



UNIVERSIDADE
ESTADUAL DE LONDRINA

LEONARDO DIAS DE SOUZA

**FOTOREFLETÂNCIA EM PONTOS QUÂNTICOS AUTO-
ORGANIZADOS DE InAs CRESCIDOS SOBRE GaAs E NO
INTERIOR DE UM POÇO QUÂNTICO DE In_{0.14}Ga_{0.86}As/GaAs.**

LONDRINA
2010

LEONARDO DIAS DE SOUZA

**FOTOREFLETÂNCIA EM PONTOS QUÂNTICOS AUTO-
ORGANIZADOS DE InAs CRESCIDOS SOBRE GaAs E NO
INTERIOR DE UM POÇO QUÂNTICO DE In_{0.14}Ga_{0.86}As/GaAs.**

Dissertação apresentada ao programa de
Mestrado em Física da Universidade Estadual
de Londrina, como requisito parcial para a
obtenção do título de Mestre em Física.

Orientador: Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano
Dias

Co-Orientador: Prof. Dr. Edson Laureto

LONDRINA
2010

**Catlogação elaborada pela Divisão de Processos Técnicos da Biblioteca Central da
Universidade Estadual de Londrina.**

Dados Internacionais de Catalogação-na-Publicação (CIP)

S729f Souza, Leonardo Dias de.
Fotorefletância em pontos quânticos auto-organizados de InAs crescidos sobre
GaAs e no interior de um poço quântico de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ / Leonardo Dias
de Souza. – Londrina, 2010.
106 f. : il.

Orientador: Ivan Frederico Lupiano Dias.
Co-orientador: Edson Laureto.
Dissertação (Mestrado em Física) – Universidade Estadual de Londrina, Centro
de Ciências Exatas, Programa de Pós-Graduação em Física, 2010.

1. Física quântica – Teses. 2. Pontos quânticos – Teses. 2. Poços quânticos – Teses.
3. Epitaxia por feixe molecular – Teses. I. Dias, Ivan Frederico Lupiano. II. Laureto, Edson.
III. Universidade Estadual de Londrina. Centro de Ciências Exatas. Programa de
Pós-Graduação em Física. IV. Título.

CDU 530.145



UNIVERSIDADE
ESTADUAL DE LONDRINA

Centro de Ciências Exatas
Programa de Pós-Graduação em Física

ATA DE DEFESA DE DISSERTAÇÃO

Aos vinte e três dias do mês de fevereiro do ano de dois mil e dez, na Sala 3 do Depto. de Estatística, do Centro de Ciências Exatas desta Universidade, às 15h00, reuniu-se a Banca Examinadora indicada pelo Programa de Pós-Graduação e homologada pela Pró-Reitoria de Pesquisa e Pós-Graduação, conforme Portaria nº 510 de 12 / fev / 2010, composta por Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano Dias, orientador do trabalho e presidente da banca, Prof. Dr. José Leonil Duarte e Prof. Dr. Sidney Alves Lourenço. A reunião teve por objetivo julgar o trabalho do estudante Leonardo Dias de Souza, sob o título "Fotorefletância em pontos quânticos auto-organizados de InAs crescidos sobre GaAs e no interior de um poço quântico de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ ". Os trabalhos foram abertos pelo Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano Dias. A seguir foi dada a palavra ao estudante para apresentação do trabalho. Cada examinador arguiu o mestrando, com tempos iguais de arguição e resposta. Terminadas as arguições, procedeu-se o julgamento do trabalho, concluindo a Banca Examinadora por sua APROVAÇÃO (aprovação ou reprovação). Nada mais havendo a tratar, foi lavrada a presente ata, que vai assinada pelos membros da Banca Examinadora.

Londrina, 23 de fevereiro de 2010

O estudante deverá reformular seu trabalho conforme estabelecido no Artigo 55 do Regulamento dos Programas de Pós-Graduação *Stricto sensu*, no prazo de 30 (trinta) dias: () Sim (X) Não.
Se houver alteração no título do trabalho, informar o novo título abaixo:

(Este documento não deve conter rasuras ou corretivo. Preencher com letra de forma)

Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano Dias
Presidente

Prof. Dr. José Leonil Duarte
Titular

Prof. Dr. Sidney Alves Lourenço
Titular

LEONARDO DIAS DE SOUZA

**FOTOREFLETÂNCIA EM PONTOS QUÂNTICOS AUTO-
ORGANIZADOS DE InAs CRESCIDOS SOBRE GaAs E NO INTERIOR
DE UM POÇO QUÂNTICO DE In_{0,14}Ga_{0,86}As/GaAs.**

Dissertação apresentada ao programa de
Mestrado em Física da Universidade Estadual
de Londrina, como requisito parcial para a
obtenção do título de Mestre em Física.

BANCA EXAMINADORA

Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano Dias
UEL – Londrina - PR

Prof. Dr. José Leonil Duarte
UEL – Londrina - PR

Prof. Dr. Sidney Alves Lourenço
UTFPr

Londrina, 23 de Fevereiro de 2010.

DEDICATÓRIA

Dedico este trabalho aos meus irmãos, Eduardo e Tâme pelo companheirismo, a minha namorada Bruna que sempre esteve ao meu lado, sabendo compreender meus momentos de ausência devido aos estudos e em especial aos meus pais, Eli Donizeti e Tânia, que sempre com muito esforço e incentivo me ajudaram a alcançar mais uma conquista na minha vida. Pai, mãe, espero que nesse momento vocês possam sentir ao menos um pouco do orgulho que sinto de vocês.

AGRADECIMENTOS

Agradeço ao meu orientador Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano Dias pela grande ajuda na realização deste trabalho, por compartilhar seu conhecimento e pelas discussões que nortearam meus estudos.

Ao amigo e co-orientador Prof. Dr. Edson Laureto, pela grande ajuda na obtenção dos espectros de fotorefletância.

Aos professores do Departamento de Física da UEL, que contribuíram para a minha formação acadêmica.

Ao Departamento de Física da UEL e em especial ao Laboratório de Óptica e Optoeletrônica pela infra-estrutura disponibilizada para a realização deste trabalho.

Aos amigos e companheiros de República Marcelo, Jonatas, Fernando (Gaúcho), Luciano (Nano), Jorge, Wagner e Danilo, pelos momentos de descontração e de risadas.

Aos amigos de turma do Mestrado, em especial Flavio e Orlando pelas discussões que contribuíram de forma a engrandecer este trabalho e meu conhecimento.

A todos os demais amigos que conquistei nesses 7 anos em que tive o prazer de morar em Londrina.

Ao Prof. Alain Quivy do Instituto de Física da USP pelas amostras fornecidas.

A Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES), pelo auxílio financeiro.

"A ciência nos traz conhecimento;
a vida, sabedoria."

Will Durant

SOUZA, Leonardo Dias. **Fotorefletância em pontos quânticos auto-organizados de InAs crescidos sobre GaAs e no interior de um poço quântico de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$** . 2010. 106f. Dissertação (Mestrado em Física), Universidade Estadual de Londrina, Londrina.

RESUMO

Neste trabalho estudamos pontos quânticos – QDs (*quantum dots*) de InAs auto-organizados crescidos sobre o GaAs, formando uma estrutura convencional de *quantum dots*, e crescidos no interior de um poço quântico de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$, formando uma estrutura denominada DWELL (*dot-in-a-well*). Utilizamos cinco amostras de QDs de InAs crescidas através da técnica de Epitaxia por Feixe Molecular – MBE (*Molecular Beam Epitaxy*), sendo três delas crescidas sobre o GaAs e duas crescidas no interior do poço quântico de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$. As amostras foram crescidas através de deposição contínua e pulsada do InAs usando diferentes taxas de crescimento nas amostras crescidas por deposição contínua. Para efeito de comparação foi preparada uma amostra que consiste de um poço quântico simples de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ com a mesma largura efetiva do poço presente nas amostras DWELL. A caracterização óptica das amostras foi feita através da técnica de fotorefletância – PR (*photoreflectance*) no intervalo de temperatura de 12 K a 300 K. Através dos espectros de PR analisamos a origem das transições observadas, a influência dos diferentes modos de crescimento sobre a energia das transições dos pontos quânticos e estimamos o tamanho dos QDs convencionais.

Palavras-chave: Pontos quânticos auto-organizados. Fotorefletância. MBE.

SOUZA, Leonardo Dias. **Photoreflectance in self-assembled quantum dots of InAs grown on GaAs and inside of a quantum well of $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$** . 2010. 106f. Dissertation (Master in Physics), Universidade Estadual de Londrina, Londrina.

ABSTRACT

In this work we studied self-assembled quantum dots – QDs of InAs grown on GaAs, resulting in a conventional structure of quantum dots, and grown inside a quantum well of $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$, resulting in a structure labeled DWELL (dot-in-a-well). We utilized five QDs samples of InAs grown through Molecular Beam Epitaxy (MBE) technique, being three of them grown over GaAs and two inside of quantum well of $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$. The samples were grown through the continuous and pulsed deposition of InAs using different growth rates in the ones grown by continuous deposition. In order to compare, it was prepared a sample consisting of a simple quantum well of $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ with the same effective width of the quantum well present in the DWELL samples. The optical characterization of sample was done through photoreflectance – (PR) between 12K and 300K of temperature. Thru of PR spectrum we analysed the origin of the observed transitions, the influence of different ways of growth on the energy of the transitions of quantum dots and we estimated the size of conventional QDs.

Keywords: Self-assembled quantum dots. Photoreflectance. MBE.

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

- Figura 2.1** – Representação de uma onda eletromagnética incidindo em uma interface plana semi-infinita.25
- Figura 2.2** – Comportamento dos coeficientes de Seraphin α e β para o GaAs.....32
- Figura 2.3** – Esquema das bandas de valência e de condução com ou sem iluminação, mostrando o processo de modulação do campo elétrico superficial em fotorefletância. A linha cheia descreve a configuração inicial sem presença de iluminação por parte do laser. A linha pontilhada descreve a configuração do campo elétrico com iluminação do laser.34
- Figura 2.4** – Parâmetro de escala $f(\rho)$ em função da razão da amplitude dos picos de maior e menor energia para três valores de n . Figura reproduzida da referência [2.7].39
- Figura 3.1** – Comportamento da densidade de estados em função do confinamento quântico.43
- Figura 3.2** – Célula convencional da rede *zinc-blend* para semicondutores III-V. No caso do GaAs, representado acima, as esferas preenchidas representam átomos de gálio e as vazias átomos de arsênio. No caso do InAs as esferas preenchidas representam os átomos de índio.46
- Figura 3.3** – Primeira zona de Brillouin da rede cubica de face centrada com os pontos de alta simetria. Figura reproduzida da referência [3.11].47
- Figura 3.4** – Estrutura de bandas do GaAs no espaço dos momentos. Figura reproduzida da referência [3.11].48
- Figura 3.5** – Estrutura de bandas do InAs no espaço dos momentos. Figura reproduzida da referência [3.12].49
- Figura 3.6** – Diagrama de fase em função da quantidade de material depositado (H) e *misfit* (ϵ). Os pequenos painéis no topo e abaixo do diagrama ilustram a morfologia da superfície nos seis diferentes modos de crescimento. As pequenas ilhas vazias indicam a presença de ilhas estáveis (ou não relaxadas), enquanto as grandes ilhas sombreadas se referem a ilhas relaxadas (ou livres de tensão). As fases são limitadas pelas seguintes

	linhas de separação: $H_{c_1}(\varepsilon)$: FM-R ₁ , FM-SK ₁ ; $H_{c_2}(\varepsilon)$: SK ₁ -R ₂ ; $H_{c_3}(\varepsilon)$: SK ₂ -SK ₁ ; $H_{c_4}(\varepsilon)$: VW-SK ₂ , VW-R ₃	52
Figura 3.7	– Linhas representando as fases de crescimento em função da quantidade InAs depositado sobre o GaAs e sobre o In _{0.14} Ga _{0.86} As.	54
Figura 3.8	– Representação das deposições do GaAs 2D (a), InAs 2D (b) e InAs 3D (c) sobre um substrato de GaAs.	56
Figura 3.9	– Representação esquemática da distorção da rede em ilhas 3D. Imagem reproduzida da referência [3.27].	56
Figura 3.10	– Imagem de AFM de InAs depositado sobre GaAs (100) com uma cobertura excedente à espessura crítica. Imagem reproduzida da referência [3.27].	57
Figura 3.11	– Seção transversal esquemática de um cluster de InAs.	58
Figura 3.12	– Energia das transições dos dois primeiros níveis de buraco pesado (hh) e buraco leve (lh) incluindo o efeito de segregação do índio para d correspondendo a 1ML (— — —: hh, - - -: lh) ou 2 ML (——: hh; ···, lh). Figura reproduzida da referência [3.28].	58
Figura 4.1	– Esquema do equipamento de epitaxia por feixe molecular. Figura reproduzida da referência [4.4].	60
Figura 4.2	– Montagem experimental de PR.	62
Figura 4.3	– Diagrama estrutural das amostras convencionais de QDs. Em cada amostra está indicada a espessura das camadas que a constituem e a respectiva temperatura de crescimento. Para detalhes de crescimento das 2.4 ML de InAs veja Tabela 4.1.	64
Figura 4.4	– Diagrama estrutural das amostras DWELL e do poço quântico simples. Em cada amostra está indicada a espessura das camadas que a constituem e a respectiva temperatura de crescimento. Para detalhes de crescimento das 2.4 ML de InAs veja Tabela 4.1.	65
Figura 5.1	– Espectros de fotorefletância com variação de temperatura das amostras (a) 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], (b) 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e (c) 3069 [QD convencional – cresc. pulsado].	69

- Figura 5.2** – Espectros de fotorefletância com variação de temperatura das amostras (a) 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s], (b) 3014 [DWELL – cresc. pulsado] e (c) 3341 [QW $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ – cresc. contínuo]..... 70
- Figura 5.3** – Ajustes dos espectros de PR através da equação (2.47) das amostras (a) 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], (b) 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e (c) 3069 [QD convencional – cresc. pulsado]. As linhas sólidas representam o melhor ajuste obtido para cada temperatura..... 73
- Figura 5.4** – Ajustes dos espectros de PR através da equação (2.47) das amostras (a) 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e (b) 3014 [DWELL – cresc. pulsado]. As linhas sólidas representam o melhor ajuste obtido para cada temperatura..... 74
- Figura 5.5** – Ajustes dos espectros de PR através da equação (2.47) da amostra 3341. As linhas sólidas representam o melhor ajuste obtido para cada temperatura..... 75
- Figura 5.6** – Dependência das duas transições associadas aos QDs com a temperatura para a amostra 3012, obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [quadrados vazios (\square)] e fotoluminescência (PL) [quadrados preenchidos (\blacksquare)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos..... 77
- Figura 5.7** – Dependência das duas transições associadas aos QDs com a temperatura para a amostra 3067, obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) (\oplus) e fotoluminescência (PL) (\ominus). A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos..... 78
- Figura 5.8** – Dependência das duas transições associadas aos QDs com a temperatura para a amostra 3069, obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [triângulos vazios (Δ)] e fotoluminescência (PL) [triângulos preenchidos (\blacktriangle)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos..... 79
- Figura 5.9** – Energia das duas transições dos QDs em função da temperatura obtidas através das medidas de PR das amostras (a) 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], (b) 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e (c) 3069 [QD convencional – cresc. pulsado]. As linhas contínuas e pontilhadas representam o comportamento com a

- temperatura do *gap* fundamental do InAs ^[3.16] e do GaAs ^[3.11], respectivamente e estão deslocados em energia para facilitar a comparação..... 80
- Figura 5.10** – Dependência com a temperatura das três transições observadas para a amostra 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [losangos vazios (\diamond)] e fotoluminescência (PL) [losangos preenchidos (\blacklozenge)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos..... 83
- Figura 5.11** – Dependência com a temperatura das três transições observadas para a amostra 3014 [DWELL – cresc. pulsado], obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [círculos vazios (\circ)] e fotoluminescência (PL) [círculos preenchidos (\bullet)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos..... 84
- Figura 5.12** – Dependência das duas transições associadas ao QW e da transição associada ao GaAs com a temperatura para a amostra 3341, obtida através da análise dos espectros de fotorefletância (PR). As transições relacionadas ao QW são representadas pelos quadrados tachados (\boxtimes) e a transição relacionada ao GaAs é representada pelos círculos tachados (\otimes). A linha sólida em vermelho (deslocada em energia para facilitar a comparação) representa aproximadamente o comportamento esperado do *gap* com a temperatura para o $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ *bulk* ^[3.17]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos..... 85
- Figura 5.13** – Comparação das duas transições de maior energia da amostra 3015 (\diamond) com as duas transições do poço quântico simples de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ (\boxtimes). As setas indicam a diferença em energia entre as transições observadas experimentalmente. A linha contínua ligando os pontos experimentais é somente um guia para os olhos..... 86
- Figura 5.14** – Comparação das duas transições de maior energia da amostra 3014 (\circ) com as duas transições do poço quântico simples de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ (\boxtimes). As setas indicam a diferença em energia entre as transições observadas experimentalmente. A linha contínua ligando os pontos experimentais é somente um guia para os olhos..... 87
- Figura 5.15** – Comparação da dependência com a temperatura das duas transições associadas aos QDs das amostras 3067 (\oplus) e 3069 (Δ). 89

Figura 5.16 – Comparação da dependência com a temperatura da transição associada aos QDs das amostras 3014 (O) e 3015 (\diamond).	90
Figura 5.17 – Comparação da dependência com a temperatura das duas transições associadas aos QDs das amostras 3012 (\square) e 3067 (\oplus).	91
Figura 5.18 – Comparação da dependência com a temperatura das transições associadas os QDs das amostras 3015 (\diamond) e 3067 (\oplus).....	92
Figura 5.19 – Comparação da dependência com a temperatura das transições associadas aos QDs das amostras 3014 (O) e 3069 (Δ).	93

LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1 – Regimes de campos elétricos em fotorefletância.	36
Tabela 3.1 – Expressões matemáticas para a densidade de estados 3D, 2D, 1D e 0D.....	42
Tabela 4.1 – Principais características de crescimento das amostras de <i>quantum dots</i> estudadas.....	66
Tabela 5.1 – Estruturas, modos de crescimento e taxas de deposição do conjunto de amostras.....	67
Tabela 5.2 – Energias obtidas através do método dos três pontos para as transições ópticas dos QDs. E_0 e E_1 referem-se às transições de menor e maior energia, respectivamente. Os campos marcados com uma linha tracejada são referentes a transições não determinadas. Foi usada nos cálculos a linha $n = 3$ da Figura 2.4.....	69
Tabela 5.3 – Raio R_t dos QDs com estrutura convencional obtido através do modelo proposto por <i>Marzin e Bastard</i> ^[3.28] considerando que a <i>wetting layer</i> presente nestas amostras tem espessura de 2 ML de InAs.....	80
Tabela 5.4 – Comprimento de onda das transições observadas através da fotorefletância.....	93

SUMÁRIO

1 - INTRODUÇÃO GERAL	17
2 - ASPECTOS TEÓRICOS DA FOTOREFLETÂNCIA	20
2.1 – INTRODUÇÃO	20
2.2 – REPOSTA DO MATERIAL A UMA RADIAÇÃO ELETROMAGNÉTICA.....	21
2.2.1 – <i>Representação de uma Onda Eletromagnética Propagante</i>	21
2.2.2 – <i>Refletância</i>	25
2.3 – MODULAÇÃO DA REFLETÂNCIA.....	31
2.4 – EFEITO DO CAMPO ELÉTRICO.....	34
2.5 – REGIMES DE CAMPO	36
2.5.1 – <i>Regime de Campo Baixo</i>	37
2.6 – MÉTODO DOS TRÊS PONTOS.....	38
3 - PONTOS QUÂNTICOS	41
3.1 – INTRODUÇÃO	41
3.2 – CONFINAMENTO QUÂNTICO.....	42
3.3 – OS ELEMENTOS ÍNDIO (IN), ARSÊNIO (AS) E GÁLIO (GA).....	44
3.4 – OS BINÁRIOS INAS E GAAS E A LIGA INGAAS	45
3.4.1 – <i>Estrutura Cristalina</i>	46
3.4.2 – <i>Estrutura de Bandas do GaAs e InAs</i>	47
3.4.3 – <i>Parâmetros de Rede</i>	49
3.4.4 – <i>Gap de Energia</i>	50
3.5 – PONTOS QUÂNTICOS DE INAS	51
3.5.1 – <i>Introdução</i>	51
3.5.2 – <i>Pontos Quânticos Auto-Organizados</i>	55
3.6 – MODELO TEÓRICO PARA O CÁLCULO DO TAMANHO DE QDS	57
4 - TÉCNICAS EXPERIMENTAIS E AMOSTRAS	59
4.1 – EPITAXIA POR FEIXE MOLECULAR - MBE	59
4.2 – FOTOREFLETÂNCIA	61

4.3 – AMOSTRAS UTILIZADAS.....	63
5 - RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO	68
5.1 – ESPECTROS DE PR COM VARIAÇÃO DE TEMPERATURA	68
5.2 – DETERMINAÇÃO DA ENERGIA DAS TRANSIÇÕES ATRAVÉS DO MÉTODO DOS TRÊS PONTOS	71
5.3 – AJUSTES REALIZADOS DOS ESPECTROS DE PR.....	71
5.4 – DETERMINAÇÃO DA ORIGEM DAS TRANSIÇÕES A PARTIR DA DEPENDÊNCIA DA ENERGIA COM A TEMPERATURA	76
5.4.1 – <i>Transições em QDs Convencionais</i>	76
5.4.2 – <i>Transições nos DWELL e QW Simples</i>	82
5.5 – COMPARAÇÕES DAS DIFERENTES TAXAS DE CRESCIMENTO E ESTRUTURAS DAS AMOSTRAS	88
5.5.1 – <i>Energia das Transições X Modo de Crescimento do InAs</i>	89
5.5.2 – <i>Energia das Transições X Taxa de Deposição do InAs</i>	91
5.5.3 – <i>Energia das Transições X Estrutura das Amostras</i>	92
6 - CONCLUSÕES	96
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	99

CAPÍTULO 1

Introdução Geral

Com a rápida evolução tecnológica, característica do mundo atual, existe a necessidade constante de produzir dispositivos cada vez mais eficientes. A eficiência destes dispositivos pode ser aumentada com a utilização de estruturas de baixa dimensão, isto é, poços quânticos [*quantum wells* – QWs (2D)], fios quânticos [*quantum wires* – (1D)] e pontos quânticos [*quantum dots* – QDs (0D)]. Em especial, heteroestruturas semicondutoras contendo QDs tem sido amplamente estudadas através de técnicas de espectroscopia óptica, como fotoluminescência (PL) ^[1.1], fotoluminescência de excitação (PLE) ^[1.2], técnicas de absorção no infravermelho ^[1.3] e também por técnicas de espectroscopia óptica de modulação, como a fotorefletância (PR) ^{[1.4] [1.5]}, entre outras. O uso da técnica de fotorefletância para a caracterização de estruturas de baixa dimensão apresenta em princípio algumas vantagens sobre as demais técnicas citadas acima, como a possibilidade de obter informações sobre as transições de maior energia, determinar a intensidade do campo elétrico interno das amostras estudadas, obter espectros a temperatura ambiente, entre outras.

O termo *quantum dot* refere-se a uma estrutura semicondutora onde os portadores estão confinados tridimensionalmente em uma região tipicamente menor que 1 μm ^[1.6]. O confinamento dos portadores nas três direções espaciais altera a densidade de estados do material, que no caso dos QDs tem uma dependência com a energia descrita por uma função delta de Dirac. Esta mudança na densidade de estados confere aos pontos quânticos propriedades eletrônicas únicas, as quais tornam seu estudo interessante tanto do ponto de vista acadêmico ^[1.7] como do ponto de vista de aplicações em dispositivos ^{[1.8] [1.9]}.

Para aplicações práticas em dispositivos semicondutores, é necessário produzir arranjos densos de QDs em uma pequena região do cristal para se obter o volume ativo desejado. Isso requer métodos de fabricação mais precisos para assegurar um melhor controle da dimensão, forma e concentração das estruturas quânticas presente no cristal. Várias técnicas foram utilizadas com o objetivo de obter estruturas QDs de boa qualidade e com arranjos densos, dentre elas destacamos a litografia (*etching*), técnica precursora na confecção

de QDs, na qual os pontos quânticos são obtidos a partir de poços quânticos. No entanto, o processo litográfico não se mostrou uma forma promissora de obter QDs, uma vez que apresentava um alto custo e não gerava QDs com um bom grau de confinamento em pelo menos uma das direções espaciais ^[1.10]. Um método alternativo e mais eficaz que o processo litográfico para a produção de *quantum dots* foi obtido na década de 90, com o processo de auto-organização no crescimento epitaxial. Este processo só foi possível graças ao desenvolvimento de técnicas de crescimento com precisão atômica, como a técnica de Epitaxia por Feixe Molecular – MBE (*Molecular Beam Epitaxy*).

A formação de QDs auto-organizados se dá a partir do crescimento de um material com parâmetro de rede diferente do substrato. O descasamento entre o parâmetro de rede do material e do substrato gera um sistema tensionado. Neste tipo de deposição, o material tende inicialmente a um crescimento pseudomórfico bidimensional. Com o aumento da quantidade de material depositado sobre o substrato, a tensão na rede cresce e a partir de certa quantidade ocorre a transição do crescimento bidimensional para formação de ilhas tridimensionais (QDs) ^{[1.11] [1.12] [1.13]}. Assim, a tensão existente devido ao descasamento do parâmetro de rede dos materiais envolvidos no crescimento é a responsável por este modo de crescimento, conhecido como Stranski-Krastanow (SK) ^[1.14].

As taxas, modos e estrutura de crescimento dos QDs têm grande influência sobre a energia de transição destas estruturas. Estudos recentes mostram que a taxa e a temperatura de deposição do InAs influencia diretamente no tamanho dos QDs ^[1.15] e, conseqüentemente, altera a energia destas transições. Fatores como a orientação do substrato ^[1.16], tipo de estrutura na qual os QDs são crescidos ^[1.17], entre outras, também alteram a energia das transições dos QDs.

Os QDs auto-organizados mais estudados atualmente são os baseados em InAs/GaAs ^[1.18], uma vez que apresentam mais vantagens do que aqueles crescidos sobre InP ^[1.19] e apresentam a possibilidade de se obter QDs com emissão de luz na janela espectral das fibras ópticas de telecomunicações. Recentemente, um novo tipo de estrutura baseada no crescimento de QDs de InAs no interior de um poço quântico de InGaAs com barreiras de GaAs foi estudada ^{[1.20] [1.21]}. Esta estrutura de QDs é denominada na literatura de *dots-in-a-well* (DWELL). Com este tipo de estrutura pode-se aumentar a densidade e o tamanho dos QDs e ampliar a capacidade de captura de portadores proporcionando um melhor desempenho de dispositivos.

O estudo de QDs auto-organizados de InAs através de técnicas de espectroscopia óptica como fotorefletância e fotoluminescência ainda apresenta algumas dificuldades, como

a identificação da origem de transições de maior energia em QDs. Não existe um consenso na literatura sobre a atribuição da origem física de transições de energia maior que a transição do nível fundamental, mesmo usando microscopia de força atômica – AFM (*Atomic Force Microscopy*), técnica que auxilia na determinação do tamanho dos QDs. As transições de maior energia são geralmente atribuídas a estados excitados dos QDs ^{[1.22] [1.23] [1.24]} ou a transições do nível fundamental de famílias de diferentes tamanhos ^{[1.25] [1.26]}.

Neste trabalho, o objetivo é estudar através da técnica de fotorefletância as propriedades ópticas de QDs auto-organizados de InAs e analisar a influência das diferentes estruturas, modos e taxas de crescimento na energia de emissão dos QDs, visando o deslocamento da energia de transição dos QDs para a janela óptica utilizada em telecomunicações (1.31 e 1.55 μm).

O conjunto de amostras estudadas foi crescido através da técnica de MBE no Instituto de Física da USP pelo prof. Dr. Alain André Quivy e é constituído por três amostras de QDs de InAs crescidos sobre o GaAs, formando uma estrutura convencional de QDs; duas amostras na qual os *quantum dots* de InAs foram crescidos dentro de um poço quântico de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ com barreiras de GaAs, formando uma estrutura DWELL; e uma amostra de poço quântico simples de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ com barreiras de GaAs, sendo que as amostras de QDs (convencionais e DWELL) foram crescidas através de deposição contínua e pulsada do InAs usando diferentes taxas de crescimento nas crescidas por deposição contínua. A caracterização destas amostras foi feita através da técnica de fotorefletância, no intervalo de temperatura de 12 a 300 K.

Este trabalho está organizado da seguinte maneira: no capítulo 2 tratamos dos aspectos teóricos envolvidos na fotorefletância. Em seguida, no capítulo 3 falamos sobre os pontos quânticos, algumas propriedades físicas dos materiais envolvidos no estudo e sobre os efeitos do confinamento quântico. As técnicas experimentais utilizadas para o crescimento e para a caracterização do conjunto de amostras bem como o conjunto de amostras estudadas e seus principais parâmetros de crescimento são expostos no capítulo 4. Os resultados da caracterização óptica e a análise de tais dados são apresentados no capítulo 5. Por fim, o capítulo 6 é dedicado as conclusões finais sobre o trabalho.

CAPÍTULO 2

Aspectos Teóricos da Fotorefletância

Neste capítulo desenvolvemos um estudo detalhado dos fenômenos físicos envolvidos na fotorefletância.

2.1 – INTRODUÇÃO

Nas técnicas de modulação óptica, a modulação relativa da refletividade ($\Delta R/R$), resultante da perturbação periódica de algum parâmetro físico como o campo elétrico, a pressão, a temperatura, etc., é medida em função da energia do fóton. Os espectros observados mostram linhas bem resolvidas com larguras espectrais pequenas. No caso da fotorefletância, uma técnica similar à eletrorefletância sem contato, o campo elétrico superficial é modulado periodicamente, pela foto-injeção de pares elétron-buraco. Os portadores minoritários fotogerados se recombinam com as cargas superficiais, reduzindo assim o campo elétrico superficial.

Para a análise dos espectros de modulação, no nosso caso de fotorefletância é necessário conhecer a resposta de um sólido a uma onda eletromagnética incidente. No item 2.2 analisaremos fisicamente como esta resposta acontece. Em seguida, na seção 2.3 trataremos da modulação da refletância. Nos itens 2.4 e 2.5 falaremos dos efeitos de um campo elétrico aplicado a um material e dos regimes de campo elétrico em fotorefletância, respectivamente. Na seção 2.6 apresentamos o método dos três pontos, um método simples usado para determinar as energias de transições em PR.

2.2 – REPOSTA DO MATERIAL A UMA RADIAÇÃO ELETROMAGNÉTICA

2.2.1 – REPRESENTAÇÃO DE UMA ONDA ELETROMAGNÉTICA PROPAGANTE

Os fenômenos de propagação e interação da radiação eletromagnética com um meio material podem ser tratados pelas equações de Maxwell, conforme as equações abaixo. Utilizamos no desenvolvimento feito a seguir o sistema de unidades MKS.

$$\nabla \cdot \vec{E} = \frac{1}{\epsilon_0} (\rho_f - \nabla \cdot \vec{P}) \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.2)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (2.3)$$

$$\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \left(\vec{J}_f + \nabla \times \vec{M} + \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \right) + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (2.4)$$

onde ρ_f é a densidade de carga livre no meio, \vec{P} é o vetor polarização, \vec{J}_f é a densidade de corrente de cargas livres e \vec{M} é o vetor magnetização.

Para um meio dielétrico não magnético e sem cargas livres as equações de Maxwell são dadas por:

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0 \quad (2.5)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (2.6)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.7)$$

$$\nabla \times \vec{B} = \epsilon_0 \epsilon_r \mu \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (2.8)$$

onde μ é a permeabilidade do meio, ϵ_r é a constante dielétrica relativa, $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ H/m e $\epsilon_0 = 8,854 \times 10^{-12}$ F/m. Trabalhando com as equações (2.7) e (2.8) obtemos as equações de onda para os campos elétrico e magnético, dada pelas equações (2.9) e (2.10) respectivamente:

$$\nabla^2 \vec{E} = \epsilon_0 \epsilon_r \mu \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \quad (2.9)$$

$$\nabla^2 \vec{B} = \epsilon_0 \epsilon_r \mu \frac{\partial^2 \vec{B}}{\partial t^2} \quad (2.10)$$

As soluções destas equações diferenciais podem ser dadas em termos de ondas planas por:

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$$

$$\vec{B} = \vec{B}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$$

onde \vec{E}_0 e \vec{B}_0 são as componentes dos campos elétrico e magnético respectivamente, \vec{k} é o vetor de onda, \vec{r} é o vetor posição, ω é a frequência angular e t é a componente temporal.

A velocidade de propagação da radiação eletromagnética em um meio material é dada por:

$$v = \sqrt{\frac{1}{\epsilon_0 \epsilon_r \mu}} \quad (2.11)$$

e no vácuo, onde $\epsilon_r = 1$ e $\mu = \mu_0$ a velocidade de propagação da radiação eletromagnética será dada por:

$$v = c = \sqrt{\frac{1}{\epsilon_0 \mu_0}} \quad (2.12)$$

onde c é a velocidade da luz no vácuo que é igual a 3×10^8 m/s. O índice de refração ($N(\omega)$) é definido como a razão entre a velocidade da luz no vácuo e no meio material. Para um meio não magnético ($\mu = \mu_0$) o índice de refração é dado por:

$$N(\omega) = \frac{c}{v} = \frac{\sqrt{\frac{1}{\epsilon_0 \mu_0}}}{\sqrt{\frac{1}{\epsilon_0 \epsilon_r \mu_0}}}$$

Assim, temos que o índice de refração está diretamente relacionado com a constante dielétrica relativa, de acordo com a expressão a seguir:

$$N(\omega) = \sqrt{\epsilon_r(\omega)} \quad (2.13)$$

A constante dielétrica relativa pode ser escrita em termos de uma componente real e uma imaginária

$$\epsilon_r(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) \quad (2.14)$$

onde $\epsilon_1(\omega)$ é a componente real e $\epsilon_2(\omega)$ é a componente imaginária. Como $\epsilon_r(\omega)$ é complexo, $N(\omega)$ também será. O índice de refração complexo pode ser escrito como:

$$N(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega) \quad (2.15)$$

onde $n(\omega)$ é a componente real e $\kappa(\omega)$ é a componente imaginária do índice de refração.

Assim, de (2.13) temos:

$$\begin{aligned}\varepsilon_r(\omega) &= [n(\omega) + i\kappa(\omega)]^2 \\ \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega) &= n(\omega)^2 - \kappa(\omega)^2 + i2n(\omega)\kappa(\omega)\end{aligned}\quad (2.16)$$

Assim:

$$\varepsilon_1(\omega) = n(\omega)^2 - \kappa(\omega)^2 \quad (2.17)$$

e

$$\varepsilon_2(\omega) = 2n(\omega)\kappa(\omega) \quad (2.18)$$

Isolando $n(\omega)$ e $\kappa(\omega)$ podemos separá-los em função de $\varepsilon_1(\omega)$ e $\varepsilon_2(\omega)$ de acordo com:

$$n(\omega) = \left\{ \frac{1}{2} \left[\left(\varepsilon_1(\omega)^2 + \varepsilon_2(\omega)^2 \right)^{1/2} + \varepsilon_1(\omega) \right]^{1/2} \right\} \quad (2.19)$$

e

$$\kappa(\omega) = \left\{ \frac{1}{2} \left[\left(\varepsilon_1(\omega)^2 + \varepsilon_2(\omega)^2 \right)^{1/2} - \varepsilon_1(\omega) \right]^{1/2} \right\} \quad (2.20)$$

A refletância de um material sobre o qual incide radiação de frequência angular ω sobre sua superfície pode ser dada em termos dos parâmetros $n(\omega)$ e $\kappa(\omega)$ ou em termos de $\varepsilon_1(\omega)$ e $\varepsilon_2(\omega)$.

2.2.2 – REFLETÂNCIA

Consideremos a incidência normal, de radiação eletromagnética, como mostrado na Figura 2.1, de um meio de índice de refração $N_0 = n_0$, real, sobre uma interface plana semi-infinita, dielétrica com índice de refração N_1 , onde N_1 é dado por:

$$N_1(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega)$$

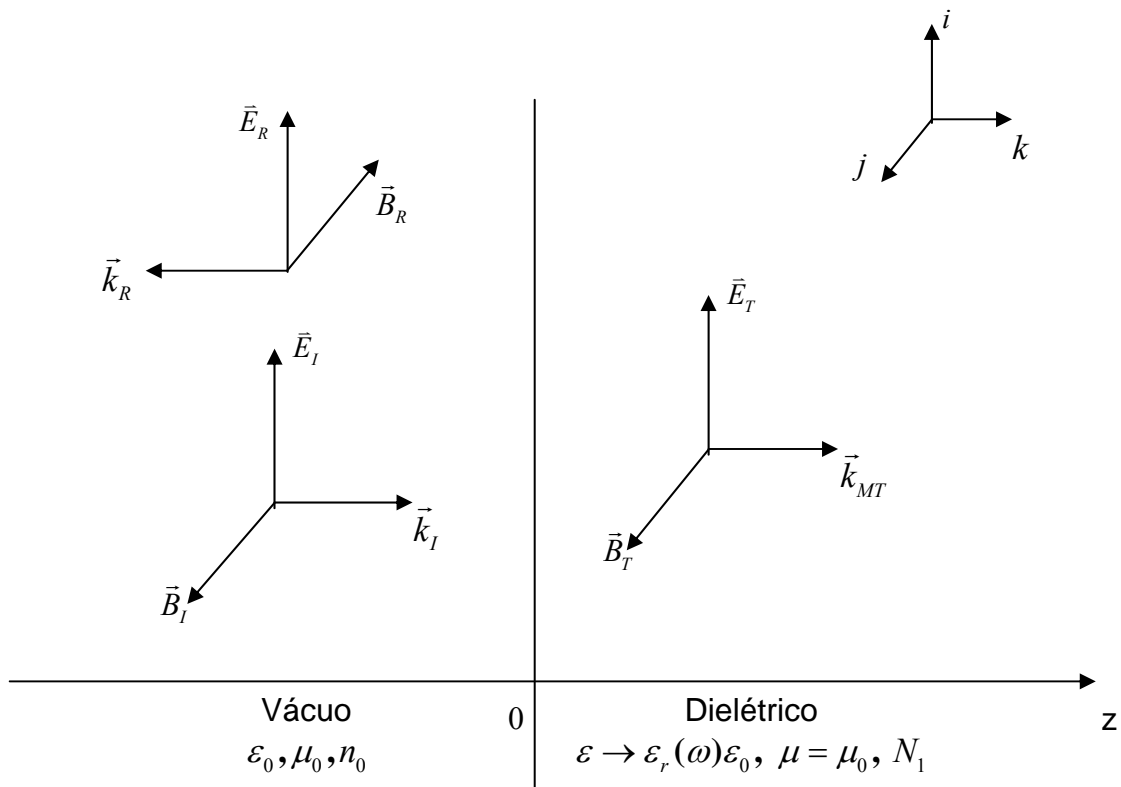


Figura 2.1 – Representação de uma onda eletromagnética incidindo em uma interface plana semi-infinita.

As equações de Maxwell nos diferentes meios são dadas por:

Vácuo	Dielétrico
$\nabla \cdot \vec{E} = 0$	$\nabla \cdot \vec{D} = 0$
$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$	$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$
$\nabla \cdot \vec{B} = 0$	$\nabla \cdot \vec{B} = 0$
$\nabla \times \vec{B} = \varepsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}$	$\nabla \times \vec{B} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}$

Considerando a geometria do sistema, as equações de Maxwell são reescritas da seguinte maneira:

Vácuo	Dielétrico
$\frac{\partial}{\partial x} E_x(z, t) = 0$	$\frac{\partial}{\partial x} E_x(z, t) = 0$
$\frac{\partial}{\partial z} E_x(z, t) = -\frac{\partial}{\partial t} B_y(z, t)$	$\frac{\partial}{\partial z} E_x(z, t) = -\frac{\partial}{\partial t} B_y(z, t)$
$\frac{\partial}{\partial y} B_y(z, t) = 0$	$\frac{\partial}{\partial y} B_y(z, t) = 0$
$\frac{\partial}{\partial z} B_y(z, t) = -\varepsilon_0 \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} E_x(z, t)$	$\frac{\partial}{\partial z} B_y(z, t) = -\varepsilon_0 \varepsilon_r \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} E_x(z, t)$

Onde as soluções para os campos elétrico e magnético são do tipo onda plana:

$E_{xI}(z, t) = E_0 e^{i(kz - \omega t)}$	$B_{yI}(z, t) = B_0 e^{i(kz - \omega t)}$
$E_{xT}(z, t) = E_T e^{i(k_M z - \omega t)}$	$B_{yT}(z, t) = B_T e^{i(k_M z - \omega t)}$
$E_{xR}(z, t) = E_R e^{-i(kz + \omega t)}$	$B_{yR}(z, t) = B_R e^{-i(kz + \omega t)}$

onde E_0 , E_T e E_R são as componentes do campo elétrico incidente, transmitido e refletido, respectivamente (idem para o campo magnético).

Na região $z < 0$ (vácuo) os campos elétricos e magnéticos resultantes são dados pela somatória das componentes incidente e refletida.

$$E_x(z, t) = E_0 e^{i(kz - \omega t)} + E_R e^{-i(kz + \omega t)} \quad (2.21)$$

$$B_y(z, t) = B_0 e^{i(kz - \omega t)} + B_R e^{-i(kz + \omega t)} \quad (2.22)$$

Na região $z > 0$ (dielétrico) os campos elétrico e magnético resultantes são

$$E_x(z, t) = E_T e^{i(k_M z - \omega t)} \quad (2.23)$$

$$B_y(z, t) = B_T e^{i(k_M z - \omega t)} \quad (2.24)$$

Os campos elétrico e magnético podem ser relacionados através da equação

$$\frac{\partial}{\partial z} E_x(z, t) = -\frac{\partial}{\partial t} B_y(z, t)$$

Assim, para o vácuo ($z < 0$) temos que os campos elétrico e magnético estão relacionados da seguinte maneira:

$$\frac{\partial}{\partial z} [E_0 e^{i(kz - \omega t)} + E_R e^{-i(kz + \omega t)}] = -\frac{\partial}{\partial t} [B_0 e^{i(kz - \omega t)} + B_R e^{-i(kz + \omega t)}]$$

fazendo as operações matemáticas indicadas acima encontramos facilmente que:

$$B_y = \frac{k}{\omega} [E_0 e^{i(kz - \omega t)} - E_R e^{-i(kz + \omega t)}]; \text{ para } z < 0 \quad (2.25)$$

Repetindo o mesmo procedimento, para $z > 0$ temos:

$$\frac{\partial}{\partial z} E_T e^{i(k_M z - \omega t)} = -\frac{\partial}{\partial t} B_T e^{i(k_M z - \omega t)}$$

portanto:

$$B_y = \frac{k_M}{\omega} E_T e^{i(k_M z - \omega t)}; \text{ para } z > 0. \quad (2.26)$$

Usando a condição de que as componentes tangenciais dos campos elétrico e magnético no vácuo e no dielétrico são iguais em $z = 0$ tem-se:

$$E_{1T} = E_{2T}$$

$$E_0 e^{-i\omega t} + E_R e^{-i\omega t} = E_T e^{-i\omega t}$$

Assim:

$$E_0 + E_R = E_T$$

a condição de contorno do campo magnético permite escrever:

$$B_{1T} = B_{2T}$$

$$\frac{k}{\omega} [E_0 - E_R] e^{-i\omega t} = \frac{k_M}{\omega} E_T e^{-i\omega t}$$

Assim temos que:

$$E_0 - E_R = \sqrt{\epsilon_r} E_T$$

$$\text{onde } k_M = \sqrt{\varepsilon_r} \frac{\omega}{c} \text{ e } \frac{k}{\omega} = \frac{1}{c} \quad (2.27)$$

Resumindo as condições de contorno:

$$E_0 + E_R = E_T \quad (2.28)$$

e

$$E_0 - E_R = \sqrt{\varepsilon_r} E_T \quad (2.29)$$

Somando as equações acima obtêm-se:

$$2E_0 = E_T (1 + \sqrt{\varepsilon_r})$$

assim

$$E_T = \frac{2E_0}{(1 + \sqrt{\varepsilon_r})} \quad (2.30)$$

Substituindo E_T em (2.29) obtêm-se E_R .

$$E_R = \frac{2E_0}{(1 + \sqrt{\varepsilon_r})} - E_0 \quad (2.31)$$

Os coeficientes de transmissão (t) e reflexão (r) são definidos de acordo com:

$$t = \frac{E_T}{E_0} = \frac{2}{1 + \sqrt{\varepsilon_r}} \quad (2.32)$$

e

$$r = \frac{E_R}{E_0} = \frac{1 - \sqrt{\varepsilon_r}}{1 + \sqrt{\varepsilon_r}} \quad (2.33)$$

A refletância (R) é dada pelo quadrado do módulo do coeficiente de reflexão, que neste caso é igual a

$$R = |r|^2 = \frac{|E_R|^2}{|E_0|^2} = \left| \frac{1 - \sqrt{\epsilon_r}}{1 + \sqrt{\epsilon_r}} \right|^2 \quad (2.34)$$

A equação acima pode ser escrita também em função das componentes do índice de refração. Usando a equação (2.16), podemos escrever a refletância como:

$$R = \left| \frac{1 - (n + i\kappa)}{1 + (n + i\kappa)} \right|^2 \quad (2.35)$$

que pode ser escrito de maneira mais expandida como

$$R = \frac{1 + n^2 + \kappa^2 - 2n}{1 + n^2 + \kappa^2 + 2n}$$

Das equações (2.17) e (2.18) podemos escrever $n^2 + \kappa^2$ como:

$$n^2 + \kappa^2 = (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2}$$

Desta maneira podemos escrever a equação para a refletância em termos da constante dielétrica do material. Assim, a refletância é dada por ^[2.4]:

$$R = \frac{1 + (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} - \left\{ 2 \left[(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} + \epsilon_1 \right] \right\}^{1/2}}{1 + (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} + \left\{ 2 \left[(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} + \epsilon_1 \right] \right\}^{1/2}} \quad (2.36)$$

Esta equação descreve a refletividade de uma onda plana se propagando no vácuo e incidindo normalmente a superfície do material. As expressões (2.35) e (2.36) nos fornecem a descrição de R em termos do índice de refração n e κ e da constante dielétrica ε_1 e ε_2 , respectivamente.

2.3 – MODULAÇÃO DA REFLETÂNCIA

Nas medidas de fotorefletância, a modulação induz variações nas constantes dielétricas ε_1 e ε_2 designadas por $\Delta\varepsilon_1$ e $\Delta\varepsilon_2$, respectivamente. Deste modo, para a análise da PR nos interessa a expressão para a variação relativa da refletância $\frac{\Delta R}{R}$, que pode ser obtida fazendo a diferenciação total da equação (2.36) com relação à ε_1 e ε_2 :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon_1} \Delta \varepsilon_1 + \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial \varepsilon_2} \Delta \varepsilon_2 \quad (2.37)$$

Esta expressão é normalmente encontrada escrita sob a forma

$$\frac{\Delta R}{R} = \alpha(\varepsilon_1, \varepsilon_2) \Delta \varepsilon_1 + \beta(\varepsilon_1, \varepsilon_2) \Delta \varepsilon_2 \quad (2.38)$$

onde, α e β são conhecidos como coeficientes de Seraphin ^[2.5] e dependem de ε_1 e ε_2 da seguinte maneira:

$$\alpha(\varepsilon_1, \varepsilon_2) = \frac{2^{1/2} \left[2\varepsilon_1 - 1 - (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2} \right] \left[\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2} \right]^{1/2}}{(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2} \left[(\varepsilon_1 - 1)^2 + \varepsilon_2^2 \right]}$$

$$\beta(\varepsilon_1, \varepsilon_2) = \frac{2^{1/2} \varepsilon_2 \left[2\varepsilon_1 - 1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2} \right]}{(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2} \left[\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2} \right]^{1/2} \left[(\varepsilon_1 - 1)^2 + \varepsilon_2^2 \right]}$$

A razão β/α fornece uma medida ou peso relativo da componente imaginária com relação à componente real em $\Delta R/R$. Em termos das componentes real e imaginária da constante dielétrica esta razão é dada por:

$$\frac{\beta(\varepsilon_1, \varepsilon_2)}{\alpha(\varepsilon_1, \varepsilon_2)} = \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2}} \quad (2.39)$$

Na Figura 2.2 mostramos o comportamento dos coeficientes α e β para o arseneto de gálio (GaAs).

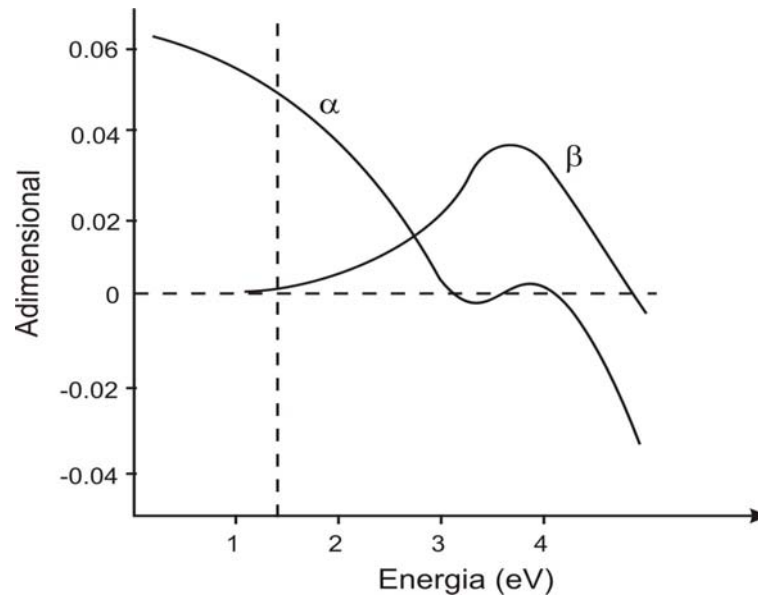


Figura 2.2 – Comportamento dos coeficientes de Seraphin α e β para o GaAs.

Na região do *gap* do GaAs (~ 1.42 eV a temperatura ambiente) $\beta \ll \alpha$. Em geral, verifica-se que na região do *gap*, em materiais III-V, $\varepsilon_2 \sim 0.1\varepsilon_1$. Assim fazendo $\varepsilon_1 \gg \varepsilon_2$ na relação (2.39) temos:

$$\frac{\beta(\varepsilon_1, \varepsilon_2)}{\alpha(\varepsilon_1, \varepsilon_2)} \sim \frac{\varepsilon_2}{2\varepsilon_1} \sim 0.05 \quad (2.40)$$

Em alguns casos de materiais III-V pode-se considerar portanto que a modulação provocada por um parâmetro de perturbação que pode ser T (temperatura), E (campo elétrico), B (campo magnético) vai agir principalmente sobre a parte real (ε_1) da constante dielétrica. Analisando do ponto de vista da absorção do material (α_{ab}):

$$\alpha_{ab} \sim 0 \quad \hbar\omega < E_g$$

$$\alpha_{ab} \neq 0 \quad \hbar\omega \geq E_g$$

Segundo *R. L. Aggarwal* ^[2.6] a absorção está relacionada à constante dielétrica de acordo com a seguinte relação

$$\alpha_{ab} = \frac{\omega}{nc} \varepsilon_2 \quad (2.41)$$

onde n é a componente real do índice de refração do meio e está relacionado com a constante dielétrica de acordo com a equação (2.19). A diferencial total do coeficiente de absorção pode ser escrita como

$$\Delta\alpha_{ab} = \frac{\partial\alpha}{\partial\varepsilon_1} \Delta\varepsilon_1 + \frac{\partial\alpha}{\partial\varepsilon_2} \Delta\varepsilon_2$$

onde o termo predominante é $\Delta\varepsilon_2$.

Resumindo, a variação relativa da refletância, ou seja, a resposta do meio a uma perturbação está associada à componente real da constante dielétrica, enquanto a absorção de radiação eletromagnética está associada à componente imaginária da constante dielétrica.

$$\frac{\Delta R}{R} \rightarrow \Delta\varepsilon_1 \quad (2.42)$$

$$\Delta\alpha_{ab} \rightarrow \Delta\varepsilon_2 \quad (2.43)$$

2.4 – EFEITO DO CAMPO ELÉTRICO

A aplicação de um campo elétrico (E) no material adiciona a sua estrutura de bandas uma energia potencial eEz , que varia linearmente com a posição. A aplicação deste campo acelera os portadores de carga livres (elétrons na BC e buracos na BV) dentro de suas respectivas bandas, e no caso de existir um campo elétrico interno (E_{int}) criado pela distribuição de cargas na superfície do semiconductor e/ou na região de carga espacial formada na interface entre os materiais semicondutores, a modulação ocorre entre $(E_{int} - E)$ e $(E_{int} + E)$, considerando a aplicação de um campo elétrico alternado sobre a amostra.

Em fotorefletância, o campo elétrico interno E_{int} é modulado por um laser pulsado a uma frequência fixa, cuja energia é maior que o *gap* do semiconductor. Os elétrons e os buracos fotogerados pelo laser se separam espacialmente devido ao campo interno, criando um novo campo elétrico no sentido oposto ao campo E_{int} , atenuando-o. Assim, em PR, a modulação ocorre entre E_{int} e $E_{int} - E$. A Figura 2.3 representa esta situação.

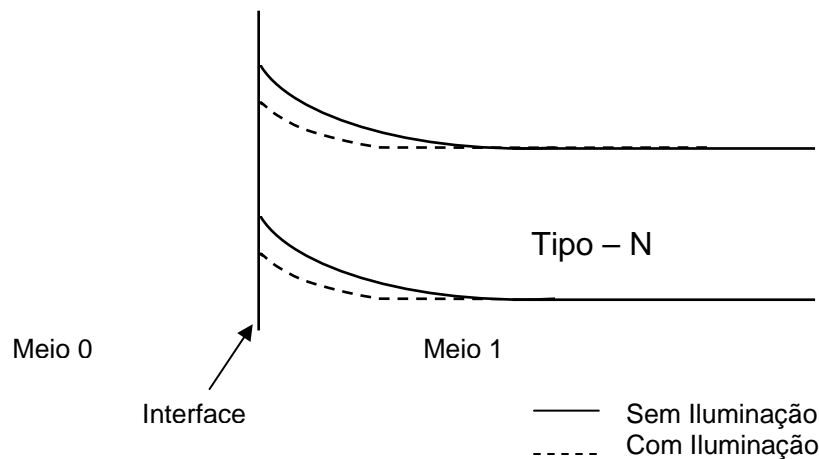


Figura 2.3 – Esquema das bandas de valência e de condução com ou sem iluminação, mostrando o processo de modulação do campo elétrico superficial em fotorefletância. A linha cheia descreve a configuração inicial sem presença de iluminação por parte do laser. A linha pontilhada descreve a configuração do campo elétrico com iluminação do laser.

A perturbação do sistema devido ao campo elétrico causa uma variação tanto na parte real como na parte imaginária da constante dielétrica do semicondutor ($\Delta\varepsilon_1$ e $\Delta\varepsilon_2$).

Uma perturbação em $\varepsilon(\hbar\omega)$ pode ser representado por:

$$\Delta\varepsilon = \Delta\varepsilon_1 + i\Delta\varepsilon_2$$

considerando γ o agente perturbativo que pode ser associado à temperatura (T), campo elétrico (**E**) ou magnético (**B**) modulado a uma frequência fixa, tem-se:

$$\Delta\varepsilon = [\varepsilon_1(\hbar\omega, \gamma) - \varepsilon_1(\hbar\omega, 0)] + i[\varepsilon_2(\hbar\omega, \gamma) - \varepsilon_2(\hbar\omega, 0)]$$

que podemos escrever como

$$\Delta\varepsilon = \varepsilon_1(\hbar\omega, \gamma) + i\varepsilon_2(\hbar\omega, \gamma) - [\varepsilon_1(\hbar\omega, 0) + i\varepsilon_2(\hbar\omega, 0)]$$

resultando em

$$\Delta\varepsilon = \varepsilon(\hbar\omega, \gamma) - \varepsilon(\hbar\omega, 0)$$

Uma vez que $\Delta R/R$ é proporcional à parte real de $\Delta\varepsilon$ de modo geral pode-se escrever^[2.7]:

$$\Delta R/R = Re [Ce^{i\theta} \Delta\varepsilon] \tag{2.44}$$

Assim, a variação relativa da refletividade depende diretamente do agente perturbativo.

2.5 – REGIMES DE CAMPO

Segundo *Aspnes* ^{[2.4] [2.8] [2.9]}, em fotorefletância podemos classificar os regimes de campos elétricos aplicados em três categorias dependendo de certas energias características, como mostrado na Tabela 2.1.

Tabela 2.1 – Regimes de campos elétricos em fotorefletância.

REGIME DE CAMPO	CONDIÇÕES	CARACTERÍSTICAS
Baixo	$e\mathbf{E}a_0 \ll E_g$ $\Gamma > \hbar\Theta$	3ª derivada
Intermediário	$e\mathbf{E}a_0 \ll E_g$ $\Gamma < \hbar\Theta$	OFKs para energias maiores que E_g ; decaimento exponencial para energias menores que E_g .
Alto	$e\mathbf{E}a_0 \cong E_g$ $\Gamma < \hbar\Theta$	Alterações na estrutura de bandas; não pode ser tratado via Teoria de Perturbações de 1ª ordem.

Onde a_0 é a constante de rede, \mathbf{E} é o campo elétrico, μ é a massa reduzida, $(\hbar\Theta)^3 = \frac{q^2 \hbar^2 \mathbf{E}^2}{2\mu}$, Γ é o parâmetro de alargamento (relacionado ao tempo de vida do estado) e $\hbar\Theta$ é a energia eletro-óptica.

Em nossas medidas observamos um comportamento característico do regime de campo baixo, assim daremos ênfase neste regime. Mais detalhes sobre os regimes de campo intermediário e alto são encontrados na nota técnica sobre PR ^[2.10] do Grupo de Óptica e Optoeletrônica da Universidade Estadual de Londrina.

2.5.1 – REGIME DE CAMPO BAIXO

Usando o fato de que no regime de campo baixo, $\Gamma > \hbar\Theta$, a energia ganha pelo portador de carga dentro de uma célula unitária por parâmetro de rede a_0 , $e\mathbf{E}a_0$, é muito menor que E_g , *Aspnes* [2.9] demonstrou que:

$$\Delta\varepsilon(\hbar\omega, \Gamma, \mathbf{E}) = \frac{(\hbar\Theta)^3}{3(\hbar\omega)^2} \frac{\partial^3}{\partial(\hbar\omega)^3} [(\hbar\omega)^2 \varepsilon(\hbar\omega, \Gamma, 0)] \quad (2.45)$$

Isto é, a variação da constante dielétrica provocada por um campo elétrico modulado, no regime de campo baixo, é proporcional à terceira derivada da constante dielétrica não perturbada. Além disto, esta equação mostra que no limite de campo baixo a variação relativa da refletividade está relacionada com o quadrado do campo elétrico.

Aspnes demonstrou que, desprezando a interação excitônica entre o par elétron-buraco, a constante dielétrica na vizinhança de um ponto crítico parabólico simples na estrutura de bandas do material tem a forma geral [2.4]:

$$\varepsilon(\hbar\omega, \Gamma) = A\Gamma^{-n} e^{i\phi} (\hbar\omega - E_0 + i\Gamma)^n \quad (2.46)$$

onde A está relacionado com o elemento de matriz de transição óptica, ϕ é um fator de fase ligado ao tipo de ponto crítico da estrutura de bandas, E_0 é a energia de transição (igual a E_g quando nos referimos ao *gap* fundamental do material), e n é o expoente que depende da dimensionalidade do ponto crítico.

A partir das equações (2.44) e (2.46), a forma de linha de espectros obtidos através de técnicas de eletromodulação, no regime de campo baixo pode ser ajustada pela relação [2.7]:

$$\frac{\Delta R}{R} = \text{Re} \left[C e^{i\theta} (E - E_g + i\Gamma)^{-n} \right] \quad (2.47)$$

onde C é a amplitude do sinal, θ é a fase, E_g é a energia da transição e Γ é a largura de linha e n é um parâmetro que depende da dimensionalidade. A modificação destes parâmetros, dentre eles a fase resulta numa alteração da forma de linha do ajuste, no entanto interfere insignificamente na determinação da energia da transição. Assim, a PR é uma técnica com grande precisão na determinação da energia das transições.

A forma simples da equação (2.47) possibilita a sua utilização de uma forma rotineira, para a determinação de E_g , Γ , θ e C , através de um programa de ajuste de curvas. De uma forma geral, o espectro de PR é o resultado da soma de várias transições do tipo da equação (2.47), com quatro parâmetros a serem ajustados.

2.6 – MÉTODO DOS TRÊS PONTOS

Este método foi proposto por *D. E. Aspnes e colaboradores* ^[2.7] em 1971 e se baseia diretamente na análise espectral, não necessitando utilizar constantes ópticas ou análise através de transformadas de Kramers-Kronig. Neste modelo considera-se que a qualidade do ajuste depende principalmente da linha base e da identificação precisa dos dois picos dominantes do espectro.

Com base na intensidade dos picos dominantes, como pode ser visto na Figura 2.4, a *razão três pontos* ρ é definida como:

$$\rho = -\Delta R_B / \Delta R_A \quad (2.48)$$

onde A e B são os picos dominantes de menor e maior energia, respectivamente. Temos que a

energia de *gap* E_g com relação a energia E_A do pico A é dada unicamente em termos de ρ .

$$E_g = E_A + \Delta E f(\rho), \quad (2.49)$$

onde

$$\Delta E = E_B - E_A \quad (2.50)$$

Na Figura 2.4 apresentamos 2 espectros de PR com a indicação dos picos de maior e menor energia e um *plot* do parâmetro de escala $f(\rho)$ em função da razão da amplitude dos picos dominantes para três valores de dimensionalidade (n). O valor $n = 3$ correspondente a pontos críticos bidimensionais é uma boa descrição para pontos críticos tridimensionais com grandes razões de massa μ_L/μ_T . Os valores $n = 2.0$ e 2.5 descrevem modulações de éxcitons discretos e pontos críticos tridimensionais, respectivamente.

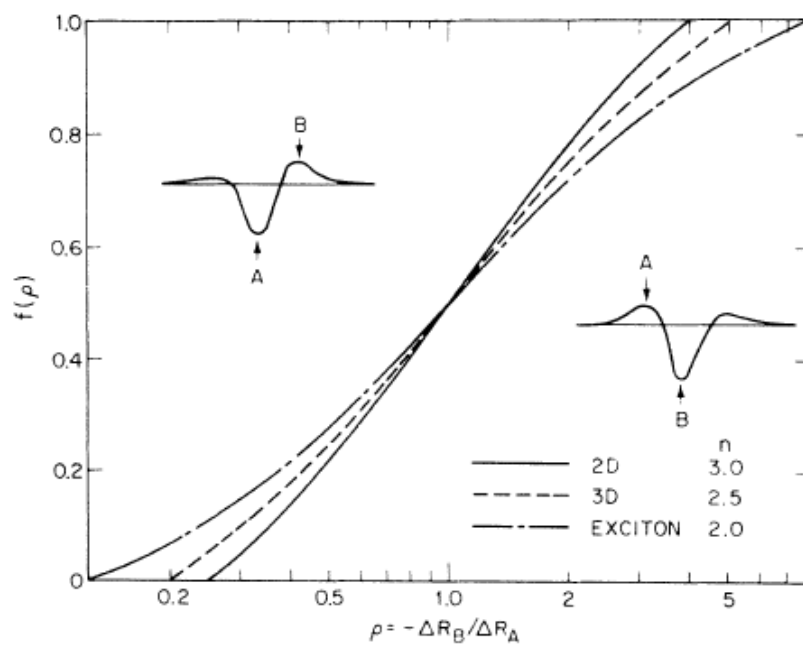


Figura 2.4 – Parâmetro de escala $f(\rho)$ em função da razão da amplitude dos picos de maior e menor energia para três valores de n . Figura reproduzida da referência [2.7].

CAPÍTULO 3

Pontos Quânticos

Neste capítulo descrevemos os principais aspectos relativos à formação dos pontos quânticos e as propriedades físicas dos elementos e substâncias envolvidas para a preparação de tais estruturas semicondutoras.

3.1 – INTRODUÇÃO

O termo ponto quântico (*quantum dot* - QD) se refere a estruturas com dimensões reduzidas, que resultam no confinamento dos portadores em todas as direções espaciais. O confinamento tridimensional dos portadores propicia aos pontos quânticos estados eletrônicos semelhantes a átomos, com energias discretas e densidade de estados tipo delta.

Estruturas semicondutoras contendo pontos quânticos têm sido objeto recente de estudos aprofundados ^[3.1] ^[3.2]. Existem razões para esse interesse: em primeiro lugar, QDs podem ser usados para controlar e estudar efeitos de muitos corpos, uma vez que é possível confinar um número controlado de portadores em um pequeno volume do material semiconductor ^[3.3]; em segundo lugar, existem muitos dispositivos como fotodetectores e lasers com estruturas baseadas em QDs que tem melhores parâmetros (como por exemplo, menor largura de linha e dispersão) e eficiência que outros dispositivos baseados em estruturas de baixa dimensionalidade ^[3.4] ^[3.5] como poços quânticos (*quantum wells* - QWs).

A preparação de QDs hoje em dia é possível devido à grande evolução nas técnicas de crescimento de materiais e heteroestruturas semicondutoras. Diversas técnicas e métodos são utilizados para o preparo de amostras de pontos quânticos, dentre elas a Deposição por Vapor Químico de Metal-Orgânicos – MOCVD (*Metal Organic Chemical Vapor Deposition*), Epitaxia de Camadas Atômicas por Feixe Molecular – ALMBE (*Atomic Layer Molecular*

Beam Epitaxy), litografia (*etching*), Epitaxia por Feixe Molecular – MBE (*Molecular Beam Epitaxy*) entre outras.

Nos trabalhos pioneiros a caracterização óptica de semicondutores cristalinos nanométricos tipo fios e pontos quânticos foi realizada em estruturas obtidas a partir de poços quânticos via litografia^{[3.6] [3.7]}. No entanto, os nano-objetos obtidos pelo processo litográfico apresentam limitações físicas e tecnológicas, como o fraco confinamento quântico em pelo menos uma das direções, o que resulta em uma baixa eficiência quântica^[3.8] e o alto custo do processo, tornando-os pouco atrativos do ponto de vista de aplicações tecnológicas. Na década de 90 os esforços neste campo diminuíram significativamente com o processo de auto-organização (*self-assembled*) no crescimento epitaxial, o qual se mostrou o melhor caminho para superar as dificuldades existentes nos processos utilizados até então.

Neste capítulo discutiremos as implicações do confinamento quântico na estrutura eletrônica dos semicondutores (seção 3.2). Em seguida, na seção 3.3, trataremos de algumas propriedades físicas do In, As e Ga. Na seção 3.4 falaremos brevemente sobre os binários InAs e GaAs e a liga $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$. Em seguida no tópico 3.5 serão discutidos os modos de crescimento dos pontos quânticos, dando ênfase ao crescimento auto organizado no modo Stranski-Krastanow.

3.2 – CONFINAMENTO QUÂNTICO

Em um semicondutor tridimensional (*bulk*), a densidade de estados $\rho(E)$, abreviada comumente por DOS – *density of states*, é uma função contínua da energia. Quando se reduz a espessura em qualquer uma das direções do semicondutor *bulk* para espessuras da ordem do comprimento de onda do elétron, limitando o movimento eletrônico naquela direção espacial, altera-se a densidade de estados do material.

A evolução da densidade de estados em função do aumento do confinamento quântico é apresentada na Figura 3. Na Figura 3.1 (a) representamos a densidade de estado para o caso *bulk* (3D), onde os portadores têm liberdade de movimento nas três direções espaciais. Na Figura 3.1 (b) é representado o confinamento em uma das direções, limitando o movimento eletrônico a um plano (2D). Esta estrutura é conhecida como poço quântico. Se reduzirmos a espessura em mais uma direção deste material teremos a estrutura representada

pela Figura 3.1 (c), chamada de fio quântico (*quantum wire* – 1D). Por fim, na Figura 3.1 (d) reduzindo a espessura das três direções espaciais do material à ordem do comprimento de onda eletrônico temos os pontos quânticos (0D).

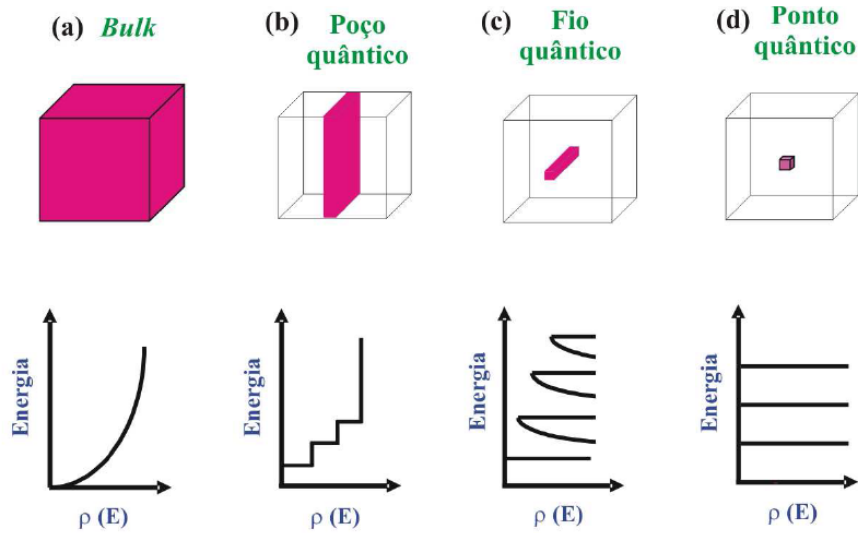


Figura 3.1 – Comportamento da densidade de estados em função do confinamento quântico.

Na Tabela 3.1 apresentamos as expressões matemáticas para a densidade de estados relativa a cada situação representada na figura acima.

Tabela 3.1 – Expressões matemáticas para a densidade de estados 3D, 2D, 1D e 0D.

Dimensionalidade	Expressão matemática
3D	$\rho(E) = \alpha E^{1/2}$
2D	$\rho(E) = \beta \sum_n Y(E - E_n)$
1D	$\rho(E) = \gamma \sum_l (E - E_l)^{-1/2}, \text{ para } E > E_l$
0D	$\rho(E) = \sum_m \delta(E - E_m)$

Os coeficientes representados por α , β e γ são constantes de proporcionalidade. Em sistemas *bulk* a densidade de estados tem uma dependência tipo raiz quadrada com a

energia. A DOS em sistemas 2D é caracterizada pela dependência com a energia tipo degrau, descrita pela função de Heaviside $Y(E - E_n)$, dada por:

$$Y(E - E_n) = \begin{cases} 1; & \text{para } E > E_n \\ 0; & \text{para } E < E_n \end{cases}$$

No caso dos fios quânticos (1D), a densidade de estados é caracterizada pelas singularidades de van Hove^[3.9]. Nos pontos quânticos (0D) a densidade de estados é discreta, tornando-os um grande atrativo para estudos de fenômenos físicos e aplicações na fabricação de dispositivos.

O confinamento tridimensional existente nos QDs implica na localização eletrônica, de maneira semelhante a que ocorre nos átomos. A redução nas dimensões dos QDs implica em um maior confinamento eletrônico e conseqüentemente em uma maior energia de *gap*.

3.3 – OS ELEMENTOS ÍNDIO (In), ARSÊNIO (As) E GÁLIO (Ga)

O índio foi descoberto por Ferdinand Reich e Theodor Richter em 1863, e isolado quatro anos mais tarde por Richter. O índio possui número atômico 49 com 66 nêutrons em sua forma mais estável. Pertence ao grupo III-A da tabela periódica, é um metal pouco abundante e se obtêm principalmente a partir de minas de zinco. A temperatura ambiente é encontrado no estado sólido e tem ponto de fusão de 156,60 °C e ebulição de aproximadamente 2072°C. Em condições normais de temperatura e pressão sua estrutura cristalina é a tetragonal. A configuração eletrônica no estado neutro é [Kr] 4d¹⁰ 5s² 5p¹, possuindo três elétrons na camada de valência 5s² 5p¹.

O arsênio é conhecido desde tempos remotos, assim como alguns de seus compostos, especialmente os sulfetos. Foi descoberto em 1250 por Alberto Magno. O arsênio tem número atômico 33 com 42 nêutrons em sua forma mais estável. É encontrado principalmente na forma de FeSAs (arsenopirita), As₂S₃ (orpimenta), CoSAs (cobaltina) e As₂O₃ (arsenolita), sendo raramente encontrado na forma livre na natureza. Pertence ao grupo V-A da tabela periódica e tem ponto de fusão de 814 °C. O arsênio apresenta três estados alotrópicos. O

primeiro deles é chamado cinza ou metálico. O arsênio cinza (forma α) é a forma mais estável nas condições normais de temperatura e pressão e tem estrutura romboédrica com 8 átomos na célula unitária sendo um bom condutor de calor, porém um péssimo condutor elétrico. O segundo estado do arsênio, chamado de arsênio amarelo (forma γ) é obtido quando o vapor de arsênio (As_4) é esfriado rapidamente. É mais reativo que o arsênio cinza, extremamente volátil e apresenta fosforescência à temperatura ambiente. Esta forma reverte-se à forma estável (cinza) quando exposto a luz ou calor. A última forma do arsênio, o arsênio negro (forma β) possui estrutura hexagonal, tem propriedades intermediárias entre as duas formas alotrópicas descritas acima, e se obtém da decomposição térmica da arsina ou resfriamento lento do vapor de arsênio. A configuração eletrônica do arsênio no estado neutro é $[Ar] 3d^{10} 4s^2 4p^3$, possuindo cinco elétrons na camada de valência $4s^2 4p^3$.

O gálio foi descoberto em 1875 por Lecoq de Boisbaudran. É um metal pertencente ao grupo III-A da tabela periódica, tem número atômico 31 com 39 nêutrons. A temperatura ambiente o gálio é encontrado na forma líquida, tendo ponto de fusão de 28.76 °C e ponto de ebulição de 2174 °C. Mesmo a temperaturas abaixo do seu ponto de fusão o gálio apresenta uma forte tendência a permanecer no estado líquido, sendo necessário um grão (pequeno sólido adicionado ao líquido) para ocorrer a solidificação. A estrutura cristalina nas condições normais é ortorrômbica com 8 átomos em cada célula unitária, separados do primeiro vizinho por uma distância de 2.44 Å, e dos segundos por 2.83 Å. Nesta estrutura a ligação química formada entre os átomos mais próximos é do tipo covalente sendo a molécula Ga_2 a que realmente forma o retículo cristalino. A configuração eletrônica do gálio no estado neutro é $[Ar] 3d^{10} 4s^2 4p^1$, possuindo três elétrons na camada de valência $4s^2 4p^1$.

3.4 – OS BINÁRIOS InAs E GaAs E A LIGA InGaAs

Com a junção dos elementos índio, arsênio e gálio é possível construir os binários InAs (arseneto de índio) e GaAs (arseneto de gálio), e ternários como o InGaAs (arseneto de gálio-índio). O InAs tem grande aplicação tecnológica, sendo empregado na confecção de detectores no infravermelho, operando na região de 1 até 3.8 μm e usado como fonte de radiação terahertz. O InAs apresenta alta mobilidade eletrônica e pequena energia de *gap* – 0.36 eV a temperatura ambiente e 0.42 eV a 0 K ^[3.10]. O GaAs é um material muito

empregado na indústria eletrônica, apresentando propriedades eletrônicas superiores a do silício, como uma maior velocidade de saturação eletrônica e maior mobilidade eletrônica, permitindo que transistores fabricados a partir deste material operem em frequências superiores a 250 GHz. A temperatura ambiente, a energia de *gap* do GaAs é 1.42 eV e a 0 K 1.52 eV [3.10]. O InGaAs é usado em dispositivos eletrônicos operando em alta potência e alta frequência. A possibilidade de ajuste do *gap* variando a concentração de In torna este material uma boa escolha para a preparação de fotodetectores para as janelas ópticas de 1.31 e 1.55 μm usadas em telecomunicações

3.4.1 – ESTRUTURA CRISTALINA

Os materiais semicondutores III-V se cristalizam numa estrutura chamada *zinc-blend*, que consiste de duas redes cúbicas de face centrada, deslocadas ao longo da diagonal principal do cubo. A célula elementar desta estrutura contém dois átomos, um localizado na origem do sistema (0, 0, 0) e outro deslocado na posição ($a/4$, $a/4$, $a/4$), sendo a o parâmetro de rede. Na Figura 3.2 apresentamos uma rede cristalina tipo *zinc-blend*.

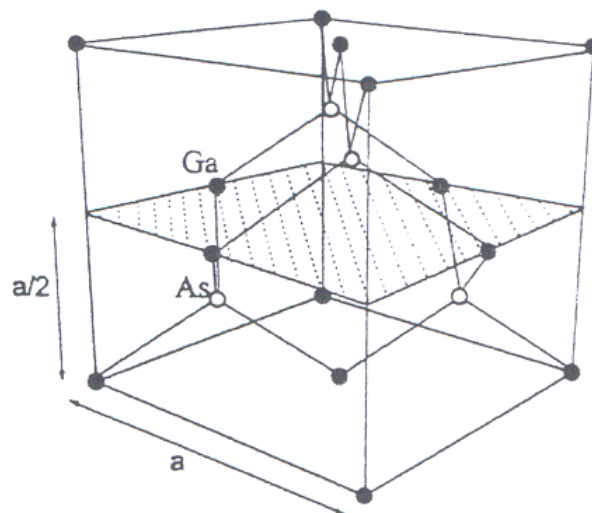


Figura 3.2 – Célula convencional da rede *zinc-blend* para semicondutores III-V. No caso do GaAs, representado acima, as esferas preenchidas representam átomos de gálio e as vazias átomos de arsênio. No caso do InAs as esferas preenchidas representam os átomos de índio.

3.4.2 – ESTRUTURA DE BANDAS DO GaAs E InAs

Na Figura 3.3 apresentamos a primeira zona de Brillouin do espaço recíproco para o GaAs e alguns pontos de alta simetria.

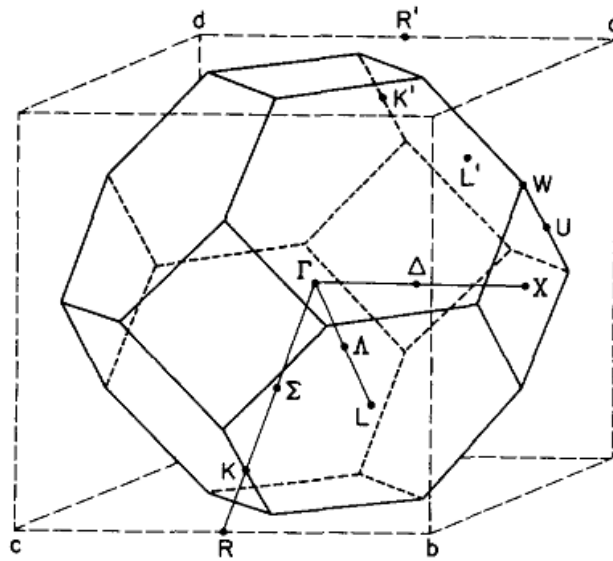


Figura 3.3 – Primeira zona de Brillouin da rede cúbica de face centrada com os pontos de alta simetria. Figura reproduzida da referência [3.11].

Na Figura 3.4 mostramos a estrutura de banda eletrônica do GaAs na direção $[100]$. O mínimo da banda de condução (BC) e o máximo da banda de valência (BV) estão localizados no mesmo ponto de alta simetria Γ ($\vec{k} = 0$) da zona de Brillouin. Materiais com esta disposição das bandas de energia são ditos terem *gap* direto. Na ausência de acoplamento spin-órbita as três bandas de condução são degeneradas no ponto Γ ($\vec{k} = 0$). O acoplamento spin-órbita levanta a degenerescência em seis níveis.

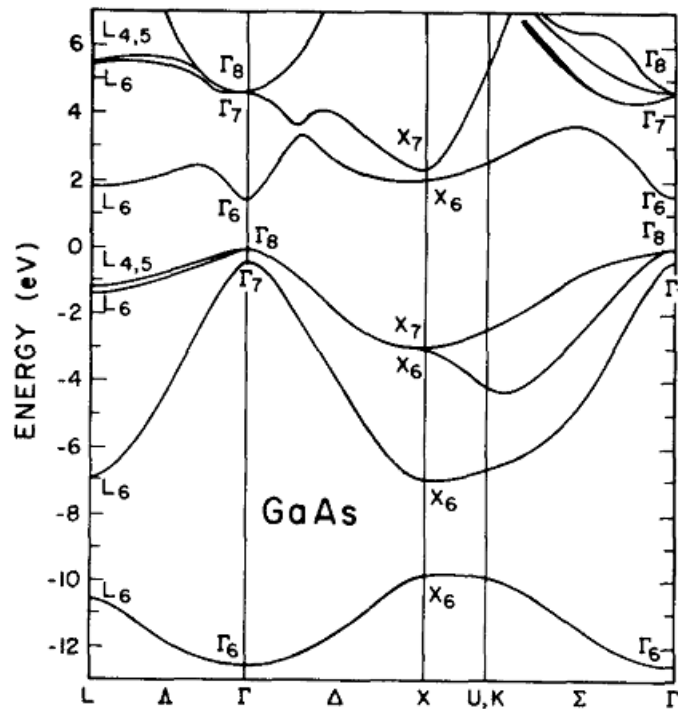


Figura 3.4 – Estrutura de bandas do GaAs no espaço dos momentos. Figura reproduzida da referência [3.11].

Na Figura 3.5 apresentamos a estrutura de bandas do InAs, obtida através de cálculos utilizando um esquema de pseudo-potencial não localizado ^[3.11]. Similar ao GaAs, no InAs o mínimo da banda de condução e o máximo da banda de valência estão localizados no mesmo ponto de simetria Γ ($\vec{k} = 0$), caracterizando assim um *gap* direto ^[3.12].

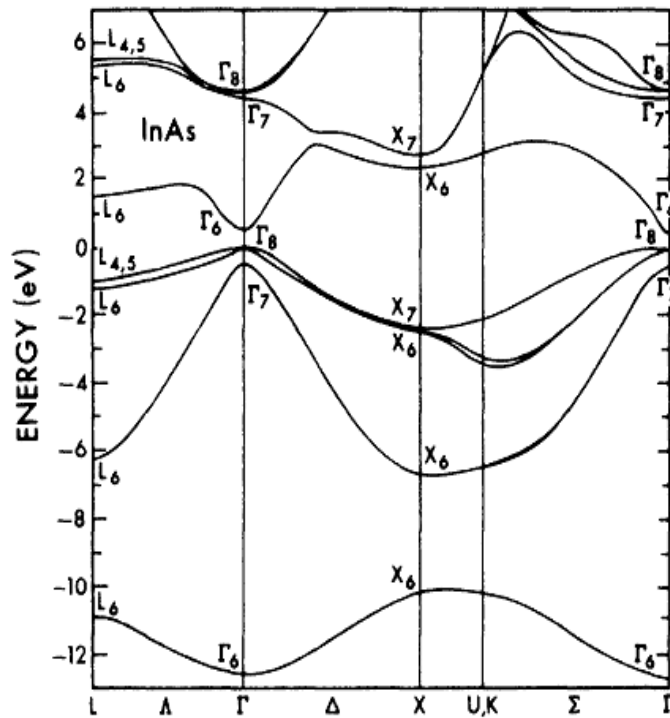


Figura 3.5 – Estrutura de bandas do InAs no espaço dos momentos. Figura reproduzida da referência [3.12].

3.4.3 – PARÂMETROS DE REDE

A temperatura ambiente, o arseneto de gálio e o arseneto de índio têm parâmetros de rede dados respectivamente por [3.13]:

$$a^{\text{GaAs}} = 5.6533 \text{ \AA}$$

$$a^{\text{InAs}} = 6.0584 \text{ \AA}$$

O parâmetro de rede do ternário $\text{Ga}_x\text{In}_{(1-x)}\text{As}$ a temperatura ambiente pode ser obtido através da lei de Vegard [3.14], e é dado pela equação:

$$a^{\text{InGaAs}}(x) = 6.0584 - 0.405x \quad (3.1)$$

Para a concentração de 14% de índio o parâmetro de rede deste material será:

$$a^{\text{InGaAs}} = 5.710 \text{ \AA}$$

Assim, o descasamento de rede entre o InAs e o GaAs a temperatura ambiente é de aproximadamente 7 % ^[3.15], enquanto entre o InAs e o InGaAs, com a concentração de índio de 14%, o descasamento de rede é de aproximadamente 6 %. O descasamento de rede é um parâmetro importante no processo de formação dos QDs, de acordo com o descasamento e com a quantidade de material depositado teremos diferentes modos de crescimento, resultando ou não na formação de ilhas tridimensionais como veremos mais adiante.

3.4.4 – GAP DE ENERGIA

Existem modelos muito mais adequados ao ajuste da variação do *gap* com a temperatura (Vinã, Passler-p, Passler-ρ), entretanto em função dos estudos comparativos desenvolvidos aqui trabalhamos com o modelo de Varshni.

A variação do *gap* com a temperatura descrito pelo modelo de Varshni é pela relação ^[3.10]:

$$E_g(T) \approx E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (3.2)$$

onde $E_g(0)$ é a energia de *gap* a zero Kelvin e é dado em eV , e os coeficientes α e β são dados em eV/K e K , respectivamente. Para o GaAs, a dependência do *gap* de energia com a temperatura é descrita pela relação ^[3.11]:

$$E_g(T) = 1.519 - 5.405 \cdot 10^{-4} \cdot T^2 / (T + 204) \text{ eV} \quad (3.3)$$

No caso do InAs, o *gap* varia com a temperatura de acordo com a relação ^[3.16]:

$$E_g(T) = 0.415 - 2.76 \cdot 10^{-4} \cdot T^2 / (T + 83) \text{ eV} \quad (3.4)$$

A dependência do *gap* de energia com a concentração de índio e com a temperatura na liga $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ *bulk* é descrito pela relação ^[3.17]:

$$E_g(x, T) = 0.42 + 0.625x - \left(\frac{5.8}{T + 300} - \frac{4.19}{T + 271} \right) 10^{-4} T^2 x - \frac{4.19 \times 10^{-4}}{T + 271} T^2 + 0.475x^2 \quad (3.5)$$

Fazendo $x = 0.86$ na equação acima, temos que a expressão teórica que descreve o comportamento do *gap* do InGaAs *bulk* com concentração de índio de 14 % é dada por:

$$E_g(T) = 0.42 + 0.538 - \left(\frac{5.8}{T + 300} - \frac{4.19}{T + 271} \right) \times 0.86 \times 10^{-4} T^2 - \frac{4.19 \times 10^{-4}}{T + 271} T^2 + 0.351 \quad (3.6)$$

3.5 – PONTOS QUÂNTICOS DE InAs

Neste tópico vamos mostrar uma visão geral e resumida a respeito do crescimento de pontos quânticos de InAs através do processo de auto-organização no crescimento epitaxial.

3.5.1 – INTRODUÇÃO

A formação de ilhas durante o crescimento hetero-epitaxial em sistemas com grande desajuste do parâmetro de rede (maior que $\sim 2\text{-}3\%$), utilizando a auto-organização (*self-organized* ou *self-assembled*) no modo de crescimento Stranski-Krastanow (SK), tem atraído a atenção como um método alternativo para produção de pontos quânticos. Os diferentes modos (ou fases) de crescimento epitaxial, fornecidos pelo processo de minimização da energia livre por átomo, como função dos dois parâmetros experimentais mais relevantes, a

quantidade de material depositado (H) e o descasamento relativo dos parâmetros de rede dos materiais envolvidos – *misfit* (ϵ), estão resumidos no diagrama de fases proposto por Daruka *et al.* [3.18], apresentado na Figura 3.6.

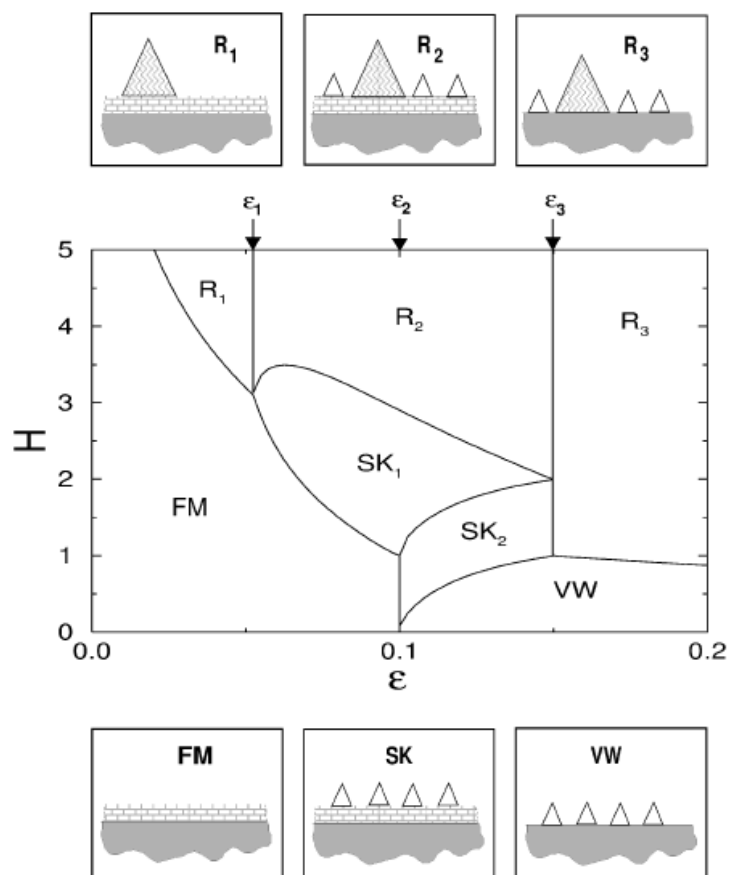


Figura 3.6 – Diagrama de fase em função da quantidade de material depositado (H) e *misfit* (ϵ). Os pequenos painéis no topo e abaixo do diagrama ilustram a morfologia da superfície nos seis diferentes modos de crescimento. As pequenas ilhas vazias indicam a presença de ilhas estáveis (ou não relaxadas), enquanto as grandes ilhas sombreadas se referem a ilhas relaxadas (ou livres de tensão). As fases são limitadas pelas seguintes linhas de separação: $H_{c_1}(\epsilon)$: FM-R₁, FM-SK₁; $H_{c_2}(\epsilon)$: SK₁-R₂; $H_{c_3}(\epsilon)$: SK₂-SK₁; $H_{c_4}(\epsilon)$: VW-SK₂, VW-R₃.

O parâmetro ϵ apresentado no diagrama acima é uma medida do descasamento relativo do parâmetro de rede dos materiais envolvidos no crescimento, sendo calculado através da seguinte relação:

$$\varepsilon = \frac{a_B - a_A}{a_A} \quad (3.7)$$

onde a_A refere-se ao parâmetro de rede do material do substrato e a_B ao parâmetro de rede do material depositado sobre o substrato.

As propriedades das fases representadas na Figura 3.6 são as seguintes, segundo *Daruka et al* ^[3.18]:

(i) **Fase FM** – No modo de crescimento FM (Frank van der Merve) se $H < H_{c_1}(\varepsilon)$, o material depositado contribui para o crescimento pseudomórfico de um filme bidimensional (denotado daqui em diante de *wetting layer*) e não há presença de ilhas.

(ii) **Fase R₁** – Acima de $H_{c_1}(\varepsilon)$, para materiais com $0 < \varepsilon < \varepsilon_1$, após a formação da *wetting layer* a quantia excedente de material depositado contribui para a formação de ilhas relaxadas.

(iii) **Fase SK₁** – Acima de $H_{c_1}(\varepsilon)$, para materiais com $\varepsilon_1 < \varepsilon < \varepsilon_2$, o material depositado é distribuído entre a *wetting layer* e ilhas não relaxadas, similar ao modo de crescimento Stranski-Krastanow (SK) ^[3.19]. Dentro do modo SK₁ a densidade de ilhas é uma função contínua de H e ε . Devido à interação ilha-ilha, a *wetting layer* continua a crescer.

(iv) **Fase R₂** – Nesta fase o material depositado é distribuído entre a *wetting layer*, ilhas não relaxadas e ilhas relaxadas. As ilhas não relaxadas formadas na fase SK₁ são preservadas. Assim, ilhas não relaxadas e relaxadas coexistem na fase R₂.

(v) **Fase VW** – Para grandes descasamentos de rede ($\varepsilon > \varepsilon_2$) e pequenas coberturas [$H < H_{c_4}(\varepsilon)$], todo material depositado é acumulado em ilhas não relaxadas. Devido ao grande descasamento de rede, nesta fase a *wetting layer* é ausente e as ilhas se formam diretamente sobre o substrato, similar ao modo de crescimento Volmer-Weber (VW).

(vi) **Fase SK₂** – Para *misfits* entre $\varepsilon_2 < \varepsilon < \varepsilon_3$, aumentando a quantidade de material depositado (H), em $H_{c_4}(\varepsilon)$ alcançamos a fase SK₂. O comportamento do sistema é diferente do modo de crescimento SK₁: No limite de H_{c_4} temos ilhas formadas no modo VW. Na fase SK₂ a densidade e o tamanho das ilhas permanecem inalterados e uma *wetting layer* começa a se formar. Este processo continua até que uma monocamada inteira seja concluída, ponto no

qual entramos na fase SK_1 . Em contraste com a fase SK_1 , na fase SK_2 a formação de novas ilhas é suprimida até que a espessura de uma monocamada da *wetting layer* seja completada.

(vii) **Fase R_3** – Nesta fase, presente para $\varepsilon > \varepsilon_3$ e para $H > H_{c_4}$, ocorre a formação de ilhas relaxadas. A formação de ilhas estáveis é suprimida, e todo material depositado depois de H_{c_3} contribui somente para o aumento das dimensões das ilhas relaxadas, coexistentes com ilhas estáveis formadas no modo VW. Contudo, em contraste com o modo R_2 , no R_3 uma camada *wetting layer* não se forma.

Na Figura 3.7 representamos as fases de crescimento do InAs (em função da quantidade de material depositado) sobre o GaAs e sobre o $In_{0.14}Ga_{0.86}As$.

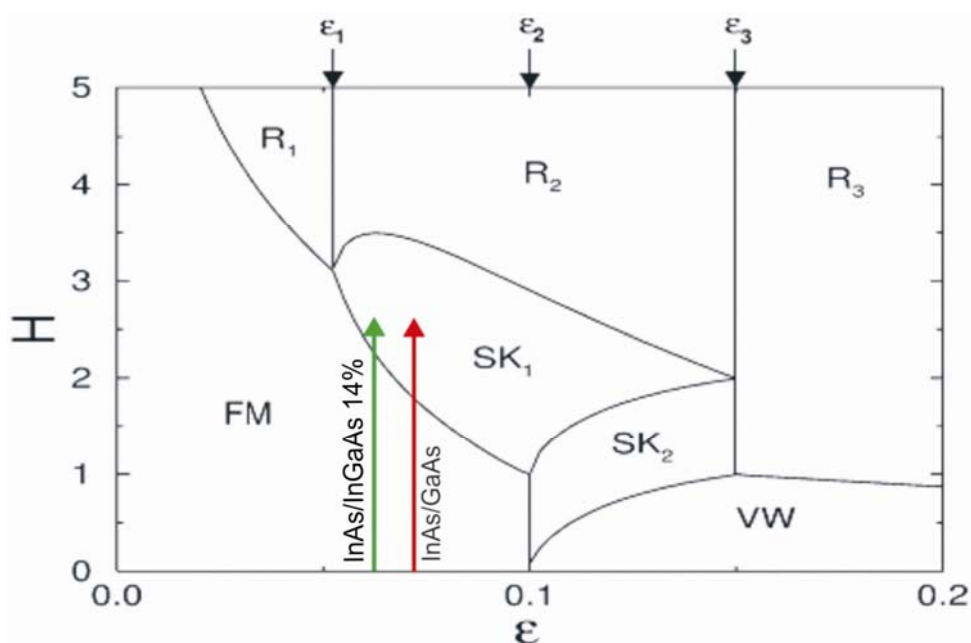


Figura 3.7 – Linhas representando as fases de crescimento em função da quantidade InAs depositado sobre o GaAs e sobre o $In_{0.14}Ga_{0.86}As$.

As amostras de QDS utilizadas neste trabalho foram crescidas através do processo de auto-organização, assim vamos dar maior ênfase no modo de crescimento Stranski-Krastanow.

3.5.2 – PONTOS QUÂNTICOS AUTO-ORGANIZADOS

O crescimento de um filme B sobre um filme A (substrato), com parâmetros de rede diferentes, gera uma tensão na rede cristalina. Para diferenças ($\Delta a/a$) menores que 10%, um filme B crescido sobre o substrato A mantém o parâmetro de rede do material A até uma certa espessura, chamada de espessura crítica. Stranski e Krastanow propuseram em 1938 a possibilidade de formação de ilhas tridimensionais a partir do crescimento bidimensional de um filme ^[3.19]. Neste modo, o desajuste do parâmetro de rede gera uma tensão, que é suportada até certa espessura crítica. Depois de alcançada essa espessura, que varia dependendo dos materiais que estão sendo crescidos, ilhas tridimensionais são formadas espontaneamente, como consequência da grande tensão na rede. Cálculos termodinâmicos mostram que após a nucleação das ilhas a energia livre do sistema diminui com o aumento do seu tamanho ^{[3.20] [3.21]}. Esta é a “maneira natural” para produzir pontos quânticos ^[3.22]. Este modo vem sendo o mais utilizado no crescimento de QDs ^[3.23], uma vez que controlando parâmetros de crescimento como a quantidade de material depositado, taxa de deposição e temperatura, pode-se obter QDs de boa qualidade, com baixa dispersão de tamanho, densidade de pontos suficientemente alta ^[3.24] e bom grau de confinamento, o que não é possível através de técnicas litográficas, por exemplo.

Para o sistema InAs/GaAs, a espessura crítica de nucleação varia de 1,5 – 1,7 monocamadas (*monolayer* – ML) ^{[3.25] [3.26]}, dependendo das condições de crescimento. No caso do InAs, uma monocamada representa uma camada de In mais uma camada de As, sendo que para cristais com estrutura *zinc-blend* crescidos na orientação (100) uma ML é a metade do parâmetro de rede. Para o InAs, 1ML tem aproximadamente 3 Å ^[3.25]. Cristais crescidos em orientações cristalográficas diferente da (100) tem espessuras de monocamadas determinadas por:

$$d = \frac{a_0}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (3.8)$$

onde a_0 é o parâmetro de rede e h, k e l são os índices de Miller do plano.

Na Figura 3.8 representamos o crescimento do InAs sobre o GaAs. Durante o estágio inicial de deposição (Figura 3.8 b) o InAs cresce bidimensionalmente, camada por camada, com o parâmetro de rede casado com o GaAs, formando a *wetting layer*. Quando a

quantidade de InAs depositado excede a espessura crítica (Figura 3.8 c) ocorre a formação de ilhas 3D, que são os chamados pontos quânticos.

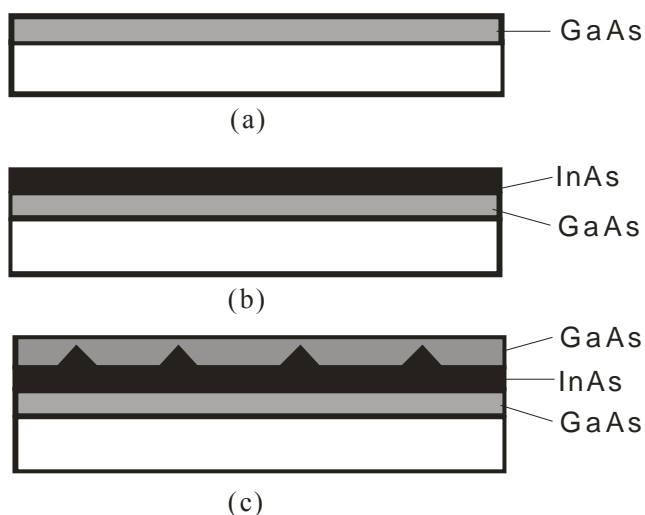


Figura 3.8 – Representação das deposições do GaAs 2D (a), InAs 2D (b) e InAs 3D (c) sobre um substrato de GaAs.

Quando as ilhas são formadas, ocorre uma relaxação da tensão que havia na rede. Assim, as ilhas formadas tendem a assumir o parâmetro de rede do material que as constituem, neste caso o InAs. Na Figura 3.9 representamos a situação descrita acima.

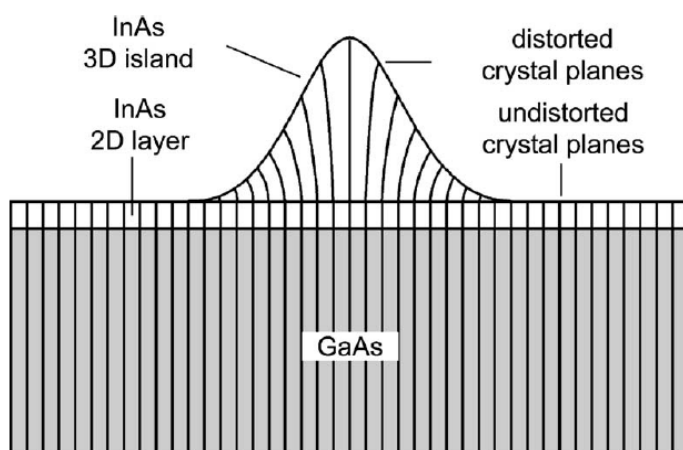


Figura 3.9 – Representação esquemática da distorção da rede em ilhas 3D. Imagem reproduzida da referência [3.27].

Na Figura 3.9 podemos notar que após a deposição de uma quantidade de InAs acima da espessura crítica, formando sobre o GaAs uma fina camada bidimensional com parâmetro de rede idêntico ao do substrato, ocorre também a formação de ilhas 3D, onde o parâmetro de rede destas estruturas pode relaxar continuamente ao longo da direção de crescimento. Na Figura 3.10 temos uma imagem obtida por microscopia de força atômica (*Atomic Force Microscopy – AFM*) da superfície de uma amostra de QDs de InAs depositados sobre GaAs.

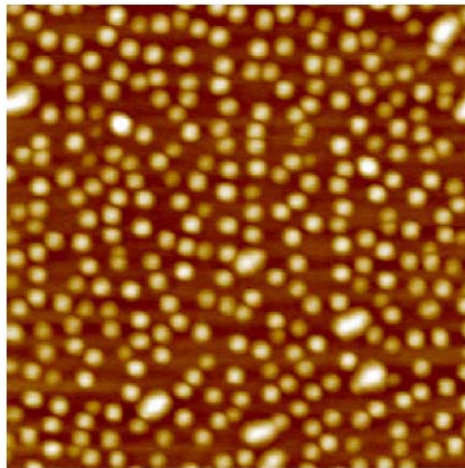


Figura 3.10 – Imagem de AFM de InAs depositado sobre GaAs (100) com uma cobertura excedente à espessura crítica. Imagem reproduzida da referência [3.27].

3.6 – MODELO TEÓRICO PARA O CÁLCULO DO TAMANHO DE QDS

Um modo de estimar teoricamente o tamanho dos QDs foi proposta por *Marzin e Bastard* [3.28]. Neste trabalho considera-se que os QDs de InAs crescidos sobre GaAs têm forma piramidal, de acordo com a Figura 3.11.

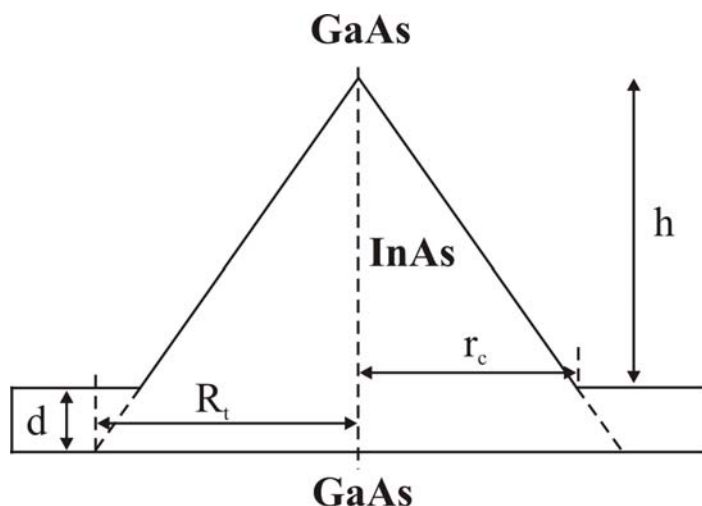


Figura 3.11 – Seção transversal esquemática de um cluster de InAs.

Na Figura 3.11 R_t e r_c representam as dimensões do raio dos *dots* medidos a partir da interface do QD com o GaAs e da interface do QD com o topo da *wetting layer*, respectivamente. d é a espessura da *wetting layer* e h é a altura dos QDs.

Considerando o efeito da segregação do índio (formação de *clusters* de In em determinadas regiões da amostra), a energia das transições permitidas em função do tamanho da base R_t varia de acordo com a Figura 3.12.

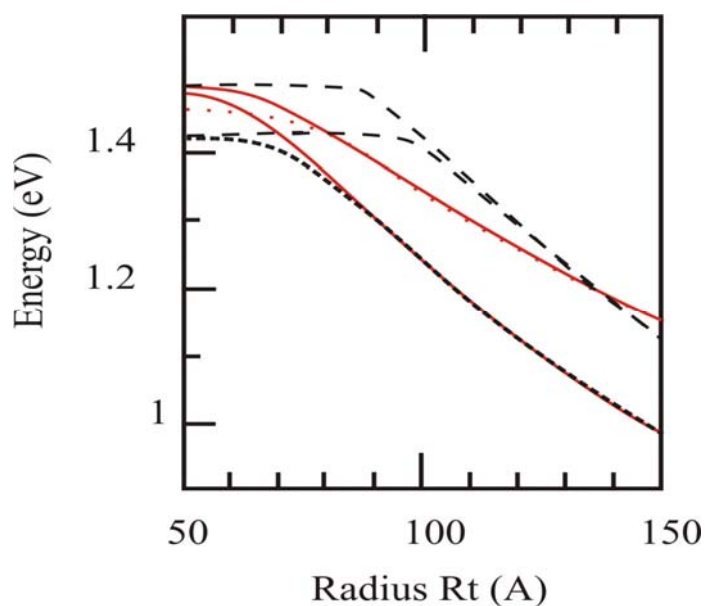


Figura 3.12 – Energia das transições dos dois primeiros níveis de buraco pesado (hh) e buraco leve (lh) incluindo o efeito de segregação do índio para d correspondendo a 1ML (---: hh, ---: lh) ou 2 ML (—: hh; —: lh). Figura reproduzida da referência [3.28].

CAPÍTULO 4

Técnicas Experimentais e Amostras

Neste capítulo descrevemos as técnicas experimentais envolvidas na realização deste trabalho. Primeiramente faremos uma breve discussão da técnica de epitaxia por feixe molecular (*Molecular Beam Epitaxy* – MBE), utilizada no crescimento do conjunto de amostras estudadas neste trabalho, e da fotorefletância, utilizada na caracterização das amostras. Na sequência apresentamos o conjunto de amostras utilizadas e uma breve discussão sobre o crescimento de cada amostra.

4.1 – EPITAXIA POR FEIXE MOLECULAR - MBE

A técnica de epitaxia por feixe molecular é uma das várias técnicas existentes para a preparação de cristais. Esta técnica foi desenvolvida em meados dos anos sessenta no *Bell Telephone Laboratories* através dos estudos de *J. R. Arthur* ^[4.1] e *Alfred Y. Cho* ^[4.2] sobre a interação entre átomos de gálio e moléculas de arsênio com substratos de GaAs. Desde então esta técnica passou a ser extremamente utilizada para o crescimento de compostos semicondutores III-V, bem como vários outros materiais semicondutores. O aspecto mais importante da técnica de MBE é a possibilidade de crescimento de cristais com uma lenta taxa de deposição, da ordem de décimos de monocamadas por segundo. Assim pode-se produzir cristais semicondutores com planos cristalinos de alta qualidade, interfaces abruptas de boa qualidade e com um bom controle de espessura, dopagem e composição da liga. Devido a sua grande precisão no crescimento de materiais semicondutores, hoje em dia diversos tipos de materiais, desde semicondutores elementares como o Si e Ge, binários como GaAs, InAs, AlAs, GaN, InP, etc., ligas ternárias tais como AlGaAs, InGaAs, GaAsSb, etc., ligas quaternárias como AlGaAsSb, AlGaInAs, InGaAsP, etc., e heteroestruturas semicondutoras são crescidas através desta técnica.

O crescimento de cristais semicondutores por MBE se dá através da deposição de monocamadas de átomos ou moléculas sobre um substrato a uma taxa controlada em condições de ultra-alto-vácuo (UAV) ^[4.3] com pressão de 10^{-9} Pa, condição esta necessária para evitar a incorporação de impurezas nas amostras durante o processo de crescimento.

Para realizar a deposição dos átomos ou moléculas dos filmes a serem crescidos, as células de evaporação contendo elementos com alto grau de pureza como índio, alumínio, gálio, arsênio, fósforo, silício, etc., são aquecidas promovendo sua evaporação e gerando assim feixes moleculares que são direcionados ao substrato aquecido a uma temperatura de aproximadamente 500 °C. As células de evaporação são aquecidas individualmente, levando em conta as propriedades termodinâmicas de cada elemento a ser evaporado a fim de garantir um controle preciso do fluxo. O fluxo é controlado por obturadores (*shutters*) localizados na frente das células que são acionados mecanicamente, o que possibilita o bloqueio quase instantâneo do feixe molecular direcionado para o substrato. Com este sistema podemos crescer hetero interfaces muito abruptas interrompendo o fluxo de um determinado elemento e permitindo o fluxo de outro.

Durante o crescimento por MBE é possível fazer a caracterização superficial da amostra, através de um sistema de Difração de Elétrons de Alta Energia (*Reflection High-Energy Electron Diffraction - RHEED*) acoplado a câmara de ultra-alto-vácuo. Na Figura 4.1 representamos esquematicamente a montagem experimental da técnica de epitaxia por feixe molecular.

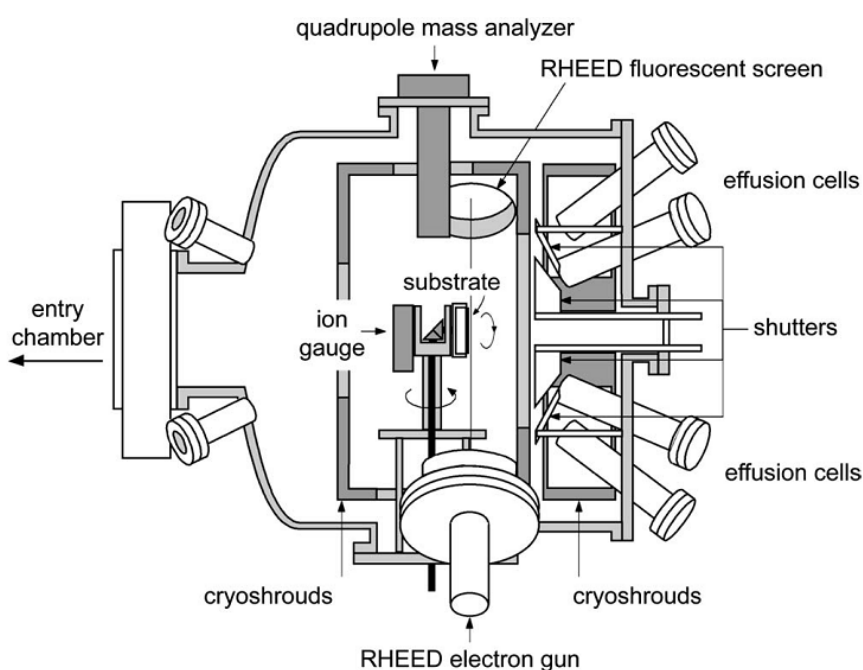


Figura 4.1 – Esquema do equipamento de epitaxia por feixe molecular. Figura reproduzida da referência [4.4].

4.2 – FOTOREFLETÂNCIA

A fotorefletância – PR (*photoreflectance*) é uma técnica experimental que possibilita o estudo e a caracterização de várias propriedades ópticas de materiais e estruturas de materiais semicondutores de maneira não destrutiva ^[4.5]. Esta técnica foi concebida ainda na fase inicial do desenvolvimento da espectroscopia por modulação, na década de 60 ^[4.6], e desde então vem se mostrando uma técnica versátil ^[4.7] e amplamente empregada para o estudo de estados confinados de elétrons e buracos em estruturas de baixa dimensionalidade ^[4.8]. Em princípio, técnicas de eletromodulação como PR ^[4.9] apresentam algumas vantagens com relação a técnicas comumente usadas para a investigação de níveis de energia dentro de *quantum dots*, como a fotoluminescência – PL (*photoluminescence*) ^{[4.10][4.11]} e a fotoluminescência de excitação – PLE (*photoluminescence excitation*) ^{[4.12][4.13]}. As informações obtidas a partir da PL são freqüentemente limitadas ao estado de mais baixa energia, enquanto a caracterização via PR pode fornecer informações a respeito de transições de mais alta energia nos *quantum dots* e outras camadas ^[4.14] da amostra. A PLE, assim como a fotorefletância fornece informações sobre os estados de maior energia, porém apresenta um custo superior ao da PR, tornando assim a PR uma técnica mais atrativa para o estudo destas estruturas.

Na fotorefletância, a estrutura de banda do semicondutor é modulada pela variação do campo elétrico interno da amostra. A modulação é feita através dos pares elétron-buraco que são criados através do bombeio de fótons sobre a amostra. A fonte de bombeio em medidas de fotorefletância geralmente é proveniente de um laser, que é modulado a uma freqüência fixa por um *chopper*, porém o emprego de LED's com emissão em diferentes comprimentos de onda, alimentados por um gerador de freqüências se mostrou uma boa alternativa à substituição da fonte de bombeio utilizada na montagem convencional ^[4.6]. Na realização de nossas medidas empregamos um laser de diodo como fonte de bombeio, uma vez que para realizar a montagem utilizando LEDs é necessário um espaço físico maior que o disponível em nossa mesa óptica. Na Figura 4.2 mostramos a montagem experimental de PR utilizada no Laboratório de Óptica e Optoeletrônica da Universidade Estadual de Londrina.

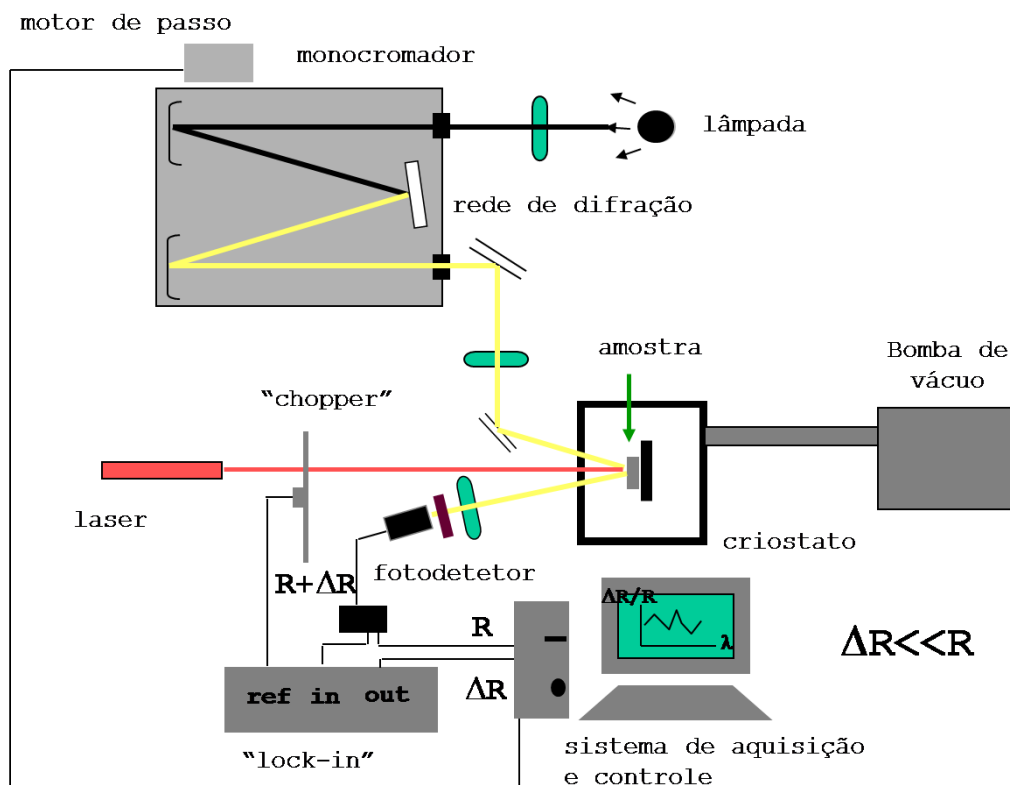


Figura 4.2 – Montagem experimental de PR.

As medidas de PR apresentadas neste trabalho foram realizadas utilizando a montagem experimental descrita na Figura 4.2. Nesta montagem, um feixe de luz branca gerado por uma lâmpada de filamento de tungstênio é focalizado na fenda de entrada do monocromador (Jarrell-Ash de 0.5 m), e após ser difratado por uma rede de difração é coletado a partir da fenda de saída do monocromador e focalizado em direção à amostra a ser estudada. Em frente à fenda de saída do monocromador posicionamos um filtro colorido (RG – 715) para barrar a segunda ordem de difração da rede do monocromador. No ponto em que a luz monocromática atinge a amostra é incidido uma radiação proveniente de um laser de diodo, emitindo em aproximadamente 633 nm (1.962 eV) com potência de 1 mW, modulado por um *chopper* (modelo SR540 - Stanford) a uma frequência fixa de 200 Hz. Este feixe modulado provoca variações na constante dielétrica da amostra devido aos portadores foto-gerados, e conseqüentemente causa variações (ΔR) na refletividade (R), que sob certas condições experimentais é proporcional a terceira derivada da função dielétrica do material analisado.

A detecção do feixe de prova refletido pela amostra foi feita usando um fotodetector de InGaAs. A fim de evitar que a luz proveniente do laser ou de alguma outra fonte atrapalhe no sinal coletado, posicionamos em frente ao fotodetector um filtro colorido (RG – 715). O sinal coletado pelo fotodetector é dividido em duas componentes, uma é amplificada e enviada diretamente para o sistema de aquisição (R) e outra é enviada para um pré-amplificador *lock-in* (modelo SR530 - Stanford), que amplifica somente componentes do sinal (ΔR) com frequência igual à fornecida como referência, no caso, a frequência de modulação do *chopper*. Para a realização de medidas com variação de temperatura as amostras foram acondicionadas em um criostato de fluxo contínuo de He, possibilitando fazer medidas no intervalo de temperatura de 9 a 300 K.

Como resultado deste procedimento experimental, o sistema de aquisição nos fornece um espectro da variação relativa da refletividade ($\Delta R/R$) versus a energia (ou comprimento de onda) do feixe de prova. A dependência espectral da variação relativa da refletividade ($\Delta R/R$), relacionada a mudanças na função dielétrica, é descrita pela relação proposta por Aspnes^[4.15].

$$\frac{\Delta R}{R} = Re \left[C e^{i\theta} (E - E_g + i\Gamma)^{-n} \right] \quad (2.47)$$

onde C é a amplitude, θ é a fase, E_g é a energia da transição, Γ é a largura de linha e n é a dimensionalidade.

4.3 – AMOSTRAS UTILIZADAS

As amostras estudadas nesta dissertação foram crescidas utilizando o equipamento de MBE do Laboratório de Novos Materiais Semicondutores (LNMS), do Instituto de Física da Universidade de São Paulo (USP), pelo Prof. Dr. Alain André Quivy. O conjunto é composto por cinco amostras de pontos quânticos (*quantum dots*) de InAs: três delas crescidas sobre GaAs, formando uma estrutura convencional de QDs, e duas delas crescidas dentro de um poço quântico de $In_{0.14}Ga_{0.86}As$ com barreiras de GaAs, formando uma estrutura denominada na literatura de *dot-in-a-well* (DWELL). Para servir de referência para as duas amostras de *quantum dots* crescidos dentro do poço quântico (DWELL), foi crescido um poço quântico de

$\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ com barreiras de GaAs. Na Figura 4.3 apresentamos os diagramas estruturais das amostras convencionais de QDs.

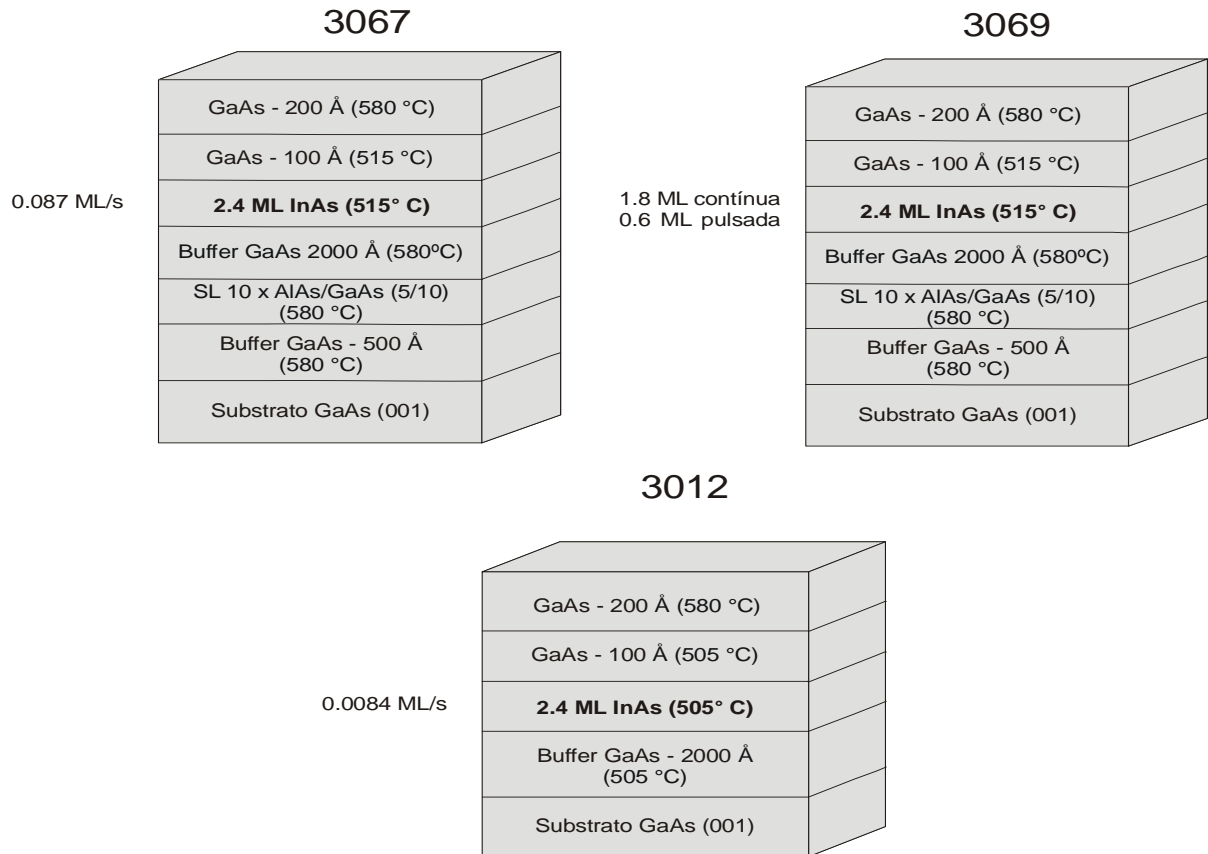


Figura 4.3 – Diagrama estrutural das amostras convencionais de QDs. Em cada amostra está indicada a espessura das camadas que a constituem e a respectiva temperatura de crescimento. Para detalhes de crescimento das 2.4 ML de InAs veja Tabela 4.1.

Na Figura 4.4 apresentamos os diagramas das amostras com estrutura DWELL e da amostra de poço quântico simples.

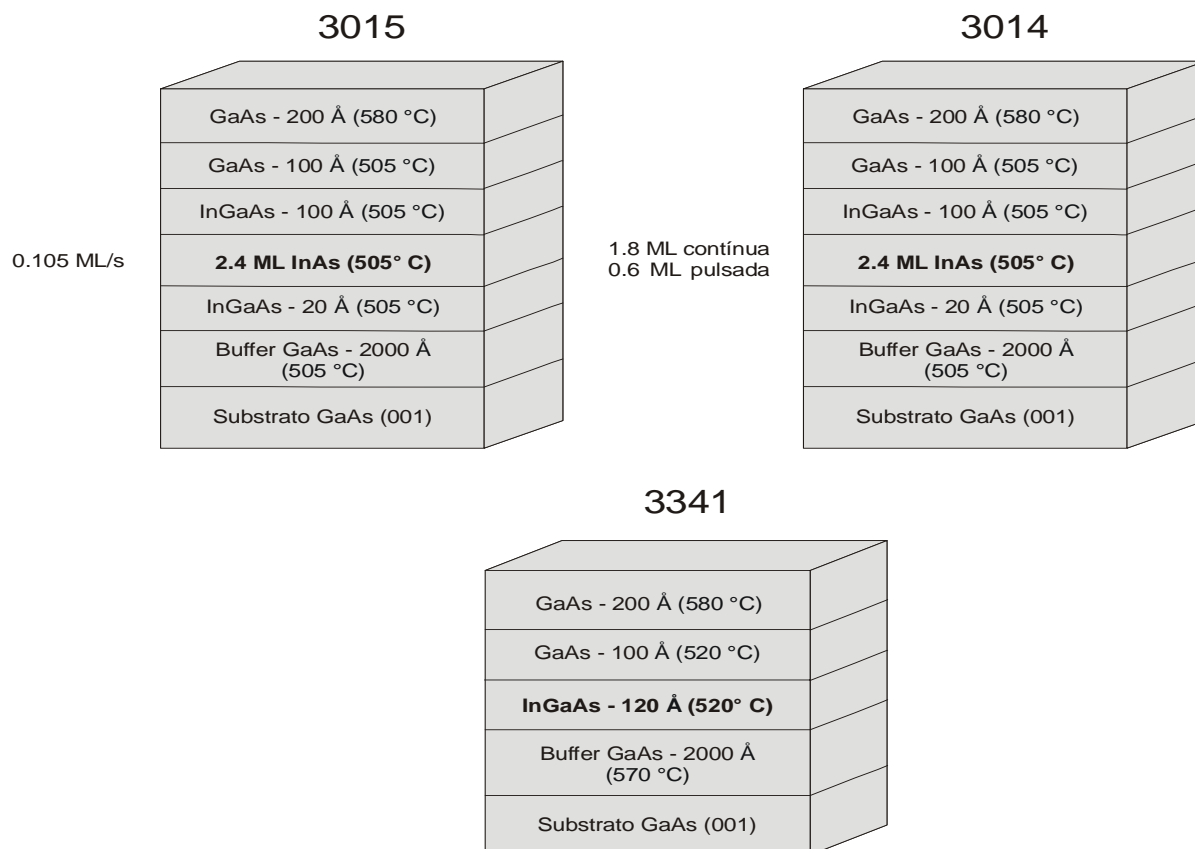


Figura 4.4 – Diagrama estrutural das amostras DWELL e do poço quântico simples. Em cada amostra está indicada a espessura das camadas que a constituem e a respectiva temperatura de crescimento. Para detalhes de crescimento das 2.4 ML de InAs veja Tabela 4.1.

Todas as amostras foram crescidas sobre um substrato de GaAs (001). A seguir detalharemos o crescimento de cada uma das amostras.

A amostra 3012, foi crescida sobre o substrato uma camada *buffer* de GaAs de 2000 Å depositado a uma temperatura de 580 °C. Sobre esta camada foi crescido 2.4 monocamadas de InAs a temperatura de 505 °C, depositadas de forma contínua com uma taxa de 0.0084 ML/s. Fechando a estrutura foi crescido 100 Å de GaAs à 505 °C e em seguida mais 200 Å do mesmo material a 580 °C.

As amostras 3067 e 3069 tem estruturas idênticas, diferindo apenas no modo de crescimento das 2.4 ML de InAs. Nestas amostras, foram crescidos sobre o substrato uma camada *buffer* de 500 Å, uma super-rede de 10 períodos de [(AlAs)₅/(GaAs)₁₀] e uma segunda camada *buffer* de 2000 Å, todas a uma temperatura de 580 °C. Em seqüência, na amostra 3067 foram crescidas 2.4 ML de InAs depositados a uma taxa contínua de 0.087 ML/s e

temperatura de 515 °C, enquanto na amostra 3069 foram crescidas 2.4 ML de InAs, sendo que 1.8 ML foram depositadas de forma contínua a uma taxa de 0.1 ML/s e 0.6 ML depositadas de maneira pulsada, com 12 ciclos de 0.5 segundos de deposição e 4.5 segundos de interrupção, a temperatura de 515 °C. Os *quantum dots* foram cobertos por 100 Å de GaAs à 515 °C e em seguida outra camada de 200 Å do mesmo material a 580 °C.

A amostra 3067 é a que possui a taxa de deposição de InAs mais próxima do padrão para crescimento de QDs de InAs/GaAs que é de 0.1 ML/s na deposição contínua.

As amostras 3014 e 3015 também tem estruturas idênticas entre si, diferindo apenas no crescimento dos QDs. Foram crescidos em seqüência uma camada *buffer* de 2000 Å a temperatura de 580 °C, 20 Å de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$, 2.4 ML de InAs e 100 Å de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$, finalizando a estrutura com 100 Å de GaAs depositado a temperatura de 505 °C e 200 Å de GaAs depositado a 580 °C. Na amostra 3015 as 2.4 ML de InAs foram depositadas de maneira contínua a uma taxa de 0.105 ML/s, enquanto na amostra 3014 foram depositadas 1.8 ML de InAs de maneira contínua, a uma taxa de 0.1 ML/s e 0.6 ML depositadas de maneira pulsada, com 12 ciclos de 0.5 segundos de deposição e 4.5 segundos de interrupção, totalizando 2.4 ML. As monocamadas de InAs nestas amostras foram crescidas a 505 °C.

A amostra 3341 é um poço quântico de 120 Å de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ com barreiras de GaAs. Nesta amostra, foram crescidos uma camada *buffer* de 2000 Å a temperatura de 570 °C, em seguida 120 Å de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$, e fechando a amostra foram depositados 100 Å de GaAs a 520 °C e em seguida 200 Å a 580 °C.

Nas amostras 3014 e 3069, como descrito acima, o crescimento das camadas de InAs se deu de maneira pulsada. A deposição de 0.6 ML em 12 ciclos de 0.5 segundos de deposição por 4.5 segundos de interrupção leva a uma taxa de deposição resultante de 0.1 ML/s. Esta forma de crescimento influencia no tamanho médio dos *quantum dots*, de maneira a gerar estruturas teoricamente maiores. As principais características de crescimento das amostras de QDs estão indicadas na Tabela 4.1.

Tabela 4.1 – Principais características de crescimento das amostras de *quantum dots* estudadas.

Amostra	Espessura da camada de InAs (ML)	Taxa de deposição de InAs (ML/s)	Tamanho esperado dos <i>dots</i>
3012	2.4	0.0084	Grandes
3067	2.4	0.087	Pequenos
3069	1.8 → contínua	0.1	Grandes
	0.6 → pulsada	12 x 0.5s dep./4.5s int.	
3015	2.4	0.105	Pequenos
3014	1.8 → contínua	0.1	Grandes
	0.6 → pulsada	12 x 0.5s dep./4.5s int.	

Com este conjunto de amostras podemos fazer varias comparações de maneira a determinar a influência das condições de crescimento na energia das transições nas amostras.

CAPÍTULO 5

Resultados Experimentais e Discussão

Neste capítulo serão apresentados e discutidos os resultados da caracterização óptica do conjunto de amostras por meio da técnica de fotorefletância em função da temperatura. De modo a facilitar a análise, apresentamos de forma resumida na Tabela 5.1 as principais características das amostras estudadas.

Tabela 5.1 – Estruturas, modos de crescimento e taxas de deposição do conjunto de amostras.

Estrutura	Modo de crescimento	Taxa de deposição (ML/s)	Amostra
Convencional	Contínuo	0.0084	3012
Convencional	Contínuo	0.087	3067
Convencional	Pulsado	0.1	3069
DWELL	Contínuo	0.105	3015
DWELL	Pulsado	0.1	3014
QW simples	Contínuo	-----	3341

5.1 – ESPECTROS DE PR COM VARIAÇÃO DE TEMPERATURA

Na Figura 5.1 apresentamos os espectros de fotorefletância das amostras de QDs com estrutura convencional obtidos em diferentes temperaturas, no intervalo de 12 a 300K.

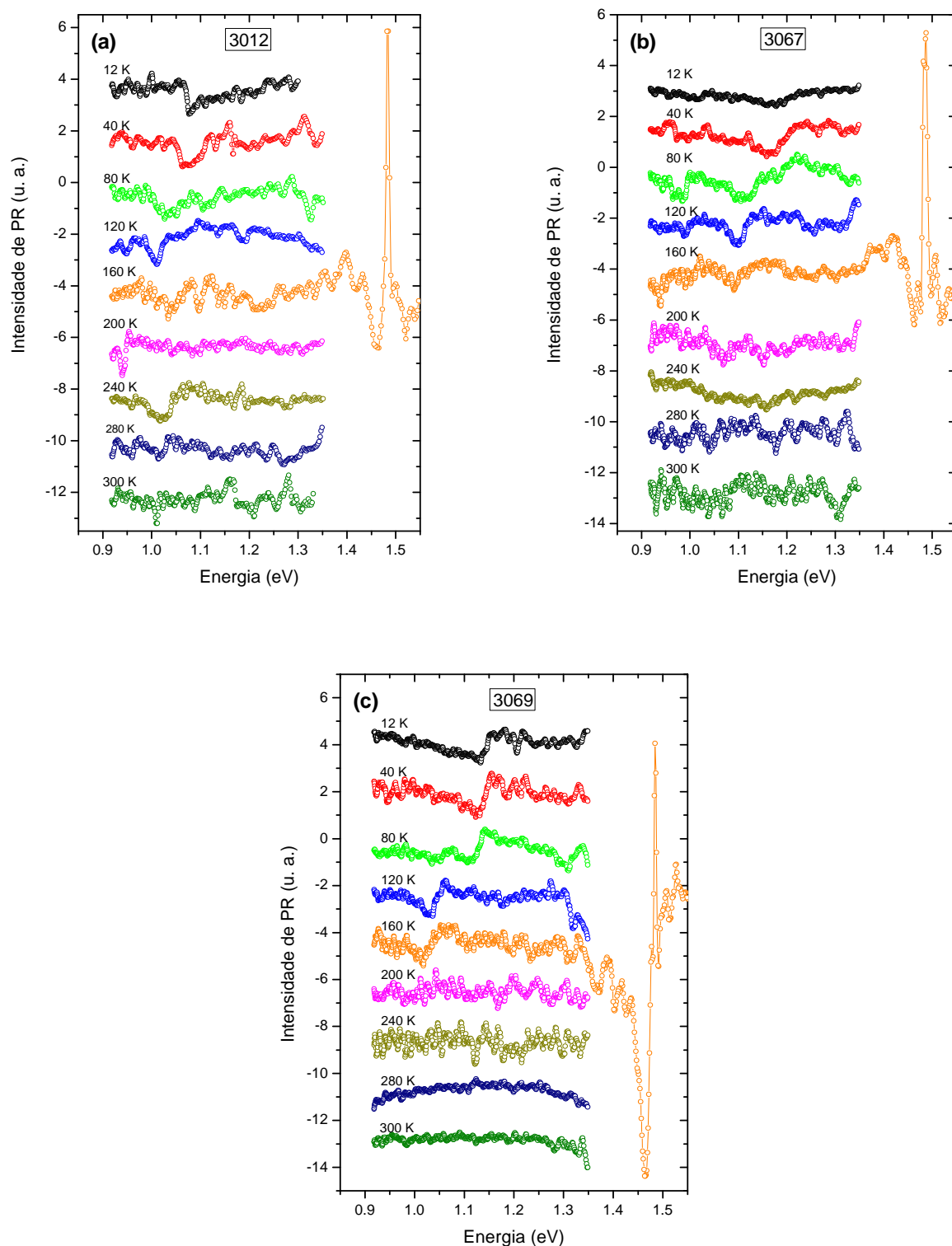


Figura 5.1 – Espectros de fotoreletância com variação de temperatura das amostras (a) 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], (b) 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e (c) 3069 [QD convencional – cresc. pulsado].

Na Figura 5.2, apresentamos os espectros de PR das amostras DWELL e do poço quântico simples (QW) de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ com barreiras de GaAs obtidos em diferentes temperaturas, no intervalo de 12 a 300K.

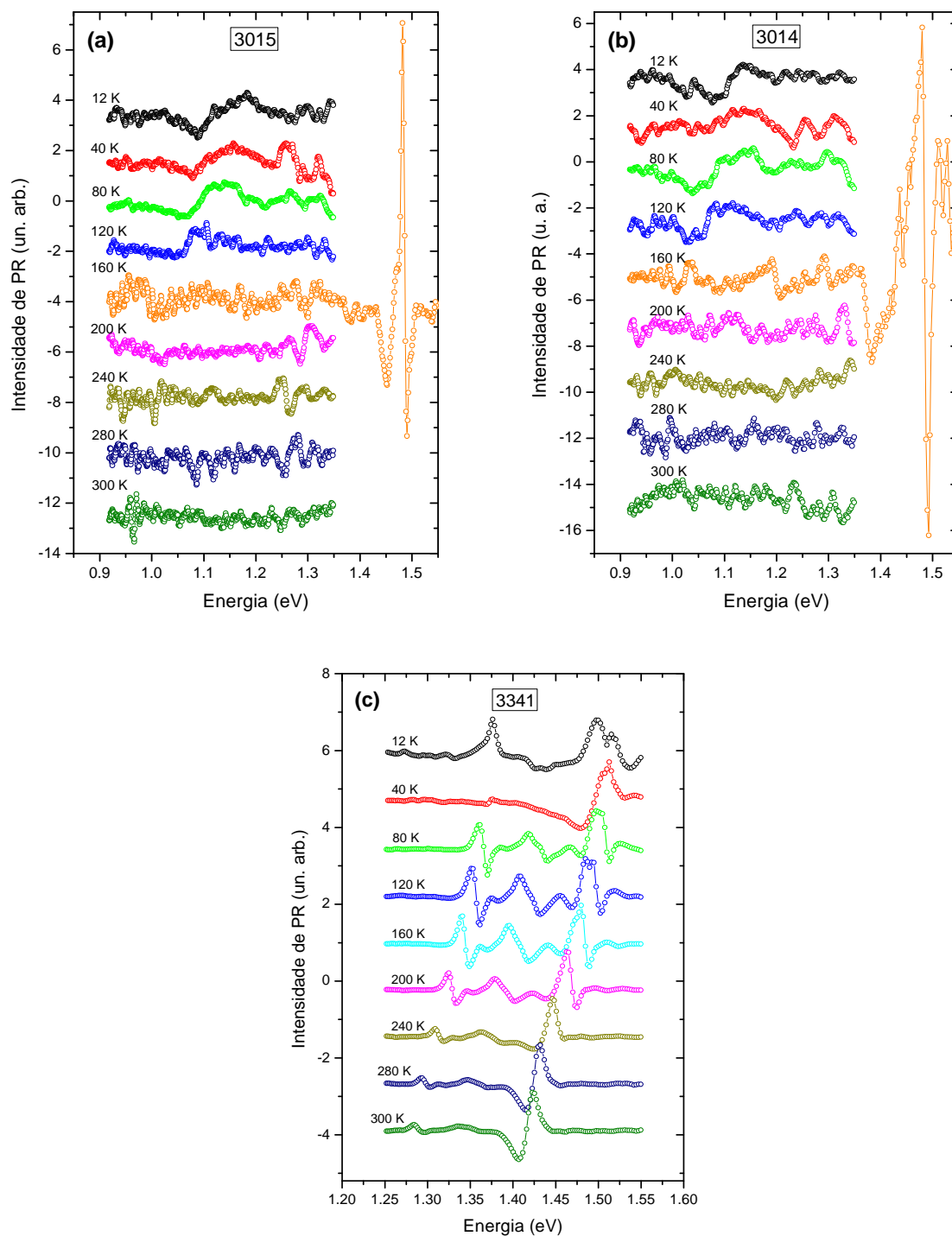


Figura 5.2 – Espectros de fotoreletância com variação de temperatura das amostras (a) 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s], (b) 3014 [DWELL – cresc. pulsado] e (c) 3341 [QW $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ – cresc. contínuo].

5.2 – DETERMINAÇÃO DA ENERGIA DAS TRANSIÇÕES ATRAVÉS DO MÉTODO DOS TRÊS PONTOS

Para determinarmos em primeira aproximação as energias das transições interbandas relativas aos QDs, que serão usadas como *input* para o ajuste dos espectros de PR usamos o método dos três pontos, descrito na seção 2.6. Na Tabela 5.2 apresentamos os resultados obtidos através deste método para as energias das transições referentes aos pontos quânticos para cada uma das amostras de QDs estudadas.

Tabela 5.2 – Energias obtidas através do método dos três pontos para as transições ópticas dos QDs. E_0 e E_1 referem-se às transições de menor e maior energia, respectivamente. Os campos marcados com uma linha tracejada são referentes a transições não determinadas. Foi usada nos cálculos a linha $n = 3$ da Figura 2.4.

Temperatura (K)	Energia (eV)	Amostras				
		3012	3067	3069	3015	3014
12	E_0	1.05	----	----	1.117	1.1
	E_1	1.105	1.193	1.146	----	----
40	E_0	1.047	----	----	1.102	1.102
	E_1	1.10	1.184	1.145	----	----
80	E_0	1.041	1.129	1.064	1.096	1.089
	E_1	1.087	1.183	1.14	----	----
120	E_0	1.03	1.12	1.055	1.077	1.069
	E_1	1.078	1.173	1.125	----	----
160	E_0	1.015	1.086	1.044	----	----
	E_1	1.06	1.142	1.121	----	----
240	E_0	----	----	----	----	----
	E_1	1.04	----	----	----	----

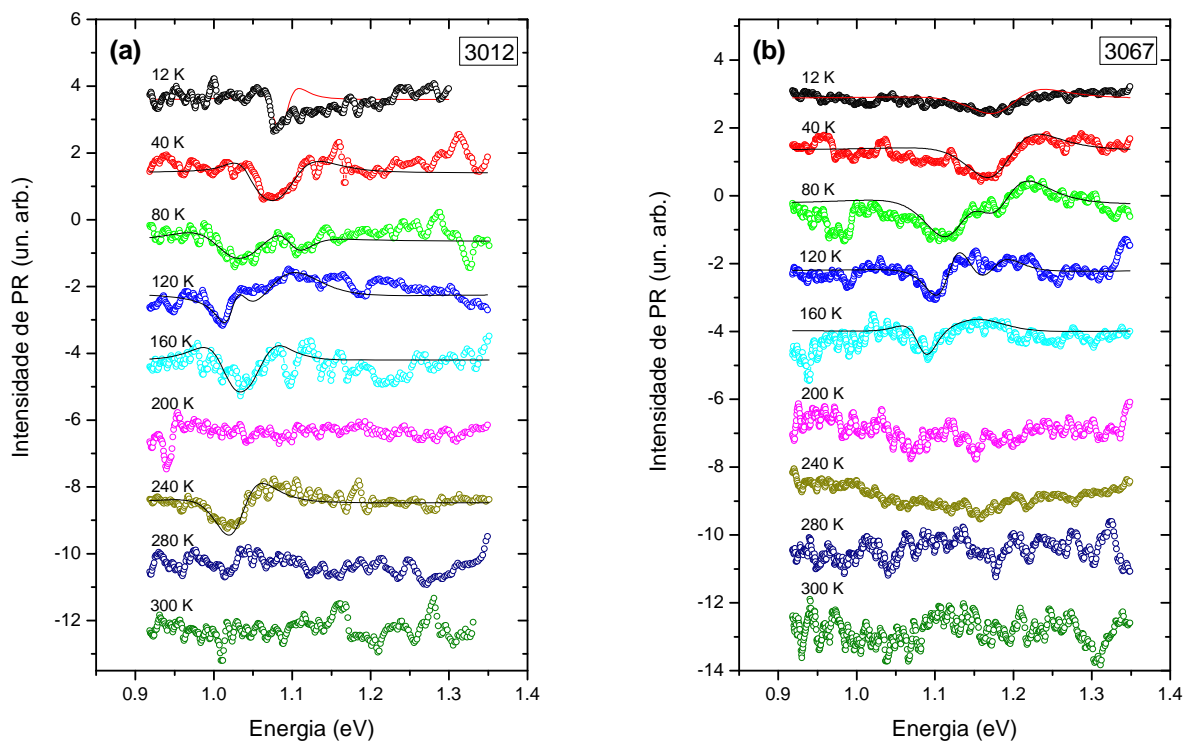
5.3 – AJUSTES REALIZADOS DOS ESPECTROS DE PR

Com base nos valores obtidos para a energia das transições referentes aos QDs a partir do método dos três pontos, ajustamos os espectros usando a equação que descreve a dependência espectral da variação relativa da refletividade ($\Delta R/R$).

$$\frac{\Delta R}{R} = \text{Re} \left[C e^{i\theta} (E - E_g + i\Gamma)^{-n} \right] \quad (2.47)$$

Para as transições relativas aos QDs em todas as amostras com estrutura convencional e DWELL, usamos o parâmetro $n = 3$, e para as transições dos poços quânticos usamos $n = 2.5$, de acordo com o procedimento feito por *Seravalli e colaboradores* ^[5.1].

Na Figura 5.3 apresentamos os espectros de PR e os ajustes realizados para as amostras de QDs com estrutura convencional.



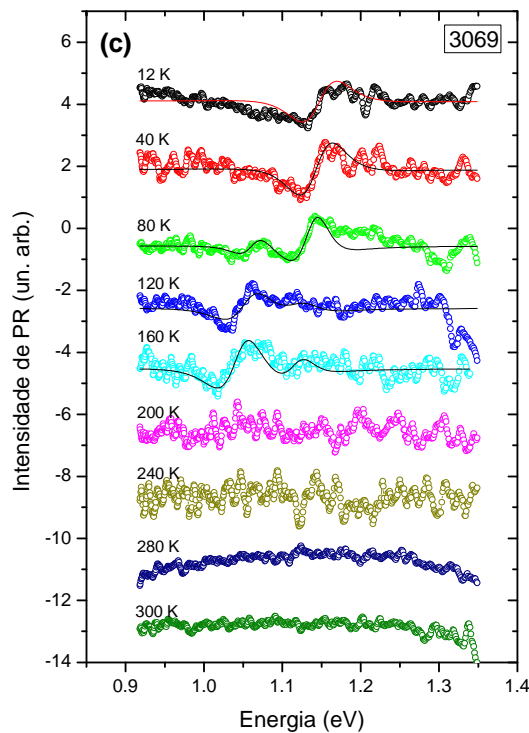


Figura 5.3 – Ajustes dos espectros de PR através da equação (2.47) das amostras (a) 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], (b) 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e (c) 3069 [QD convencional – cresc. pulsado]. As linhas sólidas representam o melhor ajuste obtido para cada temperatura.

Nas amostras de QDs com estrutura convencional, conseguimos identificar as transições dos QDs e realizar o ajuste dos espectros de PR no intervalo de 12 K a 160 K. Nos espectros de PR obtidos a temperaturas a partir de 200 K somente na amostra 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s] (à temperatura de 240 K) conseguimos identificar e realizar o ajuste das transições dos QDs, como pode ser visto na Figura 5.3 – a.

Na amostra 3012 até a temperatura de 160 K observamos nos espectros de PR duas transições. Com o aumento da temperatura os portadores gerados termicamente preenchem os estados permitidos de menor energia dos *dots*, tornando-os não detectáveis em medidas de absorção. Assim, para a temperatura de 240 K quando o sinal se torna evidente novamente, identificamos apenas uma transição, que é relativa à transição de maior energia observada nas demais temperaturas.

No espectro de PR da amostra 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] a baixas temperaturas é observado apenas uma transição relacionada aos QDs (Figura

5.3 – b). A partir de 80 K, observamos o surgimento de um canal de absorção de menor energia. Com o aumento da temperatura, o canal de maior energia perde intensidade, ao mesmo tempo em que o de menor energia ganha intensidade e se torna dominante. Para temperaturas superiores a 160 K o sinal dos *dots* desaparece.

As transições observadas nos espectros de PR da amostra 3069 [QD convencional – cresc. pulsado] apresentam um comportamento equivalente ao observado na amostra 3067, porém podemos notar que neste caso (Figura 5.3 – c) as transições são mais definidas, principalmente nas medidas realizadas a temperatura de 12 e 40 K. Esta ligeira melhora na forma de linha de PR da amostra 3069 com relação a 3067 pode estar relacionada com os diferentes modos de crescimento do InAs nestas amostras, que podem eventualmente gerar interfaces melhores entre o InAs e o GaAs, campos elétricos internos mais homogêneos e consequentemente melhor sinal de PR.

Na Figura 5.4 (a) e (b) apresentamos os ajustes dos espectros de PR das amostras 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3014 [DWELL – cresc. pulsado], respectivamente.

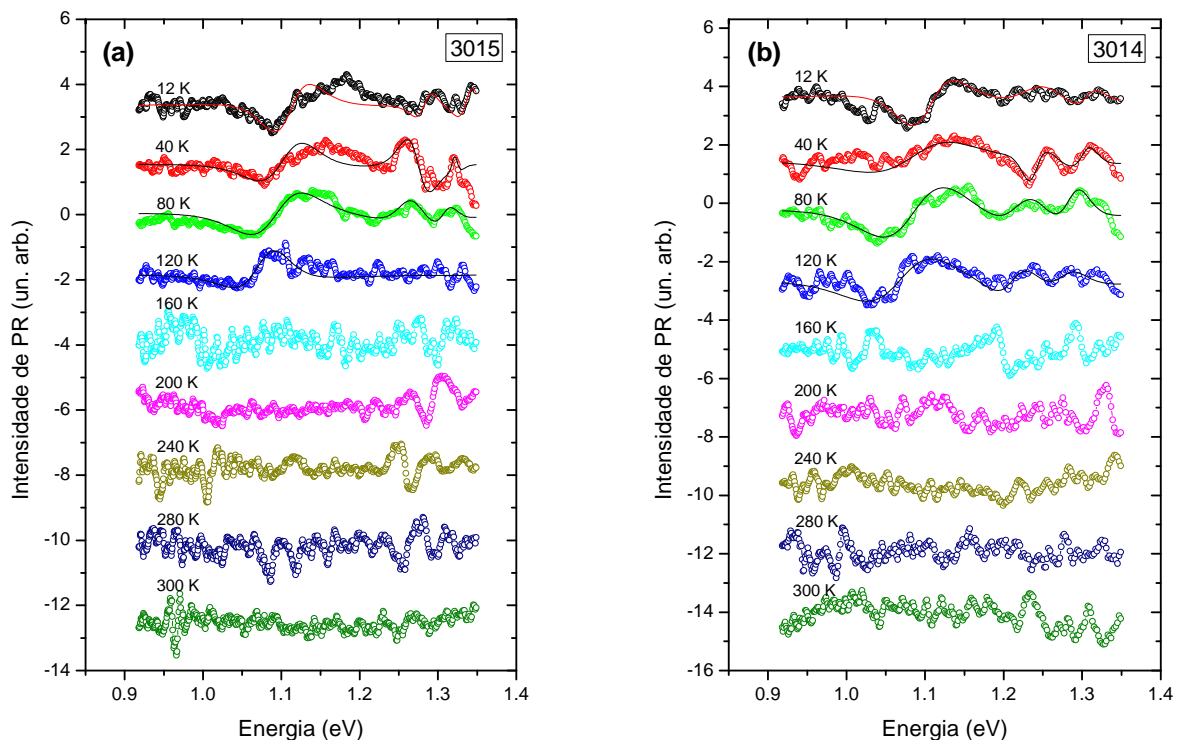


Figura 5.4 – Ajustes dos espectros de PR através da equação (2.47) das amostras (a) 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e (b) 3014 [DWELL – cresc. pulsado]. As linhas sólidas representam o melhor ajuste obtido para cada temperatura.

Nos espectros de PR das amostras 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3014 [DWELL – cresc. pulsado] fica evidente a presença de uma transição em torno de 1.1 eV. Para temperaturas superiores a 120 K esta transição perde intensidade tornando-se impossível visualizá-la nas duas amostras. Outras duas transições de maior energia são observadas em ambas as amostras. Uma discussão mais aprofundada acerca destas transições será feita na seção a seguir.

Na Figura 5.5 apresentamos o ajuste dos espectros de PR da amostra 3341 [QW $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ – cresc. contínuo].

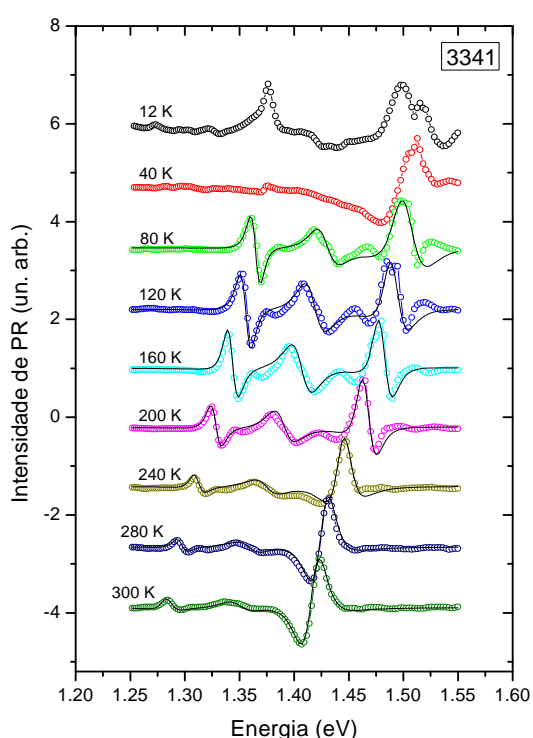


Figura 5.5 – Ajustes dos espectros de PR através da equação (2.47) da amostra 3341. As linhas sólidas representam o melhor ajuste obtido para cada temperatura.

Para a amostra 3341 não obtivemos espectros bem definidos nas temperaturas de 12 e 40 K. Para as demais temperaturas medidas, observamos duas transições na região de menor energia atribuídas a absorção dos níveis do QW e outra em maior energia que está associada ao *gap* fundamental do GaAs.

Em geral, podemos observar que os espectros de fotorefletância das amostras de QDs convencionais e DWELL apresentam um sinal ruidoso, não definido (grande largura de linha)

e relativamente pouco intenso se comparado com o poço quântico simples de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$. Sendo a PR uma técnica de espectroscopia baseada na absorção, a baixa intensidade do sinal está associada à pequena quantidade de material (ou a baixa densidade de pontos) que absorve a radiação incidida na amostra. A grande largura de linha está possivelmente relacionada a uma distribuição de tamanho não uniforme nos QDs.

5.4 – DETERMINAÇÃO DA ORIGEM DAS TRANSIÇÕES A PARTIR DA DEPENDÊNCIA DA ENERGIA COM A TEMPERATURA

Com os ajustes realizados podemos obter informações a respeito das transições observadas (energia, largura de linha, etc.), porém a identificação da origem destas requer uma análise mais aprofundada. A variação com a temperatura da energia das transições observadas em fotorefletância pode nos ajudar a identificar a sua origem.

Para realizar tal análise vamos dividir o conjunto de amostras, fazendo em um primeiro momento a análise das amostras de QDs com estrutura convencional e em seguida tratando as amostras com estrutura DWELL e o QW simples. Resultados obtidos através da análise de medidas de fotoluminescência (PL)* de todo o conjunto de amostras serão apresentados, de modo a reforçar nossa análise.

5.4.1 – TRANSIÇÕES EM QDS CONVENCIONAIS

Na Figura 5.6 apresentamos os pontos experimentais de PR em comparação com os pontos experimentais obtidos através da PL para a amostra 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], referente às transições observadas no intervalo de 12 K a 240 K.

* As medidas de PL foram realizadas por Flavio Franchello e apresentadas com maior detalhe em sua dissertação de Mestrado no Departamento de Física da UEL.

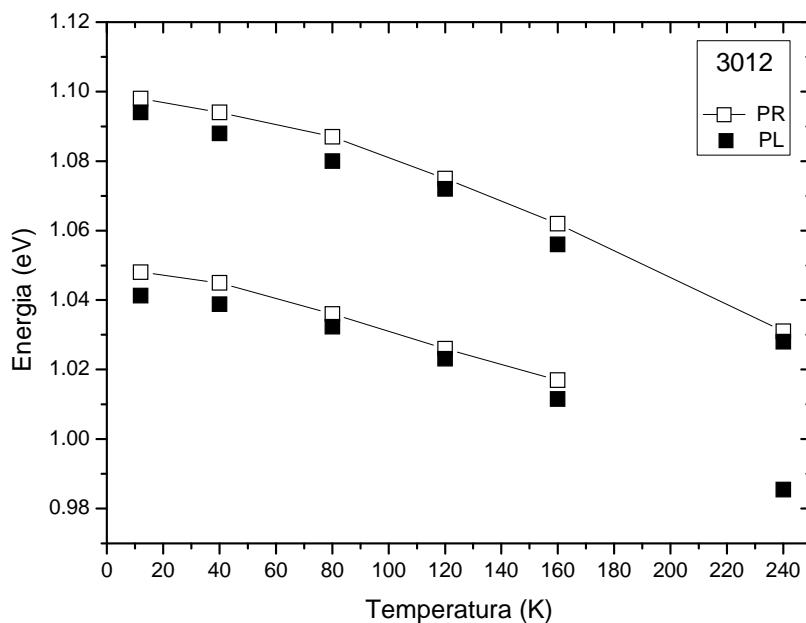


Figura 5.6 – Dependência das duas transições associadas aos QDs com a temperatura para a amostra 3012, obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [quadrados vazios (□)] e fotoluminescência (PL) [quadrados preenchidos (■)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos.

Na Figura 5.7 apresentamos os pontos experimentais de PR em comparação com os pontos experimentais obtidos através da PL para a amostra 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s], referente as transições observadas no intervalo de 12 K a 160 K.

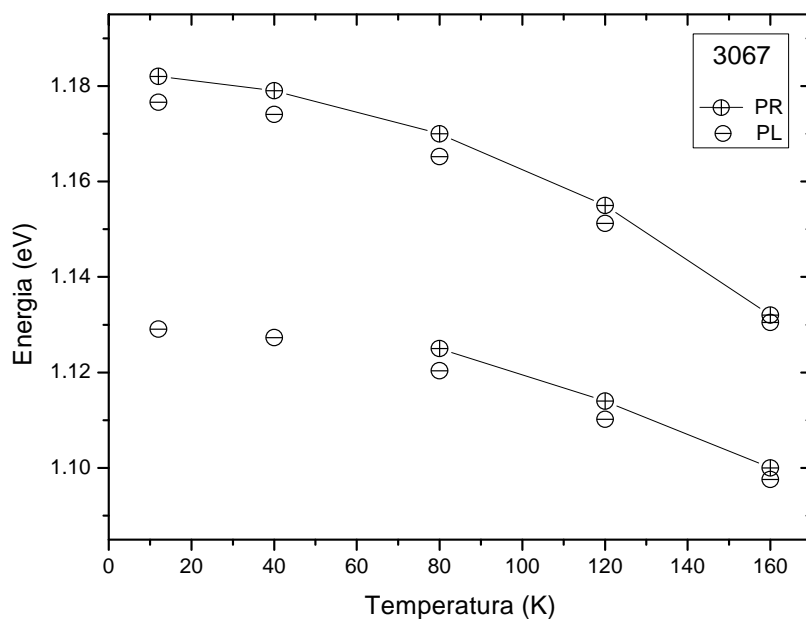


Figura 5.7 – Dependência das duas transições associadas aos QDs com a temperatura para a amostra 3067, obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) (\oplus) e fotoluminescência (PL) (\ominus). A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos.

Na Figura 5.8 apresentamos os pontos experimentais de PR em comparação com os pontos experimentais obtidos através da PL para a amostra 3069 [QD convencional – cresc. pulsado], referente às transições observadas no intervalo de 12 K a 160 K.

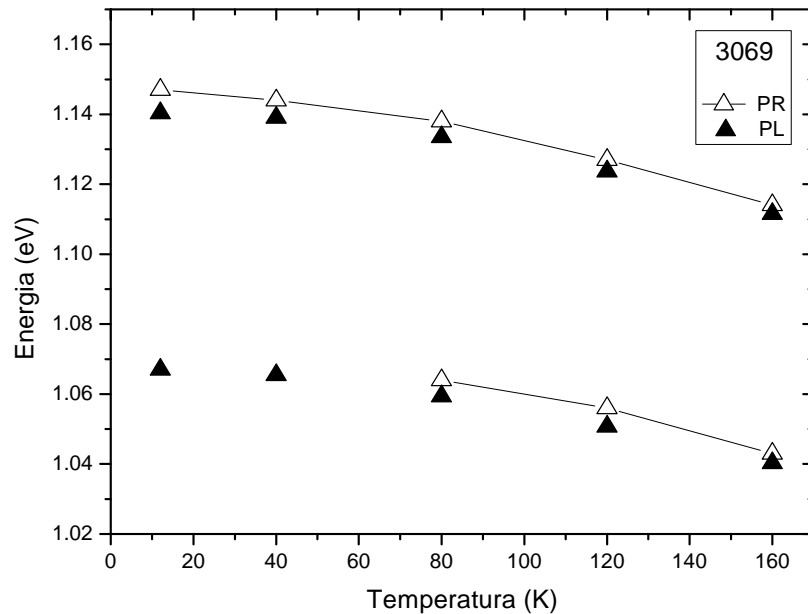


Figura 5.8 – Dependência das duas transições associadas aos QDs com a temperatura para a amostra 3069, obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [triângulos vazios (Δ)] e fotoluminescência (PL) [triângulos preenchidos (\blacktriangle)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos.

Devido aos princípios físicos das técnicas de fotorefletância e fotoluminescência serem diferentes, as medidas realizadas através destas técnicas podem apresentar uma diferença na energia de transição excitônica (ΔE_{LR}). Este é um comportamento esperado e é característico do efeito denominado *Stokes shift*, que ocorre quando um fóton emitido tem menor energia do que um fóton absorvido. Esta diferença em energia pode ser vista em todas as amostras (Figuras 5.6 a 5.8). Podemos observar que com o aumento da temperatura os pontos experimentais de PR tendem a se igualar com os pontos experimentais de PL, o que é esperado.

De acordo com *Bimberg e colaboradores* ^[5.2], o comportamento das transições excitônicas dos QDs de InAs crescidos sobre GaAs deve ser limitado pelo comportamento dos *gaps* do GaAs e do InAs. Na Figura 5.9 podemos ver que os níveis de menor energia (denominados de QD1) das amostras de QDs com estrutura convencional varia em temperatura de modo intermediário entre o comportamento do *gap* do InAs e do GaAs (deslocados em energia para facilitar a comparação).

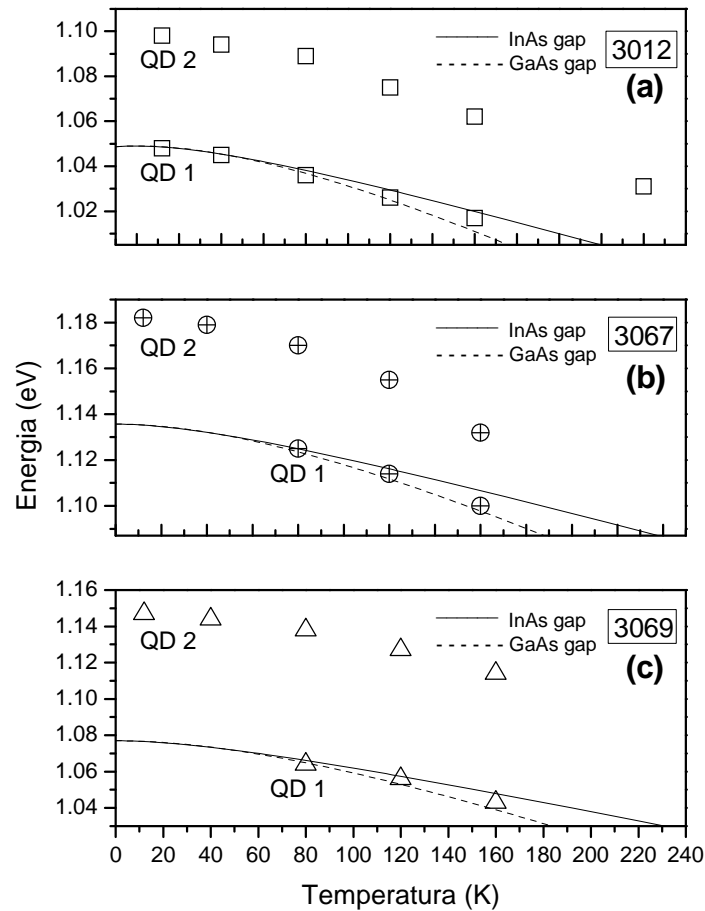


Figura 5.9 – Energia das duas transições dos QDs em função da temperatura obtidas através das medidas de PR das amostras (a) 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], (b) 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e (c) 3069 [QD convencional – cresc. pulsado]. As linhas contínuas e pontilhadas representam o comportamento com a temperatura do *gap* fundamental do InAs ^[3.16] e do GaAs ^[3.11], respectivamente e estão deslocados em energia para facilitar a comparação.

As transições de menor energia na Figura 5.9 (a), (b) e (c), designadas por QD1 são atribuídas à absorção do nível fundamental dos QDs. No que diz respeito às transições de maior energia (denominadas de QD2), elas devem ser atribuídas às transições de níveis excitados ou a transições do nível fundamental de uma segunda família de QD, com um tamanho ou morfologia diferente com relação à família principal.

Na literatura não existe um consenso quanto à atribuição da origem das transições de maior energia em QDs. Vários autores trabalhando com QDs de InAs crescidos sobre GaAs

atribuem as transições de maior energia observadas através de PR e PL a níveis excitados [5.3][5.4][5.5], enquanto outros atribuem a diferentes famílias [5.6][5.7].

Em nossas amostras de QDs convencionais, podemos notar que com o aumento da temperatura as transições QD1 e QD2 da amostra 3012 e 3067 (Figuras 5.9 (a) e (b) respectivamente) aproximam-se uma da outra. A energia da transição QD2 diminui mais rapidamente com a temperatura na amostra 3067. Na amostra 3069 as transições de menor e maior energia variam de maneira aproximadamente igual.

Esta aproximação entre a energia das transições QD1 e QD2 com o aumento da temperatura, observada nas amostras 3012 e 3067, deve possivelmente estar relacionada a processos de migração de portadores entre o nível fundamental de uma família principal para uma segunda família de QDs. Assim, nestas amostras acreditamos que as transições de maior energia são provenientes de uma segunda família de QDs com tamanho menor que a família responsável pela transição QD1.

Na amostra 3069, o comportamento praticamente idêntico das transições QD1 e QD2 indica que a transição QD2 deve estar relacionada à presença de um estado excitado, assim os QDs presentes nesta amostras apresentam possivelmente uma maior uniformidade de tamanhos.

Para fazer uma análise morfológica mais precisa destas amostras seriam necessárias medidas de microscopia de força atômica – *Atomic Force Microscopy* (AFM). No entanto, como esta técnica fornece informações da superfície da amostra só seria possível fazer essas medidas antes dos QDs serem cobertos por camadas de outro material (no caso das nossas amostras elas são cobertas pelo GaAs).

Utilizando a Figura 3.12, resultante do modelo proposto por *Marzin e Bastard* [5.8] (descrito na seção 3.6), podemos estimar o tamanho dos QDs com estrutura convencional, como apresentado na Tabela 5.3.

Tabela 5.3 – Raio R_t dos QDs com estrutura convencional obtido através do modelo proposto por *Marzin e Bastard* [3.28] considerando que a *wetting layer* presente nestas amostras tem espessura de 2 ML de InAs.

3012		3067		3069	
Energia (eV)	R_t (Å)	Energia (eV)	R_t (Å)	Energia (eV)	R_t (Å)
1.036	140	1.125	120	1.064	133
1.087	128.5	1.17	112	1.138	-----

Os cálculos teóricos consideram condições idealizadas, dentre elas a temperatura (0 K), no entanto para a estimativa apresentada na Tabela 5.3 utilizamos as energias das transições obtidas à temperatura de 80 K, pois nas amostras 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e 3069 [QD convencional – cresc. pulsado] não temos informações a respeito das transições de menor energia a temperaturas inferiores a esta. Esta diferença entre a temperatura considerada no cálculo e a utilizada na comparação pode gerar pequenas diferenças na estimativa do tamanho dos *dots*, porém este modelo fornece um bom ponto de partida para a estimativa do tamanho dos QDs através da análise dos dados experimentais.

Em resumo, neste tópico atribuímos as transições das amostras 3012 e 3067 ao nível fundamental de diferentes famílias de QDs; as transições da amostra 3069 foram atribuídas ao nível fundamental e ao nível excitado de uma mesma família de QDs, e com a energia das transições obtidas experimentalmente estimamos o tamanho dos QDs para estas três amostras.

5.4.2 – TRANSIÇÕES NOS DWELL E QW SIMPLES

Nas Figuras 5.10 e 5.11 apresentamos a dependência com a temperatura das transições observadas para as amostras com estrutura DWELL, crescidas através da deposição contínua (3015) e da deposição pulsada (3014) do InAs, respectivamente.

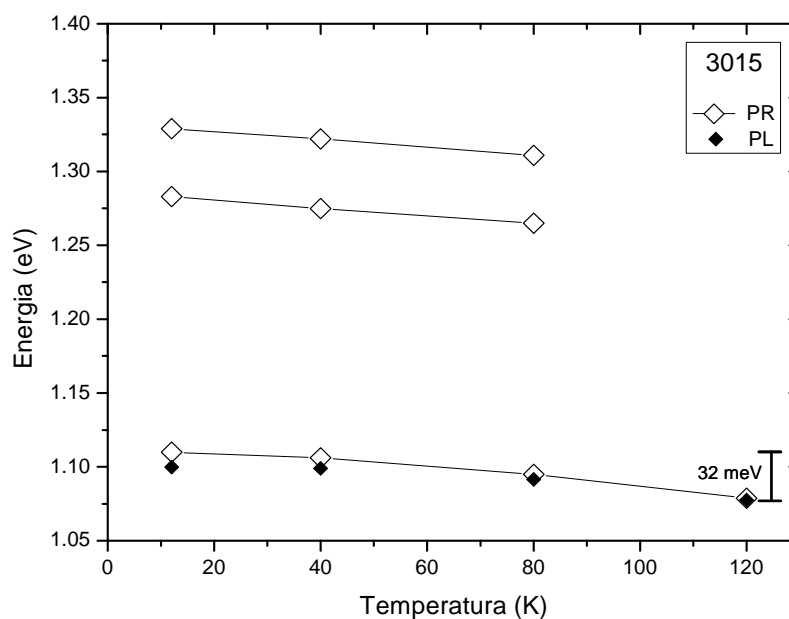


Figura 5.10 – Dependência com a temperatura das três transições observadas para a amostra 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [losangos vazios (\diamond)] e fotoluminescência (PL) [losangos preenchidos (\blacklozenge)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos.

Nas Figuras 5.10 e 5.11 é evidente o *Stokes shift* entre os pontos experimentais de PR e PL. As transições de menor energia observadas através da PR nas figuras acima citadas são atribuídas ao nível fundamental dos QDs. Esta atribuição é reforçada pelos resultados de PL, que fornecem informações a respeito dos estados de menor energia do material.

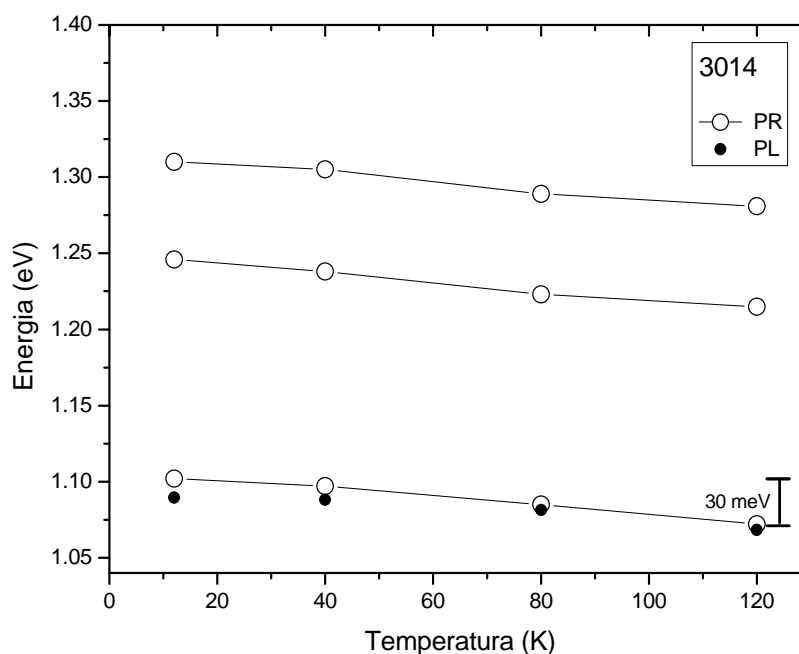


Figura 5.11 – Dependência com a temperatura das três transições observadas para a amostra 3014 [DWELL – cresc. pulsado], obtidas através da análise dos espectros de fotorefletância (PR) [círculos vazios (\circ)] e fotoluminescência (PL) [círculos preenchidos (\bullet)]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos.

Nas amostras 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3014 [DWELL – cresc. pulsado] observamos que a transição de menor energia, atribuída ao nível fundamental dos DWELL diminui com a temperatura. Na amostra 3015 a energia desta transição varia de 1.11 eV (12 K) para 1.078 eV (120 K), uma variação de 32 meV, e na amostra 3014 esta transição varia de 1.102 eV (12K) para 1.072 eV (120 K), apresentando um deslocamento de 30 meV neste intervalo de temperatura. As energias das transições dos níveis fundamentais dos DWELL variam então de maneira aproximadamente igual.

As transições de maior energia nas amostras 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3014 [DWELL – cresc. pulsado] podem ser provenientes de níveis excitados da mesma família de *dots*, transições dos níveis fundamental e excitado de outra família de DWELL de tamanho diferenciado ou mesmo do poço quântico no qual os *dots* estão confinados.

Na Figura 5.12 apresentamos a dependência com a temperatura das transições da amostra 3341 (poço quântico simples). A transição fundamental do QW é comparada com o comportamento esperado do *gap* com a temperatura para o $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ *bulk*, descrito pela equação (3.6).

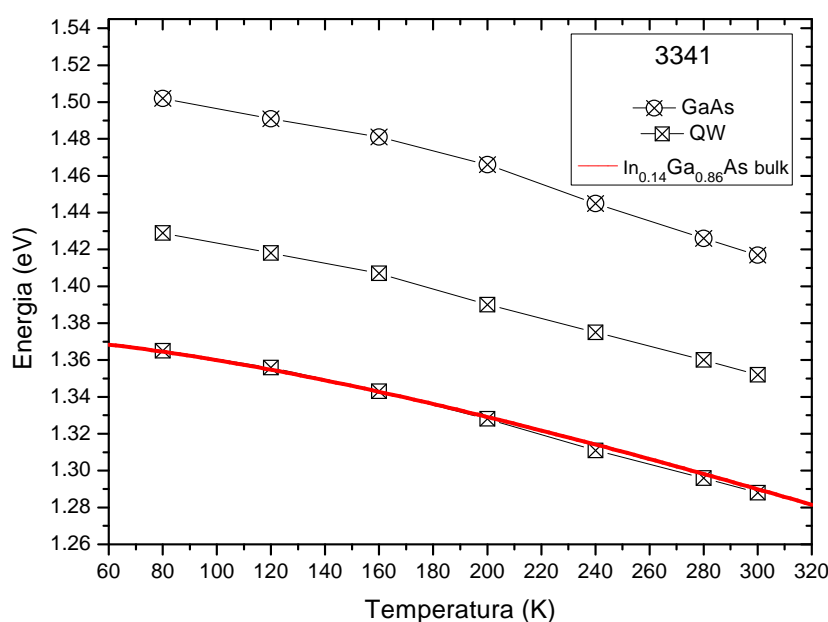


Figura 5.12 – Dependência das duas transições associadas ao QW e da transição associada ao GaAs com a temperatura para a amostra 3341, obtida através da análise dos espectros de fotorefletância (PR). As transições relacionadas ao QW são representadas pelos quadrados tachados (\boxtimes) e a transição relacionada ao GaAs é representada pelos círculos tachados (\otimes). A linha sólida em vermelho (deslocada em energia para facilitar a comparação) representa aproximadamente o comportamento esperado do *gap* com a temperatura para o $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ *bulk* ^[3.17]. A linha contínua ligando os pontos experimentais de PR é somente um guia para os olhos.

Para a comparação feita na Figura 5.12 deslocamos a curva do *gap* $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ *bulk* (em vermelho) 65 meV para maior energia. Podemos observar o bom acordo entre os pontos experimentais de PR e a curva teórica que descreve o comportamento do *gap* com a temperatura.

Na Figura 5.13 e Figura 5.14 comparamos as transições de maior energia das amostras 3015 e 3014 com as transições do poço quântico simples (amostra 3341), respectivamente.

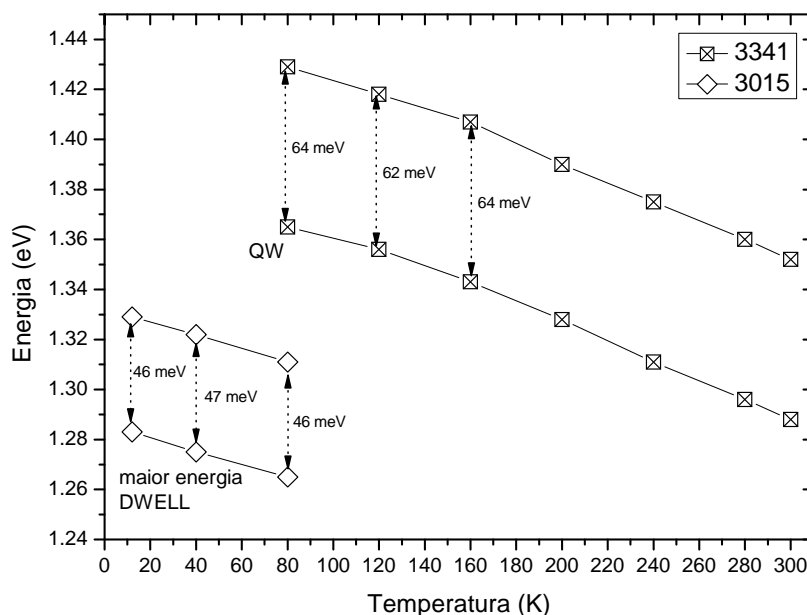


Figura 5.13 – Comparação das duas transições de maior energia da amostra 3015 (\diamond) com as duas transições do poço quântico simples de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ (\boxtimes). As setas indicam a diferença em energia entre as transições observadas experimentalmente. A linha contínua ligando os pontos experimentais é somente um guia para os olhos.

As separações entre as transições de maior energia das amostras 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3014 [DWELL – cresc. pulsado] permanecem praticamente constantes, assim como ocorre na amostra 3341 (QW simples). A menor energia das transições nas amostras com estrutura DWELL em relação às transições do poço quântico simples pode estar relacionado ao fato de que a largura efetiva do poço quântico nas amostras 3015 e 3014 é aproximadamente 7 Å maior que o poço quântico simples (amostra 3341), uma vez que a espessura de uma monocamada de InAs é de aproximadamente 3 Å, além do fato das MLs de InAs presentes nas amostras 3015 e 3014 perturbarem os níveis do poço.

O fato da diferença entre as transições de maior energia na amostra 3015 ser em média 46 meV e na amostra 3014 ser em média 66 meV pode estar relacionado aos diferentes modos de crescimento destas amostras [3015 (contínuo) e 3014 (pulsado)], que geram QDs com diferentes distribuições de tamanho e conseqüentemente perturbam os níveis do QW de formas distintas.

Desta maneira, considerando que a separação entre as transições de maior energia nas amostras com estrutura DWELL são praticamente constantes, a largura efetiva do poço nestas amostras ser maior e a perturbação dos níveis do QW devido ao InAs crescido em seu interior, temos uma forte evidência de que as transições de maior energia observadas nas amostras 3015 e 3014 são provenientes do QW dentro do qual os *dots* foram crescidos.

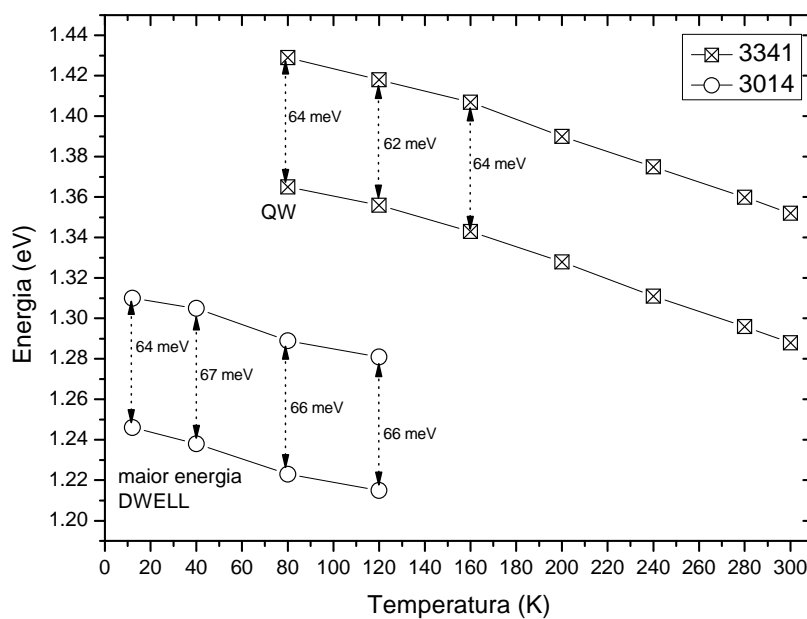


Figura 5.14 – Comparação das duas transições de maior energia da amostra 3014 (O) com as duas transições do poço quântico simples de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}/\text{GaAs}$ (x). As setas indicam a diferença em energia entre as transições observadas experimentalmente. A linha contínua ligando os pontos experimentais é somente um guia para os olhos.

Em resumo, neste tópico identificamos a transição de menor energia das amostras com estrutura DWELL (3015 e 3014) como sendo relativa ao nível fundamental dos *dots*. As transições de maior energia destas amostras foram atribuídas ao poço quântico que confina os *dots*.

5.5 – COMPARAÇÕES DAS DIFERENTES TAXAS DE CRESCIMENTO E ESTRUTURAS DAS AMOSTRAS

Neste tópico faremos algumas comparações entre as amostras de QDs (convencionais e DWELL) para analisar a influência dos diferentes modos e taxas de deposição e das estruturas das amostras nas energias de transições dos QDs. Uma breve descrição e justificativa das comparações que faremos são apresentadas a seguir:

→ *Energia das transições versus modo de crescimento do InAs*

Esta comparação será feita com o objetivo de determinar qual o modo de crescimento (contínuo ou pulsado) é mais eficiente para deslocar as transições dos QDs (convencionais e DWELL) para menor energia (ou maior comprimento de onda). Comparamos:

3067 [QD convencional – contínuo] x 3069 [QD convencional – pulsado]
3015 [DWELL – contínuo] x 3014 [DWELL – pulsado]

→ *Energia das transições versus taxa de deposição do InAs*

Através desta comparação analisaremos a dependência da energia das transições com a taxa de deposição do InAs nas amostras. As amostras comparadas neste tópico serão as seguintes:

3012 [QD convencional – 0.0084 ML/s] x 3067 [QD convencional – 0.087 ML/s]

→ Energia das transições versus estrutura das amostras

Neste tópico comparamos as amostras com mesmo modo de crescimento (contínuo ou pulsado) e estruturas diferentes entre si, ou seja, crescidas diretamente sobre o GaAs ou no interior de um QW de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ com barreiras de GaAs. As amostras comparadas serão as seguintes:

3015 [DWELL – contínuo] x 3067 [QD convencional – contínuo]

3014 [DWELL – pulsado] x 3069 [QD convencional - pulsado]

5.5.1 – ENERGIA DAS TRANSIÇÕES X MODO DE CRESCIMENTO DO InAs

Na Figura 5.15 apresentamos uma comparação entre as energias das transições dos QDs nas amostras 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e 3069 [QD convencional – cresc. pulsado], no intervalo de temperatura de 12 K a 160 K.

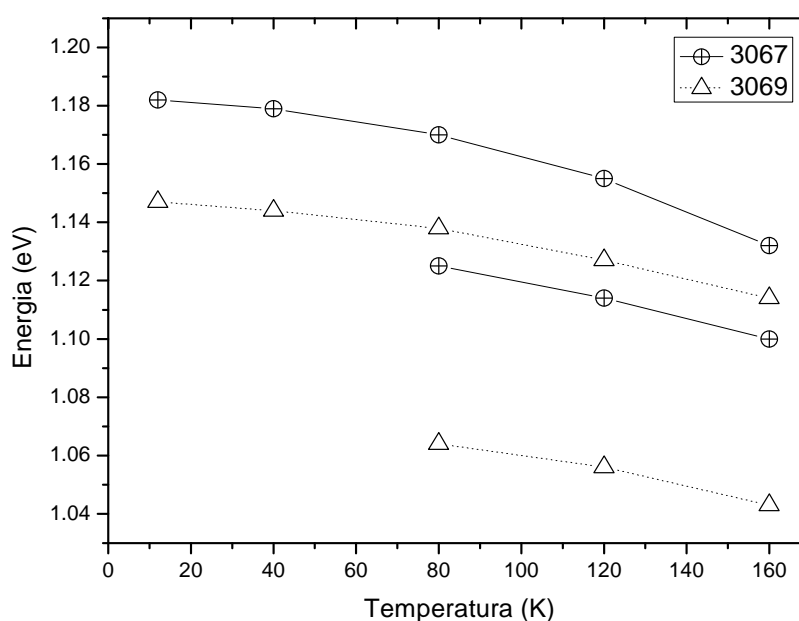


Figura 5.15 – Comparação da dependência com a temperatura das duas transições associadas aos QDs das amostras 3067 (⊕) e 3069 (Δ).

Podemos observar que a transição do nível fundamental da amostra 3069 tem menor energia que da amostra 3067, e que ambas as transições fundamentais evoluem de maneira semelhante com a temperatura. Quanto às transições de maior energia das duas amostras notamos que a amostra 3069 apresenta menores valores se comparado com a amostra 3067, e que elas evoluem de maneira diferente com a temperatura, possivelmente devido às diferentes origens destas transições, como discutido anteriormente.

Na Figura 5.16 comparamos as amostras 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3014 [DWELL – cresc. pulsado], no intervalo de temperatura de 12 K a 120 K.

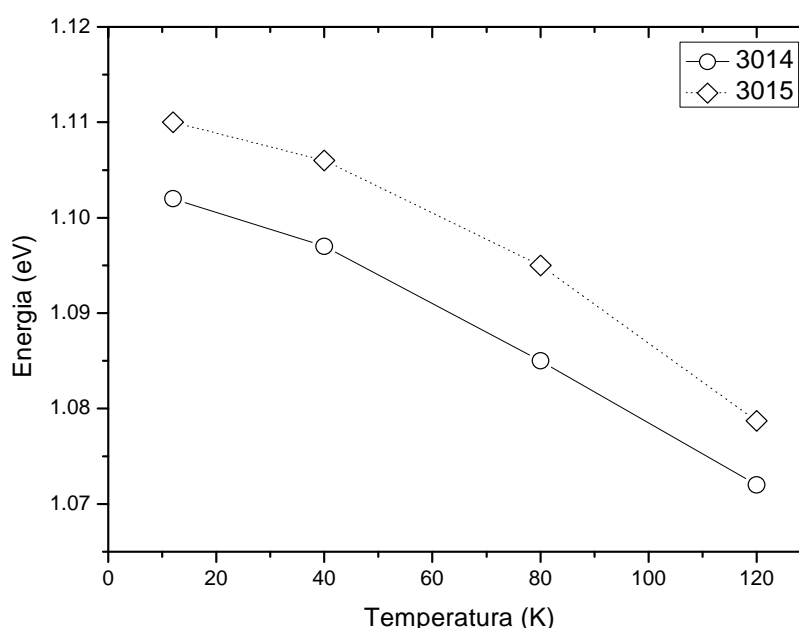


Figura 5.16 – Comparação da dependência com a temperatura da transição associada aos QDs das amostras 3014 (O) e 3015 (◇).

Notamos em média uma diferença em energia de 9 meV entre as transições do nível fundamental da amostra 3014 [cresc. Pulsado] e 3015 [cresc. contínuo, 0.105 ML/s] no intervalo de temperatura de 12 K a 120 K.

As amostras crescidas utilizando a técnica pulsada (3014 e 3069) apresentam menores energias de transição comparadas com as amostras crescidas com deposição contínua (3015 e 3067), respectivamente. Isto é uma forte evidência de que o crescimento através de técnica pulsada gera QDs maiores. A técnica pulsada foi visivelmente mais eficiente para o

deslocamento da emissão para menores energias na amostra com estrutura convencional (3069) do que na amostra DWELL (3014).

5.5.2 – ENERGIA DAS TRANSIÇÕES X TAXA DE DEPOSIÇÃO DO InAs

Na Figura 5.17 apresentamos a dependência com a temperatura das transições associadas aos *dots* das amostras 3012 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.0084 ML/s] e 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s], no intervalo de temperatura de 12 K a 240 K.

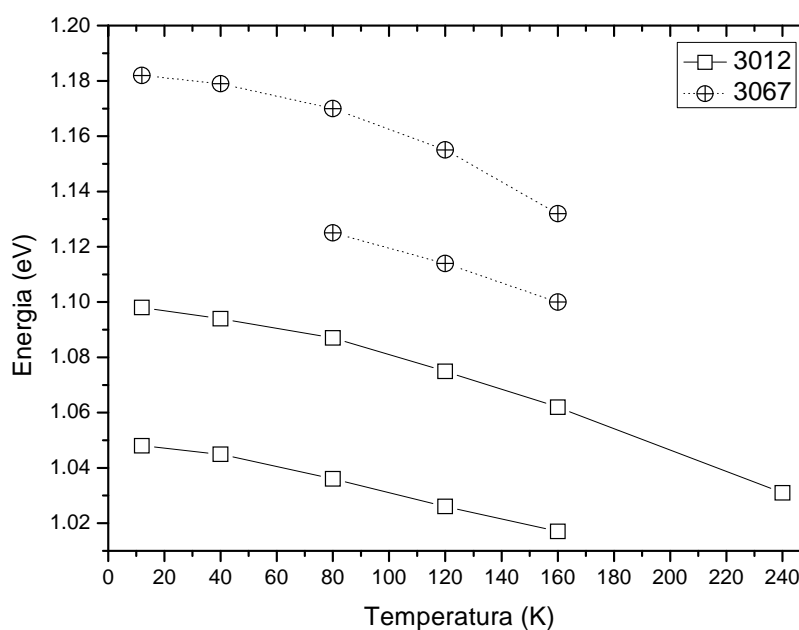


Figura 5.17 – Comparação da dependência com a temperatura das duas transições associadas aos QDs das amostras 3012 (□) e 3067 (⊕).

Podemos observar que a redução de aproximadamente uma ordem de grandeza na taxa de deposição do InAs reflete em uma menor energia das transições da amostra 3012 com relação às transições da amostra 3067 em todo o intervalo de temperatura analisado. A redução da taxa de deposição em aproximadamente uma ordem de grandeza provocou um

deslocamento para menores energias de 89 meV nas transições do nível fundamental e 83 meV nas transições de maior energia.

A alteração na velocidade de crescimento provoca modificações nas dimensões dos QDs, alterando a energia de emissão destas estruturas. Portanto, taxas de deposição mais lentas geram QDs maiores.

5.5.3 – ENERGIA DAS TRANSIÇÕES X ESTRUTURA DAS AMOSTRAS

Na Figura 5.18 apresentamos uma comparação entre a dependência com a temperatura das transições dos QDs das amostras 3015 [DWELL – cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s], no intervalo de temperatura de 12 K a 160 K.

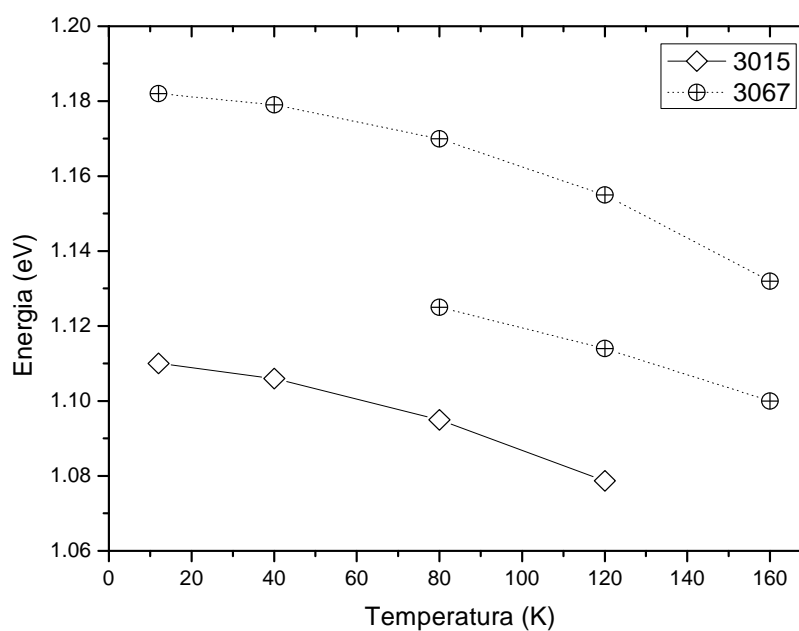


Figura 5.18 – Comparação da dependência com a temperatura das transições associadas os QDs das amostras 3015 (◇) e 3067 (⊕).

Podemos notar que na amostra em que os pontos quânticos foram crescidos dentro de um poço quântico de InGaAs com concentração de 14% de alumínio (3015 – DWELL) a energia da transição do nível fundamental dos *dots* foi menor comparada à amostra 3067 (QD convencional). Isso se deve ao fato de que na amostra 3015 os pontos são crescidos sobre o $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$, que tem um parâmetro de rede igual a $a_{\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}} = 5,709 \text{ \AA}$, enquanto na amostra 3067 os pontos são crescidos sobre o GaAs, que tem um parâmetro de rede igual a $a_{\text{GaAs}} = 5,653 \text{ \AA}$. A redução do descasamento de rede do InAs com o $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ resulta em uma redução na tensão da rede, possibilitando o crescimento de uma camada mais espessa de InAs antes da formação das ilhas. Assim os QDs gerados têm tamanhos maiores, contribuindo então para o *redshift* na energia das transições.

Na Figura 5.19 comparamos a dependência com a temperatura das transições dos QDs das amostras 3014 [DWELL – cresc. pulsado] e 3069 [QD convencional – cresc. pulsado], no intervalo de temperatura de 12 K a 160 K.

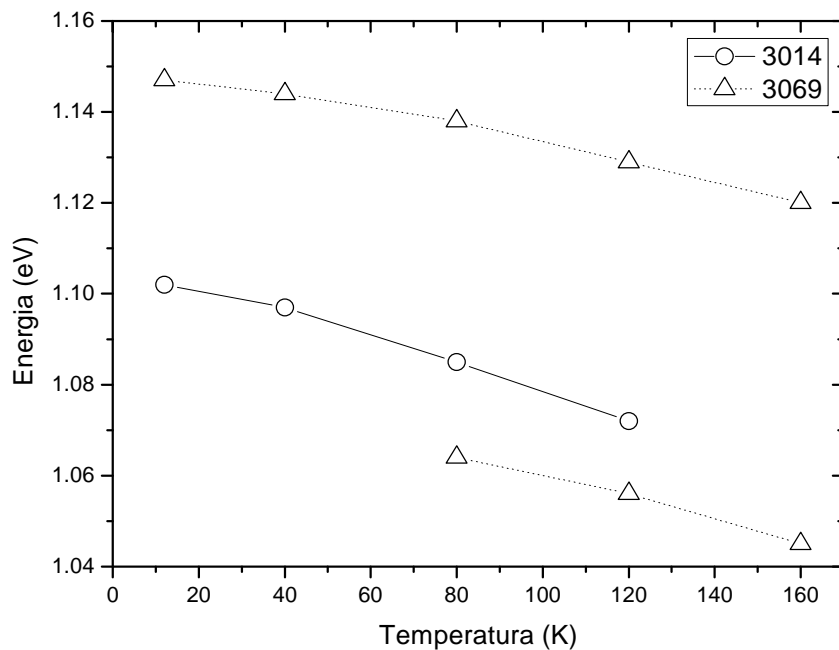


Figura 5.19 – Comparação da dependência com a temperatura das transições associadas aos QDs das amostras 3014 (O) e 3069 (Δ).

Na comparação entre as amostras DWELL e QD convencional crescidos através da técnica pulsada podemos notar que a transição do nível fundamental da amostra com estrutura

DWELL (3014) tem maior energia se comparada com a transição fundamental da amostra 3069 (QD convencional). Desta maneira, a estrutura mais eficiente para o deslocamento da energia de absorção para menores valores em QDs crescidos através do modo pulsado é a estrutura convencional.

Na Tabela 5.4 apresentamos os menores comprimentos de onda observados para o conjunto de amostras de QDs (convencionais e DWELL) estudadas.

Tabela 5.4 – Comprimento de onda das transições observadas através da fotorefletância.

Transições	Comprimento de onda das transições (μm)				
	3012	3067	3015	3069	3014
	PR (160 K)	PR (160 K)	PR (120 K)	PR (160 K)	PR (120 K)
QD1	1.22	1.128	1.150	1.190	1.157
QD2	1.168	1.096		1.114	

Com relação ao objetivo de se obter dispositivos operando na região da janela óptica de telecomunicações (1.31 e 1.55 μm) o melhor resultado que observamos foi com a amostra 3012, que a temperatura de 160 K apresentou a transição do nível fundamental com comprimento de onda de 1.22 μm (como pode ser visto na Tabela 5.4). Dispositivos que sejam funcionais e viáveis para aplicação no dia a dia devem operar à temperatura ambiente, no entanto não foi possível fazer a caracterização destas amostras através da fotorefletância até tal temperatura.

Em resumo, das comparações feitas podemos concluir que:

- O crescimento através da técnica pulsada se mostrou mais eficiente para deslocar a energia das transições para menores valores nas amostras com estrutura convencional.
- Taxas lentas de deposição geram QDs maiores e conseqüentemente com transições de menor energia.
- Para amostras crescidas com taxas de deposição contínua, o emprego da estrutura DWELL deslocou visivelmente a energia da transição dos QDs se comparado com a amostra 3067 [QD convencional – cresc. contínuo, 0.087 ML/s], que tem as condições de crescimento

próximas do padrão para QDs. No entanto, para as amostras crescidas através da técnica pulsada não observamos este comportamento.

CAPÍTULO 6

Conclusões

Neste trabalho investigamos pontos quânticos auto-organizados (*self-assembled quantum dots*) de InAs crescidos sobre GaAs, formando uma estrutura convencional de QDs e também pontos quânticos de InAs crescidos no interior de um poço quântico de $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ com barreiras de GaAs, que formam uma estrutura denominada na literatura de *dot-in-a-well* (DWELL). Empregando a técnica de fotorefletância é possível detectar as transições dos QDs e DWELL presentes nas amostras e através da análise do comportamento da energia das transições com a temperatura determinar as possíveis origens de todas as transições observadas. Com as energias das transições, obtidas através do ajustes dos espectros de PR, conseguimos estimar o tamanho dos QDs convencionais, usando o modelo proposto por *Marzin e Bastard* ^[6.1]. Comparando a energia das transições dos QDs (convencionais e DWELL) conseguimos observar experimentalmente a influência das condições de crescimento das amostras na energia de absorção das transições.

Para maior clareza, vamos dividir as principais conclusões em três grupos:

Quanto à forma de linha das transições:

- Em geral, a intensidade das transições dos QDs convencionais e DWELL são pequenas se comparadas com o QW simples. Isto possivelmente está relacionado à baixa quantidade de material (no caso, o InAs que forma os QDs) que absorve a radiação incidente na amostra. Uma vez que a PR é uma técnica baseada na absorção, a pequena quantidade de material (InAs) absorvendo a radiação incidente contribui diretamente para a baixa intensidade do sinal.
- A forma de linha nos espectros de PR das amostras varia ligeiramente de um modo de crescimento para outro. Amostras crescidas através da técnica pulsada apresentam espectros com transições mais definidas. O modo de crescimento pulsado, que resulta em uma deposição mais lenta possivelmente possibilitou a formação de interfaces melhores entre os

QDs e o GaAs, contribuindo para o surgimento de um campo elétrico mais homogêneo, melhorando assim o sinal de PR. Podemos visualizar também a diferença entre as transições dos QDs (convencionais e DWELL) e do QW simples. As transições observadas na amostra de poço quântico simples são bem definidas, com pequena largura de linha e grande intensidade de sinal, enquanto as transições dos *dots* têm grande largura de linha e baixa intensidade. A grande largura de linha apresentada pelos *dots* pode ser associada a uma larga distribuição de tamanhos destas estruturas.

Quanto à origem das transições:

- Para as amostras de QDs convencionais (3012 [Cresc. contínuo, 0.0084 ML/s], 3067 [Cresc. contínuo, 0.087 ML/s] e 3069 [Cresc. pulsado]) observamos através da PR duas transições associadas aos QDs. Para as amostras 3012 e 3067, identificamos as transições como sendo do nível fundamental de duas famílias distintas de pontos quânticos; no caso da amostra 3069 atribuímos as duas transições observadas aos níveis fundamental e excitado de uma mesma família de QDs.
- Nas amostras com estrutura DWELL (3015 [Cresc. contínuo, 0.105 ML/s] e 3014 [Cresc. pulsado]) observamos três transições. A transição de menor energia foi identificada como sendo do nível fundamental dos *dots*. As duas transições de maior energia possivelmente estão associadas ao poço quântico que confina os *dots* nestas amostras.

Quanto à energia de emissão dos pontos quânticos:

Modificando as condições de crescimentos das monocamadas de InAs conseguimos alterar a energia das transições dos QDs significativamente. O melhor resultado obtido foi para a amostra 3012 (crescida através da deposição contínua com taxa lenta), que comparada com a amostra 3067 que tem a taxa de crescimento mais próxima do padrão, teve um deslocamento do comprimento de onda da transição do nível fundamental dos QDs de 92 nm para maiores valores, alcançando o comprimento de onda de 1.22 μm .

Extensões deste trabalho:

- Realizar medidas de eletrorefletância sem contato – CER (*Contactless Electroreflectance*) neste conjunto de amostras, de modo a observar as transições dos QDs a temperaturas próximas a ambiente.
- Estudar amostras de QDs crescidos diretamente sobre o $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ *bulk*, com diferentes concentrações de In na liga para analisar os efeitos da tensão resultante do descasamento de rede no tamanho e na energia de transição dos *dots*.
- Realizar medidas de AFM em novas amostras de QDs, para obter o tamanho destas estruturas e dar suporte à análise dos espectros de PR e PL.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

CAPÍTULO 1

- [1.1] A. Forchel, R. Steffen, T. Koch, M. Michel, M. Albrecht, T. L. Reinecke, *Semicond. Sci. Technol.* **11**, 1529 (1996).
- [1.2] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, A. Lemaitre, J. M. Gerard, *Phys. Rev. B* **65**, 033313 (2002).
- [1.3] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. M. Ribeiro, P. M. Petroff, *Europhys. Lett.* **36**, 197 (1996).
- [1.4] G. L. Rowland, T. J. C. Hosea, S. Malik, D. Childs, R. Murray, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3268 (1998).
- [1.5] G. Sek, K. Ryczko, J. Misiewicz, M. Bayer, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel, *Solid State Commun.* **117**, 401 (2001).
- [1.6] P. P. G. Borrero. *Crescimento e caracterização de pontos quânticos naturais de InAs e In_{0,5}Ga_{0,5}As sobre diferentes orientações cristalográficas do substrato de GaAs*. 1998. Tese (Doutorado) – Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos.
- [1.7] L. Jacak, P. Hawrylak, A. Wojs, *Quantum Dots* (Springer, Berlin) (1998).
- [1.8] H. Sakaki, *Surf. Sci.* **267**, 623 (1992).
- [1.9] M. J. Steer, D. J. Mowbray, W. R. Tribe, M. S. Skolnick, M. D. Sturge, M. Hopkinson, A. G. Cullis, C. R. Whitehouse, R. Murray, *Phys. Rev. B* **54**, 17738 (1996).
- [1.10] M. Isaacson, A. J. Murray, *Vac. Sci. Technol.* v.9, p.1117, 1981.
- [1.11] J. Ibáñez, R. Cuscó, S. Hernández, L. Artús, M. Henini, A. Patané, L. Eaves, M. Roy, P. A. Maksym, *J. Appl. Phys.* **99**, 043501 (2006).
- [1.12] J. H. Lee, Z. M. Wang, B. L. Liang, K. A. Sablon, N. W. Strom, G. L. Salamo, *Semicond. Sci. Technol.* **21**, 1547 (2006).

- [1.13] N. K. Cho, S. P. Ryu, J. D. Song, W. J. Choi, J. I. Lee, H. Jeon, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 133104 (2006).
- [1.14] I. N. Stranski and L. Krastanow, *Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien, Math.- Naturwiss. Kl., Abt. 2B* **146**, 797 (1938).
- [1.15] T. Okawa, Y. Yamauchi, J. Yamamoto, J. Yoshida, K. Shimomura, *J. Crys. Growth* **298**, 562-566 (2007).
- [1.16] B. L. Liang, Z. M. Wang, K. A. Sablon, Y. I. Mazur, G. J. Salamo, *Nanoscale Res. Lett.* **2**, 609-613 (2007).
- [1.17] T. E. Lamas, A. A. Quivy, *Braz. J. Phys.* **36**, 2A, 405 (2006).
- [1.18] L. Seravalli, M. Minelli, P. Frigeri, S. Franchi, G. Guizzetti, M. Patrini, T. Ciabattini, M. Geddo, *J. Appl. Phys.* **101**, 024313 (2007).
- [1.19] M. S. Skolnick, D. J. Mowbray, *Annu. Ver. Mater. Sci.* **34**, 181 (2005).
- [1.20] G. T. Liu, A. Stintz, H. Li, T. C. Newell, A. L. Gray, P. M. Varangis, K. J. Malloy, L. F. Lester, *IEEE J. Quantum Electron.* **36**, 1272 (2000).
- [1.21] A. I. Tartakovskii, R. S. Kolodka, H. Y. Liu, M. A. Migliorato, M. Hopkinson, M. N. Makhonin, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 131115 (2006).
- [1.22] W. R. Rudzinski, K. Ryczko, G. Sek, J. Misiewicz, M. J. da Silva, A. A. Quivy, *Solid State Commun.*, **135**, 232 – 236, (2005).
- [1.23] J. R. Lee, C. R. Lu, W. I. Lee, S. C. Lee, *Physica E*, **25**, 562 – 568, (2005).
- [1.24] B. Q. Sun, Z. D. Lu, D. S. Jiang, J. Q. Wu, Z. Y. Xu, Y. Q. Wang, J. N. Wang, W. K. Ge, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2657 (1998).
- [1.25] J. S. R. Ramirez, A. P. Mora, E. C. Hernández, A. P. Centeno, M. M. Lira, V. H. M. Garcia, M. L. López, *Physica E* **32**, 139-143 (2006).
- [1.26] M. Geddo, R. Ferrini, G. Guizzetti, M. Patrini, S. Franchi, P. Frigeri, G. Salviati, L. Lazzarini, *Eur. Phys. J. B.* **16**, 19-24 (2000).

CAPÍTULO 2

- [2.1] F. H. Pollak, H. Shen, Mater. Sci. and Eng. R10, 275-374 (1993).
- [2.2] O. J. Glembocki, B. V. Shanabrook, N. Bottka, W. T. Beard, J. Comas. Photorefectance characterization of gallium arsenide/aluminum gallium arsenide thin films, heterojunctions and multiple quantum well structures. Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. 524, 86-89 (1985).
- [2.3] O. J. Glembocki, B. V. Shanabrook, N. Bottka, W. T. Beard, J. Comas, Appl. Phys. Lett. **46**, 970-972 (1985).
- [2.4] D. E. Aspnes, Handbook on Semiconductors, v.2 (editado por M. Balkanski, North Holland, Amsterdam) (1980).
- [2.5] D. E. Aspnes, Semiconductors and Semimetals, v. 9. Academic Press, (1972).
- [2.6] R. L. Aggarwal, Semiconductors and Semimetals, v. 9, p. 167, Academic Press, (1972).
- [2.7] D. E. Aspnes, J. E. Rowe, Phys. Rev. Lett. **27**, 188 (1971).
- [2.8] D. E. Aspnes, A. A. Studna, Phys. Rev. B **7**, 4605 (1973).
- [2.9] D. E. Aspnes. Surface Science **37**, 418 (1973).
- [2.10] E. Laureto, I. F. L. Dias, J. L. Duarte, H. Iwamoto, S. A. Lourenço, E. Di Mauro, M. T. P. Freitas, D. O. T. Filho. *Caracterização de materiais semicondutores pela técnica de fotorefletância*. 1998. Nota Técnica (NT003) do Grupo de Óptica e Optoeletrônica, Departamento de Física – Universidade Estadual de Londrina

CAPÍTULO 3

- [3.1] W. R. Rudzinski, K. Ryczko, G. Sek, J. Misiewicz, M. J. da Silva, A. A. Quivy, Solid State Commun., **135**, 232 – 236, (2005).
- [3.2] J. R. Lee, C. R. Lu, W. I. Lee, S. C. Lee, Physica E, **25**, 562 – 568, (2005).

- [3.3] L. Jacak, P. Hawrylak, A. Wojs, *Quantum Dots*, Springer, Berlin, 1998.
- [3.4] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu, IEEE J. Quantum Electron. **22** 1915 (1986).
- [3.5] A. A. Ukhanov, A. Stintz, P. G. Eliseev, K. J. Malloy, Appl. Phys. Lett. **84** 1058 (2004).
- [3.6] F. Hache, D. Ricard, C. Flytzanis, Appl. Phys. Lett. **55**, 1504 (1998).
- [3.7] G. Gumbs, D. Huang, H. Qiang, F. H. Pollak, P. D. Wang, C. M. Sotomayor Torres, C. Holland, Phys. Rev. B **50**, 10962 (1994).
- [3.8] B. E. Maile, A. Forchel, R. Germann, D. Grützmacher, Appl. Phys. Lett. **54**, 1552 (1989).
- [3.9] L. van Hove, Phys. Rev. **89**, 1189 (1953).
- [3.10] S. M. Sze, *Physics of Semiconductors Devices*. Wiley Interscience, (1981).
- [3.11] J. S. Blakemore, J. Appl. Phys. **53**, R123 (1982).
- [3.12] J. R. Chelikowsky, M. L. Cohen, Phys. Rev. B **14** (2), 556 (1976).
- [3.13] S. Adachi, *Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds*. John Wiley and Sons, (1992).
- [3.14] J. Singh, *Physics of Semiconductors and Their Heterostructures*, McGraw-Hill, 1993.
- [3.15] A. Madhukar, Q. Xie, P. Chen, A. Konkar, Appl. Phys. Lett. **64**, 2727 (1994).
- [3.16] Z. M. Fang, K. Y. Ma, D. H. Jaw, R. M. Cohen, G. B. Stringfellow, J. Appl. Phys. **67** (11), 7034 (1990).
- [3.17] S. Paul, J. B. Roy, P. K. Basu, J. Appl. Phys. **69** (2), 827 (1991).
- [3.18] I. Daruka, A. L. Barabási, Phys. Rev. Lett. **79**, 3708 (1997).
- [3.19] I. N. Stranski and L. Krastanow, Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien, Math.- Naturwiss. Kl., Abt. 2B **146**, 797 (1938).
- [3.20] J. Tersoff and F. K. LeGoues, Phys. Rev. Lett. **72**, 3570 (1994).
- [3.21] Y. Chen, J. Washburn, Phys. Rev. Lett. **77**, 4046 (1996).
- [3.22] A. Madhukar, P. Chen, Q. Xie, A. Konkar, T. R. Ramachandran, N. P. Kobayashi and R. Viswanathan, in: *Low Dimensional Structures prepared by Epitaxial Growth or*

- Regrowth on Patterned Substrates*, Ed. K. Eberl et al., Kluwer Academic Publishers, Amsterdam (1995).
- [3.23] J. F. R. da Cunha. *Propriedades de transporte lateral de portadores e energia em heteroestruturas dopadas de poços e pontos quânticos*. 2007. Tese (Doutorado) – Universidade de Brasília.
- [3.24] W. Seifert, N. Carlsson, M. Miller, M. E. Pistol, L. Samuelson, L. R. Wallenberg, *Prog. Crystal growth and Charact.* **33**, 423 – 471 (1996).
- [3.25] W. R. Rudzinski, G. Sek, J. Misiewicz, T. E. Lamas, A. A. Quivy, *J. Appl. Phys.* **101**, 073518 (2007).
- [3.26] D. Leonard, K. Pond, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. B* **50**, 11687 (1994).
- [3.27] S. Franchi, G. Trevisi, L. Severalli, P. Frigeri, *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials* **47**, 166 (2003).
- [3.28] J. Y. Marzin, G. Bastard, *Solid State Communic.* **92**, n.5, 437 (1994).

CAPÍTULO 4

- [4.1] J. R Arthur, *J. Appl. Phys.*, **39**, 4032 (1968).
- [4.2] A. Y. Cho, *J. Appl. Phys.* **41**, 2780 (1970).
- [4.3] I. F. L Dias, R. C. Teixeira, J. L. Duarte, *Introdução aos semicondutores e suas aplicações tecnológicas*, ed. Eduei, (2005).
- [4.4] S. Franchi, G. Trevisi, L. Severalli, P. Frigeri, *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials* **47**, 166 (2003).
- [4.5] F. H. Pollak, H. Shen, *Modulation spectroscopy of semiconductors: bulk/thin film, microstructures, surfaces/interfaces and devices. Materials Science and Engineering*, Lausanne, v. 10, n.7-8, p. 275-374 (1993).
- [4.6] L. D. Souza, I. F. L. Dias, E. Laureto, D. O. T. Filho, J. L. Duarte, *Semina*, **29**, n.1, 93 (2008).

- [4.7] J. S. R. Ramirez, A. P. Mora, E. C. Hernández, A. P. Centeno, M. M. Lira, V. H. M. Garcia, M. L. López, *Physica E* **32**, 139-143 (2006).
- [4.8] J. Misiewicz, G. Sek, K. Ryczko, *Curr. Appl. Phys.* **3**, 417 (2003).
- [4.9] A. Kurtenbach, C. Ulrich, N. Y. Jin-Phillipp, F. Noll, K. Eberl, K. Syassen, and F. Phillipp, *J. Electron. Mater.* **25**, 395 (1995).
- [4.10] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J. L. Merz, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. B* **52**, 5732 (1995).
- [4.11] F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, D. Haase, P. Ernst, A. Dornen, F. Scholz, and H. Schweizer, *J. Appl. Phys.* **83**, 1631 (1998).
- [4.12] R. Heitz, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, and Zh. I. Alferov, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 361 (1996).
- [4.13] M. J. Steer, D. J. Mowbray, W. R. Tribe, M. S. Skolnick, M. D. Sturge, M. Hopkinson, A. G. Cullis, C. R. Whitehouse, R. Murray, *Phys. Rev. B* **54**, 17738 (1996).
- [4.14] G. L. Rowland, T. J. C. Hosea, S. Malik, D. Childs, R. Murray, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3268 (1998).
- [4.15] D. E. Aspnes, Modulation spectroscopy electric field effects on the dielectric function of semiconductors. In: MOSS, T. S., BALKANSKI, M. (Ed.). *Handbook on semiconductors*. Amsterdam: North-Holland, 1980. v. **2**, Cap. 4A. p. 109.

CAPÍTULO 5

- [5.1] L. Seravalli, M. Minelli, P. Frigeri, S. Franchi, G. Guizzetti, M. Patrini, T. Ciabattini, M. Geddo, *J. Appl. Phys.* **101**, 024313 (2007).
- [5.2] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures* (J. Wiley and Sons, London, 1999).
- [5.3] W. R. Rudzinski, K. Ryczko, G. Sek, J. Misiewicz, M. J. da Silva, A. A. Quivy, *Solid State Commun.*, **135**, 232 – 236, (2005).

- [5.4] J. R. Lee, C. R. Lu, W. I. Lee, S. C. Lee, *Physica E*, **25**, 562 – 568, (2005).
- [5.5] B. Q. Sun, Z. D. Lu, D. S. Jiang, J. Q. Wu, Z. Y. Xu, Y. Q. Wang, J. N. Wang, W. K. Ge, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2657 (1998).
- [5.6] J. S. R. Ramirez, A. P. Mora, E. C. Hernández, A. P. Centeno, M. M. Lira, V. H. M. Garcia, M. L. López, *Physica E* **32**, 139-143 (2006).
- [5.7] M. Geddo, R. Ferrini, G. Guizzetti, M. Patrini, S. Franchi, P. Frigeri, G. Salviati, L. Lazzarini, *Eur. Phys. J. B.* **16**, 19-24 (2000).
- [5.8] J. Y. Marzin, G. Bastard, *Solid State Communic.* **92**, n.5, 437 (1994).

CAPÍTULO 6

- [6.1] J. Y. Marzin, G. Bastard, *Solid State Communic.* **92**, n.5, 437 (1994).

PARTICIPAÇÃO EM CONGRESSOS, EVENTOS E PUBLICAÇÕES NO PERÍODO DO MESTRADO

* Relacionados ao tema de trabalho do mestrado;

** Não relacionados ao tema de trabalho do mestrado.

I) PUBLICAÇÕES

** 1) *Diodos emissores de luz como fonte de bombeio em fotorefletância*. **L. D. SOUZA**, I. F. L. Dias, E. Laureto, D. O. T. Filho, J. L. Duarte, Semina. Ciências Exatas e Tecnológicas (Impresso), v. 29, p. 93-100 (2008).

II) PARTICIPAÇÃO EM CONGRESSOS E EVENTOS

** 1) *Estudo de heteroestruturas semicondutoras de baixa dimensionalidade através da técnica de fotorefletância*. **L. D. Souza**, E. Laureto, I. F. L. Dias. XVII Encontro anual de iniciação científica, Foz do Iguaçu – PR. 2008.

** 2) *Estudo de semicondutores com “gap” ajustável*. B. C. Amorim, **L. D. Souza**. XIII Semana da Física, Universidade Estadual de Londrina, Londrina – PR. 2008.

* 3) *Optical characterization of self-assembled quantum dots of InAs by photoreflectance*. **L. D. Souza**, E. Laureto, I. F. L. Dias, J. L. Duarte, F. Franchello, A. A. Quivy. XXXII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada, Águas de Lindóia – SP. 2009.

* 4) *Photoluminescence in self-assembled quantum dots of InAs grown with different deposition rates*. F. Franchello, J. L. Duarte, E. Laureto, I. F. L. Dias, **L. D. Souza**, A. A. Quivy. XXXII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada, Águas de Lindóia – SP. 2009.

* 5) *Estudo da influência das condições de crescimento na energia de emissão de pontos quânticos auto-organizados de InAs através da técnica de fotorefletância*. **L. D. Souza**, E. Laureto, F. Franchello, J. L. Duarte, I. F. L. Dias. XIV Semana da Física, Universidade Estadual de Londrina, Londrina – PR. 2009.

* 6) *Fotoluminescência em pontos quânticos auto-organizados de InAs crescidos com diferentes taxas de deposição*. F. Franchello, E. Laureto, **L. D. Souza**, I. F. L. Dias, J. L. Duarte. XIV Semana da Física, Universidade Estadual de Londrina, Londrina – PR. 2009.