesma forma que aqueles resultados da Figura 3.5, estes foram obtidos a partir de um ajuste parabólico das curvas de dispersão do exciton. No presente caso, a média é tomada dentro de uma faixa de 5 meV de energia. A curva sólida fornece os resultados para o estado de menor energia e menos parabólico. À medida que o campo aumenta, as duas massas convergem para o resultado desacoplado, consequêncita da maior separação entre as subbandas de buraco. A existência de duas massas diferentes pode levar a uma dinâmica diferenciada entre os excitons. Isto pode ser explorado para identificar a quebra da degenerescência devido à quebra



Figura 3.7: Curvas de dispersão do exciton sob diversos valores de campo elétrico aplicado: F=50 kV/cm, 100 kV/cm e 150 kV/cm. L=150 Å.

de simetria por inversão. No entanto, não devemos esquecer que os dois estados são acoplados, e qualquer relaxação de momento pode levar o exciton a um ou outro ramo de dispersão, tornando o problema da dinâmica excitônico bastante complexo.

3.2.3 Tensão: transição excitônica indireta

Nesta parte do trabalho, apresentamos resultados dos cálculos da dispersão excitônica em poços quânticos de InGaAs embebidos em barreiras de InP. Este é um cálculo



Figura 3.8: Massa efetiva média do exction como uma função do campo elétrico, para L=150 Å. A média é obtida a partir de um ajuste parabólico da curva de dispersão, numa faixa de energia de 5 meV.

aplicativo que teve como motivação explicar os dados experimentais obtidos por Michler e colaboradores[47] e explorar os limites do acoplamento entre os excitons.

Na estrutura $In_{1-x}Ga_xAs/InP$, a mistura das bandas de valência depende fortemente da deformação ("strain") introduzida no sistema devido ao descasamento do parâmetro de rede entre os materiais do poço e da barreira[118]. Os parâmetros de rede do InP e do $In_{1-x}Ga_xAs$ são: $a_{InP} = 5,87Å$ e $a_{InGaAs} = 6,06-0,405xÅ$. Para uma concentração de Gálio x=0,47, os parâmetros de rede dos materiais são casados. Para valores menores de x, o material do poço fica sob efeito de compressão, enquanto que para x>0,47 o material do poço sofre uma tensão. Neste último caso, o efeito sobre as bandas de valência é o de aproximar as bandas de buraco leve e pesado, separadas inicialmente pelo confinamento. A partir de uma determinada concentração de Gálio, o estado de buraco leve torna-se o estado fundamental do sistema. Estes efeitos originam-se da introdução de uma simetria axial nas bandas de caráter "p".

O efeito de reversão das massas de buraco e o acoplamento entre as bandas induzem à formação do perfil tipo "costas de camelo" na dispersão da subbanda de buraco leve no plano do poço. Se x>0,47, o estado de valência fundamental poderá ter um máximo num ponto $\vec{k}_h \neq 0$, ou seja o sistema terá um "gap" indireto. O objetivo destes cálculos é estudar o comportamento do estado excitônico num sistema com "gap" indireto, analisando a transferência desta característica para os estados excitônicos e a formação de um "exciton indireto".

Através da medida do tempo de vida do exciton em poços quânticos de $In_{1-x}Ga_xAs/InP$ em função da concentração de Gálio para diversas larguras de poço, Michler e colaboradores [47] evidenciaram a transição entre um exciton direto e um indireto. As medidas mostraram que, para a situação de recombinação excitônica indireta, o tempo de vida aumenta em duas ordens de grandeza em relação ao da recombinação direta, passando de 2 ns a 200 ns.

Em nosso trabalho[36], calculamos a dispersão do CM do exciton neste tipo de sistema através do Hamiltoniano de Luttinger 6x6 para as bandas de valência, que inclui os estados SO [118, 119]. No acoplamento entre as bandas de buraco pesado e leve com a banda SO, foram incluídos apenas os termos devido à tensão. Estes termos foram incluídos seguindo o Hamiltoniano de Bir-Pikus[120, 121]. Mostramos na Figura 3.9 as dispersões do primeiro estado excitônico em poços de $In_{1-x}Ga_xAs/InP$ para várias concentrações de Gálio. Utilizamos a largura de poço de 60 Å, idêntica à de uma das amostras apresentadas em [47]. Para facilitar a visualização, as curvas foram deslocadas em energia de modo a coincidirem no ponto $\vec{K}_{CM} = 0$.

Observa-se claramente a passagem da situação de exciton direto para a de exciton indireto conforme aumentamos a concentração de Gálio na liga. A concentração crítica encontrada, a partir da qual se tem a mudança exciton direto \leftrightarrow exciton

indireto, foi de $x_c = 0.582$ para o poço de 60 Å de largura e de $x_c = 0.6$ para o poço com largura de 45 Å (não mostrado na Figura), em bom acordo com os resultados experimentais.

Nota-se que curvas de dispersão excitônicas são fortemente não parabólicas para concentrações de Gálio próximas à concentração crítica. Isso se deve à grande proximidade entre as subbandas de valência nessa situação. Para concentrações ainda maiores que a concentração crítica, a dispersão do exciton torna-se mais parabólica, uma vez que a subbanda de buraco leve começa a se distanciar em energia, tornandose o estado fundamental. Devido ao efeito de reversão das massas, não ocorre um anticruzamento neste caso e os efeitos do acoplamento tornam-se menos pronunciados.

3.3 Mistura de Spin no Exciton Acoplado

Como vimos neste Capítulo, a mistura de estados de valência e o acoplamento dos movimentos reduzido e do CM no exciton dão origem ao exciton não parabólico, cujos autoestados são formados por uma mistura de diferentes valores de spin $| J, J_z \rangle$. O spin do exciton deixa de ser um bom número quântico. Assim como a não parabolicidade da dispersão do exciton acoplado deve influenciar fortemente na dinâmica de relaxação de momento do exciton (\vec{K}_{CM}) , a mistura do spin excitônico deve afetar fortemente a relaxação de spin do exciton. É o acoplamento entre os excitons que permite a relaxação do spin excitônico.

Até o momento, este acoplamento foi tratado em perturbação[39,52]. O nosso cálculo permite obter um acoplamento entre os spins, assim como a evolução deste acoplamento à medida que o exciton relaxa. De posse dos estados de spin acoplados, podemos, em princípio, estudar a evolução das populações de spin do exciton durante



Figura 3.9: Dispersão do CM do exciton para várias concentrações de Gálio em um poço de $In_{1-x}Ga_xAs/InP$ de largura L=60 Å.

a sua relaxação. Esta é a motivação inicial deste trabalho teórico.

Para colocar em evidência esta mistura de estados de spin no exciton acoplado, calculamos o valor médio do spin total dos estados excitônicos como função do vetor de onda do CM \vec{K}_{CM} . Para calcular o spin médio, separamos as soluções degeneradas devido à simetria por inversão em poços simétricos. O Hamiltoniano excitônico se separa em dois blocos desacoplados pela paridade da função de onda, cada qual relacionado a uma das seguintes funções de onda:

$$\Psi_{exc}(z_{e}, z_{h}, \vec{\rho}, \vec{R}_{CM}) = f_{n}(z_{e}) \begin{bmatrix} \sum_{m(par), j, \lambda_{j}} c_{m, j, \lambda_{j}}^{1} g_{m}^{+}(z_{h}) \Psi_{j}(\vec{\rho}, \lambda_{j}) \\ \sum_{n(par), j, \lambda_{j}} c_{n, j, \lambda_{j}}^{2} g_{m}^{-}(z_{h}) \Psi_{j}(\vec{\rho}, \lambda_{j}) \\ \sum_{n(impar), j, \lambda_{j}} c_{m, j, \lambda_{j}}^{3} g_{m}^{-}(z_{h}) \Psi_{j}(\vec{\rho}, \lambda_{j}) \\ \sum_{m(impar), j, \lambda_{j}} c_{m, j, \lambda_{j}}^{4} g_{m}^{+}(z_{h}) \Psi_{j}(\vec{\rho}, \lambda_{j}) \end{bmatrix} \frac{exp[i\vec{K}_{CM} \cdot \vec{R}_{CM}]}{\sqrt{S}}$$

$$(3.25)$$

$$\Psi_{exc}(z_e, z_h, \vec{\rho}, \vec{R}_{CM}) = f_n(z_e) \begin{bmatrix} \sum_{m(impa\tau), j, \lambda_j} c_{m,j,\lambda_j}^1 g_m^+(z_h) \Psi_j(\vec{\rho}, \lambda_j) \\ \sum_{n(impa\tau), j, \lambda_j} c_{n,j,\lambda_j}^2 g_m^-(z_h) \Psi_j(\vec{\rho}, \lambda_j) \\ \sum_{n(pa\tau), j, \lambda_j} c_{m,j,\lambda_j}^3 g_m^-(z_h) \Psi_j(\vec{\rho}, \lambda_j) \end{bmatrix} \frac{exp[i\vec{K}_{CM} \cdot \vec{R}_{CM}]}{\sqrt{S}}$$

$$(3.26)$$

O elétron pode ter spin $s_e = +\frac{1}{2}$ ou $s_e = -\frac{1}{2}$. Referindo-nos ao exciton fundamental desacoplado de buraco pesado e1 - hh1 : 1s de cada bloco, e ao exciton desacoplado de buraco leve e1 - lh1 : 1s, temos os seguintes estados excitônicos degenerados e desacoplados:

$$S_{exc}^{hh} = 2 \ (s_e = \frac{1}{2}, J_z = \frac{3}{2} \ (Eq.3.25))$$
 (3.27)

$$S_{exc}^{lh} = 0 \ (s_e = \frac{1}{2}, J_z = -\frac{1}{2} \ (Eq.3.25))$$
 (3.28)

$$S_{exc} = 1^{hh} \quad (s_e = -\frac{1}{2}, J_z = \frac{3}{2} \quad (Eq.3.25))$$
 (3.29)

$$S_{exc}^{lh} = -1 \quad (s_e = -\frac{1}{2}, J_z = -\frac{1}{2} \quad (Eq.3.25))$$
 (3.30)

$$S_{exc}^{hh} = -1 \quad (s_e = \frac{1}{2}, J_z = -\frac{3}{2} \quad (Eq.3.26))$$
 (3.31)

$$S_{exc}^{lh} = 1 \quad (s_e = \frac{1}{2}, J_z = \frac{1}{2} \quad (Eq.3.26))$$
 (3.32)

$$S_{exc}^{hh} = -2 \quad (s_e = -\frac{1}{2}, J_z = -\frac{3}{2} \quad (Eq.3.26))$$
 (3.33)

$$S_{exc}^{lh} = 0 \quad (s_e = -\frac{1}{2}, J_z = \frac{1}{2} \quad (Eq.3.26))$$
 (3.34)

Cada solução representa o mesmo tipo de acoplamento. Vamos analisar, portanto, apenas o caso onde $s_e = -\frac{1}{2}$, ou seja, os estados onde $S_{exc} = 1$ para o exciton el-hhl:ls desacoplado e $S_{exc} = -1$ para o exciton el-lhl:ls desacoplado.

Na Figura 3.10 temos o valor médio do spin para os "excitons de buraco pesado e leve- el-hh1:1s e el-lh1:1s" num poço de GaAs com largura L=200 Å, entre barreiras de $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$.

Observa-se que, a $\vec{K}_{CM} = 0$, temos estados de spin aproximadamente iguais a +1 e -1, respectivamente para os "excitons de buraco pesado e leve". Isto nos mostra que a contribuição da mistura de bandas de valência na mistura excitônica a $\vec{K}_{CM} = 0$ é bastante pequena, embora não nula. Este resultado vem da contribuição não nula dos estados de valência com $\vec{k}_h \neq 0$ na formação dos estados excitônicos com $\vec{K}_{CM} = 0$. A mistura das bandas de valência em $\vec{k}_h \neq 0$ resulta, portanto, numa mistura de estados excitônicos em $\vec{K}_{CM} = 0$. Conforme aumenta o valor de K_{CM} , maior é a mistura dos estados excitônicos, e maior a mistura de spin destes estados. Isso é o que se observa nas curvas da Figura 3.9, que mostram como os estados perdem a característica de spin quase puro (± 1), passando a uma situação de spin misturado $(-1 < S_{exc} < +1)$.

Estudamos também a dependência com a largura do QW da mistura de spin do primeiro estado excitônico. Os resultados estão apresentados na Figura 3.11.

Podemos observar que, para um poço com largura de 50 Å a mistura de spin



Figura 3.10: Valor médio do spin excitônico em função de \vec{K}_{CM} para os estados "el-hhl:ls e el-lhl:ls". L = 200Å.

é muito pequena, e só começa a ser significativa a partir de $K_{CM} \approx 0.02 \text{\AA}^{-1}$. Da relação de dispersão calculada na primeira seção, este momento corresponderia a um exciton com energia cinética de cerca de 7 meV. Portanto, num QW de largura L=50 Å a mistura de spin devido ao acoplamento dos estados excitônicos é efetiva para um exciton criado com um excesso de energia de, pelo menos, 7 meV. No caso de um poço de largura L=200 Å, a mistura de spin é muito maior, chegando a ser significativa para estados com $K_{CM} \approx 0.007 \text{\AA}^{-1}$. De acordo com os dados da relação de dispersão do exciton fundamental para um poço de 200 Å, isso corresponderia a um exciton com energia cinética de cerca de 1 meV. Portanto, para um poço com 200 Å de largura, existe uma forte mistura de estados de spin, mesmo para uma



Figura 3.11: Valor médio do spin do exciton fundamental para diversas larguras de poço.

situação de excitação ressonante do exciton.

Estes resultados revelam a importância de se levar em conta o acoplamento entre excitons e a mistura de estados de spin no estudo da relaxação de spin do exciton, seja sob excitação ressonante ou não ressonante. Devemos de observar que para o cálculo da relaxação de spin é necessário incluir o termo de troca[52] no cálculo dos estados excitônicos.

Estes resultados se aplicam também nos casos onde o exciton se encontra localizado por rugosidades de interface ou outros defeitos do QW, como é o caso encontrado nas amostras analisadas no próximo Capítulo. Neste caso, a localização do CM do exciton leva à formação de um estado com uma função espectral combinando vários vetores de onda \vec{K}_{CM} . Estes estados carregam consigo a sua mistura de spin correspondente, formando um estado fortemente misturado.

No caso de excitons livres, a relaxação de spin é dada pela interação de troca no exciton[52], e o mecanismo dominate é o mecanismo D'Yakonov-Perel'[98]. No caso de excitons localizados, não exite ainda nenhum modelo teórico que descreva os mecanismos de relaxação de spin. A análise do processo de "spin-flip" nestes materiais permanece especulativa (ver Capítulo 4 desta tese).

Capítulo 4

Relaxação de Spin do Exciton: Efeito da Localização

4.1 Introdução

A relaxação de spin do exciton em heteroestruturas de semicondutor é um dos processos básicos envolvidos na dinâmica de relaxação excitônica[39]. Como vimos no Capítulo anterior, a dispersão dos estados do exciton acoplado em um poço quântico é caracterizada por uma mistura de estados de spin para cada momento do CM do exciton. A relaxação de momento do exciton é, portanto, responsável por uma mudança do estado de spin do exciton, e a dinâmica de relaxação de spin está intimamente ligada à dinâmica de relaxação de momento do exciton.

A relaxação de spin do exciton pode ocorrer tanto através da troca de spin de cada portador individualmente no exciton como da troca de spin do exciton como um todo. Técnicas de espectroscopia óptica que medem o grau de polarização circular (P_{circ}) e de polarização linear (P_{lin}) no sistema permitem a diferenciação dos processos de troca de spin envolvidos na relaxação de spin do exciton[59], uma vez que P_{lin} é extremamente sensível à relaxação de spin dos portadores separadamente no exciton, enquanto que P_{circ} é sensível à troca de spin do exciton como um todo, como veremos na próxima seção. Existe uma grande controvérsia em relação aos resultados experimentais, principalmente no que se refere aos processos de "spin-flip" e aos mecanismos de relaxação de spin. Diversos trabalhos evidenciam que a relaxação é dominada pela troca de spin do exciton como um todo[39, 68, 72, 80]. Outros trabalhos indicam uma contribuição dos portadores separadamente na troca de spin no exciton[61, 71]. Os resultados são também altamente dependentes da amostra estudada. Muitos autores sugerem que a diversidade de comportamentos observados na dinâmica de relaxação do spin excitônico seja devida ao espalhamento e localização dos excitons por impurezas e defeitos, e esteja intimamente ligada aos processos de crescimento da estrutura em estudo[59, 67, 71, 76, 79, 83].

Os tempos de relaxação de spin excitônico medidos são tipicamente da ordem de algumas dezenas de picossegundos até uma centena de picossegundos, dependendo da largura dos poços quânticos, do alargamento inomogênio presente na amostra e da natureza da relaxação de spin[61,65,67,68,70,71,74,79,80,83,85]. Medidas realizadas sob alto campo magnético mostraram que o momento magnético eletrônico se conserva durante os processos de relaxação e termalização e que o tempo de relaxação do spin eletrônico é maior que o tempo de recombinação radiativa em um poço quântico de GaAs/AlGaAs[60].

Neste Capítulo trataremos do estudo da dinâmica de relaxação de spin em poços quânticos não dopados¹. Estaremos particularmente interessados em estudar o efeito da localização do exciton na dinâmica de relaxação de spin. Nos últimos anos tem havido um grande interesse no papel da localização dos excitons em ilhas e microrugosidades da interface de heteroestruturas de semicondutor na dinâmica de re-

¹Este trabalho foi realizado junto ao *European Laboratory of Nonlinear Spectroscopy* (LENS), em Firenze, Itália, sob a orientação da Professora Anna Vinattieri.

laxação de spin[76, 79, 83, 85]. O interesse neste tipo de estudo surge, por um lado, do fato de que os mecanismos de relaxação de spin são fortemente dependentes da amostra estudada, como mostram os diversos resultados divulgados na literatura. Uma possível razão para este fato vem da dependência direta da dinâmica de relaxação de spin com a dinâmica de relaxação do momento excitônico no sistema, que é influencida pelo grau de localização do exciton na amostra. Por outro lado, com o maior desenvolvimento das técnicas de crescimento, tem sido possível controlar o crescimento destas rugosidades, permitindo a formação de caixas quânticas[122]. O estudo da dinâmica excitônica e da dinâmica de spin nestas estruturas com forte potencial de localização contribui para a compreensão destes sistemas.

A dinâmica de relaxação de spin de excitons localizados é um problema altamente complexo, pois envolve uma combinação de vários estados excitônicos, cada qual com um vetor de onda \vec{K}_{CM} e um acoplamento de estados de spin característico. Não existe, até o momento, uma teoria que descreva convenientemente a dinâmica de spin do exciton localizado. Os resultados experimentais que estudam o efeito da localização do exciton na relaxação de spin não são conclusivos. Os trabalhos existentes chegam a observar comportamentos opostos para a dinâmica de spin do exciton localizado: enquanto alguns autores afirmam que a relaxação de spin do exciton localizado é mais rápida que a do exciton livre[85], outros observam que a localização provoque um atraso nos processos relaxação [71, 76, 79, 83, 87]. Na maioria destes trabalhos experimentais, os excitons estão fracamente localizados. Portanto, dentro da população opticamente ativa dos excitons, ou seja, a que está dentro da largura de linha inomogênea da transição excitônica, coexistem excitons livres e excitons localizados[50]. No nosso caso, os resultados experimentais mostram que os excitons estão fortemente localizados, ou seja, dentro da largura de linha inomogênea os efeitos por nós observados são devidos exclusivamente à localização do exciton.

4.2 Regras de Seleção das Transições

Uma das maneiras de se estudar a dinâmica de relaxação de spin de portadores e excitons num material semicondutor é através da análise dos espectros de luminescência resolvida no tempo a partir de excitação com luz circularmente polarizada.

Um par elétron-buraco excitado ressonantemente por um campo eletromagnético que se propaga na direção 2 com uma determinada polarização satisfaz à condição de conservação da componente do momento angular na direção 2:

$$S = s_e + m_h = m_f \tag{4.1}$$

onde S e m_f são as projeções no eixo \hat{z} dos momentos angulares do exciton e do campo eletromagnético, respectivamente

Tomando em conta as simetrias das bandas de condução e valência para elétrons em semicondutores do grupo III-V com "gap" direto, temos que os estados eletrônicos são caracterizados pelos momentos angulares:

$$|S, S_z\rangle_c = |\frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2}\rangle \tag{4.2}$$

$$|J, J_z\rangle_v = |\frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2}\rangle, \quad |\frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2}\rangle$$
 (4.3)

Na representação de elétron na banda de condução e buraco na banda de valência, temos que os valores das projeções sobre o eixo 2 dos momentos angulares são separados em:

$$s_e = \pm \frac{1}{2} \tag{4.4}$$

$$m_J^{hh} = \pm \frac{3}{2} \tag{4.5}$$

$$m_J^{lh} = \pm \frac{1}{2} \tag{4.6}$$

onde a denominação de buraco pesado (hh) e buraco leve (lh), que para poços quânticos é estritamente válida somente no ponto $\vec{k}_{\perp h} = 0$ das curvas de dispersão no plano do poço, é mantida por razões de conveniência de notação. Seguiremos utilizando também a notação de "exciton de buraco pesado" e "exciton de buraco leve" por simplicidade de linguagem.

Para o campo eletromagnético transverso com vetor de onda $\vec{k}_f = k_f \hat{z}$, a projeção do momento angular na direção \hat{z} é $m_f = +1$ para polarização circular σ_+ e $m_f = -1$ para polarização circular σ_- . Para polarização linear π do campo com vetor de propagação no plano xy, $m_f = 0$.

Assim, segundo o acoplamento entre os diversos estados de spin dos portadores das bandas de condução e valência, o spin total do exciton pode assumir os valores $S = 0, \pm 1, \pm 2$. A regra de seleção para excitação óptica de excitons por um fóton faz com que existam três estados chamados opticamente ativos, para os quais $S = 0, \pm 1$, e dois estados opticamente inativos, com $S = \pm 2$.

A situação experimental usual corresponde à excitação e detecção óptica com vetor de onda do campo na direção de crescimento do poço (\hat{z}). Nesta situação, os estados opticamente ativos aos quais temos acesso são os estados com $S = \pm 1$.

Denotando por $|S\rangle = |s_e, m_h\rangle$ os estados de spin excitônico envolvidos no processo, temos:

$$|+1\rangle = |-\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}\rangle, \quad |+\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle$$
 (4.7)

$$|-1\rangle = |+\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}\rangle, \quad |-\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$$
 (4.8)

para excitação com as polarizações circulares σ_+ e σ_- . Para excitação com polarizações lineares ao longo das direções x e y, os dois tipos de excitons, "de buraco leve e pesado", são excitados simultaneamente:

$$|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle) \tag{4.9}$$

$$|Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \tag{4.10}$$

A técnica de excitação óptica ressonante com luz circularmente polarizada é, portanto, útil no estudo da relaxação de spin em estruturas de semicondutor tipo poço quântico pois possibilita uma excitação seletiva de estados de spin no cristal, sendo que sua evolução pode ser estudada através da análise da polarização da luminescência resultante. A excitação com polarização linear da luz, embora nos forneça informações complementares, é mais difícil de ser interpretada, uma vez que não é possível excitar seletivamente um só estado de spin.

4.3 Experimental

4.3.1 Amostra

A amostra que utilizamos para o estudo da dinâmica de relaxação de spin consiste em dois poços quânticos de GaAs com 40 Å de espessura nominal, separados por uma barreira de $Al_{0.29}Ga_{0.71}As$ com 20 Å de espessura, e foi crescida sobre um substrato inclinado de 4° da direção (0,0,1) para a direção (1,-1,0). Este tipo de crescimento tem como objetivo criar condições para a obtenção de confinamento lateral de excitons[123]. Nossa amostra é composta por um "buffer" de GaAs com cerca de $0.9 \ \mu m$ de espessura, uma camada de AlGaAs com 490 Å de espessura, a estrutura de duplo poço de GaAs e uma última camada de 490 Å de AlGaAs. Na Figura 4.1 mostramos um esquema com os potenciais das bandas de condução e valência desta estrutura, com os respectivos estados eletrônicos confinados, descritos pelas funções envelope. Nesta estrutura, a barreira de 20 Å de AlGaAs é suficientemente estreita para que os estados eletrônicos confinados em um poço se acoplem com os do poço vizinho. Este acoplamento dá origem a uma quebra de degenerescência dos níveis eletrônicos de condução e valência, separando os estados simétrico (S) e antisimétrico (A)[17]. Como veremos na próxima secção, a separação em energia entre os estados simétrico e anti-simétrico do "exciton de buraco pesado 1s" (que denotaremos por eS-hhS e eA-hhA, respectivamente) é de 50 meV, e para o "exciton de buraco leve 1s" (eS-lhS e eA-lhA), de 90 meV. Este sistema nos dá acesso a diversos estados de buraco pesado e leve intercalados entre si e com energias bastante altas em relação ao estado excitônico fundamental.



Figura 4.1: Potenciais e funções envelope dos estados confinados na amostra estudada, um duplo poço quântico de 40 Å de GaAs acoplado por uma barreira de 20 Å de $Al_{0.29}Ga_{0.71}As$.

4.3.2 Técnicas Experimentais

As técnicas experimentais utilizadas para o estudo foram a PL e a PLE a baixas temperaturas, tanto no modo CW quanto em resolução temporal, sob polarização circular da luz.

A fonte de excitação contínua utilizada foi um laser de Titânio:Safira operando na faixa de comprimentos de onda de 7200 Å a 8000 Å. Para a excitação com energias mais altas foi utilizado um laser de corante alimentado com DCM-II, operando em comprimentos de onda abaixo de 7100 Å. A intensidade de excitação nestas medidas não superou $1W/cm^2$. Nas medidas resolvidas no tempo, a excitação foi realizada por pulsos com cerca de 10 ps de duração (FWHM) produzidos por um laser de corante Styryl-9 bombeado sincronamente pelo segundo harmônico de um laser Nd:YAG pulsado, com 76 MHz de taxa de repetição. A intensidade de excitação neste caso foi de cerca de $10W/cm^2$. Os perfis de decaimento temporal da fotoluminescência foram obtidos com o auxílio de uma"streak camera" com uma resolução temporal de cerca de 20 ps. Em ambos os casos, utilizamos placas de quarto de onda multimodo na região de comprimentos de onda de interesse para o controle da polarização da luz tanto na excitação como na detecção.

As medidas foram realizadas a diversas temperaturas (entre 10 K e 70 K) com o auxílio de um criostato a dedo frio.

A seguir, damos uma breve descrição das técnicas de PL e PLE[124] e do funcionamento de uma "streak camera"[125].

Fotoluminescência (PL)

A técnica espectroscópica de PL consiste na medida do espectro da emissão radiativa espontânea, após uma excitação conveniente do material em estudo.

Quando um sistema é transferido do seu estado fundamental $|f\rangle$ para um dado estado excitado $|i\rangle$ por absorção de energia, após um determinado intervalo de tempo, característico do estado $|i\rangle$ e dos estados intermediários, retornará ao seu estado fundamental através de processos radiativos e não radiativos. A emissão espontânea é, portanto, um dos diversos processos envolvidos na passagem do estado $|i\rangle$ para o estado fundamental $|f\rangle$.

Suponhamos que o sistema em estudo possa ser representado esquematicamente por um sistema de quatro níveis, como o mostrado na Figura 4.2 [124]. Nesta Figura, T_{if} são os tempos de recombinação radiativa que levam o sistema do estado excitado $|i\rangle$ ao estado fundamental $|f\rangle$, e τ_{ij} são os tempos de relaxação não radiativa entre os diversos estados.



Figura 4.2: Esquema de níveis representativo. T_{if} são os tempos de recombinação radiativa e τ_{ij} são os tempos de relaxação não radiativa.

Suponhamos que T_{41} seja muito maior que os demais tempos de decaimento, de modo que a intensidade de luminescência observada no sistema seja devida ao decaimento das populações n_3 e n_2 dos níveis $|3\rangle e |2\rangle$. As equações de taxa que regem a dinâmica dessas populações são:

$$\frac{dn_3(t)}{dt} = \frac{n_4(t)}{\tau_{43}} - \frac{n_3(t)}{\tau_{32}} - \frac{n_3(t)}{T_{31}}$$
(4.11)

$$\frac{dn_2(t)}{dt} = \frac{n_3(t)}{\tau_{32}} - \frac{n_2(t)}{\tau_{21}} - \frac{n_2(t)}{T_{21}}$$
(4.12)

Para o caso estacionário, a solução das equações 4.11 e 4.12 com $\frac{dn_i}{dt} = 0$ nos leva a:

$$n_3 = \frac{n_4}{\tau_{43}} \frac{T_{31}}{1 + \frac{T_{31}}{\tau_{32}}} \tag{4.13}$$

$$n_2 = \frac{n_4}{\tau_{43}} \frac{T_{31}}{1 + \frac{T_{31}}{\tau_{32}}} \frac{1}{\tau_{32}} \frac{T_{21}}{1 + \frac{T_{21}}{\tau_{21}}}$$
(4.14)

A intensidade de luminescência CW de um certo estado $| k \rangle$ será dada pela população estacionária do estado dividida pelo tempo de recombinação radiativa correspondente:

$$I_k = \frac{n_k}{T_{k1}} \tag{4.15}$$

Suponhamos, agora, que τ_{43} é muito mais curto que os outros tempos envolvidos no problema, e que n_0 é a população inicialmente excitada no nível | 3 \rangle . Este corresponde ao caso de excitação ultra-rápida. A dependência temporal das populações em | 3 \rangle e | 2 \rangle para t>0, será, então, aproximada por:

$$n_3(t) = n_0 exp(-\frac{t}{T_{3L}})$$
(4.16)

$$n_2(t) = \frac{n_0}{T_{2L}^{-1} - T_{3L}^{-1}} \left[exp(-\frac{t}{T_{3L}}) - exp(-\frac{t}{T_{2L}}) \right]$$
(4.17)

onde

$$\frac{1}{T_{3L}} = \frac{1}{T_{31}} + \frac{1}{\tau_{32}} \tag{4.18}$$

$$\frac{1}{T_{2L}} = \frac{1}{T_{21}} + \frac{1}{\tau_{21}}$$
(4.19)

No caso em que a população dos estados do sistema é muito menor que o número de ocupação desses estados, a intensidade de luminescência é diretamente proporcional à população do estado correspondente. As equações 4.16 e 4.17 nos mostram, portanto, que a intensidade de luminescência de um dado estado $|k\rangle$ decai com um tempo T_{kL} , que depende dos tempos de recombinação radiativa $T_{kR} = T_{k1}$ e não radiativa $T_{kNR} = \tau_{k1}$ da seginte forma:

$$\frac{1}{T_{kL}} = \frac{1}{T_{kR}} + \frac{1}{T_{kNR}} \tag{4.20}$$

Resposta Instrumental No caso de medidas espectroscópicas resolvidas no tempo, a resposta instrumental é de fundamental importância quando comparável aos tempos de decaimento que se deseja medir.

Em geral, o perfil temporal do sinal medido—S(t)—está relacionado ao perfil temporal da luminescência—I(t)—através da teoria da resposta linear, pela convolução de I(t) com a função resposta R(t)[126]:

$$S(t) = \int R(\tau - t)I(\tau)d\tau \qquad (4.21)$$

Para exemplificar o efeito da resposta instrumental e a utilidade na determinação de tempos de decaimento da ordem da resolução temporal do sistema, mostramos na Figura 4.3 um gráfico[126] com os dados de uma resposta instrumental R(t) com largura temporal FWHM de 220 ps (curva (a)), e dos sinais S(t) obtidos através da
convolução de funções monoexponenciais I(t) com tempos de decaimento de 100 ps (curva (b)) e 200 ps (curva (c)).



Figura 4.3: Resolução temporal obtida com a técnica de deconvolução: (a) resposta instrumental R(t), FWHM ≈ 220 ps; (b) S(t) obtido a partir da convolução de R(t) com uma monoexponencial com constante de tempo de 100 ps; (c) ídem a (b), para constante de tempo de 200 ps.

Excitação de Fotoluminescência (PLE)

A técnica de PLE consiste na medida da intensidade da fotoluminescência como função da energia de excitação. Em geral, a resolução espectral do sistema de medida é muito maior que a largura espectral da PL, de modo que pode-se escolher a energia da luminescência cuja intensidade será monitorada. Este tipo de medida nos fornece informação a respeito da estrutura e propriedades eletrônicas do sistema e pode dar informações inclusive de processos envolvidos na relaxação para o estado a partir do qual ocorre a emissão radiativa espontânea. Retomemos o esquema de níveis da Figura 4.2. Suponhamos que a detecção seja sintonizada sobre a luminescência com energia $E_2 - E_1$. A energia de excitação é variada de modo a cobrir toda a região de energia dos estados excitados. Somente a fração da população excitada que decair para o estado $| 2 \rangle$ irá contribuir para o sinal medido. Para a presente análise, consideraremos que T_{41} e T_{31} são os tempos de decaimento para todo e qualquer estado que não resulte em população do nível $| 2 \rangle$. A intensidade do sinal da luminescência dependerá, então, de dois fatores, basicamente:

a) da densidade de estados conjunta da transição excitada.

b) dos valores relativos dos tempos de decaimento $T_{i1} \in \tau_{ij}$, onde $|i\rangle$ é o estado inicialmente excitado; e $|j\rangle$ é o estado para o qual decai, radiativa ou não radiativamente.

O último fator é o que complica em grande parte a análise dos dados obtidos pela técnica de PLE. Existe uma tendência inicial em se associar os espectros de PLE aos de absorção. Entretanto, uma relação direta entre as intensidades das transições do espectro de PLE e as do espectro de absorção só é válida no caso em que $T_{i1} >> \tau_{ij}$, de modo que toda a população excitada no estado $|i\rangle$ decaia para o estado a partir do qual o sistema luminesce.

Outro fato importante a ser destacado é que, pela natureza da técnica, a PLE permite distinguir a origem do sinal de fotoluminescência. Suponhamos, por exemplo, que a transição do estado $| 4 \rangle$ para o estado $| 3 \rangle$ seja proibida, ou seja muito mais lenta que a transição de $| 4 \rangle$ para $| 2 \rangle$. Se medirmos um espectro de PLE detectando a luminescência na energia $E_2 - E_1$, observaremos os picos relativos às transições dos estados $| 4 \rangle$ e $| 3 \rangle$, enquanto que se a detecção for feita sobre a energia $E_3 - E_1$, não observaremos nenhum sinal sobre a transição do estado $| 4 \rangle$.

"Streak Camera"

Na Figura 4.4 [125] mostramos um esquema do sistema interno usado para resolver temporalmente um sinal de fotoluminescência em uma "streak camera".



Figura 4.4: Esquema do sistema interno de uma "streak camera".

O sinal óptico é focalizado sobre um fotocatodo (FC) que, por efeito fotoelétrico, emite elétrons (em todas as direções) em quantidade proporcional à intensidade de luz incidente. No nosso caso, o fotocatodo é do tipo S-25, cuja eficiência quântica em função do comprimento de onda da luz incidente é dada pela curva pontilhada da Figura 4.5 [125].

O feixe de elétrons emitido pelo fotocatodo é acelerado na direção do eixo óptico e posteriormente colimado por um sistema focalizador (GA+SF) de modo a recuperar a forma espacial do feixe de luz incidente no fotocatodo.

Este feixe colimado atravessa, então, a região entre duas placas defletoras (PVD). Sobre estas placas é aplicada uma tensão que aumenta linearmente com o tempo. Este aparato é utilizado para dispersar espaciamente os elétrons que foram gerados



Figura 4.5: Eficiência quântica do fotocatodo S-25 da "streak camera" utilizada em nossas medidas.

pelo fotocatodo em instantes diferentes. Desta maneira, o sinal de luminescência, que carrega informação sobre a evolução temporal do sistema, é transformada em uma dispersão espacial de elétrons. O feixe de elétrons dispersados espacialmente atinge uma tela fosforescente, cuja imagem é captada por uma câmara CCD ("Charge-coupled Device").

Durante as medidas realizadas, utilizamos a "streak camera" no modo denominado de "synchroscan", ou de varredura sincronizada, no qual a da tensão é aplicada às placas defletoras em sincronismo com os pulsos do laser que excita a amostra. Cada vez que um pulso laser excita a amostra inicia-se uma nova rampa de tensão sobre as placas. O sincronismo é feito com o auxílio de uma referência, enviando uma parte do feixe laser de excitação diretamente para o sistema de medida. Uma vez o pulso laser sendo temporalmente estreito, o sinal produzido no fotocatodo não é dispersado pelo sistema de placas defletoras, constituindo uma referência na escala espacial utilizada. Ajustando-se o atraso temporal do sinal eletrônico aplicado às placas em relação ao da referência, obtém-se o sincronismo necessário.

Resolução Temporal A resolução temporal fornecida pela "streak camera" é, em geral, limitada por três fatores:

a) Alargamento temporal Δt_1 , devido à dispersão da velocidade dos elétrons que são acelerados a partir do fotocatodo em direção à placas defletoras. Este alargamento é basicamente devido ao fato de que os elétrons são emitidos pelo fotocatodo em todas as direções, o que resulta numa dispersão de velocidades para os elétrons colimados pelo sistema focalizador. Contribui também para este alargamento temporal o fato de que os elétrons são emitidos a partir de uma região de área finita do fotocatodo, o que gera uma outra dispersão de velocidades para o feixe de elétrons.

b) Alargamento temporal Δt_2 , devido à altura finita da fenda colocada na entrada da "streak camera", por onde entra a luminescência. Esta dispersão espacial introduzida no sistema reduz a resolução temporal do aparelho.

c) Alargamento temporal Δt_3 , devido ao "jitter" entre o sinal de referência e o sinal aplicado às placas defletoras.

Assumindo um perfil gaussiano para os alargamentos acima descritos, temos um alargamento temporal total dado por:

$$\Delta t = \sqrt{\Delta t_1^2 + \Delta t_2^2 + \Delta t_3^2} \tag{4.22}$$

A relação entre a duração de um pulso t_p e a largura temporal da medida, t_s , é dada, para pulsos com perfil gaussiano, por:

$$t_s = \sqrt{t_p^2 + \Delta t^2} \tag{4.23}$$

As medidas foram feitas sob excitação com polarizações ópticas circulares positiva (σ_+) e negativa (σ_-) , e detecção seletiva na polarização σ_+ . Foram medidas as intensidades de luminescência com mesma polarização de excitação (I_+) e polarização oposta à da excitação (I_-) . A diferença $D = I_+ - I_-$ entre estas intensidades nos fornece informação acerca da fração da população excitada opticamente que troca de spin permanecendo nos estados opticamente ativos. Para levar em conta a população que é espalhada para estados opticamente inativos, aos quais não temos acesso direto a partir de I_+ e I_- , normalizamos o resultado pela intensidade total de luminescência $S = I_+ + I_-$. A polarização de spin total do sistema será dada, então, pela relação

$$P = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} = \frac{D}{S} \tag{4.24}$$

válida tanto para o caso estacionário (P_{CW}) quanto para o dependente do tempo (P(t)).

Como veremos na próxima secção, as informações sobre os tempos de recombinação radiativa (τ_R) e de relaxação de spin do exciton ($\frac{\tau_X}{2}$) são obtidas a partir dos perfis de decaimento temporal da soma S e da diferença D das intensidades de luminescência. A relação entre as polarizações inicial (P(t=0)) e estacionária (P_{CW}) é obtida resolvendo as equações de taxa e depende dos tempos de relaxação de spin e de recombinação radiativa[127]:

$$P_{CW} = \frac{P(0)}{1 + \frac{2\tau_R}{\tau_X}}$$
(4.25)

4.4 Resultados

4.4.1 Espectroscopia em contínuo: polarização de spin excitônico

Polarização linear: caracterização

Nas Figuras 4.6 e 4.7, apresentamos, respectivamente, os resultados das medidas de PL e PLE em contínuo à temperatura de 10 K, sob polarização linear da luz na direção do plano do poço. Na espectroscopia com polarização linear da luz, ambos os estados de spin $|+1\rangle$ e $|-1\rangle$ são acessados simultaneamente. Na Figura 4.6, a linha sólida representa o espectro de luminescência e a pontilhada, um ajuste gaussiano. Desta medida, extraímos a largura de linha da PL: 4.4 meV.



Figura 4.6: Espectro de PL (linha sólida) sob excitação com polarização linear. Linha pontilhada: ajuste gaussiano com largura de linha de 4.4 meV. T=10K.

Na Figura 4.7, a linha sólida mostra o espectro de PLE (onde o pico intenso resulta da coincidência entre a energia de excitação e a janela de detecção da luminescência), enquanto que a tracejada, o espectro de luminescência. São indicadas na Figura as transições excitônicas diversas. A transição eA-lhA foi também observada, a uma energia de 1.76 eV, mas não é mostrada na figura.



Figura 4.7: Espectros de PL (linha tracejada) e PLE (linha sólida) sob excitação com polarização linear. O deslocamento Stokes entre a PL e a PLE é de 10 meV. T=10 K.

Nesta Figura, o valor de 10 meV para o deslocamento Stokes medido entre o pico da PL e a primeira transição da PLE indica uma forte localização do exciton. Medidas de PL a diversas temperaturas revelaram que a população de excitons localizados permanece maior que a de excitons livres, ao menos até uma temperatura de 90 K. Na Figura 4.8, graficamos a diferença entre a energia do pico da PL e a energia do "gap" do GaAs em função da temperatura[116]. O caráter crescente monotônico da curva indica que, com o aumento da temperatura, a população de excitons localizados diminui, sem nunca chegar, porém, a ser menor que a de excitons livres na escala de temperaturas estudada (não se observa saturação da curva na Figura 4.8).



Figura 4.8: Dependência com a temperatura da energia do exciton ligado. Os pontos representam a diferença entre a energia do pico da PL medida e a energia do "gap" do GaAs na dada temperatura.

Estudamos também a dependência dos espectros de PLE variando a energia de detecção da luminescência ao longo do perfil da banda de PL. Não foram observadas mudanças nos perfis espectrais de PLE em nenhuma circunstância, o que pode ser interpretado como uma evidência adicional da forte localização dos excitous no sistema estudado. Caso os excitons estivessem fracamente localizados, a região de altas energias do espectro de PL corresponderia à recombinação radiativa da população de excitons livres, enquanto que a região de baixas energias corresponderia à emissão dos excitons ligados[76]. Neste caso poder-se-ia esperar uma modificação nos perfis de PLE segundo a energia de detecção, o que não ocorre no nosso caso, confirmando a forte localização dos excitons.

Polarização Circular

A Figura 4.9 mostra as intensidades de PL sob excitação com polarização circular da luz. A curva sólida corresponde à excitação com polarização σ_+ , enquanto que a curva tracejada corresponde à excitação com polarização oposta, σ_- .



Figura 4.9: Espectro de PL sob excitação com polarização circular. Linha sólida: I_+ ; linha tracejada: I_- . Energia de excitação: 1.7 eV. T=10K.

A energia de excitação neste caso foi de 1.7 eV, ou seja, 60 meV acima da energia de recombinação do exciton. Observamos que existe um alto grau de polarização de spin no sistema, mesmo para uma energia de excitação bastante alta. Estudamos a polarização de spin no sistema em função da energia de excitação. Na Figura 4.10, as linhas sólidas mostram os espectros de PLE I_+ e I_- sob excitação com polarizações circulares σ_+ e σ_- , e a curva tracejada-pontilhada mostra o espectro de PL.



Figura 4.10: Espectros de PL (linha tracejada-pontilhada) e PLE (linhas sólidas) sob excitação óptica com polarização circular. T=10K.

Observa-se, nesta Figura, a forte dependência da polarização de spin com a energia de excitação. Em particular, nota-se a diferença marcante entre as intensidades das transições excitônicas "de buraco pesado" e a "de buraco leve", para as excitações com diferentes polarizações. Estes resultados podem ser mais claramente visualizados em termos da polarização de spin.

Na Figura 4.11 mostramos a dependência do grau de polarização da luminescência

com a energia de excitação para vários valores de temperatura, desde 10 K até 70 K. Existe um alto grau de polarização de spin para as transições excitônicas "de buraco pesado" eS-hhS e eA-hhA, enquanto que para a transição excitônica "de buraco leve" eS-lhS, o grau de polarização sofre uma pronunciada diminuição. Este resultado indica que a relaxação de spin acontece através da troca de spin do exciton como um todo, e não dos portadores separadamente. Uma vez que quando excitamos a transição de buraco pesado eA-hhA com polarização σ_+ , excitamos o estado de spin excitônico $|-\frac{1}{2}, \frac{3}{2}\rangle$, não deveríamos observar uma polarização elevada caso o buraco trocasse de spin.



Figura 4.11: Espectros de polarização de spin CW a diversas temperaturas.

O primeiro resultado marcante destas medidas é o alto valor da polarização de spin observada para os estados excitônicos "de buraco pesado" eS-hhS e eA-hhA, mesmo a altas temperaturas. Até uma temperatura de 50 K, o sistema conserva uma polarização de spin mesmo para a transição eA-hhA, a 60 meV de energia acima da do exciton fundamental. Para uma temperatura de 70 K, o sistema está totalmente depolarizado. Estes resultados mostram que o processo de relaxação de energia do exciton e sua subsequente localização não provocam uma perda importante de polarização da população excitônica "de buracos pesados" criada opticamente a baixa temperatura. Isto acontece principalmente para excitação ressonante ao estado eS-hhS, mas também sobre o estado eA-hhA, a despeito da presença do estado excitônico "de buraco leve" (que está quase totalmente depolarizado) entre eA-hhA e o estado fundamental.

Estes resultados são confirmados pelas medidas resolvidas no tempo, que mostraram uma polarização inicial da luminescência (P(t=0)) de cerca de 90% quando da excitação da transição eS-hhS e de cerca de 60% quando da excitação da transição eA-hhA.

4.4.2 Espectroscopia resolvida no tempo: dinâmica de relaxação do spin excitônico

Na Figura 4.12 mostramos resultados típicos do decaimento da luminescência para as diversas polarizações de excitação. Estes resultados correspondem à excitação da transição eS-hhS, a uma temperatura de 10 K. O sinal de I_{-} foi multiplicado por um fator 10, de modo a evidenciar melhor as diferenças entre as dinâmicas de I_{+} e I_{-} . Os resultados são mais facilmente analisados em termos da soma S e da diferença D entre estas intensidades, como veremos a seguir.

Foram realizadas medidas do decaimento temporal da PL para excitações das diversas transições excitônicas, eS-hhS, eA-hhA e eS-lhS. Com base nos resultados experimentais em contínuo apresentados na Figura 4.11, que indicam que a relaxação



Figura 4.12: Decaimento da PL a partir da excitação da transição eS-hhS, para as duas polarizações de excitação. T=10 K.

de spin se dá através da troca de spin do exciton como um todo e que a relaxação em energia para o estado excitônico localizado não introduz uma perda de polarização de spin acentuada no sistema, propomos um modelo simplificado para a análise da dinâmica das populações de spin dos estados opticamente ativos do sistema. Neste modelo, os excitons são criados opticamente nos estados de spin $|+1\rangle$ e $|-1\rangle$, de acordo com a polarização da excitação. Estes excitons decaem rapidamente para estados localizados $|+1\rangle_{loc}$ e $|-1\rangle_{loc}$, com uma taxa de captura W_{cap} . A partir destes estados localizados os excitons trocam de spin, com uma taxa W_X , e se recombinam radiativamente, com uma taxa W_R . É considerada também uma taxa de espalhamento para estados não radiativos W_{NR} , onde estão incluídos os estados de spin opticamente inativos, $|+2\rangle e |-2\rangle$, e os estados excitônicos com $\vec{K}_{CM} \neq 0$, $|\pm1\rangle_K$. Neste modelo simplificado, consideramos que não existe "spin-flip" de excitons entre os estados $|\pm1\rangle e |\pm1\rangle_K$. Em outras palavras, consideramos que W_{cap} e W_{NR} são muito maiores que W_X e W_R .

A Figura 4.13 mostra um esquema de níveis representativo do modelo proposto, indicando as respectivas taxas de espalhamento.



Figura 4.13: Esquema de níveis do modelo proposto para a análise dos resultados resolvidos no tempo. W_{cap} , W_{NR} , $W_R \ e \ W_X$ são as taxas de decaimento do exciton livre para o estado localizado, de espalhamento para estados não radiativos, de recombinação radiativa e de troca de spin do exciton como um todo, respectivamente.

As equações de taxa que regem a dinâmica das populações de spin dos estados opticamente ativos $|+1\rangle_{loc}$ e $|-1\rangle_{loc}$ são:

$$\frac{d\mid+1\rangle_{loc}}{dt} = W_{cap}\mid+1\rangle - [W_X + W_R]\mid+1\rangle_{loc} + W_X\mid-1\rangle_{loc}$$
(4.26)

$$\frac{d\mid -1\rangle_{loc}}{dt} = W_{cap}\mid -1\rangle - [W_X + W_R]\mid -1\rangle_{loc} + W_X\mid +1\rangle_{loc}$$
(4.27)

Tomando a soma S e a diferença D das populações:

$$\frac{dD_{loc}(t)}{dt} = -[W_R + 2W_X]D_{loc}(t) + W_{cap}D(t)$$
(4.28)

$$\frac{S_{loc}(t)}{dt} = -W_R S_{loc}(t) + W_{cap} S(t)$$
(4.29)

E como

$$\frac{d\mid+1\rangle}{dt} = -[W_{cap} + W_{NR}]\mid+1\rangle \tag{4.30}$$

$$\frac{d\mid -1\rangle}{dt} = -[W_{cap} + W_{NR}]\mid -1\rangle \tag{4.31}$$

temos

$$\frac{dD(t)}{dt} = -[W_{cap} + W_{NR}]D(t)$$
(4.32)

$$\frac{S(t)}{dt} = -[W_{cap} + W_{NR}]S(t)$$
(4.33)

$$D(t) = D_0 exp[-(W_{cap} + W_{NR})t]$$
(4.34)

$$S(t) = S_0 exp[-(W_{cap} + W_{NR})t]$$
(4.35)

onde $D_0 = D(t = 0)$ e $S_0 = S(t = 0)$. Tomando $D_0 = S_0(1 - 2\alpha)$, onde α é um parâmetro que leva em conta a depolarização inicial e varia de 0 a 1, obtém-se, finalmente:

$$D_{loc}(t) = \frac{S_0(1-2\alpha)W_{cap}\{exp[-(W_{cap}+W_{NR})t] - exp[-(W_R+2W_X)t]\}}{W_R - W_{NR} - W_{cap} + 2W_X}$$
(4.36)

$$S_{loc}(t) = \frac{S_0 W_{cap} \{ exp[-(W_{cap} + W_{NR})t] - exp[-W_R t] \}}{W_R - W_{NR} - W_{cap}}$$
(4.37)

As equações 4.36 e 4.37 mostram uma dependência direta do decaimento de S_{loc} com o tempo de decaimento radiativo τ_R e do decaimento de D_{loc} com $(\frac{1}{\tau_R} + \frac{2}{\tau_X})^{-1}$, onde $\frac{\tau_X}{2}$ é o tempo de relaxação de spin. A análise dos tempos de decaimento da soma e da diferença das intensidades de luminescência nos permite, portanto, extrair independentemente estes tempos de relaxação.

A dependência temporal da polarização é dada por $P(t) = \frac{D_{loc}(t)}{S_{loc}(t)}$. Das relações 4.36 e 4.37, obtemos a relação entre P_{CW} e P(t), dada por 4.25.

Na Figura 4.14, os pontos representam os dados experimentais para o decaimento temporal da soma e diferença das intensidades de luminescência— S_{exp} e D_{exp} —sob excitação da transição eS-hhS a T=10 K, enquanto que as curvas sólidas representam os ajustes obtidos com o modelo acima descrito para S_{loc} e D_{loc} .



Figura 4.14: Decaimento de S e D a partir da excitação da transição eS-hhS a T=10 K. Pontilhado: dados experimentais; curvas sólidas: ajustes obtidos com o modelo proposto.

Observa-se que as curvas se ajustam muito bem aos dados experimentais. Isto confirma a nossa hipótese de que S_{loc} e D_{loc} diferem apenas pelo termo de decaimento $2W_X$, e que os excitons livres não influenciam no decaimento temporal. Caso a contribuição dos excitons livres fosse dominante, haveria uma maior e mais complexa diferenciação nos perfis de decaimento[39]. Além disso, a partir dos resultados obtidos com este tipo de ajuste para τ_R , $\frac{\tau_X}{2}$ e para a polarização inicial P(t=0), reproduzimos muito bem as medidas do grau de polarização de spin CW da Figura 4.11 (através da relação 4.25), o que indica a validade do nosso modelo simplificado na descrição da dinâmica do sistema.

Nas Figuras 4.15 (a) e (b) mostramos os resultados dos ajustes dos dados experimentais para a transição eS-hhS a diversas temperaturas: em (a), os círculos abertos representam o tempo de relaxação de spin $\frac{\tau_X}{2}$ e os círculos fechados, o tempo de decaimento radiativo τ_R ; em (b), os losangos abertos são os dados experimentais da Figura 4.10 para a polarização estacionária P_{CW} , enquanto que os fechados são os valores de P_{CW} calculados a partir de 4.25. As linhas sólidas são apenas guias para os olhos.



Figura 4.15: (a): tempo de relaxação de spin $\frac{\tau_X}{2}$ (círculos abertos) e tempo de recombinação radiativa τ_R (círculos fechados) para eS-hhS; (b): dados experimentais da polarização estacionária P_{CW} (losangos abertos) e valores de P_{CW} calculados (losangos fechados). As linhas sólidas são apenas guias para os olhos.

Nas medidas resolvidas no tempo, a intensidade da luminescência I_{-} somente permitia uma boa relação sinal/ruído para temperaturas de até 40 K. No caso das medidas em contínuo, entretanto, foram obtidos resultados para temperaturas superiores. Por isso, em (b), os resultados P_{exp} são mostrados até uma temperatura de 70 K, e os P_{calc} , que dependem dos tempos de decaimento, são mostrados até uma temperatura de 40 K.

Os resultados revelaram um tempo de decaimento da luminescência de 250 ps a T=10 K, que cresce conforme a temperatura aumenta, seguindo o comportamento típico encontrado em estruturas de poço quântico para uma população composta de excitons livres e localizados[50,49]. O tempo de relaxação de spin excitônico observado foi da ordem de 600 ps para T=10K, decrescendo até 170 ps para T=40K. Este tempo de relaxação de spin é cerca de 10 vezes superior ao encontrado para excitons em poços quânticos de espessura comparável[72]. Atribuímos esta diferença à forte localização do exciton em nossa estrutura.

4.5 Discussões e Conclusões

Existem três pontos básicos que desejamos ressaltar dos dados experimentais obtidos. Em primeiro lugar, a forte localização do exciton não produz uma importante perda de polarização quando da excitação da transição excitônica de mais baixa energia (eShhS), como mostram os dados da P_{CW} . Em segundo lugar, a relaxação em energia também não influencia a relaxação de spin do exciton quando este é formado a partir dos estados de buraco pesado simétrico e anti-simétrico. Por fim, a localização do exciton altera significativamente a dinâmica de relaxação do spin excitônico, como revelam as medidas resolvidas no tempo em comparação com dados da literatura.

O primeiro e o terceiro pontos acima ressaltados estão intimamente ligados, uma

vez que a observação de uma forte polarização de spin estacionária no meio implica num tempo de relaxação de spin suficientemente longo se comparado com o tempo de recombinação radiativa. Esta situação é consistente com a nossa suposição inicial de que os excitons opticamente excitados decaem rapidamente para estados localizados sem que haja uma troca significativa de spin.

Os dados experimentais mostraram também que a relaxação de spin em nossa amostra é dominada pela troca de spin do exciton como um todo, prioritariamente à troca de spin dos portadores separadamente. É bem conhecido, dos trabalhos de Maialle et al [52] e Vinattieri et al [80], que o mecanismo responsável pelo "spin-flip" do exciton é o mecanismo de troca. No caso do exciton livre, o termo de troca dominante é o termo de longo alcance, que apresenta uma dependência direta com \vec{K}_{CM} [52, 128]. A dinâmica de relaxação é então dada pelo mecanismo "motional narrowing" [101], no qual o inverso do tempo de relaxação de spin do exciton é proporcional ao seu tempo de relaxação de momento, e a "constante" de proporcionalidade depende de \vec{K}_{CM} . Como bem ressaltado por Sham[93], existe uma condição de validade para esse mecanismo, que é a taxa de espalhamento do momento ser maior que a taxa de relaxação do spin. No caso do exciton localizado, porém, o estado não é descrito por uma onda plana com um vetor de onda \vec{K}_{CM} preciso, mas por um pacote de onda formado por uma combinação de ondas planas com diferentes vetores de onda. $ec{K}_{CM}$ deixa de ser um bom número quântico. Portanto, espera-se que a interação de troca no exciton seja fortemente afetada pela localização, modificando a dinâmica da relaxação de spin para o exciton localizado em relação à do exciton livre.

Tendo em conta esses fatos, a questão da relaxação em energia do estado eAhhA ser um mecanismo que conserva a polarização de spin deve ser cuidadosamente estudada antes que uma explicação possa ser fornecida. Como estudamos no Capítulo anterior, existe uma forte mistura de spin nos estados excitônicos no caso de excitação não ressonante, e levar em conta essa mistura é de fundamental importância na análise da relaxação de spin do exciton. O cálculo apresentado no Capítulo anterior, porém, não trata do problema do exciton localizado. Não existe, até o momento, uma teoria para tratar adequadamente o problema da relaxação de spin em um sistema que apresenta um potencial de localização da função de onda do exciton.

Capítulo 5

Polarização de spin na proximidade do nível de Fermi em poço dopado tipo-n

5.1 Introdução

No Capítulo 3, vimos que os efeitos da mistura de estados de spin ao longo da curva de dispersão do exciton faz com que a relaxação de momento seja responsável pela relaxação de spin do exciton no sistema. Além disso, os resultados do Capítulo 4 nos mostraram que a **dinâmica** da relaxação de spin está intimamente ligada aos diversos **mecanismos** de relaxação de energia no sistema.

Neste Capítulo, estudamos a polarização de spin de portadores em uma heteroestrutura de AlGaAs/InGaAs/GaAs com dopagem modulada tipo-n onde se observa a ocupação do segundo estado eletrônico confinado no QW. Com este sistema pudemos estudar a polarização da luminescência em uma região de energia próxima à do nível de Fermi, o que nos permitiu acessar os efeitos advindos dos estados de condução excitados opticamente e obter novas informações. A presença do gás de elétrons blinda a interação Coulombiana. Além disso, o preenchimento do espaço de fase bloqueia a participação dos primeiros estados da banda de condução na formação de estados excitônicos[129]. Consequentemente, os estados excitônicos deixam de ser significativos e tratamos apenas de estados finais de interação. Neste trabalho, vamos considerar os estados como sendo estados de elétrons e buracos na presença de um gás de elétrons.

Em amostras com dopagem tipo-n, a relaxação de spin é basicamente dada pela relaxação dos buracos. Isto acontece pois as populações de elétrons com spin $|+\frac{1}{2}\rangle$ e com spin $|-\frac{1}{2}\rangle$ encontram-se em igual porcentagem no gás de elétrons. Se a densidade de elétrons excitada opticamente com uma determinada polarização de spin é muito menor que a densidade de elétrons do gás, os elétrons não contribuem para a polarização da fotoluminescência. A única contribuição para a polarização da luminescência vem da polarização de spin dos buracos.

Da mesma maneira que para o exciton no QW, a relaxação de spin dos buracos acontece devido à mistura das bandas de valência (de fato, como vimos nos dois Capítulos anteriores, a mistura de estados de spin ao longo da dispersão do exciton, surge basicamente do acoplamento entre as bandas de valência). Através da relaxação de momento dentro das bandas, os buracos mudam seu estado de spin, e a dinâmica de relaxação de spin dos buracos está diretamente ligada à sua dinâmica de relaxação de momento.

Os trabalhos teóricos e experimentais que tratam da relaxação de spin de portadores em amostras dopadas mostram um amplo espectro de resultados tanto para os tempos de relaxação de spin quanto para os perfis de polarização da luminescência em função da energia das transições [55–58, 62, 63, 66, 68, 70, 73, 77, 86, 88–91, 93]. Encontramse na literatura valores de tempos de relaxação de spin de 4 ps[68] e de 1 ns[73, 84] na dinâmica de buracos em amostras de GaAs/AlGaAs dopadas tipo-n, e variando de valores da ordem de 1 ns[78] a 150 ps[68] para elétrons em amostras dopadas tipo-p. Dados experimentais de amostras dopadas revelam espectros de polarização CW com valores positivos para energias de excitação próximas à do limiar de excitação, seguidos de um decréscimo no grau de polarização, chegando eventualmente a assumir valores negativos[55, 58, 62, 68]. Os resultados mostram que o comportamento dos espectros de polarização depende da estrutura em estudo e da dopagem da amostra, e que o grau de polarização pode depender inclusive da qualidade da amostra[58].

Atualmente é bem conhecido o fato de que a relaxação de spin e o perfil de polarização em função da energia das transições são determinados pela associação de dois fatores: a mistura de bandas e a densidade de estados conjunta das transições envolvidas[58, 62, 63].

Nos problemas até agora investigados em QW de semicondutor com dopagem tipo-n foram exploradas as situações onde a alta concentração do gás de elétrons faz com que a polarização da luminescência seja dada pela relaxação de spin dos buracos. Nesses trabalhos, o comportamento dos elétrons criados opticamente nas proximidades do nível de Fermi não é acessível nas medidas de luminescência. No trabalho aqui apresentado, investigamos esta questão, procurando evidenciar o comportamento destes elétrons através da medida da polarização da luminescência nas proximidades do nível de Fermi. Isto é possível uma vez que em nossa amostra o nível de Fermi ocupa marginalmente o segundo estado confinado de elétrons no poço. Para as transições relacionadas com esta subbanda, os elétrons criados opticamente desempenham um papel importante.

5.2 Amostra e Técnica Espectroscópica

Para a realização deste estudo, utilizamos as técnicas espectroscópicas de PL e PLE em contínuo sob polarização circular da luz. As regras de seleção para as transições ópticas foram já apresentadas no capítulo anterior. Neste caso, um laser de Titânio:Safira operando na faixa de comprimentos de onda de 8300 Å a 9000 Å foi utilizado como fonte de excitação. A polarização circular da excitação foi obtida com o auxílio de um rotator de polarização e um romboedro de Fresnel. Com o primeiro elemento, rodamos a polarização linear do laser de excitação ora $+45^{\circ}$ ora -45° em relação à direção vertical. Com o segundo elemento, que produz um atraso na componente do campo eletromagnético com polarização horizontal, obtivemos as polarizações circulares $\sigma_+ \in \sigma_-$ utilizadas na excitação do sistema. A detecção da luminescência com polarização circular foi feita com o auxílio de um romboedro de Fresnel idêntico ao primeiro e um polarizador linear, dispostos, respectivamente, um após o outro, na entrada do espectrômetro. O polarizador linear foi alinhado de modo a transmitir apenas a componente da luminescência com polarização linear -45° em relação à direção vertical, de modo a permitir uma detecção seletiva da luminescência com polarização σ_+ .

As medidas com polarização circular foram feitas a uma temperatura de 14 K, utilizando-se um crisotato a dedo-frio.

Na Figura 5.1, apresentamos um esquema da amostra utilizada.



Figura 5.1: Esquema da amostra utilizada.

A estrutura estudada foi um poço quântico de $In_{0.2}Ga_{0.8}As$ com 130 Å de espessura, colocado entre barreiras de $Al_{0.25}Ga_{0.75}As$ e GaAs. Uma camada- δ de dopagem de Silício com 5 Å de espessura nominal foi depositada a 50 Å da interface do poço, na barreira de AlGaAs. A transferência dos elétrons desta camada de dopante para o poço dá origem a um gás de elétrons bidimensional na região do poço. A dopagem anisotrópica, combinada com a heteroestrutura anisotrópica, gera estados de poço sem simetria de inversão em relação ao centro do poço. Consequentemente, não há regra de seleção devido à paridade dos estados do poço.

O parâmetro de rede do material é o GaAs (material do substrato), $a_{GaAs} = 2,83$ Å. O parâmetro de rede do material do poço é $a_{In_{0.2}Ga_{0.8}As} = 2,87$ Å. Consequentemente, o poço se encontra tensionado[118]. O AlGaAs tem parâmetro de rede similar ao do GaAs ($a_{Al_{0.25}Ga_{0.75}As} = 2,83$ Å) e não é significativamente afetado pela tensão intrínseca. Como resultado, a primeira subbanda de buraco leve (a qual denominamos L_1) se distancia da primeira e da segunda subbandas de buraco pesado ($H_1 \ e \ H_2$, respectivamente).

5.3 Resultados

5.3.1 Dependência com a energia de excitação

A densidade do gás de elétrons no poço é suficientemente alta de modo a ocupar quatro subbandas de condução. Isto se deve à proximidade da camada- δ dopante em relação ao poço. Os estados eletrônicos da segunda e da terceira subbandas, entretanto, se encontram localizados na camada- δ e não participam das transições ópticas devido à fraca superposição das suas funções de onda com a do buraco pesado H_1 , localizado no poço[130]. Para os nossos fins, apenas a primeira e a quarta subbandas serão consideradas, às quais denominaremos E_1 e E_2 (onde o índice refere-se às subbandas cuja função de onda encontra-se confinada no poço).

Na Figura 5.2 mostramos os espectros de PL da amostra a diversas temperaturas, sob excitação com polarização linear¹.



Figura 5.2: Espectro de PL a diversas temperaturas, sob excitação com polarização linear.

Observam-se dois picos de luminescência— $E_1 - H_1$ e — correspondentes às transições das duas subbandas de condução ocupadas para a primeira subbanda de buracos. Pequenas mudanças ocorrem com o aumento da temperatura: os picos sofrem um pequeno alargamento espectral e uma diminuição da intensidade quando a temperatura varia de 2K até 41 K. A energia do pico da transição $E_1 - H_1$ prati-

¹Resultados cedidos pelo Professor Fernando likawa

camente não se altera, enquanto que o pico da transição $E_2 - H_1$ sofre um pequeno deslocamento na direção de maior energia.

A Figura 5.3 mostra o espectro de PL para excitação com polarização σ_+ (linha tracejada) e os espectros de PLE para ambas as polarizações de excitação (linhas sólidas).



Figura 5.3: Espectros de PL (linha tracejada) e PLE (linhas sólidas) sob polarização circular da luz. As transições assinaladas com asterisco ocorrem entre estados com $k_{\perp} = k_F$, e as demais, para $k_{\perp} = 0$. Para estas medidas de PLE, a detecção foi fixada sobre o pico da transição fundamental da PL. T=14 K.

Os picos observados no espectro de PLE correspondem às transições $E_2^* - H_1^*$, $E_2^* - H_2^*$ e $E_2^* - L_1^*$, que foram identificadas por comparação com resultados de cálculos autoconsistentes[130]. As transições assinaladas com o asterisco ocorrem entre estados com $k_{\perp} = k_F$, enquanto que as outras ocorrem entre estados com $k_{\perp} = 0$ (onde k_{\perp} é o momento na direção do plano do poço e k_F é o vetor de onda da segunda subbanda correspondente ao nível de Fermi). Nesta Figura, os espectros de PLE foram obtidos com a detecção da luminescência no pico da transição fundamental $(E_1 - H_1, \text{ com energia 1,291eV}).$

Extraímos a densidade do gás de elétrons bidimensional na região do poço— $N_{2D} = 2 \times 10^{12} \ cm^{-2}$ — do deslocamento Stokes de 80 meV entre o primeiro pico da PLE $(E_1^* - H_1^*)$ e a transição fundamental da PL $(E_1 - H_1)$. A transição $E_1^* - H_1^*$ não está resolvida no espectro da PLE. Porém, em boa aproximação, sua energia foi considerada muito próxima da energia do pico da transição $E_2^* - H_1^*$. Esta densidade estimada é compatível com o valor utilizado nos cálculos para a obtenção das energias das transições. O pequeno deslocamento Stokes entre o primeiro pico da PLE $(E_2^* - H_1^*)$ e o segundo pico de luminescência $(E_2 - H_1)$ indica uma pequena ocupação da segunda subbanda de condução. Este e os dados de PL em função da temperatura indicam que o nível de Fermi é quase degenerado com a segunda subbanda de condução, que se encontra marginalmente ocupada. Não há nenhuma evidência clara de singluaridade do nível de Fermi ("Fermi-Edge Singularity"-FES). Portanto, este efeitos não será considerado aqui.

Este sistema nos permite, portanto, estudar a relaxação de spin em duas situações físicas diversas numa mesma amostra: uma alta concentração de elétrons na primeira subbanda de condução e uma baixa concentração na segunda subbanda.

Na Figura 5.4 apresentamos o espectro da polarização $(P = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-})$ correspondente aos dados da Figura 5.3, onde a luminescência foi detectada na transição $E_1 - H_1$. As transições assinaladas indicam as energias dos picos do espectro de PLE.

Observa-se uma alta polarização da luminescência para energias de excitação so-



Figura 5.4: Polarização da luminescência $E_1 - H_1$ em função da energia de excitação a T=14 K. As transições assinaladas indicam as energias dos picos no espectro de PLE da Figura anterior.

bre a transição $E_2^* - H_1^*$ e pouco acima dela. O grau de polarização diminui conforme a energia de excitação aumenta. Nota-se uma pronunciada perda relativa de polarização para as energias de excitação onde se observam os picos das transições $E_2^* - H_2^*$ e $E_2^* - L_1^*$ na PLE. Este resultado revela que o grau de polarização de spin na amostra é determinado pela relaxação de spin dos buracos, uma vez que as quedas do grau de polarização estão associadas à excitação de uma nova subbanda de buraco. Este é um resultado esperado, uma vez que estes dados se referem à luminescência da primeira subbanda de condução, que é fortemente ocupada. Como esta luminescência envolve elétrons ocupando os estados do fundo da subbanda de condução, nenhuma memória do spin do elétron excitado opticamente é conservada. Toda a polarização medida na luminescência vem dos buracos que relaxam para o topo da subbanda H_1 . O perfil da polarização resulta de uma a combinação de fatores: relaxação de momento dos buracos para o estado fundamental, mistura de estados nas subbandas de buraco e densidade de estados conjunta das transições excitadas[58].

Gostaríamos de ressaltar dois pontos importantes relativos à estrutura eletrônica do sistema que estamos estudando, que se refletem no perfil da polarização. Em primeiro lugar, existe uma grande separação em energia entre as subbandas de buraco pesado e leve (cerca de 80 meV entre H_1 e L_1 e de 50 meV entre H_2 e L_1), devida à tensão induzida pelo descasamento dos parâmetros de rede da estrutura. Esta separação acarreta numa fraca mistura de bandas para o sistema em questão. Apesar disto, a perda relativa de polarização² é grande: cerca de 60% na transição $E_2^* - H_2^*$, e de cerca de 50% na transição $E_2^* - L_1^*$. Em segundo lugar, o potencial de confinamento é fortemente assimétrico na direção de crescimento. Esta assimetria induz uma quebra da degenerescência por simetria de inversão das subbandas de buraco. O espalhamento entre estes estados devido à relaxação de momento deve ser o mecanismo responsável pela relaxação de spin no sistema. Devido a isto, uma interpretação quantitativa da perda relativa de polarização, com um cálculo do espectro de polarização neste sistema, é um problema bastante complexo.

Neste trabalho, vamos nos focalizar no estudo do comportamento da polarização da luminescência a energias próximas ao nível de Fermi. Portanto, a análise qualita-

²Como perda ou variação relativa de polarização para as transições $E_2^* - H_2^*$ e $E_2^* - L_1^*$, definimos:

$$\Delta P = \frac{P_{E_2 - H_1} - P_{E_2 - H_2}}{P_{E_2 - H_1}} \quad e \quad \Delta P = \frac{P_{E_2 - H_2} - P_{E_2 - L_1}}{P_{E_2 - H_2}} \tag{5.1}$$

respectivamente.

tiva do espectro de polarização apresentado nesta secção nos é suficiente.

5.3.2 Dependência com a energia de luminescência

Procuramos investigar as diferenças existentes no comportamento dos portadores no sistema em função da sua energia em relação ao nível de Fermi. Para isso, estudamos a dependência do grau de polarização de spin do sistema com a energia da luminescência. Na Figura 5.5, mostramos os espectros de polarização da luminescência para as várias energias de detecção, A, B, C e D, como indicado no "inset" da Figura.



Figura 5.5: Espectros de polarização para diversas energias da luminescência. O "inset" mostra as energias de detecção A, B, C, e D.

Observa-se que os diversos espectros de polarização apresentam a mesma de-

pendência com a energia de detecção. Este resultado confirma que a relaxação de spin dos buracos determina o **perfil da polarização** para todas as energias de luminescência. Existe, entretanto, uma diferença marcante no **grau de polarização** para as diferentes energias da luminescência.

O fato mais interessante destes resultados é a observação de um aumento significativo no grau de polarização quando detectamos a luminescência na energia do pico da segunda subbanda (transição $E_2 - H_1$, indicada como ponto C na Figura 5.5), em relação aos resultados para detecção com energias menores.

Os resultados obtidos para as energias de detecção abaixo do segundo pico de luminescência, correspondentes aos pontos A e B na Figura 5.5, revelam um grau de polarização $P \approx 25\%$ para a excitação da transição $E_2^* - H_1^*$. Para uma energia de deteção igual ou maior que a do segundo pico de luminescência, correspondente aos pontos C e D, respectivamente, $P \approx 45\%$, para a mesma energia de excitação. Em todas estas situações, o grau de polarização decai para 5% para excitação acima da transição $E_2^* - L_1^*$.

Para ambas as transições $E_1 - H_1$ e $E_2 - H_1$ do espectro da PL, estão envolvidos os mesmos estados de buraco (os da subbanda H_1). Isto indica que o aumento observado no grau de polarização da luminescência do segundo pico resulta da presença de elétrons polarizados na segunda subbanda. Apesar da presença do gás de elétrons que ocupa os estados da segunda subbanda, a luminescência na vizinhança do nível de Fermi mantém uma memória dos estados de spin eletrônicos excitados opticamente. Uma possível explicação para a diferença no grau de polarização da luminescência entre os pontos B e C (com energias logo abaixo do pico e sobre o pico) é que os elétrons em B estejam termalizados com o gás, e não contribuem para a polarização medida, enquanto que os elétrons em C sejam quasi-termalizados, causando um aumento em P.

Na Figura 5.6 graficamos a diferença $P_C - P_A$ entre os espectros de polarização medidos nos pontos A e C do espectro de PL.



Figura 5.6: Diferença $(P_C - P_A)$ entre os perfis de polarização medidos a partir da detecção da luminescência no ponto C e no ponto A (indicados no "inset").

Segundo nossa interpretação, a curva mostra a variação da polarização de spin dos elétrons próximos ao nível de Fermi em função da energia de excitação. Estes elétrons exibem uma polarização $P \approx 20\%$ quando da excitação da transição fundamental $E_2^* - H_1^*$. O grau de polarização decresce conforme aumentamos a energia de excitação. Para uma energia de excitação suficientemente alta, os elétrons perdem toda a memória de polarização de spin. Este comportamento é consistente com os processos conhecidos de relaxação de spin do elétron [57, 70, 88, 89, 91, 93, 96, 98, 99], que envolvem mistura de estados e espalhamento de momento eletrônico \vec{k}_e . Como a segunda subbanda é marginalmente ocupada, uma excitação com energia próxima à do nível de Fermi cria elétrons muito próximos ao extremo da segunda subbanda, com $\vec{k}_e \approx 0$, onde o espalhamento de momento é menos efetivo na troca de spin do elétron. Com o aumento da energia de excitação, estados com $\vec{k}_e > 0$ são excitados e a relaxação se torna mais eficiente.

5.3.3 Dependência com a potência de excitação

Com o intuito de estudar o comportamento dos elétrons que mantêm polarização de spin nas proximidades do nível de Fermi, realizamos medidas em função da intensidade da excitação. Os resultados apresentados nas secções anteriores foram obtidos com uma intensidade de excitação de 3 W/cm^2 .

Na Figura 5.7 mostramos os perfis de polarização nos pontos A e C para intensidades de excitação de 3 W/cm^2 (linhas+símbolos) e 90 W/cm^2 (linhas).

O grau de polarização P do sistema é bastante sensível ao aumento da intensidade de excitação. Observamos uma diminuição de P com o aumento da intensidade, para todas as energias de detecção. O grau de polarização no ponto A passa de $P_A \approx 25\%$ para $P_A \approx 10\%$, enquanto que para o ponto C passa de $P_C \approx 45\%$ para $P_C \approx 15\%$, para a excitação da transição $E_2^* - H_1^*$. A perda de polarização ocorre, portanto, tanto para os buracos como para os elétrons. Na Figura 5.8 mostamos a diferença $P_C - P_A$ dos perfis de polarização entre os pontos C e A, nas diferentes intensidades de excitação apresentadas na Figura 5.7. Nesta Figura a perda de polarização dos elétrons com o aumento da intensidade fica evidente.

Com o aumento da intensidade de excitação, há uma maior densidade de portadores fotoexcitados no poço. Consequentemente, há uma maior eficiência na depolarização do buraco devido à interação buraco-buraco. Isto leva à queda da polarização


Figura 5.7: Perfis de polarização nos pontos A e C para intensidades de excitação de 3 W/cm^2 (linhas+símbolos) e 90 W/cm^2 (linhas).

detectada no ponto A. A interação elétron-elétron, que já existia devido à presença do gás de elétrons, não é significativamente alterada com o aumento da intensidade de excitação. A interação de troca elétron-buraco, entretanto, torna-se mais importante com o aumento da excitação. Isto indica que este mecanismo é um dos prováveis responsáveis pela depolarização dos elétrons no ponto C [131].



Figura 5.8: Diferença $(P_C - P_A)$ entre os perfis de polarização nos pontos C e A para intensidades de excitação de 3 W/cm^2 (linha sólida) e 90 W/cm^2 (linha tracejada).

5.3.4 Resultados para amostra passivada

Realizamos o mesmo tipo de estudo nesta amostra após submetê-la a uma passivação com Hidrogênio³. No processo de passivação, átomos de Hidrogênio penetram no material, neutralizando as cargas livres. Desta maneira, pode-se reduzir a densidade do gás de elétrons no material.

Com a passivação realizada em nossa amostra, o nível de Fermi foi deslocado para uma energia inferior à da segunda subbanda de condução. No espectro de

³O processo de passivação com Hidrogênio foi realizado no CPqD-Telebrás, por Ricardo G. Pereira e Ângelo Gobbi.

fotoluminescência desta amostra apenas um pico pode ser observado. A região de mais alta energia do espectro mostra um pequeno ombro, com um corte abrupto da luminescência numa dada energia, que indica a posição do nível de Fermi. Realizamos medidas de polarização da luminescência para duas energias de detecção: uma sobre o pico da PL e outra na proximidade do nível de Fermi. Os resultados podem ser observados na Figura 5.9, ende a linha sólida representa a polarização no pico da luminescência e a linha tracejada, a polarização na proximidade do nível de Fermi⁴.



Figura 5.9: Espectros de polarização na amostra passivada. O "inset" mostra o espectro de PL e as energias de deteção A e C.

No "inset" da Figura é mostrado o espectro de PL, onde os pontos A e C indicam

⁴Agradeço ao Jorge Urdanivia Espinoza pela realização desta medida

as energias de detecção, analogamente ao caso anterior. Estes dados mostram que não há variação nem no perfil nem no grau de polarização da luminescência detectada no pico e próximo ao nível de Fermi na amostra onde o nível de Fermi se encontra abaixo da segunda subbanda. Neste caso, os elétrons nas proximidades do nível de Fermi encontram-se em estados para os quais k_e é muito grande. A relaxação de spin, devida à não parabolicidade da banda de condução ou à interação de troca[89], é eficiente, e os elétrons não conservam memória da polarização da excitação.

5.4 Discussões e conclusões

Os resultados aqui apresentados evidenciam uma conservação de spin de elétrons nas proximidades do nível de Fermi, na presença de um gás de elétrons bidimensional com alta densidade. A observação deste efeito somente foi possível devido ao fato de o nível de Fermi estar pouco acima da segunda subbanda. Com isto, tivemos acesso aos estados de condução com $k_e \approx 0$, para os quais a relaxação de spin é pouco eficiente. Os resultados obtidos com a amostra passivada corroboram este resultado.

Em um estudo de luminescência resolvida no tempo em uma amostra de multipoços quânticos de GaAs com dopagem tipo-n, Damen e colaboradores[68] observam a existência de um tempo longo adicional no decaimento da polarização, que é atribuído à relaxação de spin dos elétrons. Este tempo longo somente é observado quando os elétrons são fotocriados com energia acima da energia dos elétrons no nível de Fermi. Para uma energia de excitação próxima à do nível de Fermi, apenas um tempo de decaimento curto, devido à relaxação de spin dos buracos, é observado. Os autores argumentam que as colisões elétron-elétron misturam os estados eletrônicos, transferindo ao gás de Fermi uma polarização líquida, que decai lentamente. Estas interações são características de efeitos de muitos corpos. No nosso caso, entretanto, nenhuma evidência de efeitos de muitos corpos foi observada. A Figura 5.2 mostra que o segundo pico de luminescência não se alarga nem desaparece quando a temperatura é elevada, o que indica que efeitos como a FES, não são dominantes na nossa estrutura.

Capítulo 6

Conclusões

O tema central desta tese foi o estudo da relaxação de spin de excitons em poços quânticos de semicondutores.

Iniciamos nosso estudo com um cálculo da dispersão do CM do exciton no plano do poço quântico, incluindo o acoplamento entre as bandas de buraco leve e pesado no Hamiltoniano de Luttinger. Os resultados mostraram que boa parte da não-parabolicidade das bandas de valência é transferida para a dispersão do exciton acoplado. Este resultado mostra como o acoplamento entre os excitons pode modificar a dinâmica excitônica em sistemas quasi-bidimensionais. Os ramos excitônicos não são mais caracterizados por um determinado tipo de função de onda, mas por uma mistura de funções de onda dos diversos tipos de exciton. Esta mistura de funções de onda é caracterizada por uma mistura de estados de spin para cada valor de \vec{K}_{CM} . Através do nosso cálculo pudemos analisar a mistura de spin decorrente do acoplamento entre os excitons.

Na segunda parte do trabalho, estudamos a relaxação de spin através da medida da polarização da fotoluminescência em poços quânticos de semicondutores. As técnicas experimentais utilizadas foram a fotoluminescência e a fotoluminescência de excitação com luz circularmente polarizada, nos modos contínuo e resolvido no tempo. Foram investigadas duas situações físicas: i) uma situação onde a localização excitônica é forte; ii) outra situação onde são envolvidos estados finais de excitons na presença de um gás de elétrons.

No primeiro caso, analisamos a influência de uma forte localização dos excitons na sua dinâmica de relaxação de spin. Mostramos que a localização do exciton altera significativamente a dinâmica de relaxação de spin do exciton. Os tempos de relaxação de spin medidos são uma ordem de grandeza mais longos que os resultados conhecidos para excitons livres. Existem estudos na literatura sobre a influência da localização na relaxação de spin do exciton. A maioria dos trabalhos concorda que o tempo de relaxação de spin aumenta com a localização [71, 76, 79, 83, 87]. Apenas um trabalho afirma o contrário[85]. Todos estes trabalhos apresentam resultados relativos a excitons fracamente localizados. Estes correspondem ao caso onde a população excitada é composta tanto por excitons livres como por excitons localizados. É de se esperar, portanto, que os resultados dependam da relação entre excitons livres e localizados nos sistemas estudados. No nosso caso, entretanto, os dados mostram que a localização é forte. A dinâmica de relaxação de spin é determinada exclusivamente por excitons localizados. Nossos resultados indicam, portanto, que a localização dos excitons leva a um atraso na relaxação de spin. Não existe até o momento um modelo teórico que descreva a relaxação de spin de excitons localizados. O cálculo apresentado nesta tese, que vale para o caso do exciton livre, é um ponto de partida para este trabalho. O estado excitônico localizado pode ser construído a partir da combinação de estados com diversos vetores de onda \vec{K}_{CM} , cada qual com sua mistura de spin característica. Para o cálculo da relaxação de spin deve-se ainda levar em conta a interação de troca.

No segundo caso, estudamos a relaxação de spin nas proximidades do nível de Fermi em um poço dopado tipo-n. Neste caso, o gás de elétrons blinda a interação Coulombiana. A relaxação de spin é então dominada pela relaxação dos portadores. No sistema estudado, o nível de Fermi se encontra pouco acima da segunda subbanda de condução. A polarização da luminescência originária da primeira subbanda mostra que a relaxação de spin é determinada pelo "spin-flip" do buraco; a contribuição dos elétrons para a polarização da luminescência da primeira subbanda é desprezível, devido à alta densidade do gás de elétrons nesta subbanda. Já no caso da segunda subbanda, os dados mostraram que a contribuição dos elétrons opticamente criados para a polarização da luminescência não é desprezível. A luminescência com energia igual ou maior que a energia do nível de Fermi mostrou uma polarização cerca de 20% mais alta que a luminescência com energias menores que a energia de Fermi, para excitação ressonante (no nível de Fermi). Atribuímos este "excesso" de polarização aos elétrons opticamente criados que não estão termalizados com o gás de elétrons na segunda subbanda. Como a segunda subbanda se encontra marginalmente ocupada, o vetor de onda no nível de Fermi- k_F - é pequeno, a mistura de spin para os estados de condução é pequeno, e a relaxação de spin para os elétrons é pouco eficiente. Isto explica a alta polarização de spin destes elétrons. O mecanismo através do qual estes elétrons mantêm sua polarização de spin é ainda um problema em aberto.

Bibliografia

- [1] R. J. Elliot, Phys. Rev. 108, 1384 (1957).
- [2] Veja, por exemplo: R. S. Knox, Solid State Physics, Supplement 5, ed. by H. Ehrenreich, F. Seitz, D. Turnbull, Accademic Press, New York (1963); J. O. Dimmock, "Introduction to the Theory of Exciton States in Semiconductors", in Semiconductor and Semimetals vol. 3, ed. by Willardson and Beer, Accademic Press, New York (1967).
- [3] L. Esaki, R. Tsu. IBM J. Res. Dev. 14, 61 (1970).
- [4] S.R.White, L.J.Sham, Phys. Rev. Lett. 47, 879 (1981).
- [5] G.Bastard, Phys. Rev. **B24**, 5693 (1981).
- [6] G. Bastard, E. E. Mendez, L. L. Chang, L. Esaki, Phys. Rev. B26, 1974 (1982).
- [7] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, D. J. Eilenberger, P. W. Smith, A. C. Gossard,
 W. T. Tsang, Appl. Phys. Lett. 41, 679 (1982).
- [8] G. Livescu, IEEE J. Quantum Electron. 24, 2677 (1988).
- [9] T. H. Wood, C. A. Burrus, D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegnmann, Appl. Phys. Lett. 44, 16 (1984).
- [10] J. A. Brum, G. Bastard, Phys. Rev. B31, 3893 (1985).

- [11] H. W. Liu, R. Ferreira, G. Bastard, C. Delalande, J. F. Palmier, B. Etienne, Appl. Phys. lett. 54, 2082 (1989).
- [12] R. C. Miller, D. A. Kleinman, W. T. Tsang, A. C. Gossard, Pyhs. Rev. B24, 1134 (1981).
- [13] C. Weisbuch, R. Dingle, A. C. Gossard, W. Wiemann, Solid State Comm. 38, 7091 (1981).
- [14] T. C. Damen, J. Shah, D. Y. Oberli, D. S. Chemla, J. E. Cunningham, J. M. Kuo, Phys. Rev. B42, 7434 (1990).
- [15] B. Deveaud, F. Clérot, N. Roy, K. Satzke, B. Sermage, D. S. Katzer, Phys. Rev. Lett. 67, 2355 (1991).
- [16] J. C. Hensel, G. Feher, Phys. Rev. 129, 1041 (1963).
- [17] Veja G. Bastard, "Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures", Les Editions de Physique, Les Ulis (1989).
- [18] Veja G. Bastard, J. A. Brum, R. Ferreira, in Solid State Physics, vol. 44, p.
 229, ed. by H.Ehrenreich and Turnbull, Accademic Press, New York (1991).
- [19] R. L. Greene, K. K. Bajaj, D. E. Phelhps, Phys. Rev. **B29**, 1807 (1984).
- [20] J. A. Brum, G. Bastard, J. Phys C 18, L789 (1985).
- [21] M. Altarelli, Phys. Rev. **B28**, 842 (1983).
- [22] G. Bastard, J. A. Brum, IEEE J. Quantum Electron. QE-22, 1625 (1986).
- [23] G. D. Sanders, Y. C. Chang, Phys. Rev. **B32**, 5517 (1985).
- [24] K. S. Chan, J. Phys C 19, L125, (1986).

- [25] G. D. Sanders, Y. C. Chang, Phys. Rev. B35, 1300 (1987).
- [26] D. A. Broido, L. J. Sham, Phys. Rev. B34, 3917 (1986).
- [27] U. Ekenberg, M. Altarelli, Phys. Rev. B35, 7585 (1987).
- [28] B. Zhu, K. Huang, Phys. Rev. B36, 8102 (1987).
- [29] G. E. W. Bauer, T. Ando, Phys. Rev. B38, 6015 (1988).
- [30] G. E. W. Bauer, T. Ando, Phys. Rev. Lett. 59(C), 601 (1987).
- [31] L. Viña, R. T. Collins, E. E. Mendez, W. I. Wang, Phys. Rev. Lett. 58, 832 (1987).
- [32] L. Viña, G. E. W. Bauer, M. Potemski, J. C. Maan, E. E. Mendez, W. I. Wang, Phys. Rev. B38,10154 (1988).
- [33] Y. Iimura, Y. Segawa, G. E. W. Bauer, M. M. Ling, Y. Aoyagi, S. Namba, Phys. Rev. B42, 1478 (1990).
- [34] H. Chu, G. D. Sanders, Y. C. Chang, Phys. Rev. B36, 7955 (1987).
- [35] J. A. Brum, D. Y. Oberli, A. L. C. Triques, "Coupled Excitons in Quasi-Two-Dimensional Systems" in Current Topics in Quantum Electronics, vol.1, p. 139, ed. by J.Menon, Trivandrum, India (1994).
- [36] A. L. C. Triques, J. A. Brum, Proceedings of the 22th International Conference on the Physics of Semiconductor-Vancouver, Canada (1994), vol. 2, 1328, ed. by D. J. Lockwood, World Scientific (1995).
- [37] A. L. C. Triques, J. A. Brum, submetido à Phys. Rev. B., dezembro de 1996.

- [38] Ph. Roussignol, C. Delalande, A. Vinattieri, L. Carraresi, M. Colocci, Phys. Rev. B45, 6965 (1992).
- [39] A. Vinattieri, J. Shah, T. C. Damen, D. S. Kim, L. N. Pfeiffer, M. Z. Maialle,
 L. J. Sham, Phys. Rev. B50, 10868 (1994).
- [40] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, Y. Arakawa, Phys. Rev. Lett 69, 3314 (1992).
- [41] Y.Yamamoto, F.Matinaga, S.Machida, A.Karlsson, J.Jacobson, G.Björk and T.Mukai, J. de Phys. IV 3, 39 (1993).
- [42] R.Houdré, R.P.Stanley, U.Oesterle, M.Ilegems and C.Weisbuch, J. de Phys. IV 3, 51 (1993).
- [43] S. Jorda, Phys. Rev. **B50**, 2283 (1994).
- [44] A. L. Ivanov, H. Haug, Il Nuovo Cimento 17, 1255 (1995).
- [45] T. B. Norris, J. K. Rhee, D. S. Citrin, M. Nishioka, Y. Arakawa, Il Nuovo Cimento 17, 1295 (1995).
- [46] S. Long, B. Sermage, I. Abram, J. Bloch, R. Planel, V. Thierry-Mieg, Il Nuovo Cimento 17, 1601 (1995).
- [47] P. Michler, A. Hangleiter, A. Moritz, G. Fuchs, V. Härle, F. Sholz, Phys. Rev. B48, 11991 (1993).
- [48] G. Bastard, C. Delalande, M. H. Meynadier, P. M. Frijink, M. Voos, Phys. Rev. B29, 7042 (1984).
- [49] J. Feldmann, G. Peter, E. O. Göbel, P. Dawson, K. Moore, C. Foxon, R. J. Elliot, Phys. Rev. Lett 59, 2337 (1987).

- [50] D. S. Citrin, Phys. Rev. **B47**, 3832 (1993).
- [51] M. V. Marquezini, M. J. S. P. Brasil, J. A. Brum, P. Poole, S. Charbonneau, M. C. Tamargo, Phys. Rev. B53, 16524 (1996).
- [52] M. Z. Maialle, E. A. Andrada e Silva, L. J. Sham, Phys. Rev. B47, 15776 (1993).
- [53] J. M. Luttinger, Phys. Rev. 102, 1030 (1956).
- [54] R. C. Miller, D. A. Kleinman, W. A. Nordland Jr., A. C. Grosard, Phys. Rev. B22, 863 (1980).
- [55] R. C. Miller, D. A. Kleinman, J. Luminescence **30**, 520 (1985).
- [56] A. E. Ruckenstein, S. Smitt-Rink, R. C. Miller, Phys. Rev. Lett. 56, 504 (1986).
- [57] M. I. D'Yakonov, V. Yu. Kachorovskii, Sov. Phys. Semicond. 20, 110 (1986).
- [58] A. Twardowski, C. Hermann, Phys. Rev. B35, 8144, (1987).
- [59] H. Stolz, D. Schwarze, W. von den Osten, G. Weimann, Superlatt. Microstruc.
 6, 271 (1989).
- [60] M. Potemski, J. C. Maan, A. Fasolino, K. Ploog, G. Weimann, Phys. Rev. Lett.
 63, 2409 (1989).
- [61] A. Tackeuchi, S. Muto, T. Inata, T. Fuji, Appl. Phys. Lett 56, 2213, (1990).
- [62] T. Uenoyama, L. J. Sham, Phys.Rev. Lett. 64, 3070 (1990).
- [63] T. Uenoyama, L. J. Sham, Phys. Rev. **B42**, 7114 (1990).

- [64] M. R. Freeman, D. D. Awschalom, J. M. Hong, L. L. Chang, Proceedings of the 20th International Conference on the Physics of Semiconductors, ed. by E.
 M. Anastassakis and J. D. Joannopoulos, World Scientific (Singapore) 1990.
- [65] T. C. Damen, K. Leo, J. Shah, J. E. Cunningham, Appl. Phys. Lett. 58, 1902 (1991).
- [66] R. Ferreira, G. Bastard, Phys. Rev. B43, 9687 (1991).
- [67] M. Kohl, M. R. Freeman, D. D. Awshalom, J. M. Hong, Phys. Rev. B44, 5923 (1991).
- [68] T. C. Damen, L. Viña, J. E. Cunningham, J. Shah, L. J. Sham, Phys. Rev. Lett. 67, 3432 (1991).
- [69] V. A. Chitta, M. Potemski, J. C. Maan, A. Fasolino, K. Ploog, G. Wiemann, Superlatt. Microstruc. 9, 303 (1991).
- [70] G. Bastard, R. Ferreira, Surf. Sci. 267, 335 (1992).
- [71] S. Bar-Ad, I. Bar-Joseph, Phys. Rev. Lett. 68, 349 (1992).
- [72] Ph. Roussignol, P. Rolland, R. Ferreira, C. Delalande, G. Bastard, A. Vinattieri, L. Carraresi, M. Colocci, Surf. Sci. 276, 360 (1992).
- [73] Ph. Roussignol, P. Rolland, R. Ferreira, C. Delalande, G. Bastard, A. Vinattieri, J. Martinez-Pastor, L. Carraresi, M. Colocci. J. F. Palmier, B. Etienne, Phys. Rev. B46, 7292 (1992).
- [74] J. B. Stark, W. H. Knox, D. S. Chemla, Phys. Rev. B46, 7919 (1992).
- [75] E. C. F. Quivy-da Silva, V. Chitta, D. Toet, M. Potemski, J. C. Maan, K. Ploog, Semicond. Sci. Technol. 7, 1369 (1992).

- [76] A. Frommer, E. Cohen, A. Ron, L. N. Pfeiffer, Phys. Rev. B48, 2803 (1993).
- [77] R. Ferreira, G. Bastard, Europhys. Lett. 23, 439 (1993).
- [78] R. Ferreira, Ph. Roussignol, P. Rolland, C. Delalande, A. Vinattieri, G. Weimann, Proceedings of the 3rd International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems, Montpellier-França (1993).
- [79] B. Dareys, X. Marie, T, Amand, J. Barrau, Y. Shekun, I. Razdobreev, R. Planel, Superlatt. Microstruc. 13, 353 (1993).
- [80] A. Vinattieri, J. Shah, T. C. Damen, K. W. Goossen, L. N. Pfeiffer, M. Z. Maialle, L. J. Sham, Appl. Phys. Lett. 63, 3164 (1993).
- [81] T. Amand, X. Marie, B. Baylac, J. Barrau, M. Brousseau, R. Planel, D. J. Dunstan, Phys. Lett. A193, 105 (1994).
- [82] D. A. Tulchinsky, J. J. Baumberg, D. D. Awschalom, N. Samarth, H. Luo, J. K. Furdyna, Phys. Rev. B50, 10851 (1994).
- [83] A. Frommer, A. Ron, E. Cohen, J. A. Kash, L. N. Pfeiffer, Phys. Rev. B50, 11833 (1994).
- [84] Ph. Roussignol, R. Ferreira, C. Delalande, G. Bastard, A. Vinattieri, J. Martinez-Pastor, L. Carraresi, M. Colocci, J. F. Palmier, B. Etienne, Surf. Sci. 305, 263 (1994).
- [85] L. Muñoz, E. Perez, L. Viña, K. Ploog, Phys. Rev. B51, 4247 (1995).
- [86] B. Baylac, T. Amand, X. Marie, B. Dareys, M. Brousseau, G. Bacquet, V. Thierry-Mieg, Solid State Comm. 93, 57 (1995).

- [87] A. L. C. Triques, A. Vinattieri, M. Colocci, Ph. Roussignol, R. Ferreira, Brasilian Journal of Physics 26, 222 (1996).
- [88] M. Z. Maialle, Brasilian Journal of Physics, 26, 245 (1996).
- [89] M. Z. Maialle, Phys. Rev. **B54**, 1967 (1996).
- [90] A. L. C. Triques, F. Iikawa, M. Z. Maialle, J. A. Brum, R. G. Pereira, G. Bohrgs, 9th International Conference on Superlattices, Microstructures and Micirodevices, Liège-Bélgica (1996), a ser publicado na Superlatt. Microstruc.
- [91] M. Z. Maialle, M. H. Degani, 9th International Conference on Superlattices, Microstructures and Micirodevices, Liège-Bélgica (1996), a ser publicado na at Superlatt. Microstruc.
- [92] M. Kemerink, P. M. Koenraad, P. C. M. Christianen, A. K. Geim, J. C. Maan, J. H. Wolter, M. Henini, 9th International Conference on Superlattices, Microstructures and Micirodevices, Liège-Bélgica (1996), a ser publicado na Superlatt. Microstruc.
- [93] Veja, por exemplo: L. J. Sham, J. Phys.: Condens. Matter 5 A51, (1993).
- [94] J. Kusano, Y. Segawa, Y. Aoyagi, S. Namba, H. Okamoto, Phys. Rev. B40, 1685 (1989).
- [95] Um estudo detalhado dos diversos mecanismos, em "bulk" e poços quânticos pode ser encontrado em [89].
- [96] R. J. Elliot, Phys. Rev. 94, 266 (1954); Y. Yafet, in Solid State Physics vol.14, ed. by H. Ehrenreich, F. Seitz, D. Turnbull, Accademic Press (New York, 1963).

- [97] E. O. Kane, "The $\vec{k} \cdot \vec{p}$ Method", in Semiconductors and Semimetals, vol. 3, ed. by Willardson and Beer, Accademic Press (New York, 1967).
- [98] M. I. D'Yakonov, V. I. Perel', Sov. Phys. JETP 33, 1053 (1971).
- [99] G. L. Bir, A. G. Aronov, G. E. Pikus, Sov. Phys. JETP 42, 705 (1976).
- [100] Veja capítulo 3, p.102 da referência [17].
- [101] Veja referência 11 em [98], e referência 18 em [93].
- [102] J. J. Hopfield, Phys. Rev. 112, 1555 (1958).
- [103] Veja referência 12 em [39].
- [104] L. C. Andreani, F. Tassone, F. Bassani, Solid State Comm., 77, 641 (1991).
- [105] Veja referências 17 e 18 em [50].
- [106] Veja, por exemplo, J. O. Dimmock, "Introduction to the Theory of Exciton States in Semiconductors", in Semiconductors and Semimetals, vol. 3, ed. by Willardson and Beer, Accademic Press (New York, 1967).
- [107] G. Wannier, Phys. Rev. 52, 191 (1937).
- [108] G. Dresselhaus, J. Phys. Chem. Solids 1, 14 (1956).
- [109] M. Altarelli, N. O. Lipari, Phys. Rev. B15, 4898 (1977).
- [110] Y. C. Chang, J. N. Schulman, Appl. Phys. Lett. 43, 536 (1983)., Phys. Rev. B31, 2069 (1985).
- [111] G. D. Sanders, Y. C. Chang, Phys. Rev. B31, 6892 (1985).
- [112] M. Altarelli, U. Ekenberg, A. Fasolino, Phys. Rev. B32, 5138 (1985).

- [113] Ximenes Rocha Resende, Tese de Mestrado defendida no IFGW-UNICAMP (dezembro-1995).
- [114] U. Fano, Phys. Rev. 124, 1866 (1961).
- [115] D. Y. Oberli, G. Böhm, G. Weimann, J. A. Brum, Phys. Rev. B49, 5757 (1994).
- [116] Landolt-Börnstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, group III, vol. 17, Springer-Verlag (Berlin, 1982), vol. 22 (1989).
- [117] M. Altarelli, "Band Structure, Impurities and Excitons in Superlattices", in Heterojunctions and Semiconductor Superlattices, ed. by G. Allan, G. Bastard, N. Boccara, M. Lannoo, M. Voos, Springer-Verlag (1986).
- [118] J. Y. Marzin, "Strained Superlattices", in Heterojunctions and Semiconductor Superlattices, ed. by G. Allan, G. Bastard, N. Boccara, M. Lannoo, M. Voos, Springer-Verlag (1986).
- [119] F. H. Pollack, Surface Science 37, 863 (1973).
- [120] G. L. Bir, G. E. Pikus, in Symmetry and Strain-induced Effects in Semiconductors, J. Wiley (1974).
- [121] J. Y. Marzin, J. M. Gerard, P. Voisin, J. A. Brum, in Semiconductors and Semimetals, 32, 55, ed. by T. P. Pearsall, Accademic Press (1990).
- [122] Veja R. Nötzel, Semicond. Sci. Technol., 11, 1365 (1996).
- [123] R. Grousson, V. Voliotis, P. Lavallard, C. Deparis, Il Nuovo Cimento, 17, 1481 (1995).
- [124] Capítulo VII da referência [17].

- [125] Marco Ridolfi, "Tese di Laurea" defendida junto à Università degli studi di Firenze, Firenze, Itália (dezembro-1992).
- [126] Massimo Gurioli, Tese de Doutorado defendida junto à Università degli studi di Firenze, Firenze, Itália (1990).
- [127] G. Lampel, Phys. Rev. Lett. 20, 491 (1968).
- [128] L. C. Andreani, F. Bassani, Phys. Rev. B41, 7536 (1990).
- [129] D. A. Kleinman, Phys. Rev. B32, 3766 (1985).
- [130] M. L. F. Abbade, F. Iikawa, J. A. Brum, Th. Tröster, A. A. Bernussi, R. G. Pereira, G. Borghs, a ser publicado no J. Appl. Phys.; F. Iikawa, M. L. F. Abbade, J. A. Brum, A. A. Bernussi, R. G. Pereira, G. Borghs, a ser publicado na revista Phys. Rev. B.
- [131] B. Baylac, T. Amand, M. Bousseau, X. Marie, B. Dareys, G. Bacquet, J. Barrau, R. Planel, Semicond. Sci. Technol. 10, 295 (1995).

Agradecimentos

Gostaria de agradecer ao Professor José Antônio Brum pela oportunidade de realizar este trabalho, pela sua orientação durante estes três anos, por todo o tempo dedicado às inúmeras discussões, pelo seu apoio e confiança incondicionais em meu tabalho.

Agradeço aos Professores do Grupo de Propriedades Ópticas do IFGW, Eliermes A. Menezes, Fernando Cerdeira, Fernando Iikawa, Maria José S. P. Brasil e Vólia Lemos, por toda a acolhida e pela oportunidade de trabalhar em seus laboratórios. Em particular, gostaria de agradecer ao Professor Iikawa pela constante ajuda, acompanhamento e paciência. À Leníssima!, pelo seu apoio, sua amizade, seu carinho e pela sua presença imprescindível. Aos técnicos do GPO, Milton e Roberto, por todos os serviços. Ao André da oficina mecânica, pelos serviços e pela paciência em entender meus desenhos. Ao pessoal da criogenia, Ailton, Álvaro, Ângelo, Milton e Renato, que na sua incansável "Busca ao Hélio Perdido" sempre encontraram alguns litros a mais para nós. A todos os colegas do GPO, Alessandra, Alfredo, Brás, Dari, Delano. Evaldo, Gustavo, Ivan Rasnik, Jorge, Marcelo, Marcos, Thomas e Valéria, pela ajuda, ensinamentos e dicas nos laboratórios, pelo companheirismo e pela amizade.

Ao Professor Peter Schulz, pelas discussões e por toda a ajuda e amizade. Aos colegas Ivan Costa, Luis Guilherme, Mané, Pablo, Rafael, Rudson e Ximenes pelas discussões e dicas computacionais, além daquela mãozinha com a linha de transferência de Hélio.

À Yara, pela oportunidade de trabalharmos em conjunto, pelas discussões e troca de experiência, e principalmente pelo apoio em todos os momentos, muito obrigada.

Ao Cesar Curvello, pela ajuda e paciência com as minhas primeiras PLs e pelo trabalho em conjunto. Ao Cesar e à Mônica, pelas discussões e todo o trabalho. Ao Airton Bernussi pelas pequenas dicas e pelo apoio.

À Marisa, a todo o pessoal da secretaria do DFESCM, da biblioteca do IFGW e

do Centro de Computação da Física, pelo apoio técnico.

Ao pessoal da CPG/IFGW, Armando, Márcia, Maria Ignez e Professor Cerdeira, por toda a ajuda e serviços prestados.

Grazie ai Dott. Anna Vinattieri, Marcello Colocci e Salvatore Califano per l'opportunità di svolgere parte di questo lavoro presso il LENS e il Dipartimento di Física dell'Università di Firenze. Ringrazio anche il Dott. Massimo Gurioli per le discussioni, ed il Prof. Franco Bogani, Angelo, Danielle, Luca, Massimo Moraldi, Milvia, Nando, Paola, Simone e Simona, per l'aiuto e l'amicizia. Un ringraziamento speciale a Marco Neri per la pacienzia, l'aiuto e le piccole lezioni di italiano, anzi, di fiorentino! Grazie a tutto il personale del LENS, Benedetta, Cesare, Cristina, Marco, Mauro, Michella ed ai colleghi Chiara, Francesco, Gianni, Giovanni, Chiara e Giovanni, Laura, Marco, Marella, Marilena, Maurizio, Pablo, Paolo Foggi, Paolo de Natale, Renato, Roberta, Stefano e Valentina. Al Raul Mayoral, un salutone!

Agradeço aos Doutores Philippe Roussignol, Robson Ferreira e Gerald Bastard pelo apoio e pelas valiosas discussões.

Agradeço ao Professor Marcelo Z. Maialle, pelas valiosas discussões.

Gostaria de agradecer ainda ao Luiz Antônio, Brito, Miriam, Mané e Tsuda, por toda a orientação e os ensinamentos que me permitiram chegar até aqui.

Aos amigos das tão poucas horas livres, Fran, Alessandra, Lorena, Mônica, Sieg, João Guilherme, Roberto, Carla e Rubens... pelas boas risadas, filosofias e músicas madrugada afora.

Ai miei più cari amici Erik e Flo... non c'é bisogno di dire perché! A Frabrizio, Angelo, Giovanni e Heather, per tutta la amicizia che abbiamo coltivato per tanto tempo e che resterà.

Aos meus pais e minha família, que sempre souberam me compreender e apoiar.