



UNIVERSIDADE
ESTADUAL DE LONDRINA

ÉLDER MANTOVANI LOPES

**ESTUDO DAS PROPRIEDADES ÓPTICAS DA SUPER-REDE
InGaAS/InGaAlAs:
SI ATRAVÉS DA TÉCNICA DE FOTOLUMINESCÊNCIA**

Londrina
2005

ÉLDER MANTOVANI LOPES

**ESTUDO DAS PROPRIEDADES ÓPTICAS DA SUPER-REDE
InGaAS/InGaAlAs:
SI ATRAVÉS DA TÉCNICA DE FOTOLUMINESCÊNCIA**

Dissertação de Mestrado apresentada ao curso de Pós-graduação em Física da Universidade Estadual de Londrina, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em Física.

Orientador: Prof.^o Dr^o José Leonil Duarte

Londrina
2005

ÉLDER MANTOVANI LOPES

**ESTUDO DAS PROPRIEDADES ÓPTICAS DA SUPER-REDE
InGaAS/InGaAlAs:
SI ATRAVÉS DA TÉCNICA DE FOTOLUMINESCÊNCIA**

COMISSÃO EXAMINADORA

Prof. Dr. José Leonil Duarte
Universidade Estadual de Londrina

Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano Dias
Universidade Estadual de Londrina

Prof. Dr. José Cláudio Galzerani
Universidade Federal de São Carlos

Londrina, 25 de fevereiro de 2005

DEDICATÓRIA

À meus pais Irineu e Claudinéa, razões pelas quais vivo.

À minhas irmãs Milene e Liliane, razões pelas quais desejo continuar vivendo.

À meu eterno amigo Theo, que me mostrou que além de viver e desejar continuar vivendo é preciso fazê-los de maneira intensa.

AGRADECIMENTOS

Meus sinceros agradecimentos a todos que contribuíram para a realização deste trabalho, em especial:

Ao Prof. José Leonil Duarte, pela amizade, pela orientação, pelo incentivo, pela confiança e principalmente pelo exemplo.

Ao amigo Luiz Carlos Poças com o qual tive o prazer em dividir a amizade, as discussões e as preocupações.

Ao Prof. Ivan Frederico Lupiano Dias e ao amigo Edson Laureto, poetas que me ensinaram manter a esperança por toda a eternidade.

Aos amigos Dari de Oliveira Toginho Filho e Sidney Alves Lourenço, pela constante ajuda e incentivo.

Ao Prof. Jean Christophe Harmand, pela amostra de super-rede.

Ao Prof. Sriganesh Prabhu, pelos ajustes computacionais para “verificação do pico excitônico”.

À todos os meus amigos da Física, em especial aos eternos: Fernando, Mari, Jô, Manuela e Rômulo, sem os quais a universidade não teria o mesmo espírito.

Aos demais amigos, de Londrina e de Osvaldo Cruz, pela cooperação e pela compreensão.

Aos meus familiares, pela confiança e pelo incentivo.

À CAPES e ao Departamento de Física – UEL, pelo apoio financeiro.

LOPES, Élder M. **Estudos das Propriedades Ópticas da Super Rede InGaAs/InGaAlAs; Si** Através da Técnica de Fotoluminescência. 2005. 96f. Dissertação (Mestrado em Física). Universidade Estadual de Londrina. Londrina, 2005.

RESUMO

Neste trabalho investigamos, através da técnica de fotoluminescência, uma super-rede semicondutora de $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}/\text{In}_{0,52}\text{Ga}_{0,235}\text{Al}_{0,24}\text{As}$ dopada com Si, crescida através da técnica de epitaxia por feixe molecular (MBE), sobre InP. As origens das transições ópticas observadas nos espectros de fotoluminescência são atribuídas através da análise do comportamento das transições com a temperatura e a potência de excitação e da comparação com resultados encontrados na literatura. Constatamos a presença de flutuações de potencial de pequena magnitude. Comparamos os resultados experimentais para a transição excitônica com aqueles obtidos a partir de cálculos computacionais baseados na relação de dispersão de energia das mini-bandas de super-redes, estando ambos em excelente concordância. Obtivemos a energia de emissão excitônica de 9 a 300 K e analisamos a aplicabilidade dos modelos de Varshni, Viña e Pässler à variação da energia da transição excitônica observada na super-rede estudada, em função da temperatura, sendo que se mostrou necessária a utilização do modelo de Pässler para ajustar essa variação de maneira adequada. Realizamos, também, um estudo comparativo da variação da emissão excitônica com a temperatura para o InGaAs "bulk" (material constituinte do poço) e para a super-rede.

Palavras – chave: Semicondutores. Fotoluminescência.

ABSTRACT

In this work we investigate, using the photoluminescence technique, a Si doped $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}/\text{In}_{0,52}\text{Ga}_{0,235}\text{Al}_{0,24}\text{As}$ semiconductor superlattice, grown by molecular beam epitaxy technique (MBE), on a InP substrate. The origins of the optical transitions observed in the photoluminescence spectra are attributed by analyzing the transitions behavior with temperature and excitation power and by the comparison with results found in the literature. We have verified the presence of potential fluctuations of low magnitude. We compare the experimental results for the excitonic transitions with that obtained by computational calculations based on the dispersion relation for the superlattice energy mini-bands, being both in excellent agreement. We have measured the excitonic emission from 9 to 300 K and analyzed the applicability of the Varshni, Viña and Pässler models for the variation of the excitonic energy transition observed in the studied super-lattice, as a function of temperature, and it was shown necessary the use of the Pässler model to adjust this variation properly. We have also accomplished a comparative study of the variation of the excitonic emission with the temperature for the InGaAs “bulk” (well material) and the superlattice.

Keywords: Semiconductors. Photoluminescence.

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Valores da energia de “gap” e da massa efetiva para elétrons, buracos leves e buracos pesados para o InGaAs.	44
Tabela 2 – Valores da energia de “gap” e da massa efetiva para elétrons, buracos leves e buracos pesados para o InGaAs.	45
Tabela 3 – Resultados dos cálculos computacionais para a SR 72402. Apenas as transições permitidas são mostradas.	56
Tabela 4 – Valores dos parâmetros obtidos através da deconvolução dos espectros de fotoluminescência, a baixas potências, para a SR 72402 a 9 K.	61
Tabela 5 – Valores dos parâmetros obtidos através da deconvolução dos espectros de fotoluminescência, a potência de 0.1 mW, para a SR 72402 a 23 K.	69
Tabela 6 – Parâmetros obtidos para o ajuste da variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura utilizando os modelos de Varshni, Viña e Pässler.	82
Tabela 7 – Parâmetros obtidos para o ajuste da variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura utilizando o modelo de Pässler para a SR 72402 e o InGaAs “bulk” (Fig. 29).	83

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Estrutura de bandas do GaAs, característica dos semicondutores de estrutura cristalina do tipo “zinc-blend”.....	18
Figura 2 – Primeira zona de Brillouin da rede cúbica de face centrada. Esta célula unitária com seus pontos e linhas de alta simetria é muito importante para a física de semicondutores ^[39]	18
Figura 3 – a)Aço quântico, b) Representação do perfil de potencial do poço quântico; z é a direção de crescimento do poço quântico, L_w representa a largura do poço, e_1 representa o primeiro nível de elétrons, hh_1 representa o primeiro nível de buracos pesados e lh_1 representa o primeiro nível de buracos leves.....	19
Figura 4 – Possíveis estruturas de bandas em heteroestruturas.	20
Figura 5 – Poço quântico de potencial infinito.	22
Figura 6 – Poço quântico de potencial finito.....	25
Figura 7 – a) Super-rede construída através da sobreposição de camadas dos materiais semicondutores A e B, (b) Penetração das funções de onda nas barreiras e poços,c) Formação das mini-bandas de energia (para elétrons e buracos) ao longo da super-rede.	29
Figura 8 – Perfil de energia potencial de um segmento de uma super rede de período $d = L + h$	30
Figura 9 – Gráfico do lado direito da Eq. (73) ($F(\varepsilon)$) em função da energia ε ^[40] .Não foram consideradas massas efetivas diferentes para as regiões dos poços e das barreiras.	35
Figura 10 – Comparação entre os três modelos que descrevem a variação do “gap” de energia do GaAs com a temperatura (Eq. (74), Eq. (77) e Eq. (81)). Os valores experimentais, que são representados por pontos, foram obtidos através da técnica de fotoluminescência por Grilli e colaboradores ^[28] para o GaAs e redigitalizados, posteriormente, por Pässler ^[25] . A linha pontilhada indica a curva assintótica no limite de altas temperaturas ($E_g(T) = E_g(T=0) - \alpha(T - \Theta/2)$). A intersecção entre a linha pontilhada e a reta paralela à escala de temperatura que passa sobre $E_g(T=0)$, representada pela cruz, marca o ponto $\beta = \Theta/2 = 112.8$ K.	41
Figura 11 – Estrutura da SR 72402.....	46

- Figura 12** – Representação esquemática das possíveis recombinações em um poço quântico de InGaAs/InGaAlAs. Apenas as transições envolvendo buracos pesados são mostradas. Transições envolvendo buracos leves ($E(n_1-lh_1)$, $E(E_{bx}-lh_1)$ e $E(D^0-lh_1)$) também podem ocorrer.....49
- Figura 13** – Esquema da técnica de fotoluminescência: 1 Refrigeração do laser 2 Laser Ar⁺, 3 Prisma, 4 Filtro circular giratório, 5 Filtros de densidade neutra, 6 Chopper, 7 Lentes convergentes, 8 Espelho, 9 Amostra, 10 Criostato, 11 Sistema de vácuo, 12 Sistema de ciclo fechado de Hélio, 13 Sistema de controle de temperatura, 14 Monocromador, 15 Fotodetector, 16 Sistema de refrigeração do fotodetector, 17 Lock-In, 18 Sistema de aquisição de dados.....54
- Figura 14** – Espectros de fotoluminescência da SR 72402 a 9 K obtidos utilizando-se diferentes potências de excitação: a) de 0,014 a 0,25 mW; b) de 0,25 a 10 mW e c) de 10 a 200 mW.58
- Figura 15** – Deconvolução dos espectros de fotoluminescência da SR 72402 a 9 K para as potências de: a) 0,014 mW; b) 0,025 mW e c) 0,055 mW.....59
- Figura 16** – Espectros de fotoluminescência para a SR 72402 a 9 K para os quais realizamos a deconvolução. Os espectros foram deslocados verticalmente a fim de obter-se uma melhor visualização de seus comportamentos com a potência.60
- Figura 17** – Energia do pico em função da potência de excitação através dos resultados obtidos para a deconvolução dos espectros utilizando 3 curvas Gaussianas: a) curva 1; b) curva 2 e c) curva 3. As linhas pontilhadas em a) e b) são apenas “guias” para os olhos.62
- Figura 18** – Energia do pico em função da potência de excitação para a curva 3 da deconvolução. Os pontos iniciais foram obtidos através da deconvolução dos espectros e aqueles para potências mais elevadas foram estimados diretamente sobre o pico de energia.63
- Figura 19** – Intensidade integrada de PL versus potência de excitação (em escala logarítmica) para: a) curva 1; b) curva 2 e c) curva 3.64
- Figura 20** – Espectros da variação de temperatura da SR 72402 à potência de excitação de 0.1 Mw a) variação de 9 a 23 K; b) variação de 25 a 70 K (deslocados para melhor visualização).68

Figura 21 –Deconvolução do espectro de fotoluminescência da SR 72402 a 0.1 mW de excitação para a temperatura de 23 K.	69
Figura 22 –Variação do pico de maior energia (pico 3) em função da temperatura para a SR 72402 para P = 0,1 mW.	70
Figura 23 –Espectros vriação de temperatura da SR 72402 à potência de excitação de 1 mW: a) variação de 9 a 65 K; b) variação de 70 a 210 K.	74
Figura 24 –Variação do pico de energia em função da temperatura para a SR 72402 para P = 1 mW. Uma ampliação da região de baixas temperaturas é mostrada em detalhe.....	75
Figura 25 –Espectros da variação de temperatura da SR 72402 à potência de excitação de 10 mW: a) variação de 9 a 90 K; b) variação de 100 a 190 K; c) variação de 200 a 300 K.	76
Figura 26 –Variação do pico de energia em função da temperatura para a SR 72402 para P = 10 mW. Uma ampliação da região de baixas temperaturas é mostrada em detalhe.....	77
Figura 27 –Variação do pico de energia em função da temperatura para a SR 72402 para as potências de 0,1, 1 e 10 mW.	79
Figura 28 – Ajuste através dos modelos de Varshni, Viña e Pässler para a curva de variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura para a potência de 10 mW. Uma ampliação da região de baixas temperaturas é mostrada em detalhe.....	81
Figura 29 –Ajuste através do modelo de Pässler para a curva de variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura para a SR 72402 e para o InGaAs “bulk” ^[32] . Os dados foram obtidos nas mesmas condições experimentais. A curva para o InGaAs “bulk” foi deslocada verticalmente para uma melhor comparação.	83

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO	13
2 TEORIA DAS PROPRIEDADES ELETRÔNICAS DE HETEROESTRUTURAS ...	17
2.1 INTRODUÇÃO	17
2.2 MATERIAIS SEMICONDUTORES VOLUMÉTRICOS	17
2.3 POÇOS QUÂNTICOS	19
2.3.1 Poço Quântico de Potencial Infinito	22
2.3.2 Poço Quântico de Potencial Finito	24
2.4 SUPER – REDES	28
3 MODELOS QUE DESCREVEM A VARIAÇÃO DO “GAP” DE ENERGIA COM A TEMPERATURA	36
3.1 INTRODUÇÃO	36
3.2 MODELO DE VARSHINI	37
3.3 MODELO DE VIÑA.....	38
3.4 MODELO DE PASSLER	39
4 MATERIAIS SEMICONDUTORES E A AMOSTRA UTILIZADA	43
4.1 INTRODUÇÃO	43
4.2 PROPRIEDADES DO INGAAs.....	44
4.3 PROPRIEDADES DO INGAAlAs	45
4.4 A AMOSTRA SR 72402.....	46
5 A TÉCNICA DE FOTOLUMINESCÊNCIA	47
5.1 INTRODUÇÃO	47
5.2 PRINCÍPIOS FÍSICOS DA FOTOLUMINESCÊNCIA	48
5.2.1 Emissões Intrínsecas	49
5.2.1.1 Emissão de Éxcitons Livres (EX)	49
5.2.1.2 Emissão da Banda de Condução para a Banda de Valência	50
5.2.2 Emissões Extrínsecas	51
5.2.2.1 Emissão de Éxcitons Ligados.....	51
5.2.2.2 Emissão Banda – Impureza	52

5.2.2.3 Recombinação Doador – Aceitador ($D^0 - A^0$).....	53
5.3 SISTEMA EXPERIMENTAL DE FOTOLUMINESCÊNCIA	53
6 RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO	56
6.1 RESULTADOS DOS CÁLCULOS COMPUTACIONAIS	56
6.2 RESULTADOS E DISCUSSÃO DA FOTOLUMINESCÊNCIA COM VARIAÇÃO DE POTÊNCIA A BAIXAS TEMPERATURAS	56
6.2.1 Resultados de Fotoluminescência com Variação de Potência à Baixa Temperatura	56
6.2.2 Discussão da Fotoluminescência com Variação de Potência à Baixa Temperatura	65
6.3 RESULTADOS E DISCUSSÃO DA FOTOLUMINESCÊNCIA COM VARIAÇÃO DE TEMPERATURA A 0.1 mW	67
6.3.1 Resultados da Variação de Temperatura com $P = 0.1$ mW	67
6.3.2 Discussão da Variação de Temperatura com $P = 0.1$ mW.....	70
6.4 RESULTADOS E DISCUSSÃO DA FOTOLUMINESCÊNCIA COM VARIAÇÃO DE TEMPERATURA A 1 E A 10 Mw	73
6.4.1 Resultados da Variação de Temperatura com $P = 1$ e 10 Mw	73
6.4.2 Discussão da Variação de Temperatura com $P = 1$ e 10 Mw.....	78
6.5 RESULTADOS E DISCUSSÃO DOS MODELOS TEÓRICOS DE VARIAÇÃO DO “GAP” DE ENERGIA COM A TEMPERATURA.....	80
7 CONCLUSÕES	85
REFERÊNCIAS.....	87
ANEXOS	93
ANEXO 1: Participação em Congressos, Eventos e Publicações no Período da Dissertação.....	94

1 INTRODUÇÃO

O rápido desenvolvimento das técnicas de crescimento de materiais semicondutores nas últimas décadas ocasionou um grande impacto tecnológico nos setores da eletrônica e opto-eletrônica, devido, especialmente, à possibilidade de fabricação de inúmeros dispositivos baseados nas propriedades ópticas e elétricas destes materiais.

Com o conhecimento preciso de parâmetros dos materiais existentes, especialmente sobre a “lacuna de energia” entre o topo da banda de valência e o fundo da banda de condução, chamada usualmente de “gap” de energia, um grande número de ligas e estruturas semicondutoras puderam ser amplamente utilizadas para aplicações tecnológicas^[1], como por exemplo, para o desenvolvimento de “lasers”, células solares, etc..

Em 1970, Leo Esaki e Raphael Tsu^[2] sugeriram a possibilidade de se construir, controlando-se artificialmente o ordenamento atômico, estruturas totalmente diferentes das encontradas na natureza. Esta tarefa tornou-se possível com o aparecimento de técnicas epitaxiais de crescimento (como por exemplo a de MBE, Epitaxia por Feixe Molecular e a de CBE, Epitaxia por Feixe Químico), as quais possibilitaram a preparação de películas extremamente finas de materiais semicondutores com composição e espessuras precisamente controladas.

Devido à baixa velocidade de crescimento ($1\mu\text{m/h}$) e às condições de ultra-alto-vácuo, tornou-se possível o controle do crescimento ao nível de uma monocamada atômica, possibilitando a preparação de interfaces abruptas de alta qualidade^[3]. Variando-se a espessura destas camadas e escolhendo-se adequadamente os átomos constituintes, é possível controlar diretamente as propriedades físicas destas novas estruturas, dentre as quais, destacam-se os poços quânticos e as super-redes.

Atualmente é intensa a pesquisa em materiais semicondutores para a fabricação de dispositivos ópticos para a utilização em sistemas de telecomunicações. Para que as fibras ópticas utilizadas nestes sistemas tenham um melhor desempenho é necessária a utilização de lasers que emitam na região espectral de baixa atenuação e baixa dispersão cromática dessas fibras, o que é encontrado especialmente nas regiões em torno de $1.3\mu\text{m}$ e $1.55\mu\text{m}$ ^[4]. Lasers que

satisfaçam essas condições podem ser fabricados com a utilização de ligas ternárias e quaternárias de 3 famílias: GaInAsP, AlGaInAs e AlGaAsSb. No início do desenvolvimento de lasers de poços quânticos múltiplos com emissão em torno de 1.3 μm e 1.55 μm , entre 1976 e 1980, somente o sistema GaInAs/GaInAsP foi estudado^[5] devido principalmente ao desenvolvimento precoce da técnica de Epitaxia por Fase Líquida (LPE), que não permitia o emprego de materiais com base no alumínio (Al).

Atualmente, entretanto, é intenso o estudo dos materiais da família do Al devido a algumas vantagens que os tornam adequados para aplicações em diversos tipos de dispositivos utilizados em microeletrônica e opto-eletrônica^[5-13], como por exemplo, a maior descontinuidade da banda de condução (ΔE_c), que resulta em um melhor confinamento para os elétrons na banda de condução e, portanto, maior estabilidade em altas temperaturas^[14,15].

A análise das propriedades ópticas e elétricas de materiais e estruturas de materiais semicondutores em função da temperatura é importante tanto do ponto de vista da física básica como do ponto de vista das aplicações tecnológicas. Do ponto de vista da física básica pode-se, por exemplo, obter informações sobre o comportamento da forma da estrutura de bandas do material com a temperatura quando, em diferentes regiões de um mesmo espectro óptico, duas ou mais estruturas espectrais, associadas com diferentes pontos críticos da estrutura de bandas, apresentam comportamentos distintos com a temperatura. Podemos citar, como exemplos para aplicações tecnológicas, a variação do índice de refração com a temperatura (importante para projetar conversores de energia solar) e a alteração na resposta de moduladores e detectores^[16] provocada pela variação do “gap” de energia com a temperatura.

Após a segunda metade do século passados muitos pesquisadores voltaram a atenção para a obtenção de modelos que propunham expressões de ajuste para a variação do “gap” de energia com a temperatura, embora a relação dos parâmetros obtidos através destes modelos com os mecanismos físicos envolvidos no processo sejam alvo de intensa discussão na literatura científica^[17-27]. Alguns destes modelos são puramente empíricos, fornecendo parâmetros sem qualquer significado físico como, por exemplo, o modelo proposto por Varshni em 1967^[17]. Entretanto, outros modelos são semi-empíricos (com equações definidas

empiricamente mas que contem, em suas estruturas, conceitos físicos significativos), como os modelos de Viña e colaboradores^[21] (1984) e Pässler^[22] (1996).

Baseado em estudos^[22, 28] que demonstraram que um ajuste adequado não pode ser realizado com o modelo proposto por Varshni e que existe uma diferença significativa entre as equações de Varshni e Viña para a região de baixas temperaturas, Pässler chegou a conclusão de que para se obter um bom ajuste dos dados experimentais é necessário a utilização de uma equação com ao menos quatro parâmetros^[22], visto que os outros modelos usam apenas três parâmetros. Assim, a partir de 1996, Pässler desenvolveu uma série de modelos analíticos^[22-27] que já foram testados com sucesso em uma grande variedade de materiais elementares como Si^[23], em compostos binários como o GaAs^[25] e em heteroestruturas de poços quânticos^[29-32].

Porém, com relação à ligas quaternárias como o $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}/\text{InP}$ existe pouquíssima literatura sobre a variação do “gap” com a temperatura e não temos conhecimento de nenhuma análise desses modelos para esse material.

Além disso, há uma grande divergência na literatura sobre o fato das transições excitônicas em poços quânticos acompanharem a variação térmica do “gap” de energia do material constituinte do poço ou não. No caso de poços quânticos AlGaAs/GaAs alguns autores^[33-35] relatam que a variação da transição excitônica com a temperatura segue a variação do material constituinte do poço, enquanto outro autores^[29-32,36,37] relatam que a transição excitônica associada a buracos pesados não acompanha exatamente a variação do “gap” do material constituinte do poço com a temperatura.

Em muitos casos a dificuldade em se obter um bom ajuste surge devido à presença de flutuações na largura do poço e na composição química das ligas que compõem a heteroestrutura. Essas flutuações são fontes de desordem que modulam o perfil local do potencial de confinamento e possuem um forte efeito sobre o movimento dos portadores, o que afeta o desempenho dos dispositivos e o comportamento do “gap” de energia destas heteroestruturas com a temperatura. As técnicas de espectroscopia óptica tais como fotoluminescência, fotoluminescência de excitação e fotorefletância são algumas das técnicas mais utilizadas no estudo de materiais e heteroestruturas semicondutoras. Tais técnicas destacam-se pela riqueza das informações proporcionadas (determinação do “gap”, níveis de impurezas,

campo elétrico interno, defeitos na interface, etc.) além de possuírem um caráter não destrutivo.

Neste trabalho, realizamos um estudo das propriedades ópticas de uma amostra contendo uma super-rede de InGaAs/InGaAlAs dopada com Si (SR 72402), crescida pela técnica de MBE sobre substrato de InP, no *Laboratoire Concepts et Dispositifs pour la Photonique (CNRS) - França*. Para esta investigação, realizamos medidas de fotoluminescência (PL), em função da temperatura e da potência de excitação. Através da análise dos resultados obtidos com a utilização dessa técnica, identificamos uma série de estruturas que compõe o espectro de fotoluminescência dessa amostra. Realizamos uma discussão acerca da origem dessas estruturas, bem como do comportamento das mesmas em função da temperatura e da potência de excitação. Confirmamos os resultados obtidos através da comparação dos mesmos com as previsões de cálculos teóricos ou da concordância com os resultados de outros trabalhos encontrados na literatura. Discutimos, também, qual é o melhor modelo, dentre os três citados anteriormente, para se ajustar as curvas do comportamento do “gap” de energia (ou da transição excitônica) em função da temperatura. Fizemos, ainda, um estudo comparativo da variação da emissão excitônica com a temperatura para o InGaAs “bulk” (material constituinte do poço) e para a super-rede.

A seqüência deste trabalho está organizada da seguinte forma: no capítulo 2 apresentamos de forma resumida a teoria de heteroestruturas semicondutoras, tratando em particular dos poços quânticos e das super-redes. No capítulo 3 apresentamos a revisão dos três modelos mais utilizados para descrever a variação do “gap” de energia com o aumento da temperatura. O capítulo 4 é destinado a uma breve exposição das principais características da SR 72402, bem como dos materiais semicondutores que a compõe. No capítulo 5 apresentamos uma descrição da técnica experimental utilizada neste trabalho, a técnica de fotoluminescência. O capítulo 6 é dedicado à apresentação, análise e discussão dos resultados experimentais e, finalmente, o capítulo 7 é dedicado às conclusões.

2 DAS PROPRIEDADES ELETRÔNICAS DE HETEROESTRUTURAS

2.1 INTRODUÇÃO

Com o advento das modernas técnicas de crescimento epitaxial como, por exemplo, MBE (“Molecular Beam Epitaxy”), CBE (“Chemical Beam Epitaxy”) e MOCVD (“Metal-Organic Chemical Vapour Deposition”) é possível a fabricação de estruturas constituídas por camada extremamente finas (da ordem de algumas camadas atômicas) de materiais semicondutores, com interfaces altamente abruptas. Tais sistemas, também conhecidos como heteroestruturas, representam, na prática, um potencial de confinamento unidimensional. Na maioria dos casos, as propriedades especiais das heteroestruturas semicondutoras se devem ao comportamento dos portadores de carga (elétrons e buracos) em potenciais de confinamento previamente concebidos, visando alguma aplicação prática^[38].

Neste capítulo, apresentamos uma breve descrição dos principais aspectos teóricos que levam à compreensão dos conceitos referentes à heteroestrutura estudada neste trabalho, ou seja, uma super-rede.

2.2 MATERIAIS SEMICONDUTORES VOLUMÉTRICOS

Com o objetivo de discutirmos a abertura dos níveis de buracos (leves e pesados) em heteroestruturas, vamos expor, primeiramente, alguns conceitos relativos aos materiais volumétricos (“bulk”).

Na Fig. 1 mostramos a estrutura de bandas do semicondutor GaAs, que é representativa de grande parte das ligas semicondutoras formadas por materiais semicondutores que apresentam estrutura cristalina do tipo “zinc-blend”, como é o caso do InGaAs. O mínimo da banda de condução e o topo da banda de valência estão localizados no ponto de alta simetria Γ ($\vec{k}=0$) da zona de Brillouin (Fig. 2).

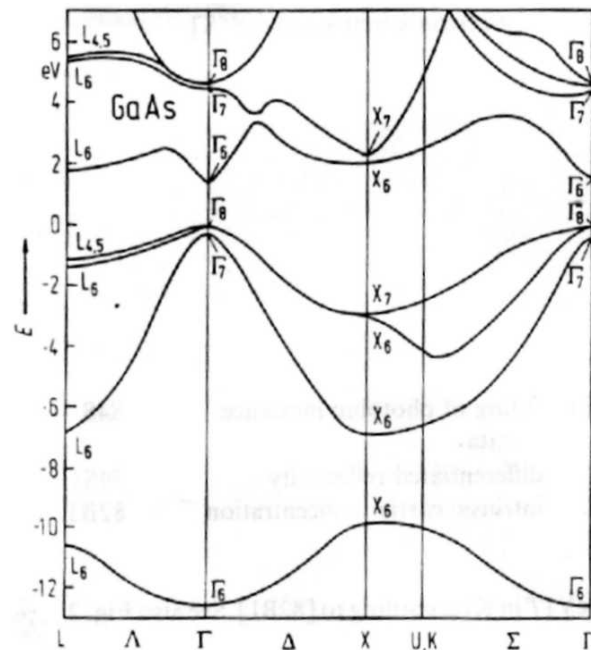


Figura 1 – Estrutura de bandas do GaAs, característica dos semicondutores de estrutura cristalina do tipo “zinc-blend”.

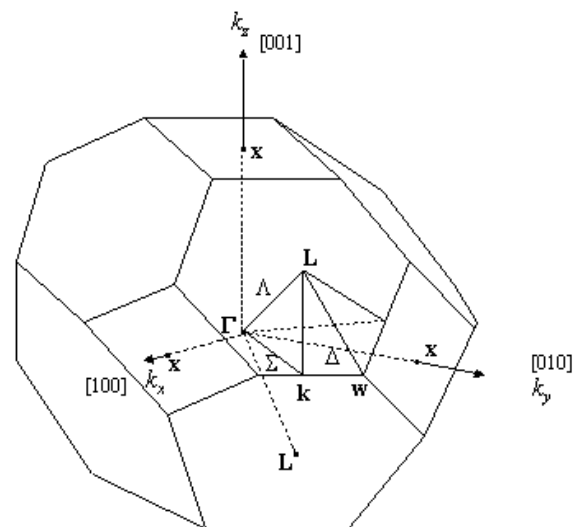


Figura 2 – Primeira zona de Brillouin da rede cúbica de face centrada. Esta célula unitária com seus pontos e linhas de alta simetria é muito importante para a física de semicondutores^[39].

As bandas de valência são degeneradas no ponto Γ . Efeitos de confinamento, como, por exemplo, em poços quânticos, levantam esta degenerescência. Próximo a $\vec{k}=0$ os estados de buracos apresentam curvaturas diferentes como pode-se visualizar na Fig. 1. A diferença na curvatura destes estados (de acordo com a definição de massa efetiva: $1/m^* \equiv (1/\hbar^2)(d^2E_{(k)}/dk^2)$, onde

m^* é a massa efetiva dos portadores de carga na rede cristalina) faz com que as massas efetivas dos buracos que ocupam tais estados sejam diferentes. Os buracos de massas maiores são chamados de buracos pesados e são identificados por hh – (do inglês “heavy hole”) e os buracos de massas menores são chamados de buracos leves e identificados por lh – (do inglês “light hole”).

2.3 POÇOS QUÂNTICOS

Dentre os diversos tipos de heteroestruturas que podem ser produzidas através das técnicas de crescimento epitaxial, o poço quântico é uma das mais pesquisadas. O poço quântico é um sistema composto de dois materiais semicondutores com “gaps” de energia diferentes. Um poço quântico pode ser construído crescendo-se, por exemplo, uma camada de InGaAs entre duas camadas de AlInGaAs. O AlInGaAs possui um “gap” de energia maior que o InGaAs e a estrutura criada forma uma região de confinamento bidimensional para os portadores de cargas, com níveis de energia característicos e diferentes do material InGaAs. A Fig. 3 apresenta o perfil do potencial criado por esta heteroestrutura.

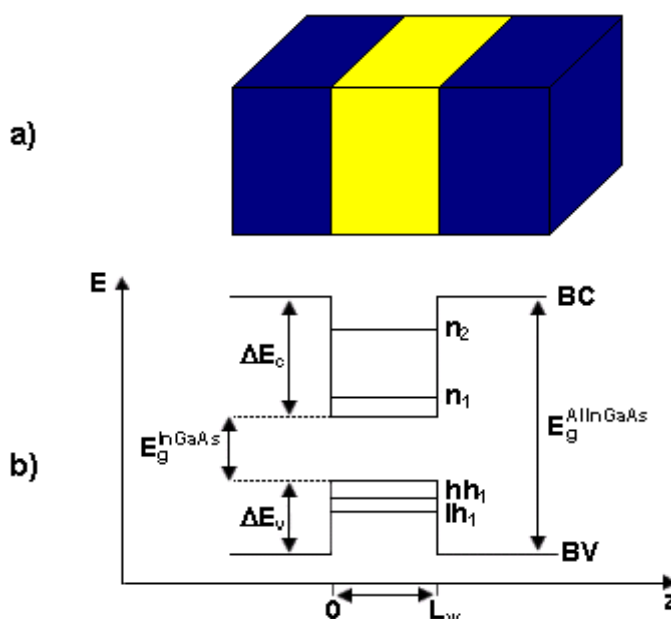


Figura 3 – a) Poço quântico, b) Representação do perfil de potencial do poço quântico; z é a direção de crescimento do poço quântico, L_w representa a largura do poço, e_1 representa o primeiro nível de elétrons, hh_1 representa o primeiro nível de buracos pesados e lh_1 representa o primeiro nível de buracos leves.

A origem do potencial da Fig. 3 pode ser explicada considerando-se a diferença de energia ΔE_g dada por:

$$\Delta E_g = E_g^{\text{AlInGaAs}} - E_g^{\text{InGaAs}} \quad (1)$$

onde E_g^{AlInGaAs} é o “gap” do material AlInGaAs e E_g^{InGaAs} é o gap do material InGaAs.

A diferença de energia “ ΔE_g ” distribui-se entre as bandas de valência e de condução de várias formas. Algumas possibilidades para a estrutura de bandas formada quando um semiconductor B (com gap E_g^B) é crescido sobre um semiconductor A (com gap E_g^A) são mostradas na Fig. 4.

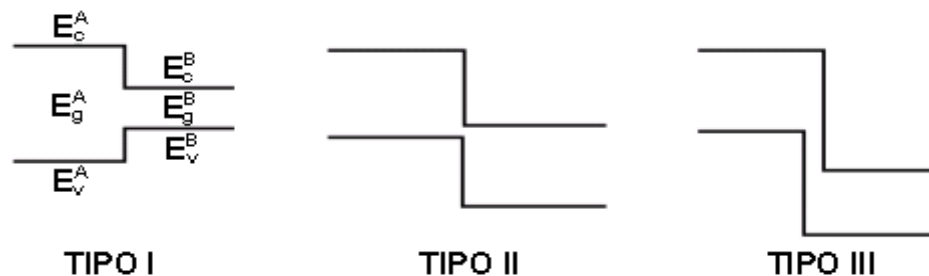


Figura 4 – Possíveis estruturas de bandas em heteroestruturas.

Cada estrutura de bandas mostrada acima possui aplicações específicas, sendo o tipo mais comum o tipo I, que dá origem ao tipo de poço quântico mostrado na Fig. 3.

Tentativas de desenvolvimento de formalismos teóricos que expliquem a formação de uma determinada estrutura de bandas, bem como o percentual de “ ΔE ” atribuído à banda de condução e à banda de valência, foram realizadas e verificou-se que o problema não é simples, sendo, ainda hoje, alvo de intensa pesquisa^[16].

A diferença de energia “ ΔE_g ” da Eq. (1) define um perfil de potencial unidimensional $V_{(z)}$ atrativo para os portadores na região $0 < z < L_w$, ou seja, origina-se um poço de potencial para elétrons na banda de condução e um poço de potencial para buracos na banda de valência. A espessura da camada de InGaAs na direção de crescimento (z) define a região do poço quântico e é representada por L_w .

O potencial descrito acima restringe o movimento dos portadores de carga (elétrons e buracos) na direção normal às interfaces (direção z),

permanecendo livre o movimento nas direções x e y. Desta maneira o movimento das partículas na direção z é quantizado. Essa quantização dos portadores de carga na direção z provoca o surgimento dos níveis de energias para elétrons (e_1, e_2, \dots, e_n), buracos leves (lh_1, lh_2, \dots, lh_3) e buracos pesados (hh_1, hh_2, \dots, hh_n).

No caso de heteroestruturas, os níveis de energia da banda de condução podem ser facilmente calculados através da resolução da equação de Schroedinger independente do tempo, que desenvolveremos a seguir.

A equação de Schroedinger dependente do tempo é:

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2 \chi(z,t)}{\partial z^2} + V(z)\chi(z,t) = i\hbar \frac{\partial \chi(z,t)}{\partial t} \quad (2)$$

Se $V(z)$ não varia com tempo, podemos escrever a função de onda como:

$$\chi(z,t) = \psi(z)\varphi(t) \quad (3)$$

o que implica:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2 \psi(z)}{dz^2} + V(z)\psi(z) \right] \varphi(t) = i\hbar \psi(z) \frac{d\varphi(t)}{dt} \quad (4)$$

Dividindo por $\psi(z)\varphi(t)$, temos:

$$\frac{-(\hbar^2 / 2m)(d^2 \psi(z) / dz^2) + V(z)\psi(z)}{\psi(z)} = i\hbar \frac{d\varphi(t) / dt}{\varphi(t)} \quad (5)$$

A última equação pode ser satisfeita apenas se ambos os lados forem iguais a uma constante, que chamaremos de E , de forma que teremos:

$$i\hbar \frac{d\varphi(t)}{dt} = E\varphi(t) \quad (6)$$

Cuja solução é:

$$\varphi(t) = Ce^{-iEt/\hbar}, \text{ Onde } C \text{ é uma constante} \quad (7)$$

e

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2 \psi(z)}{dz^2} + V(z)\psi(z) = E\psi(z) \quad (8)$$

Sendo esta equação conhecida como equação de Schroedinger independente do tempo.

Vamos tratar dois casos distintos: (i) o caso do poço de potencial infinito, onde não há penetração da função de onda na barreira e (ii) o caso do poço de potencial finito, onde ocorre a penetração da função de onda na barreira. Assim, o nosso problema consiste em resolver a equação de Schroedinger independente do tempo (Eq. (8)) nestes dois casos.

2.3.1 Poço Quântico de Potencial Infinito

Neste item iremos discutir o poço quântico de potencial infinito.

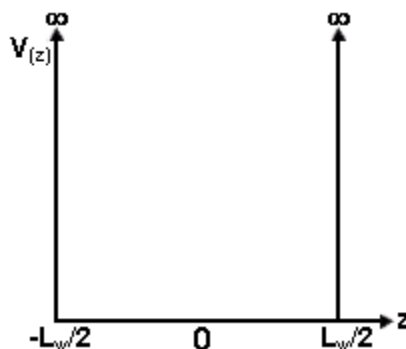


Figura 5 – Poço quântico de potencial infinito.

Considerando o centro do poço quântico como o centro de coordenadas (Fig. 5), o potencial toma a forma:

$$V_{(z)} = \begin{cases} 0 & \text{para } -L_w/2 < z < L_w/2 \\ \infty & \text{para } z \leq -L_w/2 \text{ ou } z \geq L_w/2 \end{cases} \quad (9)$$

A equação de Schroedinger independente do tempo, unidimensional, na região do poço é dada por:

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2 \psi_w(z)}{dz^2} = E \psi_w(z) \quad (10)$$

onde $E > 0$.

Fazendo:

$$K_w^2 = \frac{2m^* E}{\hbar^2} \quad (11)$$

Temos:

$$\frac{d^2 \psi_w(z)}{dz^2} = -K_w^2 \psi_w(z) \quad (12)$$

Esta equação diferencial tem como soluções exponenciais imaginárias do tipo:

$$\psi_w(z) = \exp(iK_w z) \text{ (ondas propagando para direita)} \quad (13)$$

$$\psi_w(z) = \exp(-iK_w z) \text{ (ondas propagando para esquerda)}$$

Assim, a função de onda $\psi_w(z)$ pode ser descrita como a combinação linear de duas ondas planas propagando em sentidos opostos.

$$\psi_w(z) = A \exp(iK_w z) + B \exp(-iK_w z) \quad (14)$$

Podemos obter uma onda estacionária fazendo $A = B$ ou $A = -B$, resultando em funções de onda do tipo:

$$\psi_w(z) = C \cos K_w z \quad (15)$$

ou

$$\psi_w(z) = C' \sin K_w z \quad (16)$$

Aplicando a condição de contorno $\psi(z) = 0$ para $z = L_w/2$ e $z = -L_w/2$, obteremos soluções aceitáveis apenas quando:

$$\frac{K_w L_w}{2} = \frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}, \frac{5\pi}{2}, \dots \text{ correspondente aos estados pares (Eq. (15))}$$

e

$$\frac{K_w L_w}{2} = \pi, 2\pi, 3\pi, \dots \text{ correspondente aos estados ímpares (Eq. (16))}$$

ou, generalizando:

$$K_w = \frac{n\pi}{L_w}, \text{ com } n = 1, 2, 3, \quad (17)$$

Substituindo a Eq. (17) na Eq. (11), encontramos os autovalores de energia:

$$E_n = \frac{\pi^2 \hbar^2 n^2}{2m^* L_w^2} \quad (18)$$

Considerando a contribuição da energia cinética dos elétrons nas direções x e y temos:

$$E = E_n + \frac{\hbar^2 (K_x^2 + K_y^2)}{2m^*} \quad (19)$$

O termo $\frac{\hbar^2 (K_x^2 + K_y^2)}{2m^*}$ está associado a cada nível de energia do poço quântico, criando assim uma sub-banda de energia^[40].

2.3.2 Poço Quântico de Potencial Finito

Considerando, novamente, o centro do poço quântico como o centro de coordenadas (Fig. 6), o potencial toma a forma:

$$V_{(z)} = \begin{cases} -\Delta E & \text{para } -L_w/2 < z < L_w/2 \\ 0 & \text{para } z \leq -L_w/2 \text{ ou } z \geq L_w/2 \end{cases} \quad (20)$$

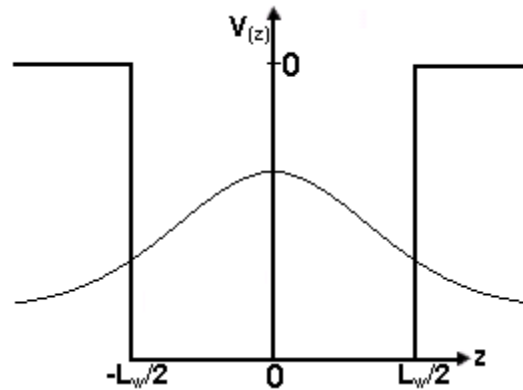


Figura 6 – Poço quântico de potencial finito.

Para $-\Delta E < E < 0$, temos penetração da função de onda na barreira, como pode ser visto na Fig. 6. A seguir vamos calcular a função de onda na região dentro do poço.

A solução da função de onda da equação de Schroedinger independente do tempo para a região dentro do poço tem a mesma forma da Eq. (15) e da Eq. (16):

$$\psi_w(z) = C \cos K_w z \quad (15)$$

$$\psi_w(z) = C' \sin K_w z \quad (16)$$

Sendo:

$$K_w^2 = \frac{2m_w^*(E_n + \Delta E)}{\hbar^2} \quad (21)$$

A solução para a região $z \geq L_w/2$ pode ser escrita como:

$$\psi_b(z) = D \exp(-K_b(z - L/2)) + E \exp(K_b(z - L/2)) \quad (22)$$

O termo $-L/2$ é acrescido no argumento das expressões acima devido ao fato de que a função de onda começa a decair exponencialmente a partir de $z = L/2$.

Analogamente para a região $z \leq -L_w/2$, temos:

$$\psi_b(z) = F \exp(K_b(z + L/2)) + G \exp(-K_b(z + L/2)) \quad (23)$$

Sendo:

$$K_b^2 = \frac{2m_b^* E_n}{\hbar^2} \quad (24)$$

Como sabemos que a função de onda tem que permanecer finita quando $|z| \rightarrow \infty$, temos que fazer $E = G = 0$, resultando em:

$$\psi_b(z) = D \exp(-K_b(z - L/2)) \text{ para } z \geq L_w/2 \quad (25)$$

$$\psi_b(z) = F \exp(K_b(z + L/2)) \text{ para } z \leq -L_w/2 \quad (26)$$

Os coeficientes C , C' , D e F podem ser determinados aplicando-se as condições de continuidade para a função de onda $\psi(z)$ e para $(1/m^*)/(\partial\psi/\partial z)$ (necessária para a conservação da corrente de partícula^[41]) nas interfaces ($z = \pm L_w/2$).

A condição de continuidade da função de onda impõe que:

$$\psi_b(z_{interface}) = \psi_w(z_{interface}) \quad (27)$$

Em seguida, deve-se considerar a continuidade de $(1/m^*)/(\partial\psi/\partial z)$ nas interfaces para que haja a conservação da corrente de partícula. Essa condição de continuidade impõe que:

$$\frac{1}{m_b^*} \frac{d\psi_b(z_{interface})}{dz} = \frac{1}{m_w^*} \frac{d\psi_w(z_{interface})}{dz} \quad (28)$$

Para os estados pares (Eq. (15)), na região dentro do poço, temos:

$$\psi_w(z) = C \cos K_w z \quad (29)$$

$$\frac{1}{m_w^*} \frac{d\psi_w(z)}{dz} = -\frac{1}{m_w^*} C K_w \text{sen} K_w z \quad (30)$$

E na região fora do poço:

$$\psi_b(z) = D \exp(-K_b(z - L/2)) \quad (31)$$

$$\frac{1}{m_b^*} \frac{d\psi_b(z)}{dz} = -\frac{1}{m_b^*} K_b D \exp(-K_b(z - L/2)) \quad (32)$$

Igualando a Eq. (29) e a Eq. (31) na interface $z = L/2$, temos:

$$D = C \cos K_w L/2 \quad (33)$$

Da mesma maneira com a Eq. (30) e a Eq. (32):

$$\frac{1}{m_w^*} C K_w \operatorname{sen} K_w L/2 = \frac{1}{m_b^*} K_b D \quad (34)$$

Substituindo a Eq. (33) na Eq. (34), obtemos:

$$\frac{K_b}{m_b^*} = \frac{K_w}{m_w^*} \operatorname{tg}(K_w L/2) \quad (35)$$

Para os estados ímpares (Eq. (16)), na região dentro do poço, temos:

$$\psi_w(z) = C' \operatorname{sen} K_w z \quad (36)$$

$$\frac{1}{m_w^*} \frac{d\psi_w(z)}{dz} = \frac{1}{m_w^*} C' K_w \cos K_w z \quad (37)$$

Para a região fora do poço:

$$\psi_b(z) = D \exp(-K_b(z - L/2)) \quad (38)$$

$$\frac{1}{m_b^*} \frac{d\psi_b(z)}{dz} = -\frac{1}{m_b^*} K_b D \exp(-K_b(z - L/2)) \quad (39)$$

Igualando a Eq. (36) e a Eq. (38) na interface $z = L/2$:

$$D = C' \operatorname{sen} K_w L/2 \quad (40)$$

Da mesma maneira com a Eq. (37) e a Eq. (39):

$$\frac{1}{m_w^*} C' K_w \cos K_w L/2 = -\frac{1}{m_b^*} K_b D \quad (41)$$

Substituindo a Eq. (40) na Eq. (41), obtemos:

$$\frac{K_b}{m_b^*} = -\frac{K_w}{m_w^*} \operatorname{cotg}(K_w L/2) \quad (42)$$

A Eq. (35) e a Eq. (42) não podem ser resolvidas analiticamente. Elas podem ser determinadas graficamente ou numericamente. Tais equações são chamadas de equações transcendentais e nos permitem determinar as energias de confinamento na banda de condução no ponto $\Gamma(\vec{k}=0)$. Para o caso especial em que $m_b^* \sim m_w^*$ a solução pode ser obtida graficamente e é encontrada em livros textos de mecânica quântica^[42,43]. O procedimento descrito anteriormente também pode ser aplicado aos buracos leves e buracos pesados na banda de valência.

Apenas determinadas transições (recombinações) ocorrem em poços quânticos. Na aproximação de poço quântico infinito, devido à ortogonalidade das funções de onda envelope que descrevem a distribuição dos elétrons nos diversos níveis de energia, apenas transições entre estados com mesmo número quântico n são possíveis (regra de seleção $\Delta n = 0$). Para poços quânticos finitos a regra pode ser quebrada uma vez que as funções de onda envelope não são exatamente ortogonais, o que nos leva à observação de transições com n 's diferentes. Ainda, na maioria dos casos em que se observam transições onde ocorre a quebra da regra de seleção $\Delta n = 0$, a *paridade* das funções de onda envelope é conservada, ou seja: $\Delta n = \text{par}$. Contudo, as transições $\Delta n = 0$ são as mais fortemente observadas em espectros de absorção e excitação^[41].

A função de onda $\psi(z)$ descreve uma onda no interior do poço e decaindo exponencialmente dentro da barreira, como pode ser observado na Fig. 6. A penetração da função de onda na barreira tem conseqüências importantes nas propriedades ópticas e de transporte de heteroestruturas e é aplicada de forma prática aos dispositivos semicondutores.

2.4 SUPER – REDES

Para se construir uma super-rede basta repetir o mesmo processo da construção de um poço quântico, com a deposição de novas camadas, como ilustrado na Fig. 7a.

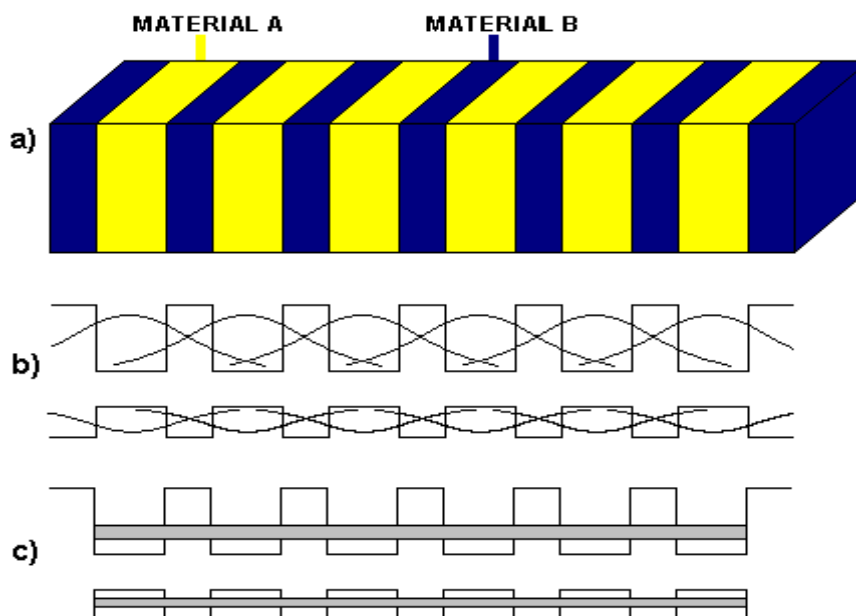


Figura 7 – (a) Super-rede construída através da sobreposição de camadas dos materiais semicondutores A e B, (b) Penetração das funções de onda nas barreiras e poços, (c) Formação das mini-bandas de energia (para elétrons e buracos) ao longo da super-rede.

Caso a distância entre dois poços consecutivos seja suficientemente pequena, é possível que um elétron “passe” de um poço ao outro (efeito denominado *tunelamento*), em virtude da existência de uma probabilidade não nula de o elétron se encontrar fora do poço, conseqüência da penetração da sua função de onda na barreira e em outros poços^[1] (Fig. 7b).

Assim como ocorre quando átomos isolados são unidos para a formação de um sólido, poços quânticos próximos também originam bandas, devido à interação entre seus níveis de energia (Fig. 7c). A seguir descreveremos o surgimento dessas bandas de energia, também conhecidas como sub-bandas ou mini-bandas.

Vamos considerar uma seqüência infinita de poços quânticos de largura L , separados por barreiras de espessura h ^[40] (Fig. 8).

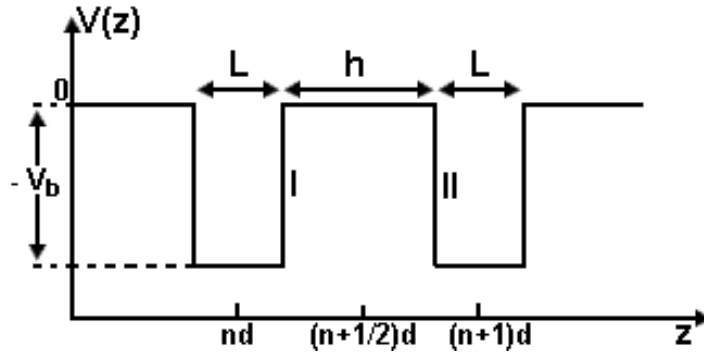


Figura 8 – Perfil de energia potencial de um segmento de uma super rede de período $d = L + h$.

A energia potencial $V_b(z)$ é uma função periódica de z com período d ($d=L+h$) e é dada pela expressão:

$$V_b(z) = \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} V_b(z - nd) \quad (43)$$

Onde:

$$V_b(z - nd) = \begin{cases} -V_b & \text{para } |z - nd| \leq L/2 \\ 0 & \text{para } |z - nd| > L/2 \end{cases} \quad (44)$$

As soluções da Eq. (8) são conhecidas exatamente para cada região: poço e barreira. Para energias positivas, ou seja, considerando-se uma partícula com energia maior do que a altura da barreira, temos:

$$\psi_w(z) = \alpha \exp(iK_w(z - nd)) + \beta \exp(-iK_w(z - nd)) \quad (45)$$

para $|z - nd| \leq L/2$, e

$$\psi_b(z) = \gamma \exp(iK_b(z - nd - \frac{d}{2})) + \delta \exp(-iK_b(z - nd - \frac{d}{2})) \quad (46)$$

para $|z - nd - d/2| \leq h/2$.

Assim, um elétron com energia maior que a altura da barreira ($\varepsilon > 0$), é afetado pelo potencial da super-rede, e sua energia é dada por:

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2 k_b^2}{2m^*} = -V_b + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} \quad (47)$$

Iremos agora explorar a periodicidade do potencial $V_b(z)$. Vamos considerar o operador de translação τ_d , tal que para qualquer função $f(z)$, $\tau_d f(z) = f(z + d)$. O operador comuta com o Hamiltoniano H da partícula, assim podemos encontrar autofunções de H que também são autofunções de τ_d . Os autovalores de τ_d podem ser escritos como $\exp(iqnd)$, onde q é um número complexo arbitrário. As funções $\psi(z)$ são autofunções tanto de H como τ_d e devem satisfazer não somente a equação de Schrödinger (Eq. 8), mas também a equação:

$$\tau_{nd} \psi_q(z) = \psi_q(z + nd) = \exp(iqnd) \psi_q(z) \quad (48)$$

Da mesma maneira que a Eq. (48), os ψ_q 's podem ser escritos na forma:

$$\psi_q(z) = u_q(z) \exp(iqz); \quad u_q(z + d) = u_q(z) \quad (49)$$

Ou seja, os ψ_q 's são produtos de um termo de onda plana por uma função periódica em z . A Eq. (48) e a Eq. (49) constituem o teorema de Bloch-Floquet, onde ψ_q é a função de Bloch e u_q é sua parte periódica associada.

Impondo condições de periodicidade nas interfaces, $\psi_q(z)$ deve ser tal que:

$$\psi_q(z + nd) = \psi_q(z) \quad (50)$$

Reescrevendo a Eq. (49) para $z + nd$:

$$\psi_q(z + nd) = u_q(z + nd) \exp(iq(z + nd)) = u_q(z) \exp(iqz) \exp(iqnd) \quad (51)$$

E utilizando a Eq. (50), temos:

$$\psi_q(z) = u_q(z) \exp(iqz) \exp(iqnd) \quad (52)$$

Comparando a Eq. (49) e a Eq. (52), notamos que:

$$\exp(iqnd) = 1 \quad (53)$$

A Eq. (53) só será satisfeita se:

$$qnd = 2p\pi, p = \text{inteiro} \quad (54)$$

Ou seja,

$$q = 2p\pi / nd \quad (55)$$

Consequentemente q deve ser real. Uma quantidade n de valores de q é permitida, sendo o espaçamento entre 2 desses valores dado por $2\pi / nd$.

Vamos agora expressar as condições de continuidade de ψ_q e $(1/m^*)(\partial\psi/\partial z)$ (Eq.(27) e Eq. (28)) nas interfaces da super-rede (Fig. 8). Na interface I, substituindo $z = nd + L/2$ na Eq. (45), temos:

$$\psi_w(nd + L/2) = \alpha \exp(iK_w L/2) + \beta \exp(-iK_w L/2) \quad (56)$$

Mas na interface I, z também pode assumir o valor $(n + 1/2)d - h/2$. Substituindo na Eq. (46):

$$\psi_b((n + 1/2)d - h/2) = \gamma \exp(-iK_b h/2) + \delta \exp(iK_b h/2) \quad (57)$$

Considerando $(1/m^*)(\partial\psi/\partial z)$ da Eq. (45) e da Eq. (46) e, da mesma forma que nas equações acima, substituindo os valores de z , temos:

$$\frac{1}{m_w^*} \frac{d\psi_w(nd + L/2)}{dz} = \frac{1}{m_w^*} [iK_w \alpha \exp(iK_w L/2) - iK_w \beta \exp(-iK_w L/2)] \quad (58)$$

$$\frac{1}{m_b^*} \frac{d\psi_b((n + 1/2)d - h/2)}{dz} = \frac{1}{m_b^*} [iK_b \gamma \exp(-iK_b h/2) - \delta iK_b \exp(iK_b h/2)] \quad (59)$$

Igualando a Eq. (56) com a Eq. (57) e a Eq. (58) com a Eq. (59), temos:

$$\begin{aligned} \alpha \exp(iK_w L/2) + \beta \exp(-iK_w L/2) \\ = \gamma \exp(-iK_b h/2) + \delta \exp(iK_b h/2) \end{aligned} \quad (60)$$

$$\frac{1}{m_w^*} [iK_w \alpha \exp(iK_w L/2) - iK_w \beta \exp(-iK_w L/2)]$$

$$= \frac{1}{m_b^*} [iK_b \gamma \exp(-iK_b h/2) - \delta iK_b \exp(iK_b h/2)] \quad (61)$$

Para a interface II, temos $z = (n + 1/2)d + h/2$ ou $z = (n + 1)d - L/2$.

Substituindo $z = (n + 1/2)d + h/2$ na Eq. (46) (para a barreira), temos:

$$\psi_b((n + 1/2)d + h/2) = \gamma \exp(iK_b h/2) + \delta \exp(-iK_b h/2) \quad (62)$$

Para $(1/m^*)/(\partial\psi/\partial z)$:

$$\frac{1}{m_b^*} \frac{d\psi_b((n + 1/2)d + h/2)}{dz} = \frac{1}{m_b^*} [iK_b \gamma \exp(iK_b h/2) - iK_b \delta \exp(-iK_b h/2)] \quad (63)$$

Para a região do poço vamos utilizar o teorema de Bloch e escrever:

$$\psi_q(z = (n + 1)d - L/2) = \exp(iqd) \psi_q(z = nd - L/2) \quad (64)$$

Assim, ao invés de substituirmos $z = (n + 1)d - L/2$ na Eq. (45), podemos substituir $z = nd - L/2$ e multiplicá-la por $\exp(iqd)$:

$$\psi_w((n + 1)d - L/2) = [\alpha \exp(-iK_w L/2) + \beta \exp(iK_w L/2)] \exp(iqd) \quad (65)$$

Da mesma maneira, para $(1/m^*)/(\partial\psi/\partial z)$:

$$\frac{1}{m_w^*} \frac{d\psi_w((n + 1)d - L/2)}{dz} = \frac{1}{m_w^*} [\alpha iK_w \exp(-iK_w L/2) - \beta iK_w \exp(iK_w L/2)] \exp(iqd) \quad (66)$$

Igualando a Eq. (62) com a Eq. (65) e a Eq. (63) com a Eq. (66), temos:

$$\begin{aligned} \gamma \exp(iK_b h/2) + \delta \exp(-iK_b h/2) \\ = [\alpha \exp(-iK_w L/2) + \beta \exp(iK_w L/2)] \exp(iqd) \end{aligned} \quad (67)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{m_b^*} [iK_b \gamma \exp(iK_b h/2) - iK_b \delta \exp(-iK_b h/2)] \\ = \frac{1}{m_w^*} [\alpha iK_w \exp(-iK_w L/2) - \beta iK_w \exp(iK_w L/2)] \exp(iqd) \end{aligned} \quad (68)$$

Finalmente, a Eq. (60), a Eq. (61), a Eq. (67) e a Eq. (68) resultam em um sistema de equações homogêneo 4x4 em α , β , γ e δ , o qual apresentará solução

não trivial, quando o determinante da matriz formada pelos coeficientes das equações for igual a zero, ou seja,

$$\begin{vmatrix} \exp[iK_w \frac{L}{2}] & \exp[-iK_w \frac{L}{2}] & -\exp[-iK_b \frac{h}{2}] & -\exp[iK_b \frac{h}{2}] \\ \frac{i}{m_w^*} K_w \exp[iK_w \frac{L}{2}] & -\frac{i}{m_w^*} K_w \exp[-iK_w \frac{L}{2}] & -\frac{i}{m_b^*} K_b \exp[-iK_b \frac{h}{2}] & \frac{i}{m_b^*} K_b \exp[iK_b \frac{h}{2}] \\ \exp[iqd] \exp[-iK_w \frac{L}{2}] & \exp[iqd] \exp[iK_w \frac{L}{2}] & -\exp[iK_b \frac{h}{2}] & -\exp[-iK_b \frac{h}{2}] \\ \exp[iqd] \frac{i}{m_w^*} K_w \exp[-iK_w \frac{L}{2}] & -\exp[iqd] \frac{i}{m_w^*} K_w \exp[iK_w \frac{L}{2}] & -\frac{i}{m_b^*} K_b \exp[iK_b \frac{h}{2}] & \frac{i}{m_b^*} K_b \exp[-iK_b \frac{h}{2}] \end{vmatrix} = 0$$

O determinante acima é zero se a seguinte equação for satisfeita:

$$\cos(qd) = \cos(K_w L) \cos(K_b h) - 1/2(\xi + 1/\xi) \sin(K_w L) \sin(K_b h) \quad (69)$$

Onde:

$$\xi = m_w^* K_b / m_b^* K_w \quad (70)$$

A Eq. (69) e a Eq. (70) são equações implícitas relacionando a energia permitida ε e o vetor de onda q , também conhecidas como relações de dispersão. Para um dado valor de q , estas equações admitem um número infinito de soluções; assim, para designar as várias soluções um “número de sub-banda” n é relacionado a ε e ψ . As sub-bandas permitidas ε_{nq} são separadas por gaps proibidos e a magnitude de tal gap decresce quando n cresce.

Consideramos até agora uma partícula (elétron) com energia acima da energia da barreira ($\varepsilon_{nq} \geq 0$). Vamos agora considerar o caso de uma partícula com energia menor do que a energia da barreira, ou seja, $-V_b \leq \varepsilon_{nq} \leq 0$. Para tal, são necessárias as seguintes transformações:

$$K_b = i\kappa_b \quad ; \quad \kappa_b = \sqrt{\frac{-2m_b^* \varepsilon}{\hbar^2}} \quad (71)$$

$$\xi \rightarrow i\tilde{\xi} \quad ; \quad \tilde{\xi} = m_w^* \kappa_b / m_b^* K_w \quad (72)$$

Assim, os estados permitidos deverão satisfazer a nova equação:

$$\cos(qd) = \cos(K_w L) \cosh(\kappa_b h) - 1/2(-\tilde{\xi} + 1/\tilde{\xi}) \sin(K_w L) \sinh(\kappa_b h) \quad (73)$$

Esta nova equação, relacionando os valores de energia permitidos e os valores do vetor de onda q , é uma equação fundamental, na qual o “software” que utilizaremos para calcular os valores em energia das transições da nossa super-rede (Capítulo 6) está baseado.

A Fig. 9 (a seguir) mostra um gráfico do lado direito da Eq. (73) (designado por $F(\varepsilon)$) em função da energia ε . Nessa figura não foram consideradas massas efetivas diferentes para as regiões dos poços e das barreiras.

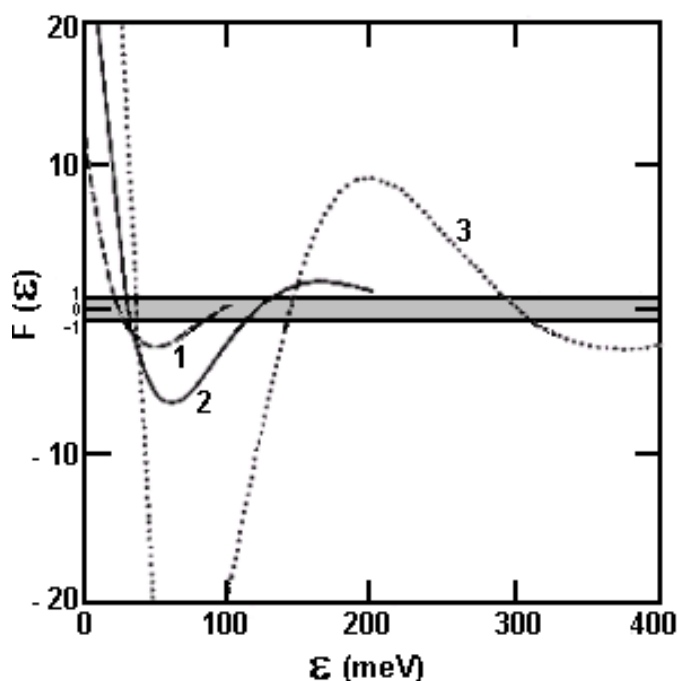


Figura 9 – Gráfico do lado direito da Eq. (73) ($F(\varepsilon)$) em função da energia ε ^[40]. Não foram consideradas massas efetivas diferentes para as regiões dos poços e das barreiras.

As três curvas mostradas na figura consideram barreiras potenciais (altura dos poços) diferentes: curva (1): $V = 0.1$ eV; curva (2): $V = 0.2$ eV e curva (3): $V = 0.4$ eV. A espessura do poço (L) é 100 \AA e a espessura da barreira é 50 \AA . As curvas são interrompidas ao atingirem o topo dos poços. A área hachurada corresponde aos estados permitidos da super-rede.

3.MODELOS QUE DESCREVEM A VARIAÇÃO DO “GAP” DE ENERGIA COM A TEMPERATURA

3.1 INTRODUÇÃO

Uma das principais características dos materiais semicondutores, tanto do ponto de vista acadêmico quanto das aplicações tecnológicas, é a dependência do “gap” de energia com a temperatura. Nas últimas décadas foram realizados muitos trabalhos visando o estudo e a compreensão de tal efeito e notou-se, experimentalmente, que a curva típica desta dependência apresenta um comportamento não linear (aparentemente quadrática) para temperaturas inferiores a 100 K e uma dependência linear para temperaturas superiores^[44].

A variação do “gap” de energia em função da temperatura nos materiais semicondutores ocorre, principalmente, devido à contribuição de dois mecanismos: a dilatação térmica da rede e a interação elétron-fônon^[45], sendo esta última a principal responsável pelo efeito. Embora alguns trabalhos com GaAs e $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, para $x = 0.06$ e $x = 0.15$, tenham registrado contribuições de 40 a 45% da dilatação térmica para a redução do “gap” de energia com a temperatura^[25,46], acredita-se que na maioria dos materiais semicondutores o mecanismo de dilatação térmica represente de 2 a 20% para a variação do “gap”^[20].

Além dos dois mecanismos descritos acima, flutuações locais do potencial cristalino induzidas por flutuações da composição química em ligas ternárias e quaternárias e/ou por flutuações de interfaces em heteroestruturas (como poços quânticos) também interferem no comportamento da variação da energia da transição excitônica com a temperatura.

Devido à “pequena” participação da dilatação térmica da rede, diversos modelos foram propostos considerando apenas o mecanismo de interação elétron-fônon como uma primeira tentativa na compreensão do comportamento da variação do “gap” de energia com a temperatura.

Neste capítulo faremos uma síntese dos três modelos mais importantes que tentam descrever a variação do “gap” de energia com a temperatura (sem considerar os efeitos da dilatação térmica) em materiais semicondutores, os

modelos de Varshni, Viña e Pässler. Consideramos esta discussão de fundamental importância, visto que um dos objetivos do presente trabalho é o de analisar e avaliar a aplicabilidade destes modelos às heteroestruturas, especialmente às super-redes.

3.2 MODELO DE VARSHINI

Na década de sessenta, Varshni propôs a primeira expressão analítica para ajustar o “gap” de energia com a temperatura para os materiais semicondutores^[17]. A expressão empírica proposta por Varshni é:

$$E_g(T) = E_g(0) - \alpha_{Var} \frac{T^2}{\beta + T} \quad (74)$$

Onde $E_g(0)$ é o “gap” de energia à temperatura de 0 K e α_{Var} e β são coeficientes a serem obtidos através do ajuste dos dados experimentais.

O comportamento da equação de Varshni para baixas e altas temperaturas (definidas em relação a β) pode ser estimado por:

$$E_g(T) \rightarrow E_g(0) - \frac{\alpha_{Var}}{\beta} T^2 \quad \text{para } T \ll \beta \quad (75)$$

$$E_g(T) \rightarrow E_g(0) - \alpha_{Var}(T - \beta) \quad \text{para } T \gg \beta \quad (76)$$

Como pode ser observado através das equações acima, a expressão de Varshni apresenta uma dependência *quadrática* para a região de baixas temperaturas e um comportamento *linear* para altas temperaturas.

O modelo de Varshni apresenta problemas, pois não fornece ajustes de boa qualidade, especialmente na região de baixas temperaturas. Verificou-se, por exemplo, que os valores numéricos de α_{Var} e β obtidos a partir dos ajustes variam significativamente de artigo para artigo. Para o GaAs observam-se faixas com valores variando entre $0.54 \text{ meV}/k_b \leq \alpha_{Var} \leq 1.06 \text{ meV}/k_b$ e $204 \text{ K} \leq \beta \leq 671 \text{ K}$ ^[24]. Apesar da grande divergência entre os parâmetros da equação de Varshni, este

modelo continuou sendo utilizado durante as últimas décadas, em virtude, sobretudo, de sua simplicidade. Contudo, visando obter expressões analíticas que não fossem totalmente empíricas e que pudessem resultar em melhores ajustes para os dados experimentais, outros modelos foram propostos.

3.3 MODELO DE VIÑA

Em 1984 Viña e colaboradores^[21] propuseram um modelo semi-empírico para descrever a variação do “gap” de energia com a temperatura, baseado na distribuição estatística de Bose-Einstein. A expressão proposta por Viña é definida por:

$$E_g(T) = E_B - a_B \left[1 + \frac{2}{\exp(\Theta_B/T) - 1} \right] \quad (77)$$

Onde $E_g(0) = E_B - a_B$ é o “gap” de energia à temperatura de 0 K, a_B descreve a intensidade da interação elétron-fônon e $\Theta_B \equiv \hbar\omega/k$ representa a energia média dos fônons na escala de temperatura^[21]. Muitos trabalhos foram realizados utilizando o modelo de Viña para o ajuste da variação do “gap” de energia com a temperatura, como por exemplo, o trabalho de Lautenschlager e colaboradores, que obtiveram bons ajustes para os materiais binários GaAs^[47] e InP^[48].

A aproximação do modelo de Viña para baixas temperaturas (definidas em relação à Θ_B) é dada por:

$$E_g(T) \rightarrow E_B - a_B(1 + 2\exp(-\Theta_B/T)) = E_g(0) - 2a_B \exp(-\Theta_B/T) \quad (78)$$

para $T \ll \Theta_B$.

Para altas temperaturas, fazendo $2X = \Theta_B/T$ na Eq. (77) e estabelecendo a condição $2X \ll 1$, ou seja, $T \gg \Theta_B$, pode-se desenvolver $\exp(2X) = 1 + 2X + 2X^2 + 4X^3/3 +$ (série de Taylor). Considerando até o termo linear na expansão, têm-se:

$$E_g(T) \rightarrow E_B - 2 \frac{a_B}{\Theta_B} T = E_g(0) - 2 \frac{a_B}{\Theta_B} (T - \Theta_B / 2) \quad (79)$$

para $T \gg \Theta_B$.

Assim, o modelo de Viña também mostra um comportamento *linear* para altas temperaturas, similar ao modelo de Varshni. Comparando a Eq. (79) com a Eq. (76) nota-se que $\alpha_{Var} = 2a_B/\Theta_B$ e $\beta = \Theta_B/2$.

Considerando termos até segunda ordem na expansão de $\exp(2X)$ é fácil obter que:

$$\left[\frac{2a_B}{\exp(\Theta_B / T) - 1} \right] \cong \frac{(2a_B / \Theta_B) T^2}{T + \Theta_B / 2} \quad (80)$$

Fazendo-se, novamente, $\alpha_{Var} = 2a_B/\Theta_B$ e $\beta = \Theta_B/2$ obtém-se a equação de Varshni, ou seja, a equação de Varshni é uma aproximação de segunda ordem da parte dinâmica da expressão de Viña, que é associada à interação elétron-fônon, e é válida somente para a condição $\Theta_B/T \ll 1$.

No caso de semicondutores como o Ge, GaAs, InAs e AlAs a temperatura característica dos fônons Θ_B está abaixo de 300 K, portanto (considerando-se a condição $T \gg \Theta_B$) a equação de Varshni só pode fornecer bons ajustes para estes materiais para temperaturas acima da temperatura ambiente^[18,49].

3.4 MODELO DE PASSLER

Em estudos realizados por Pässler^[25] evidenciou-se que a tendência quadrática (T^2) relativamente intensa no modelo de Varshni e o desaparecimento da dependência com T no modelo de Viña para a região de baixas temperaturas estão representando certos limites do comportamento físico real. Pässler^[25] argumenta que a dependência da variação do “gap” de energia com a temperatura em materiais semicondutores para a região de baixas temperaturas deve ser proporcional a uma lei de potências, do tipo $E_g(T) \propto T^p$, onde o expoente p difere do valor convencional

$p = 2$ inicialmente proposto por Varshni^[17]. Além disso, Pässler^[22,25] demonstrou que apenas três parâmetros (por exemplo $E_g(T=0)$, α_{Var} e β do modelo de Varshni) são insuficientes para uma descrição adequada da curva experimental de $E_g(T)$. Em 1996, então, Pässler desenvolveu um novo modelo analítico, com quatro parâmetros, para descrever o efeito da variação do “gap” de energia com a temperatura para os materiais semicondutores^[22] obtendo a expressão mostrada a seguir:

$$E_g(T) = E_g(T=0) - \frac{\alpha\Theta}{2} \left[\sqrt[p]{1 + \left(\frac{2T}{\Theta}\right)^p} - 1 \right] \quad (81)$$

Nesta expressão $\alpha \equiv S(T) = - (dE/dT)_{T \rightarrow \infty}$ é um parâmetro a ser ajustado e está relacionado à entropia do “gap” de energia para regiões de altas temperaturas (mesmo parâmetro que aparece na Eq. (74) de Varshni), $\Theta \equiv \hbar\omega/k_B$ é o parâmetro de temperatura característica representando a energia efetiva dos fônons $\hbar\omega$ na escala de temperatura^[21,22,50] e p é o parâmetro que controla a curvatura da expressão. Este último parâmetro está relacionado com a distribuição das frequências dos fônons, geralmente conhecida como função espectral. Vale ressaltar que Θ_B da expressão de Viña e Θ da expressão de Pässler representam o mesmo parâmetro.

O modelo de Pässler tem sido aplicado com sucesso em uma grande variedade de materiais semicondutores elementares como o Si^[23], em compostos binários como o CdS^[22] e GaAs^[25] e em poços quânticos^[24,29-32]. Na maioria destes casos o valor do parâmetro p ficou compreendido entre 2.2 e 2.6. Entretanto, no caso de semicondutores de “gap” grande como SiC e GaN^[25], poços quânticos estreitos ($L_w < 30 \text{ \AA}$) e em estruturas de super-redes de período curto a situação se mostrou muito diferente, com os valores do parâmetro p estando acima do valor obtido para os materiais anteriores. Em trabalho publicado em 1998, Pässler^[51] propõe uma expressão para descrever o “gap” de energia para estes materiais de “gap” grande.

Na Figura 10, a seguir, são mostrados os dados redigitalizados da variação do “gap” de energia com a temperatura para o GaAs publicado inicialmente

por Grilli e colaboradores^[28], assim como os ajustes através dos modelos de Varshni, Viña e Pässler.

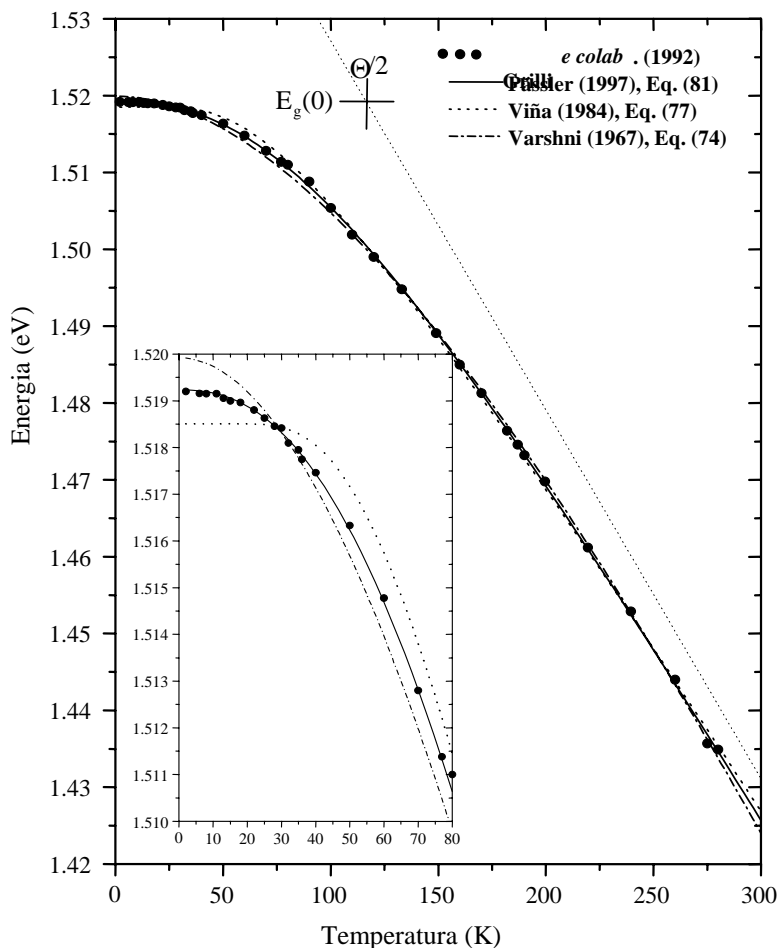


Figura 10 – Comparação entre os três modelos que descrevem a variação do “gap” de energia do GaAs com a temperatura (Eq. (74), Eq. (77) e Eq. (81)). Os valores experimentais, que são representados por pontos, foram obtidos através da técnica de fotoluminescência por Grilli e colaboradores^[28] para o GaAs e redigitalizados, posteriormente, por Pässler^[25]. A linha pontilhada indica a curva assintótica no limite de altas temperaturas ($E_g(T) = E_g(T=0) - \alpha(T - \Theta/2)$). A intersecção entre a linha pontilhada e a reta paralela à escala de temperatura que passa sobre $E_g(T=0)$, representada pela cruz, marca o ponto $\beta = \Theta/2 = 112.8$ K.

A temperatura característica Θ_B pode ser obtida diretamente da curva assintótica (Eq. (79)), como representado na figura. Observa-se que as curvas de Varshni e de Viña para região de temperaturas superiores a 100 K são quase indistinguíveis. Contudo, para $T < 80$ K existe uma diferença clara entre essas curvas (vide inserção na Fig. 10). Nesta região, especialmente para $T < 40$ K, o

modelo proposto por Varshni exibe uma curvatura muito forte, superestimando o “gap” para $T = 0$ K. Já a curva proposta por Viña exibe, nessa região, uma curvatura muito mais suave, desaparecendo por completo para $T < 20$ K e subestimando o “gap” para $T = 0$ K. Neste comportamento tipo platô, o modelo de Viña para baixas temperaturas evidencia a ausência de qualquer dependência do tipo potência, isto é, do tipo T^p , para $p = 1, 2, 3, \dots$, etc. (vide Eq. (78)). Essa diferença entre ambos os modelos é observada na Fig. 10, onde fica ilustrado que um ajuste adequado dos dados experimentais do “gap” de energia para o GaAs não pode ser realizado através dos modelos de Varshni e Viña. Nota-se, ainda, que o modelo proposto por Pässler é o que melhor descreve os pontos experimentais.

4.MATERIAIS SEMICONDUTORES E A AMOSTRA UTILIZADA

4.1 INTRODUÇÃO

Heteroestruturas semicondutoras baseadas em materiais do tipo III-V são de grande importância tanto do ponto de vista acadêmico, para o estudo das propriedades de elétrons e buracos, quanto do ponto de vista tecnológico, para a fabricação de dispositivos opto-eletrônicos.

A liga semicondutora $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ foi intensamente pesquisada nos últimos anos, tornando-se material “modelo” para a fabricação de dispositivos de alta performance como transistores de alta mobilidade eletrônica e transistores de efeito de campo, devido à pequena massa efetiva e alta mobilidade dos elétrons nesse material. Esta liga também é utilizada para fabricar lasers baseados em estruturas de confinamento quântico, nos quais as propriedades ópticas desejadas podem ser obtidas controlando-se a concentração de In e a espessura dos poços quânticos^[46].

Recentemente, alguns trabalhos foram publicados relatando a aplicabilidade do quaternário InGaAlAs como material semicondutor para a fabricação de sistemas de comunicações ópticas. Como exemplos de aplicação para esse material, podemos citar a fabricação de Lasers de Poços Quânticos Múltiplos (MQW Lasers) para operação na faixa espectral de $1,3 \mu\text{m}^{[15]}$ e $1,55 \mu\text{m}^{[14]}$, que são regiões de baixa atenuação e baixa dispersão cromática de fibras ópticas.

Este capítulo é dedicado à descrição da SR 72402, que é o objeto de investigação deste trabalho, bem como um relato das principais propriedades relativas aos materiais que a constituem: InGaAs e InGaAlAs. Estas informações são importantes para que possamos efetuar alguns cálculos computacionais, os quais serão realizados para a temperatura de 9 K e permitirão avaliar a concordância entre o modelo teórico para a dispersão das mini-bandas em super-redes (Eq. (73)) e os resultados experimentais.

4.2 PROPRIEDADES DO INGAAS

Apesar da grande quantidade de trabalhos encontrados na literatura que tratam da liga InGaAs/InP, a energia de “gap” (ou a energia da transição excitônica), que é um dos principais parâmetros para a caracterização de materiais semicondutores, apresenta bastante dispersão em seus valores para esse material. Radhakrishnan e colaboradores^[52] utilizam $E_g = 0,801$ eV para o $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$, contudo este valor pode chegar até 0,821 eV, como obtido por Towe^[53]. Muitos outros trabalhos citando valores intermediários aos citados anteriormente foram realizados^[8,54,55]. Uma explicação para tal dispersão deve-se ao fato de que, em grande parte destes estudos, a presença de tensões devido à diferenças na composição da liga com relação à composição de rede casada é ou desprezada ou não explorada^[56], sendo que a grande maioria dos trabalhos considera $x = 0,47$ como a concentração de rede casada, ao invés de $x = 0,468$. Sabe-se que no caso do $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{InP}$, um pequeno desvio da concentração de rede casada é suficiente para provocar mudança significativa na sua estrutura de bandas, o que, por sua vez, induz uma variação na energia de “band-gap” em relação ao sistema não tensionado^[57].

Para a realização dos nossos cálculos teóricos consideramos o valor de 0,811 meV^[8,58] para a energia de “gap” do InGaAs a 9 K. Este valor, além de ser intermediário (relativamente à sua dispersão na literatura), forneceu, como mostraremos no item 6.4, excelentes resultados para a energia da transição excitônica $e_1\text{-}hh_1$. Os valores considerados para a energia de “gap” a 9 K, para as massas efetivas dos elétrons e dos buracos leves e pesados, nesse material, são mostrados na Tabela 01.

Tabela 1 – Valores da energia de “gap” e da massa efetiva para elétrons, buracos leves e buracos pesados para o InGaAs.

Parâmetro	Valor
Energia de “gap” a 9 K ^[8,58]	0,811 (eV)
Massa efetiva do elétron (m_e^*) ^[5]	0.044 (m_0)
Massa efetiva do buraco pesado (m_{hh}^*) ^[5]	0.424 (m_0)
Massa efetiva do buraco leve (m_{lh}^*) ^[5]	0.052 (m_0)

4.3 PROPRIEDADES DO INGAALAS

Para a obtenção da energia de “gap” do InGaAlAs/InP à baixas temperaturas utilizamos uma expressão obtida através da extrapolação das energias de “gap” dos binários e ternários associados, sugerida por Chelles^[59]:

$$E_g(x, y) = 0,418 + 0,6092.x + 0,984.x^2 + 1,9107.y + 1,6046.y^2 \quad (82)$$

Onde x e y referem-se à notação $\text{In}_{1-x-y}\text{Ga}_x\text{Al}_y\text{As}$, ou seja, são as concentrações de Ga e Al, respectivamente. Nossa amostra foi crescida sob condição de rede casada com o InP, que corresponde a $x = 0,235$ e $y = 0,24$.

Substituindo esses valores na Eq. (82) encontramos, para a energia de “gap” do InGaAlAs, o valor de 1,166 eV. Este valor, juntamente com os valores considerados para as massas efetivas dos elétrons e dos buracos leves e pesados, nesse material, são mostrados na Tabela 02.

Tabela 2 – Valores da energia de “gap” e da massa efetiva para elétrons, buracos leves e buracos pesados para o InGaAs.

Parâmetro	Valor
Energia de “gap” a 9 K	1,166 (eV)
Massa efetiva do elétron (m_e^*) ^[5]	0.064 (m_0)
Massa efetiva do buraco pesado (m_{hh}^*) ^[5]	0.498 (m_0)
Massa efetiva do buraco leve (m_{lh}^*) ^[5]	0.069 (m_0)

A descontinuidade da banda de condução ΔE_c e da banda de valência ΔE_v (também conhecido como “off-set” da banda) são propriedades extremamente importantes para as heteroestruturas semicondutoras e, para o “software” utilizado por nós para a realização dos cálculos computacionais, também é um parâmetro necessário. Sugiyama e colaboradores^[60] estudaram a descontinuidade da banda de condução no sistema $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}/\text{In}_{0,52}(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})\text{As}$ em função da temperatura e observaram que o ΔE_c varia quase linearmente com a composição de Al e que a razão $\Delta E_c/\Delta E_v$ neste sistema não depende da concentração de Al. Sandhu e colaboradores^[61] também concluíram, através de estudos de PL e PLE, que a razão $\Delta E_c/\Delta E_v$ é independente da fração de Al e é dada

por: 73/27. Outros trabalhos na literatura^[13,62] citam a relação $\Delta E_c = 0,72\Delta E_g$ para o sistema InGaAlAs/InP. Assim, para nossos cálculos, utilizaremos a relação $\Delta E_c = 0,72 \Delta E_g$.

Os valores obtidos através do programa que utilizamos para o cálculo da relação de dispersão das mini-bandas em super-redes (“LEVELS.BAS 4.0”, desenvolvido por Evaldo Ribeiro) são apresentados no Capítulo 6, item 6.1.

4.4 A AMOSTRA SR 72402

Na Figura 11 apresentamos um esquema da estrutura da SR72402. Esta super-rede é constituída por 52 poços de $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$ de 89 Å de espessura e barreiras de $\text{In}_{0,52}\text{Ga}_{0,235}\text{Al}_{0,24}\text{As}$ de 43 Å de espessura, iniciando-se por uma camada de InGaAlAs e finalizando-se por uma camada de InGaAs (camada “cap”). A amostra foi dopada com Si, resultando em uma concentração de impurezas de $n \approx 1,2 \times 10^{16} / \text{cm}^3$, medida através de efeito Hall. A amostra foi crescida através da técnica de MBE sobre um substrato de InP, no *Laboratoire Concepts et Dispositifs pour la Photonique (CNRS) – França*, e apresenta um pequeno descasamento de rede: $\Delta a/a = 2,2 \times 10^{-4}$.

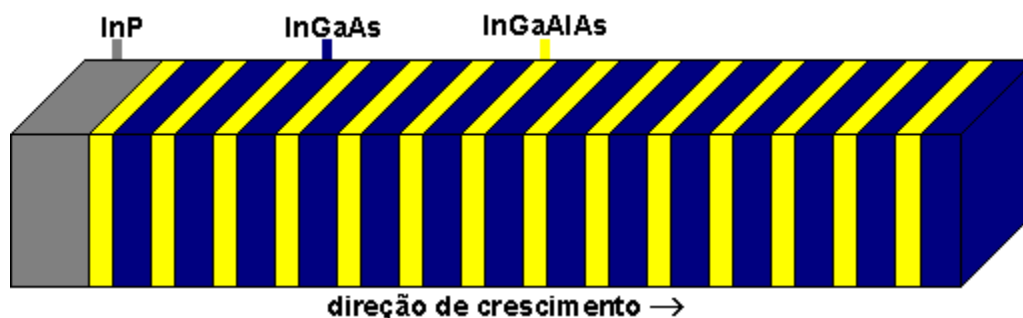


Figura 11 – Estrutura da SR 72402.

5 A TÉCNICA DE FOTOLUMINESCÊNCIA

5.1 INTRODUÇÃO

Muitas técnicas foram desenvolvidas com o objetivo de proporcionar o estudo de materiais e estruturas de materiais semicondutores e permitem explorar diversos aspectos da amostra sob investigação. Medidas ópticas em função da potência de excitação, em função da temperatura, ou na presença de campos elétricos ou magnéticos são largamente utilizadas no estudo das propriedades eletrônicas e ópticas de materiais semicondutores. Dentre as muitas técnicas podemos destacar a fotoluminescência (PL), fotoluminescência de excitação (PLE), fotorefletância (PR), etc. Tais técnicas ópticas podem fornecer informações importantes para o estudo e caracterização de um determinado material ou estrutura semicondutora, como, por exemplo, a energia de “gap”, a qualidade da amostra (condições cristalográficas, etc.), a natureza e a concentração de impurezas, etc..

A técnica de fotoluminescência tem sido bastante utilizada no estudo das propriedades de materiais e heteroestruturas de materiais semicondutores por apresentar muitas vantagens, dentre elas, a de ser uma técnica não destrutiva e não requerer preparação especial da amostra (essencial em eletrorefletância, por exemplo), etc. Além disso, o aparato experimental necessário para a montagem dessa técnica é relativamente simples, já que os equipamentos utilizados são equipamentos essenciais em um laboratório de espectroscopia óptica (como, por exemplo, monocromador, laser e amplificador lock-in).

Realizamos, neste capítulo, uma descrição referente aos princípios físicos e à montagem experimental da técnica utilizada, neste trabalho, para o estudo da super-rede 72402: a técnica de fotoluminescência.

5.2 PRINCÍPIOS FÍSICOS DA FOTOLUMINESCÊNCIA

A 0 K um semicondutor é um material isolante, pois nesta condição todos os elétrons estão na banda de valência e não possuem energia suficiente para vencer o “gap” de energia entre o topo dessa banda e o mínimo da banda de condução.

Contudo, se incidirmos, no material, luz de energia maior que esse “gap”, estaremos fornecendo energia suficiente para que os elétrons da banda de valência sejam promovidos a estados excitados na banda de condução. Assim, a absorção de luz gera pares elétron-buraco, fazendo com que o material semicondutor fique em um estado excitado. O estado fundamental, naturalmente, tende a ser restabelecido com a emissão da energia excedente, o que pode ocorrer basicamente em duas etapas: i) relaxação dos elétrons e buracos para o fundo da banda de condução e topo da banda de valência, respectivamente, através da emissão de fônons e ii) emissão radiativa com energia correspondente à diferença de energia entre as duas bandas, com a consequente recombinação do par elétron-buraco.

No caso dos semicondutores de “gap” direto a recombinação se dá verticalmente no espaço dos momentos e pode ocorrer diretamente entre o mínimo de energia da banda de condução e o topo da banda de valência, ou ser precedida pela captura do portador por estados eventualmente presentes pela influência de impurezas e/ou defeitos.

A fotoluminescência consiste basicamente em estudar os processos que envolvem a emissão de radiação eletromagnética devida aos processos de recombinação, através da análise espectral da radiação emitida quando o material é excitado por radiação eletromagnética de energia geralmente maior do que a energia de “gap”.

Os processos de emissão radiativa podem ser subdivididos em dois grupos: emissões intrínsecas e emissões extrínsecas. A seguir descreveremos os processos de emissão radiativa mais comumente observados em poços quânticos, classificando-os dentro desses dois grupos; essa descrição tem por objetivo facilitar a discussão posterior dos processos envolvidos na nossa amostra.

5.2.1 Emissões Intrínsecas

A emissão é chamada intrínseca quando está associada a processos que envolvem o material semiconductor (ou a estrutura semicondutora) propriamente dito, em contraposição à emissão extrínseca que está associada a transições envolvendo impurezas.

A seguir faremos uma discussão geral dos principais processos de recombinação observados nos espectros de fotoluminescência de poços quânticos. Os mecanismos apresentados para os poços quânticos podem ser estendidos para as super-redes, levando-se em consideração que nestas, ao invés do surgimento de níveis de energia há a formação de mini-bandas. A Fig. 12, mostrada a seguir, ilustra esquematicamente as possíveis recombinações discutidas neste item.

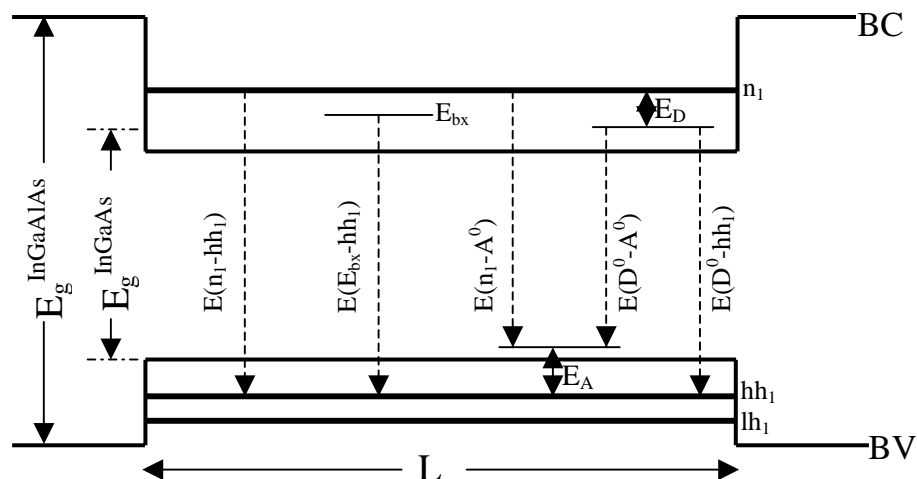


Figura 12 – Representação esquemática das possíveis recombinações em um poço quântico de InGaAs/InGaAlAs. Apenas as transições envolvendo buracos pesados são mostradas. Transições envolvendo buracos leves ($E(n_1-lh_1)$, $E(E_{bx}-lh_1)$ e $E(D^0-lh_1)$) também podem ocorrer.

5.2.1.1 Emissão de Éxcitons Livres (EX)

Depois de formados os pares elétron-buraco, através da absorção de luz, tanto os elétrons quanto os buracos foto-criados tendem a relaxar para os respectivos estados de mais baixa energia. Porém como são portadores de cargas, eles sofrem interação Coulombiana e podem formar um estado ligado denominado

éxciton. Quando o elétron e o buraco constituintes do éxciton se recombinam ocorre a emissão de um fóton, cuja energia é dada por:

$$h\nu_1 = E_g^{InGaAs} + E_n + E_{hnm} - E_{bx} \quad (83)$$

ou

$$h\nu_2 = E_g^{InGaAs} + E_n + E_{lhm} - E_{bx} \quad (84)$$

Onde E_g^{InGaAs} é o “gap” de energia do InGaAs “bulk”, E_n é a n-ésima energia de confinamento do elétron, E_{hnm} é a m-ésima energia de confinamento do buraco pesado, E_{lhm} é a m-ésima energia de confinamento do buraco leve e E_{bx} é a energia de ligação do éxciton.

Em poços quânticos (e em super-redes), para cada sub-banda eletrônica, a interação Coulombiana gera dois éxcitons, relacionados ao buraco pesado e ao buraco leve. A probabilidade de recombinação excitônica é consideravelmente alta quando os números quânticos de confinamento são os mesmos, ou seja, para $n = m$ (vide Capítulo 2). Dessa forma as transições excitônicas podem aparecer aos pares: a transição $E_n - E_{hnn}$ e a transição $E_n - E_{lhn}$. À baixas temperaturas e baixas potências de excitação somente a recombinação excitônica relacionada ao buraco pesado pode ser observada em PL, pois nessas condições não há energia térmica suficiente para que os buracos passem a ocupar o nível de buracos leves e, também, a potência de excitação não provoca a saturação do nível de buracos pesados, fazendo com que os buracos opticamente gerados no nível de buracos leves relaxem não-radiativamente para o nível de buracos pesados, passando a se recombinar a partir desse nível.

5.2.1.2 Emissão da Banda de Condução para a Banda de Valência

Transições da banda de condução para a banda de valência (denominadas transições banda-banda) consistem na recombinação de um elétron da BC com um buraco da BV em um semiconductor “bulk”. Em um poço quântico estas transições se dão do nível de energia dos elétrons (E_n) para o nível de energia

dos buracos (E_{hnm} ou E_{lhm}). Estas transições podem ser observadas, em geral, a temperaturas superiores a 150 K, pois em baixas temperaturas as recombinações excitônicas são dominantes^[63]. Este processo de recombinação pode se dar através da emissão de um fóton de energia igual à:

$$h\nu_1 = E_g^{InGaAs} + E_n + E_{hnm} \quad (85)$$

ou

$$h\nu_2 = E_g^{InGaAs} + E_n + E_{lhm} \quad (86)$$

Onde E_g^{InGaAs} , E_n , E_{hnm} e E_{lhm} têm o mesmo significado que anteriormente.

Neste caso, assim como para a emissão de éxcitons livres, também vale a regra de seleção $n = m$ e, como mencionado anteriormente, em PL, geralmente apenas são observadas transições referentes à $n = m = 1$.

5.2.2 Emissões Extrínsecas

5.2.2.1 Emissão de Éxcitons Ligados

O éxciton pode formar complexos ligando-se à impurezas neutras ou ionizadas. Geralmente éxcitons livres e ligados podem ser observados em um mesmo material^[64]. A identificação da emissão pode ser realizada pela energia da emissão: os estados ligados possuem energias de recombinação menores do que os éxcitons livres. Nestes processos de recombinação considerando os níveis fundamentais para o elétron e o buraco ($n = 1$ e $m = 1$) ocorre a emissão de um fóton de energia:

$$h\nu = [E_g^{InGaAs} + E_1 + E_{hh1}] - E_{bx} - BE \quad (87)$$

Onde BE é a energia de ligação do complexo excitônico.

5.2.2.2 Emissão Banda-Impureza

As emissões relacionadas com a recombinação de um elétron da banda de condução para o nível de uma impureza aceitadora ou a recombinação do nível de energia de uma impureza doadora para um buraco na banda de valência são denominadas transições banda-impureza. A energia destas recombinações, considerando os níveis fundamentais para o elétron e para o buraco ($n = 1$ e $m = 1$), é dada por:

$$h\nu_1 = [E_g^{InGaAs} + E_1 + E_{hh1}] - E_A \quad (88)$$

ou

$$h\nu_2 = [E_g^{InGaAs} + E_1 + E_{hh1}] - E_D \quad (89)$$

Onde E_A é a energia de ligação da impureza aceitadora e E_D é a energia de ligação da impureza doadora.

Em poços quânticos, a energia E_A necessária para retirar um buraco do estado aceitador neutro para o estado de buraco pesado pode ser estimada a partir do espectro de fotoluminescência através da identificação da energia excitônica, $E(E_{bx} - hh_1)$, da energia do pico da luminescência extrínseca, $E(n_1 - A^0)$, e do conhecimento da energia de ligação excitônica de buracos pesados, $E_{bx}(hh)$. Dessa forma a energia de ionização do aceitador pode ser calculada pela seguinte expressão:

$$E_A = E(E_{bx} - hh_1) - E(n_1 - A^0) + E_{bx}(hh) \quad (90)$$

O erro da energia E_A obtida desta maneira é estimado em aproximadamente ± 1 meV^[65].

Os processos de recombinação que acabamos de descrever possuem comportamentos distintos em função de alguns parâmetros experimentais utilizados em uma experiência de fotoluminescência. Dentre estes parâmetros podemos citar: a temperatura a que o cristal está submetido, a intensidade de excitação que incide sobre o material, a pressão hidrostática imposta ao material, etc. Desta forma, uma experiência de PL realizada com a variação de alguns destes

parâmetros pode auxiliar na interpretação dos processos de recombinação do material e, conseqüentemente, na caracterização óptica do sistema em estudo.

5.2.2.3 Recombinação Doador-Aceitador ($D^0 - A^0$)

A transição entre um elétron ligado a um átomo doador e um buraco ligado a um átomo aceitador é chamada recombinação doador-aceitador. O fóton emitido pela transição óptica referente a este processo, considerando os níveis fundamentais para o elétron e para o buraco ($n = 1$ e $m = 1$), tem energia igual a^[66]:

$$h\nu = [E_g^{InGaAs} + E_I + E_{hh1}] - [E_D + E_A] + \frac{e^2}{\epsilon r} \quad (91)$$

Onde E_D e E_A são, respectivamente, as energias de ligação das impurezas doadora e aceitadora isoladas e $e^2/\epsilon r$ é o termo associado à energia de emparelhamento entre o par ligado, onde r é a distância entre o par ligado e ϵ a constante dielétrica do meio.

5.3 SISTEMA EXPERIMENTAL DE FOTOLUMINESCÊNCIA

A montagem experimental utilizada para a realização das medidas de fotoluminescência está esquematizada na Fig. 13, mostrada abaixo.

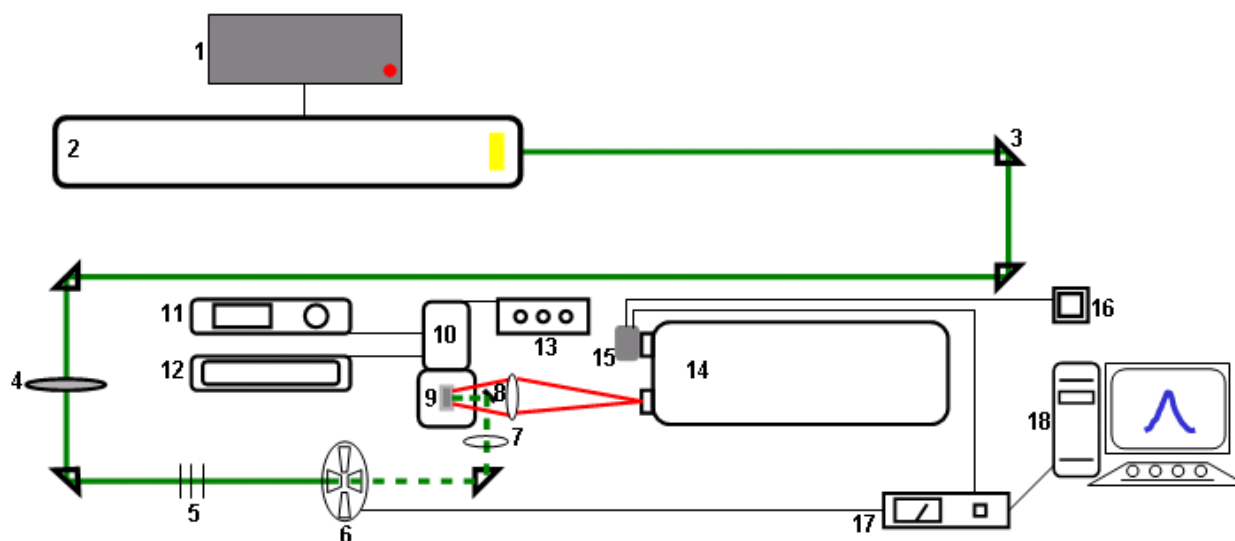


Figura 13 – Esquema da técnica de fotoluminescência: 1 Refrigeração do laser 2 Laser Ar⁺, 3 Prisma, 4 Filtro circular giratório, 5 Filtros de densidade neutra, 6 Chopper, 7 Lentes convergentes, 8 Espelho, 9 Amostra, 10 Criostato, 11 Sistema de vácuo, 12 Sistema de ciclo fechado de Hélio, 13 Sistema de controle de temperatura, 14 Monocromador, 15 Fotodetector, 16 Sistema de refrigeração do fotodetector, 17 Lock-In, 18 Sistema de aquisição de dados.

A fonte de excitação utilizada na técnica de PL é um laser de Ar⁺, emitindo na linha 5145 Å, adequadamente refrigerado a água e modulado mecanicamente por um chopper na frequência de 200 Hz. O diâmetro do “spot” de luz sobre a amostra é de aproximadamente 300 μm. A amostra semicondutora é fixada, com a utilização de “cola prata”, a um porta-amostras localizado no interior de um criostato, o qual é acoplado a um sistema de vácuo (composto por uma bomba mecânica e uma bomba turbo-molecular) que permite atingir pressões da ordem de 10⁻⁶ Torr. Esta pressão é necessária para que o sistema de ciclo fechado de Hélio possibilite a obtenção de baixas temperaturas, permitindo, no nosso caso, que a temperatura da amostra possa ser variada desde 9 até 300 K.

A luminescência da amostra excitada é coletada e focalizada por uma lente convergente na fenda de entrada (com abertura de aproximadamente 300 μm) de um espectrômetro (Jarrell-Ash de 0,5 m), antes da qual utilizamos um filtro RG 665 (Schott) a fim de eliminar a radiação espalhada proveniente do laser. A grade de difração (600 linhas/mm com “blaze” em 12000 Å), movida por um motor de passo, faz a varredura de comprimento de onda. Um fotodetector de InGaAs, refrigerado termoeletricamente a aproximadamente – 30 °C, detecta e envia o sinal

para um amplificador síncrono (“lock-in”) modelo SR510 (Stanford), o qual repassa o sinal amplificado para o sistema de aquisição, que o processa e o exibe na tela do computador. A temperatura é controlada por um sistema da LakeShore modelo 331 e a potência de excitação é controlada através da utilização de filtros de densidade neutra (ou de um filtro circular giratório) dispostos no percurso do laser.

Esta descrição corresponde à montagem de fotoluminescência existente no Laboratório de Óptica e Optoeletrônica do Departamento de Física da Universidade Estadual de Londrina (UEL) onde foram realizadas as medidas de fotoluminescência da SR 72402, cujos resultados serão apresentados no próximo capítulo.

6 RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO

6.1 RESULTADOS DOS CÁLCULOS COMPUTACIONAIS

Na Tabela 03 apresentamos os resultados dos cálculos computacionais obtidos para a relação de dispersão das mini-bandas de energia da SR 72402, Eq. (73), a qual rerepresentamos a seguir.

$$\cos(qd) = \cos(K_w L) \cosh(\kappa_b h) - \frac{1}{2} \left[\frac{-m_w^* \tilde{\zeta}}{m_b^*} + \frac{m_b^*}{m_w^* \tilde{\zeta}} \right] \sin(K_w L) \sinh(\kappa_b h) \quad (73)$$

Tabela 3 – Resultados dos cálculos computacionais para a SR 72402. Apenas as transições permitidas são mostradas.

TRANSIÇÃO	ENERGIA (meV)
$e_1 - hh_1$	862,1
$e_1 - lh_1$	878,5
$e_2 - hh_2$	1051,0

Estes resultados serão analisados no item 6.4.

6.2 RESULTADOS E DISCUSSÃO DA FOTOLUMINESCÊNCIA COM VARIAÇÃO DE POTÊNCIA A BAIXAS TEMPERATURAS

6.2.1 Resultados de Fotoluminescência com Variação de Potência à Baixa Temperatura

Na Figura 14 apresentamos os espectros de fotoluminescência, a 9 K, obtidos para diferentes potências de excitação. Os espectros são mostrados em ordem crescente de potência de baixo para cima. A partir da potência de 40 mW as fendas do

monocromador foram reduzidas de 300 μm para 100 μm (indicado na legenda da Fig. 14c), devido à grande intensidade do sinal acima dessa potência. Para potências até 5,5 mW foram utilizados filtros de densidade neutra; acima dessa potência foi utilizado apenas um filtro circular giratório, fixado de maneira a permitir a passagem da potência desejada, a qual era verificada através da utilização de um medidor de potência (OPHIR).

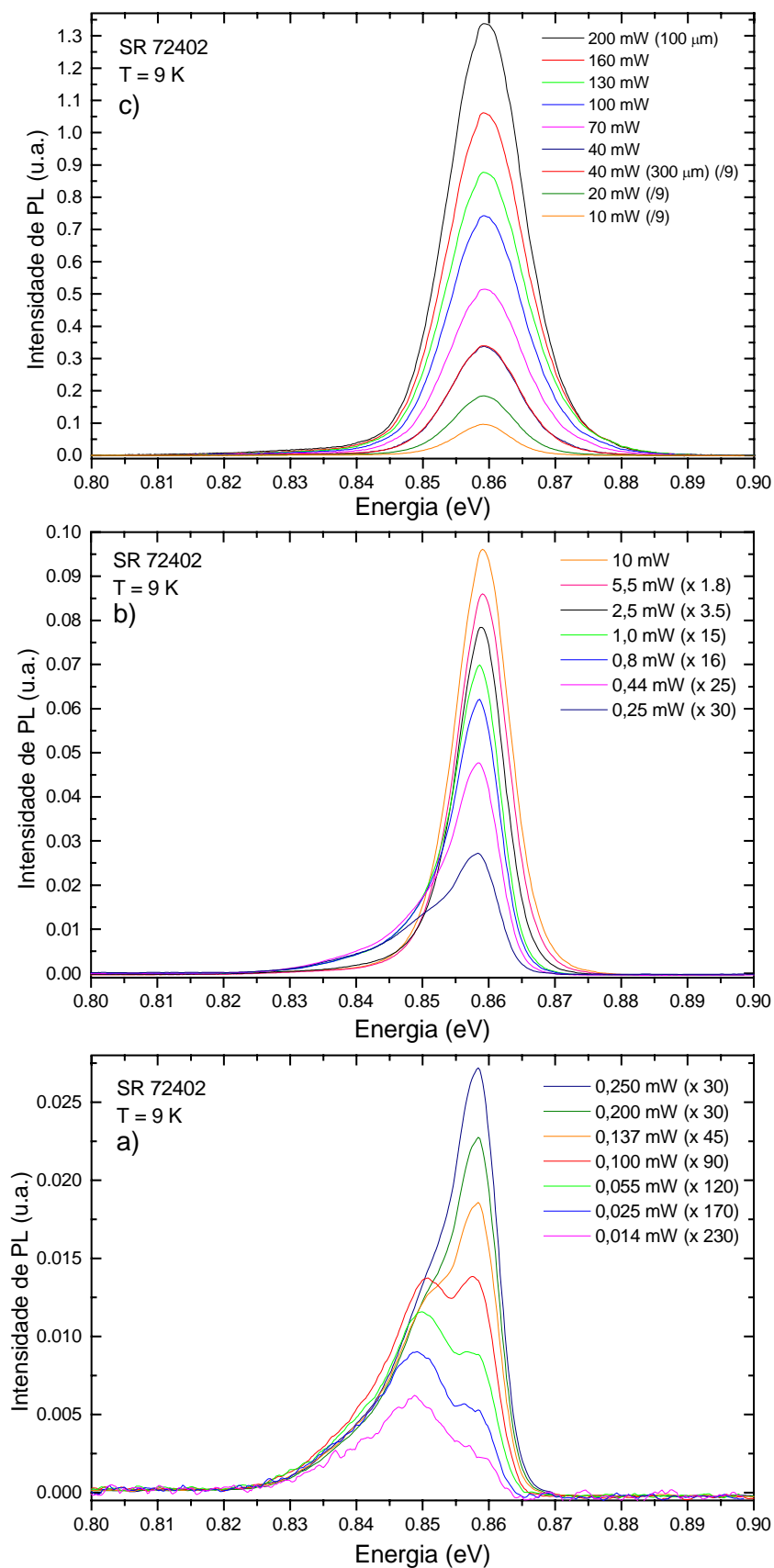


Figura 14 – Espectros de fotoluminescência da SR 72402 a 9 K obtidos utilizando-se diferentes potências de excitação: a) de 0,014 a 0,25 mW; b) de 0,25 a 10 mW e c) de 10 a 200 mW.

Selecionamos alguns dos espectros acima, mais precisamente aqueles obtidos com mais baixas potências e realizamos a “deconvolução” dos mesmos através do programa Origin, utilizando 3 curvas Gaussianas. Na Fig. 15, mostramos em detalhe, os ajustes para $P = 0,014$, $0,025$ e $0,055$ mW e na Fig. 16 apresentamos todos os espectros, verticalmente deslocados, para os quais realizamos a deconvolução (até $P = 0,440$ mW).

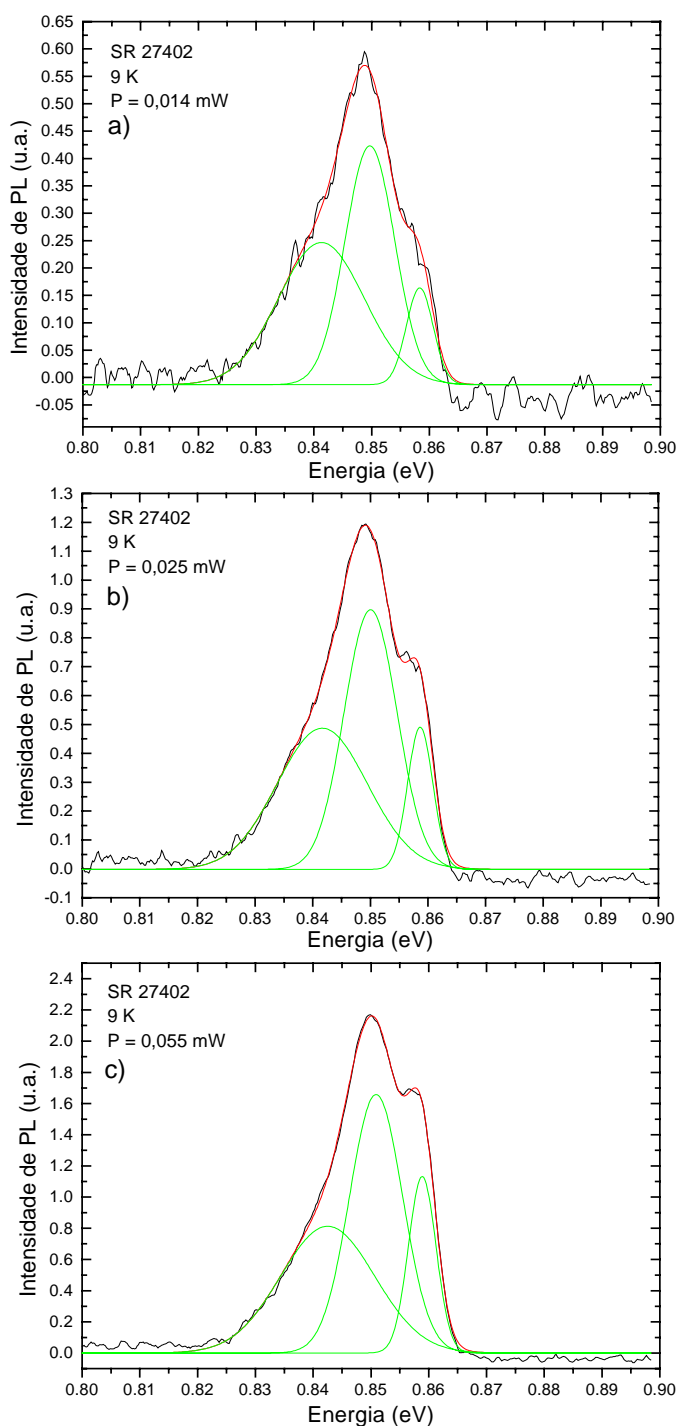


Figura 15 – Deconvolução dos espectros de fotoluminescência da SR 72402 a 9 K para as potências de: a) $0,014$ mW; b) $0,025$ mW e c) $0,055$ mW.

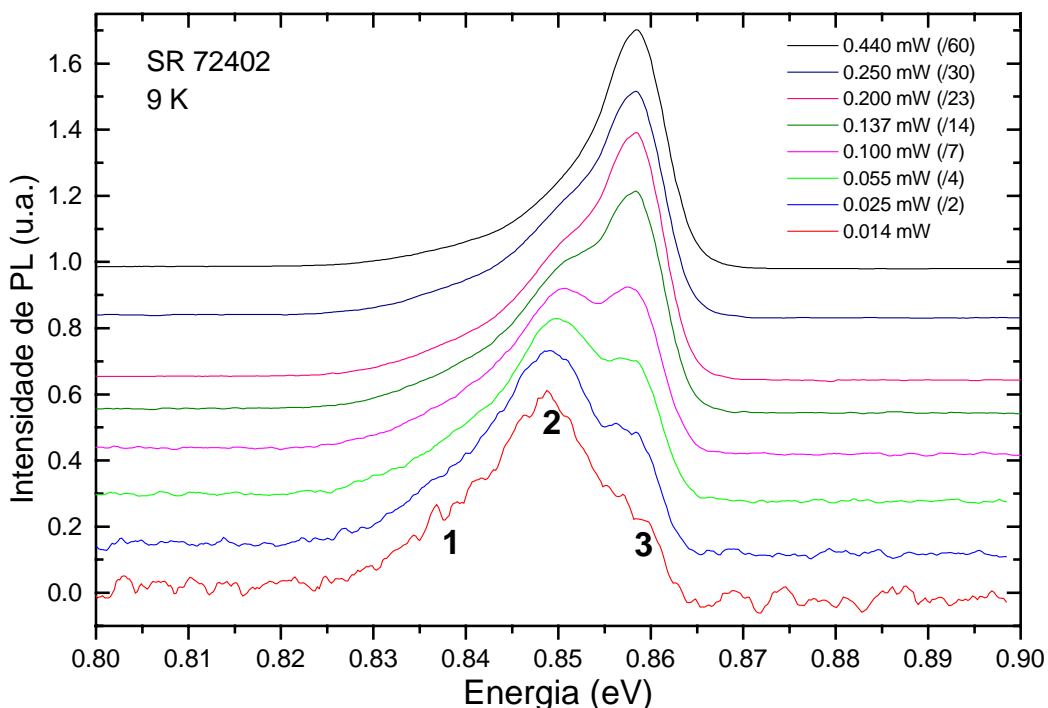


Figura 16 – Espectros de fotoluminescência para a SR 72402 a 9 K para os quais realizamos a deconvolução. Os espectros foram deslocados verticalmente a fim de obter-se uma melhor visualização de seus comportamentos com a potência.

Observando-se a Fig. 16, nota-se que o pico 3 torna-se cada vez mais intenso à medida que a potência de excitação é aumentada, enquanto que os picos 1 e 2 ficam cada vez menos perceptíveis, sendo que para $P = 0,440$ mW apenas uma cauda para o lado de menores energias é observada.

Os valores encontrados, através da deconvolução, para as três curvas Gaussianas utilizadas nos ajustes dos espectros mostrados na Fig. 16 são apresentados na Tabela 04 a seguir.

Tabela 4 – Valores dos parâmetros obtidos através da deconvolução dos espectros de fotoluminescência, a baixas potências, para a SR 72402 a 9 K.

Potência (mW)	Curva 1	Curva 2	Curva 3
	Energia (eV)		
0,014	0,8412	0,8497	0,8583
0,025	0,8411	0,8500	0,8587
0,055	0,8429	0,8509	0,8588
0,100	0,8432	0,8515	0,8588
0,137	0,8434	0,8525	0,8589
0,200	0,8437	0,8533	0,8588
0,250	0,8453	0,8526	0,8587
0,440	0,8467	0,8527	0,8587
	Largura de Linha (eV)		
0,014	0,01479	0,00863	0,00473
0,025	0,01561	0,00922	0,00438
0,055	0,01652	0,00897	0,00481
0,100	0,01415	0,00947	0,00496
0,137	0,01502	0,00951	0,00523
0,200	0,01478	0,00939	0,00535
0,250	0,01570	0,00889	0,00552
0,440	0,01655	0,00916	0,00564
	Área		
0,014	0,00476	0,00477	0,00104
0,025	0,00947	0,01048	0,00270
0,055	0,01453	0,01805	0,00692
0,100	0,02050	0,03377	0,01475
0,137	0,03995	0,06311	0,04368
0,200	0,05850	0,09811	0,08440
0,250	0,07387	0,09523	0,10860
0,440	0,11681	0,17109	0,23041

Utilizando-se os resultados expressos na Tabela 04, construímos gráficos da posição dos picos de energia em função da potência de excitação para as três curvas consideradas, os quais são mostrados na Fig. 17.

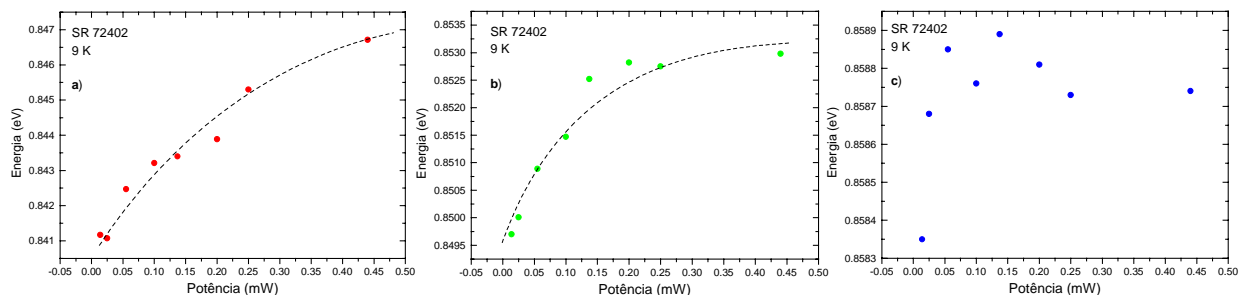


Figura 17 – Energia do pico em função da potência de excitação através dos resultados obtidos para a deconvolução dos espectros utilizando 3 curvas Gaussianas: a) curva 1; b) curva 2 e c) curva 3. As linhas pontilhadas em a) e b) são apenas “guias” para os olhos.

Através das Figs. 17a e 17b é possível observar um deslocamento dos picos de energia 1 e 2 para energias maiores com o aumento da potência, com taxas de deslocamento cada vez menores, indicando tendência à estabilização em um valor constante para potências suficientemente altas. A Fig. 17c não fornece um resultado conclusivo a respeito do comportamento do pico 3, pois exceto com relação ao primeiro ponto (comparativamente aos demais), as variações dos pontos seguintes ($\sim 0,2$ meV) são comparáveis à incerteza das medidas e dos ajustes, já que as transições são muito próximas (os resultados considerando-se potências de excitação mais elevadas são mostrados na Fig. 18).

Um gráfico do pico de energia em função da potência de excitação para a curva 3 considerando toda a variação de potência (até 200 mW) é apresentado na Fig. 18. Neste gráfico, os primeiros pontos referem-se aos resultados encontrados através da deconvolução (Fig. 17c) e os demais foram obtidos estimando-se a posição do pico de energia diretamente sobre o espectro.

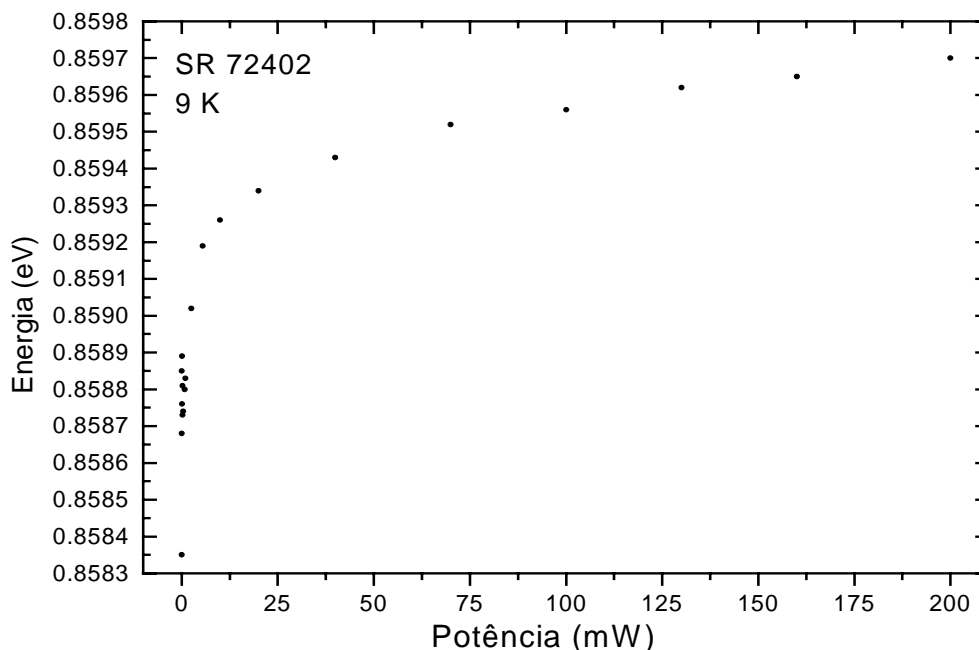


Figura 18 – Energia do pico em função da potência de excitação para a curva 3 da deconvolução. Os pontos iniciais foram obtidos através da deconvolução dos espectros e aqueles para potências mais elevadas foram estimados diretamente sobre o pico de energia.

Neste gráfico, assim como relatado anteriormente para os picos 1 e 2, observa-se uma tendência à estabilização do pico 3 em um valor aproximadamente constante, após um rápido deslocamento da posição do pico para energias maiores (“blueshift”).

Outro gráfico que nos fornece informações importantes a respeito da origem das transições é o gráfico da intensidade integrada de fotoluminescência (parâmetro Área, Tabela 04) versus a potência de excitação. É esperado que a intensidade integrada de fotoluminescência I seja proporcional a P^k , onde P é a potência de excitação e $1 < k < 2$ para transições excitônicas e $k < 1$ para transições envolvendo impurezas. Assim, em um gráfico do tipo $\log I \times \log P$, k representa a inclinação da curva dos pontos experimentais. Alguns trabalhos que relatam essa dependência de I com P referem-se ao caso “bulk”^[67,68], contudo existem estudos que estendem essa discussão para o caso de heteroestruturas^[69]. Ainda, Skromme e colab.^[70] verificaram em um trabalho com super-redes de GaAs/AlGaAs que estas apresentam inúmeras propriedades semelhantes com o GaAs “bulk”; tal observação corrobora a validade da extensão da análise $I \propto P^k$ aplicada ao caso de heteroestruturas. A Fig. 19, a seguir, mostra a intensidade integrada de PL em

função da potência de excitação (em escala logarítmica) para as 3 curvas utilizadas na deconvolução dos espectros.

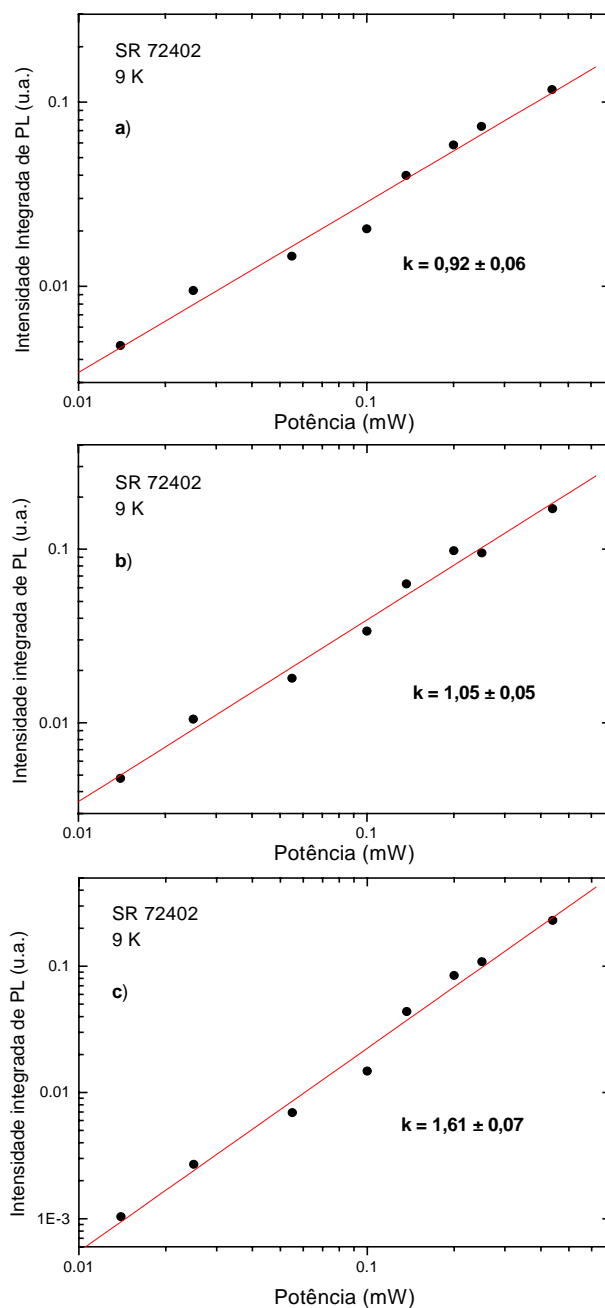


Figura 19 – Intensidade integrada de PL versus potência de excitação (em escala logarítmica) para: a) curva 1; b) curva 2 e c) curva 3.

6.2.2 Discussão da Fotoluminescência com Variação de Potência à Baixa Temperatura

Em uma medida de fotoluminescência, caso a quantidade de impurezas aceitadoras do material não seja muito elevada, existe uma determinada intensidade de excitação I_s na qual os elétrons foto gerados recombinaem com todos os sítios aceitadores disponíveis. Até que a intensidade de excitação atinja essa condição, a luminescência é predominantemente de origem extrínseca. Assim é esperado que, aumentando-se a intensidade de excitação além de I_s , a intensidade do sinal de fotoluminescência associado às transições extrínsecas não seja alterada, enquanto que recombinações de origem intrínseca (envolvendo éxcitons livres, por exemplo) passarão a ocorrer com intensidade relativa crescente por possuírem densidade de estados superior às das impurezas presentes. Este fenômeno pode ser visualizado na Fig. 16: com o aumento da potência de excitação o pico 3 torna-se cada vez mais intenso com relação aos picos 1 e 2, indicando uma característica excitônica para o pico 3 e uma característica de impurezas para os picos 1 e 2.

Os resultados mostrados na Fig. 19, a qual nos fornece indicações acerca da natureza das transições (através da análise do parâmetro k), também corroboram as hipóteses consideradas anteriormente: as transições 1 e 2, com $k = 0,92$ e $k = 1,05$, respectivamente, são atribuídas a impurezas (" $k < 1$ "), embora o valor $k = 1,05$ apresente uma pequena discrepância. Para a transição 3 obtivemos $k = 1,61$, reforçando a hipótese de que esta transição se refere à recombinação excitônica.

As Figuras 17a, 17b e 18 reforçam as conclusões obtidas acima: para intensidades de excitação da ordem de 0,440 mW, os picos 1 e 2 (Figs. 17a e 17b) já apresentam tendência à estabilização em um determinado valor de energia, enquanto o pico 3 (Fig. 18) se desloca rapidamente em energia até intensidades de excitação de aproximadamente 10 mW, iniciando um comportamento de estabilização após este ponto.

De acordo com Miller e colab.^[65], conforme a potência de excitação é aumentada, as impurezas localizadas em "sítios" com maior tempo de vida, próximos ao centro do poço (os quais apresentam maior energia de ligação^[65]), tendem a saturar primeiramente, dando origem a um deslocamento desse pico de PL para

energias maiores. Este mecanismo pode ser utilizado para explicar o comportamento da variação do pico de energia das transições 1 e 2 mostrado nas Figs. 17a e 17b.

Embora o argumento apresentado por Miller e colab. explique satisfatoriamente o deslocamento para energias maiores com a potência, é válido ressaltar que, até o momento, nenhuma afirmação acerca da identificação precisa das transições foi realizada. É possível que os picos observados sejam referentes à transições do tipo doador-aceitador ($D^0 - A^0$), as quais possuem energia de recombinação dada pela Eq. (91)^[66]:

$$h\nu = [E_g^{InGaAs} + E_I + E_{hh1}] - [E_D + E_A] + \frac{e^2}{\epsilon r} \quad (91)$$

Assim, o deslocamento do pico de fotoluminescência com a intensidade de excitação poderia ser igualmente bem explicado através da saturação dos pares ($D^0 - A^0$) mais distantes (que apresentam taxas de recombinação muito baixas), em favor dos pares ($D^0 - A^0$) mais próximos, os quais resultam em fótons de maior energia^[68]. Neste caso, devido ao fato da nossa amostra ser intencionalmente dopada com Si, o qual apresenta caráter anfótero mas é preferencialmente doador, acreditamos que transições do tipo ($D^0 - A^0$) estejam presentes.

O deslocamento inicial do pico 3 (em energia), observado na Fig. 18, se deve às flutuações de potencial presentes na amostra. À medida que a intensidade de excitação é aumentada, as flutuações de potencial, que se comportam como pequenos poços e têm uma densidade de estados pequena, vão sendo populadas e os éxcitons gerados passam a ocupar estados de energia mais elevada. Quando os estados relativos às flutuações de potencial são completamente preenchidos, os éxcitons passam a ocupar estados de éxciton livre e, devido à grande densidade de estados presente, o deslocamento em energia tende a ser menor. Como veremos a seguir, a análise dos espectros de fotoluminescência em função da temperatura também evidencia a presença de uma pequena flutuação de potencial em nossa amostra.

6.3 RESULTADOS E DISCUSSÃO DA FOTOLUMINESCÊNCIA COM VARIAÇÃO DE TEMPERATURA A 0.1 mW

Construímos gráficos das curvas da variação do pico de energia com a temperatura utilizando três intensidades de excitação diferentes: 0,1, 1 e 10 mW. Os espectros dos quais os dados foram obtidos e os respectivos gráficos da variação do pico de energia com a temperatura são apresentados nos próximos itens. Nessas medidas a potência foi controlada através da utilização de filtros de densidade neutra e do filtro circular giratório, com exceção das medidas com $P = 10$ mW, nas quais a utilização de filtros não foi necessária. Neste item discutimos, exclusivamente, os resultados obtidos para $P = 0.1$ mW, deixando a análise dos espectros com $P = 1$ e 10 mW para o item 6.4.

6.3.1 Resultados da Variação de Temperatura com $P = 0.1$ mW

Na Figura 20 mostramos os espectros obtidos para a variação de temperatura da SR 72402 à potência de 0.1 mW.

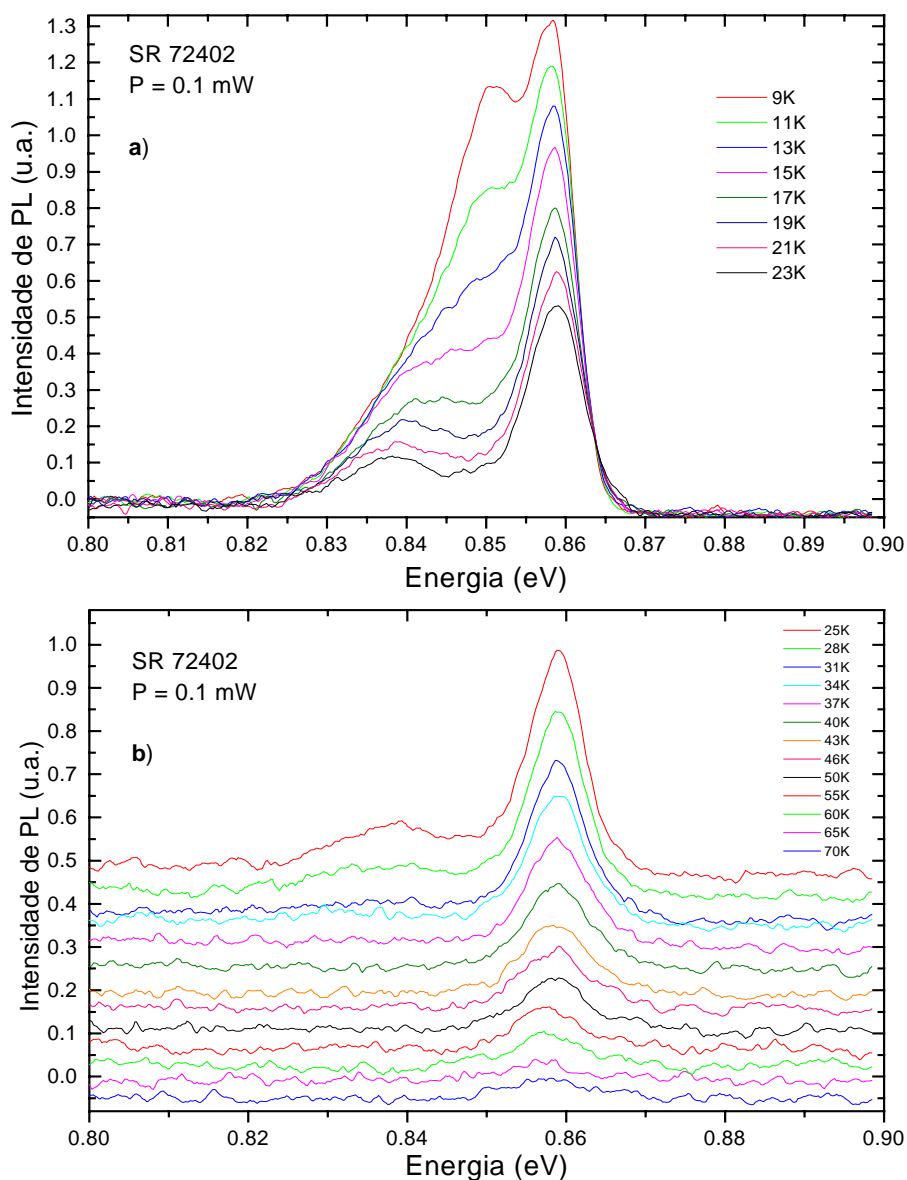


Figura 20 – Espectros da variação de temperatura da SR 72402 à potência de excitação de 0.1 Mw a) variação de 9 a 23 K; b) variação de 25 a 70 K (deslocados para melhor visualização).

Uma análise prévia dos espectros mostrados acima permite-nos concluir que o pico 2 perde intensidade mais rapidamente que o pico 1 à medida que se aumenta a temperatura, e que o pico 3 persiste em temperaturas mais elevadas, podendo ser observado até 70 K aproximadamente.

Dentre os espectros mostrados na Fig. 20a, pode-se observar que aquele obtido a 23 K apresenta uma transição nítida para o lado de menores energias. Esse pico corresponde à transição 1 obtida para os espectros com variação de potência (Fig. 16).

Realizamos uma “deconvolução” desse espectro através do programa Origin, utilizando 3 curvas Gaussianas, a qual é mostrada na Fig. 21.

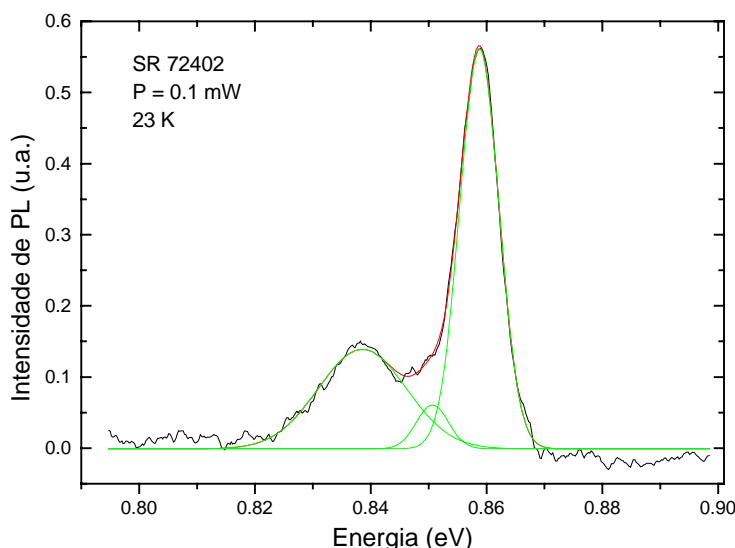


Figura 21 – Deconvolução do espectro de fotoluminescência da SR 72402 a 0,1 mW de excitação para a temperatura de 23 K.

Na Tabela 05 mostramos os valores dos parâmetros obtidos para as 3 curvas Gaussianas utilizadas para o ajuste do espectro da Fig. 21.

Tabela 5 – Valores dos parâmetros obtidos através da deconvolução dos espectros de fotoluminescência, a potência de 0,1 mW, para a SR 72402 a 23 K.

Potência / Temperatura	Curva 1	Curva 2	Curva 3
	Energia (eV)		
0,1 mW	0,8385	0,8506	0,8588
	Largura de Linha (eV)		
23 K	0,01522	0,00557	0,00679
	Área		
	0,00267	0,00043	0,00478

A Figura 22 mostra a variação do pico de maior energia (pico 3) em função da temperatura para a potência de 0,1 mW. Nessa figura é possível observar, na região de mais baixas temperaturas, um pequeno deslocamento para energias maiores (“blueshift”) e, a partir de aproximadamente 28 K, inicia-se um deslocamento

para energias menores (“redshift”), em concordância com o comportamento padrão quando em medidas de fotoluminescência com variação de temperatura. A magnitude do “blueshift” observado (que é a diferença em energia obtida entre os pontos nas temperaturas de 9 e 28 K) é de aproximadamente 1,0 meV.

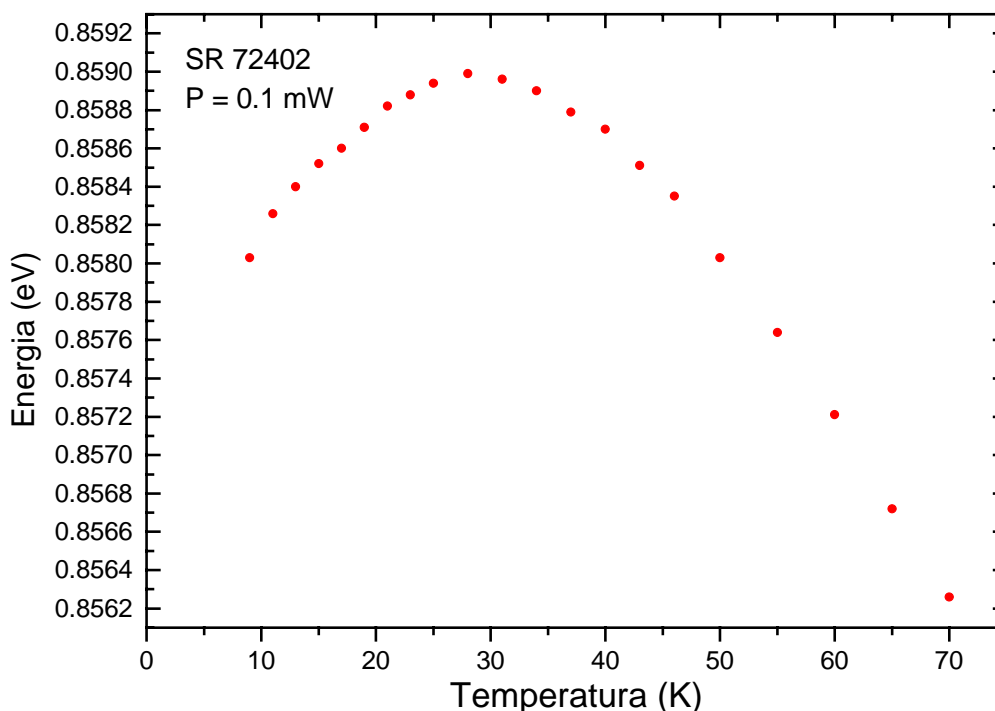


Figura 22 – Variação do pico de maior energia (pico 3) em função da temperatura para a SR 72402 para P = 0,1 mW.

6.3.2 Discussão da Variação de Temperatura com P = 0.1 mW

Como mencionado anteriormente, o fato dos picos 1 e 2 decrescerem mais rapidamente com a temperatura do que o pico 3 também reforça a hipótese de que os picos 1 e 2 são devidos à impurezas e o pico 3 devido à emissão excitônica.

É bem conhecido que, para uma análise adequada das transições envolvendo impurezas, a luminescência ($e - A^0$) deve ser coletada em condições de baixa excitação e temperatura otimizada de modo a favorecer a transição ($e - A^0$) em relação a transição ($D^0 - A^0$). Skromme e colab.^[70], por exemplo, observou que a temperatura na qual ocorre a transição da condição ($D^0 - A^0$) para a condição ($e - A^0$)

em super-redes de GaAs/AlGaAs é aproximadamente 10 K e, assim sendo, calculou a energia dos aceitadores presentes em suas amostras na temperatura de 15 K.

Acreditamos que, para a SR 72402, a temperatura de 23 K seja suficiente para ionizar os doadores presentes, além do fato, de que nessa temperatura, como já mencionado, o espectro permite uma melhor visualização da transição 1 (Fig. 21). Vale ressaltar, também, que nessa faixa de temperatura o efeito das flutuações de potencial (o “blueshift”) é minimizado (Fig. 22). Através dos valores obtidos para a deconvolução desse espectro (Tabela 05), calculamos as diferenças de energia entre as transições, sendo elas:

$$\Delta(3-2) = 8,2 \text{ meV}$$

$$\Delta(3-1) = 20,3 \text{ meV}$$

Goetz e colab.^[58] obtiveram uma energia de ligação de 2,0 meV para o éxciton no InGaAs “bulk”. Valadares^[71] observou que em super-redes de InGaAs/AlInAs a energia de ligação excitônica depende da temperatura e que, para 20 K, possui o valor de $\sim 3,0$ meV. Contudo, Bleuse e colab.^[72] consideram $\sim 5,0$ meV para a energia de ligação do éxciton em super-redes de InGaAs/InGaAlAs. Assim, estimamos para a nossa amostra, uma energia de ligação excitônica de $(4,0 \pm 1,0)$ meV. Considerando essa energia de ligação do éxciton, mais a correção $\frac{1}{2} kT$ para a energia cinética (~ 1 meV) e estimando a incerteza final, obtemos $(13,2 \pm 2,0)$ meV e $(25,3 \pm 2,0)$ meV para as energias de ionização referentes às transições 1 e 2. A equação que permite obter esses resultados para o cálculo da energia de ionização de uma impureza é a Eq. (90), reapresentada abaixo.

$$E_A = E(E_{bx} - hh_1) - E(n_1 - A^0) + E_{bx}(hh) \quad (90)$$

A correção $\frac{1}{2} kT$ para a energia cinética está relacionada com distribuição térmica dos portadores na banda de condução, o quais recombinam para os estados das impurezas aceitadoras. Assim, esse valor deve ser subtraído em $E(n_1 - A)$, ou, equivalentemente, somado a E_A .

Os valores encontrados concordam com aqueles obtidos por Goetz e colab.^[58] para as energias de ionização do Carbono (13 ± 1 meV) e do Silício (25 ± 1

meV) no InGaAs “bulk”. Essa consideração é bastante razoável, visto que: a) o Carbono é um dos dopantes não intencionais mais comuns observados em amostras crescidas através da técnica de MBE; b) a SR 72402 é intencionalmente dopada com Silício.

Embora seja esperado que a energia de ligação de impurezas em poços quânticos seja maior com relação ao caso “bulk”, devido aos efeitos de confinamento, o que se observa é apenas uma pequena alteração nessa energia para o caso de impurezas que apresentam energia de ligação elevada. No caso das super-redes, o “não confinamento” total proporcionado pelo acoplamento entre os poços quânticos pode tornar a diferença na energia de ligação de impurezas entre o material “bulk” e a super-rede ainda mais sutil.

O fato de que a transição 1 (referente ao Si) pode ser visualizada até temperaturas de aproximadamente 30 K (Fig. 20b), enquanto a transição 2 (referente ao C) desaparece para temperaturas inferiores, pode ser explicado pela maior energia de ligação do Si, pois temperaturas mais baixas são suficientes para ionizar os níveis do C, desfavorecendo a recombinação dos elétrons foto gerados para estes níveis. Na Fig. 21 pode-se notar o grande alargamento do pico referente ao Si, que é atribuído à contribuição de recombinações envolvendo aceitadores de Si em várias posições (com relação ao eixo de crescimento) ao longo do poço.

Ainda que as considerações expostas acima se ajustem à identificação dos picos 1 e 2 como sendo referentes à aceitadores de Si e C, respectivamente, é necessária a consideração de uma segunda alternativa para a identificação dessas transições: a hipótese que os picos 1 e 2 não sejam referentes a duas espécies químicas distintas, mas sim a uma mesma espécie química localizada em regiões diferentes da amostra.

Skromme e colab.^[70] atribuíram aos aceitadores com energias de ionização 13,5 meV e 31,9 meV observados em uma super-rede de GaAs/AlGaAs a aceitadores de C localizados nas barreiras e nos poços, respectivamente. Uma das razões dessa atribuição é o fato da energia de ligação calculada para o C aceitador em poços quânticos isolados^[73] ser de 32,6 meV no centro do poço e de 14,3 meV na interface. Assim, analogamente, é possível que ao invés da transição 2 estar relacionada à recombinação envolvendo o C aceitador localizado no poço, esta transição esteja associada à recombinação envolvendo o Si aceitador na barreira. Portanto, há duas possibilidades acerca da origem das transições: i) a transição 1

(energia mais baixa) ser devida ao Silício aceitador e a transição 2 ser devida ao Carbono aceitador e ii) a transição 1 ser devida ao Silício aceitador localizado na região do poço e a transição 2 ser devida ao Silício aceitador localizado nas barreiras.

Na Figura 22 podemos observar, novamente, o efeito da presença das flutuações de potencial já mencionadas no item 6.2b. À medida que a temperatura aumenta, há uma distribuição da população dos estados relativos às flutuações de potencial de modo que os éxcitons passam a ocupar estados de mais elevadas energias, resultando em uma maior energia de recombinação (emissão) e dando origem ao “blueshift” observado. É importante salientar que durante a variação de temperatura (em baixas temperaturas) há uma competição entre o efeito de flutuações de potencial e o efeito de redução do “gap” de energia com a temperatura, sendo que em nosso caso este último passa a prevalecer a partir de aproximadamente 28 K.

6.4 RESULTADOS E DISCUSSÃO DA FOTOLUMINESCÊNCIA COM VARIAÇÃO DE TEMPERATURA A 1 E 10 mW

6.4.1 Resultados de Temperatura com P = 1 e 10 mW

Neste item iremos apresentar os resultados obtidos para a variação de temperatura utilizando duas potências diferentes: 1 e 10 mW. A variação de temperatura com P = 1 mW é mostrada na Fig. 23.

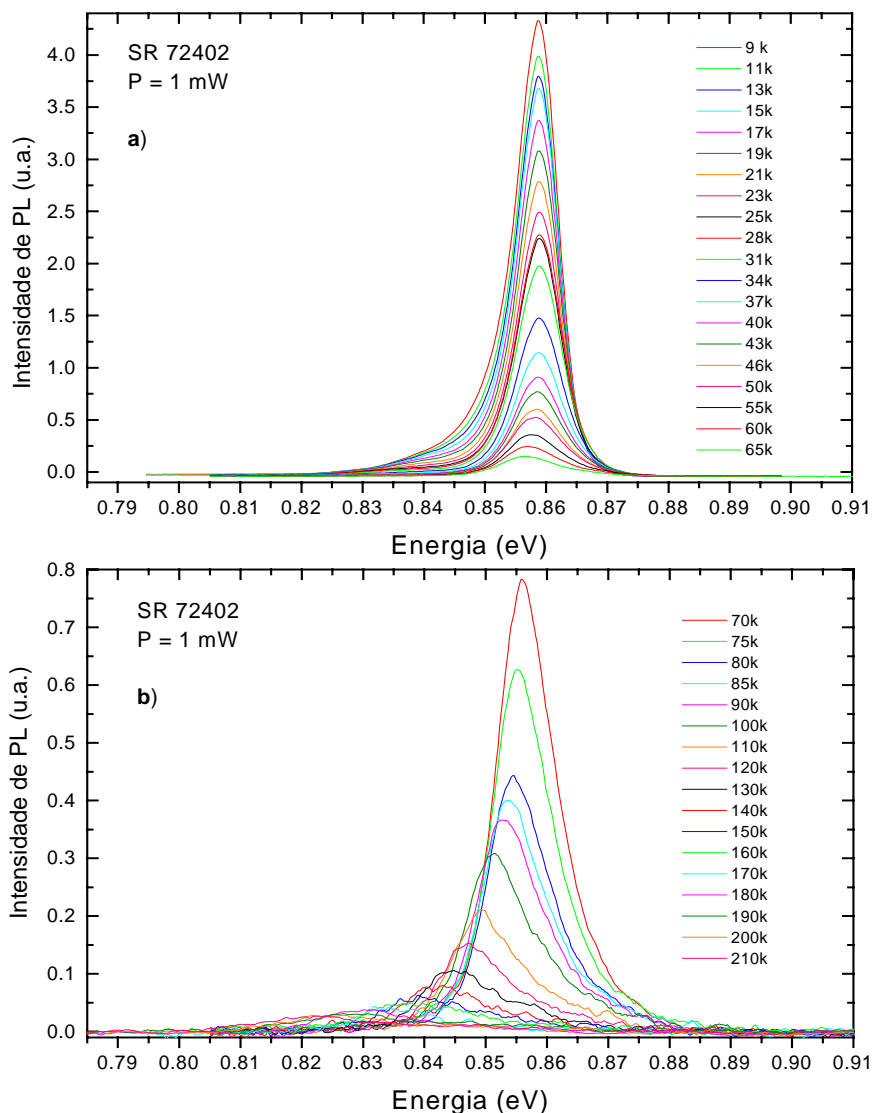


Figura 23 – Espectros da variação de temperatura da SR 72402 à potência de excitação de 1 mW: a) variação de 9 a 65 K; b) variação de 70 a 210 K.

Na Fig. 23a observa-se nos espectros a existência de uma assimetria (cauda) para o lado de menores energias, em contraposição à Fig. 23b, onde se nota uma assimetria para o lado de maiores energias.

Ajustando alguns espectros de fotoluminescência (obtidos à diferentes temperaturas) com expressões que levam em consideração a transição excitônica e a transição banda-banda¹, foi possível constatar, para a SR 72402, que o pico de fotoluminescência corresponde ao pico da emissão excitônica. Esse mesmo comportamento já havia sido observado por Grilli e colab.^[28] para o caso do GaAs

¹ Estes ajustes foram realizados através da utilização de um “software” específico pelo Prof. Dr. S. Prabhu – Tata Institute of Fundamental Research, Mumbai, 400 005, Índia, 2004.

“bulk”. Assim, concluímos que as curvas da variação do pico de fotoluminescência com a temperatura representam a variação do pico de energia da transição excitônica com a temperatura. A Fig. 24 mostra essa curva para a potência de 1 mW.

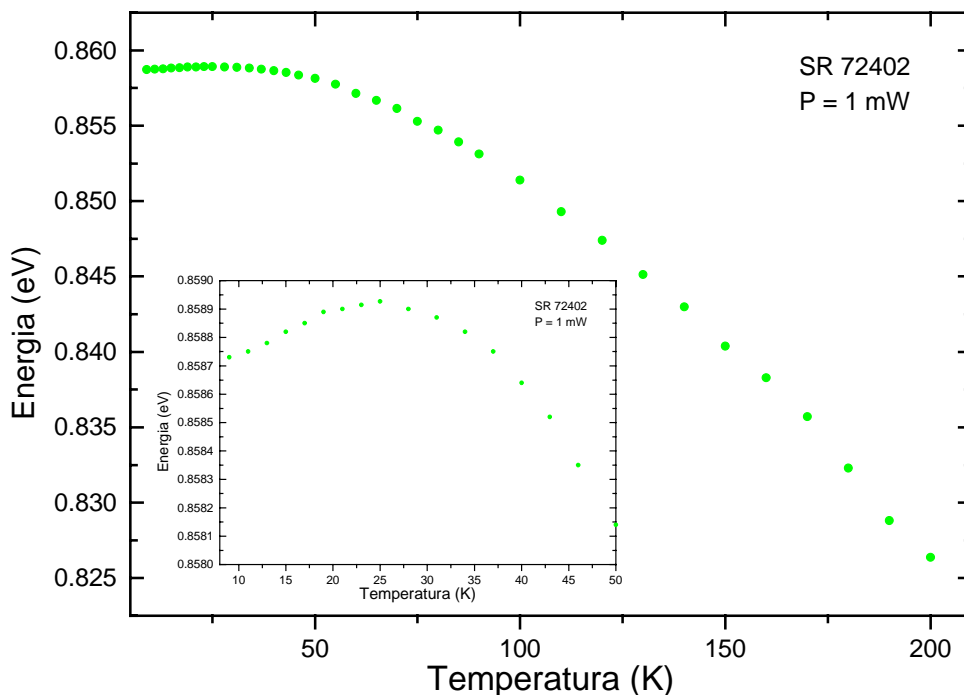


Figura 24 – Variação do pico de energia em função da temperatura para a SR 72402 para $P = 1$ mW. Uma ampliação da região de baixas temperaturas é mostrada em detalhe.

É possível observar (vide ampliação no gráfico), na região de mais baixas temperaturas, um pequeno “blueshift” e, a partir de aproximadamente 25 K, inicia-se o deslocamento para energias menores de acordo com o comportamento usual de redução do “gap” com a temperatura. A magnitude do “blueshift” observado é de aproximadamente 0,2 meV.

Na Figura 25 são mostrados os espectros de fotoluminescência obtidos com $P = 10$ mW.

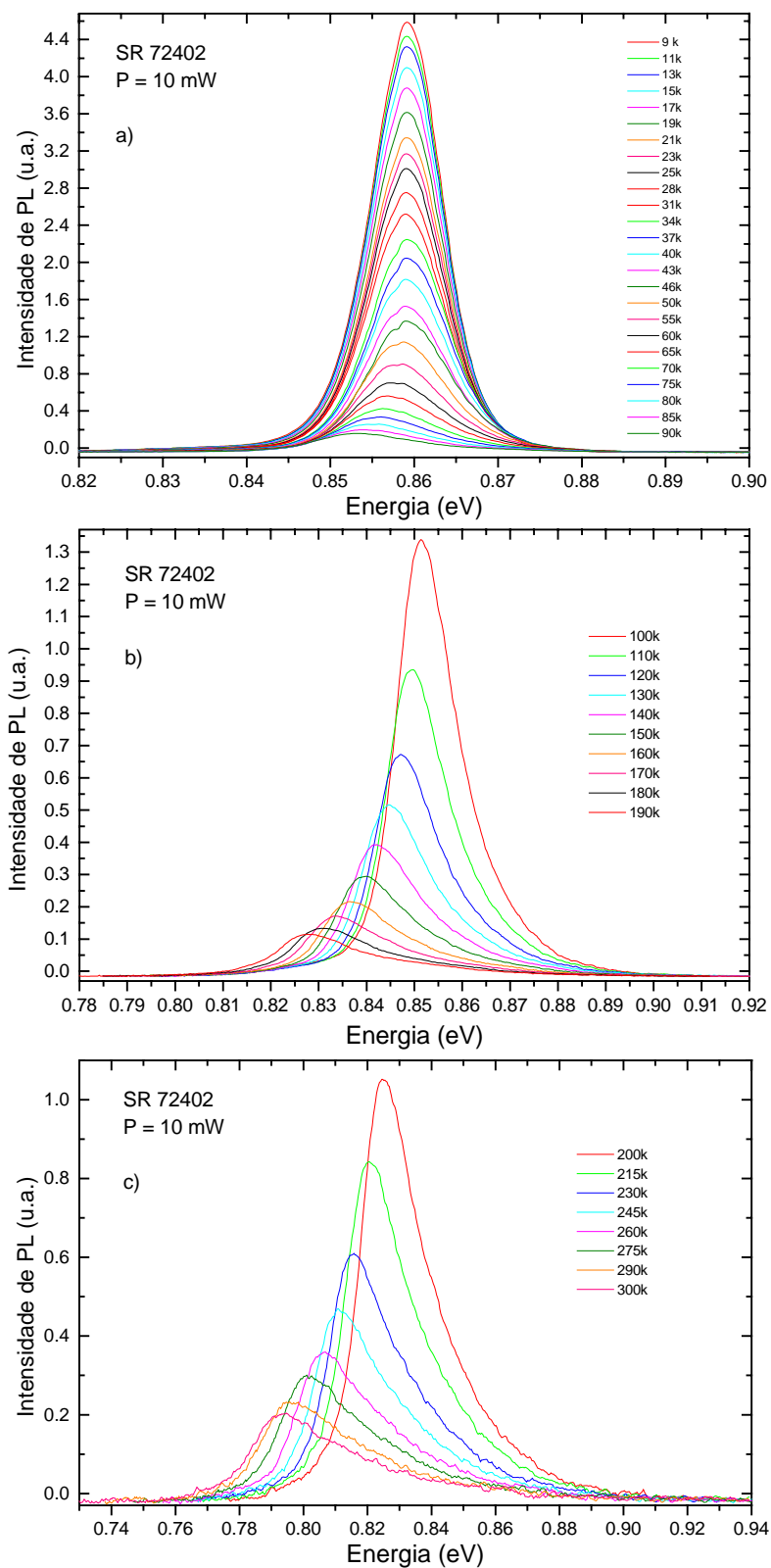


Figura 25 – Espectros da variação de temperatura da SR 72402 à potência de excitação de 10 mW: a) variação de 9 a 90 K; b) variação de 100 a 190 K; c) variação de 200 a 300 K.

Para a variação de temperatura mostrada na Fig. 25, especialmente na Fig. 25a, não se observa nos espectros a assimetria para o lado de menores energias, presente nos espectros a 1mW.

Na Fig. 26 é mostrado o gráfico da variação do pico de energia em função da temperatura para a potência de 10 mW.

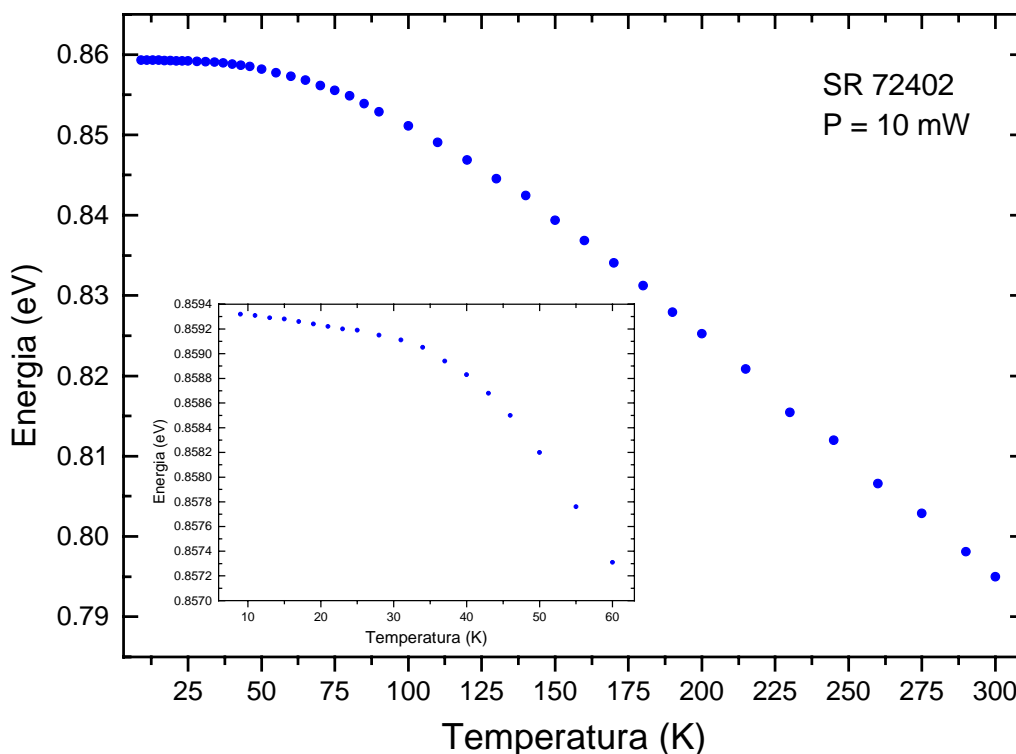


Figura 26 – Variação do pico de energia em função da temperatura para a SR 72402 para $P = 10$ mW. Uma ampliação da região de baixas temperaturas é mostrada em detalhe.

A variação do pico de energia em função da temperatura mostrada na Fig. 26 não apresenta “blueshift”, como observado nos casos anteriores para as potências de excitação de 0,1 e 1 mW. Deste modo podemos comparar os resultados dos cálculos computacionais (obtidos a 9 K) com o valor obtido para o pico de energia com a potência de 10 mW (a 9 K): 859,3 meV.

O valor teórico obtido para a transição e_1-hh_1 (recombinação de um elétron da primeira mini-banda de elétrons com um buraco da primeira mini-banda de buracos pesados) é 862,1 meV, contudo, o cálculo não leva em consideração a energia de ligação excitônica, estimada em $(4,0 \pm 1,0)$ meV (item 6.3b), e que subtraída do

valor obtido resulta em $(858,1 \pm 1,0)$ meV. Assim, observamos a concordância entre a teoria e nossos resultados experimentais onde consideramos que essa emissão está associada à transição excitônica relacionada à transição entre as mini-bandas $e_1 - hh_1$.

6.4.2 Discussão da Variação de Temperatura com $P = 1$ e 10 mW

A cauda para o lado de menor energia presente nos espectros de fotoluminescência a 1 mW de potência em baixas temperaturas (Fig. 23a) se deve às emissões dos estados referentes às flutuações de potencial presentes na amostra. Portanto, à essa potência de excitação, ainda é possível observar a presença do “blueshift” com a temperatura, no entanto, com o aumento da potência, os estados de mais baixa energia do “band-tail”, que são em menor número, são ocupados e, assim, a emissão dos estados de maior energia é que passam a predominar, diminuindo os efeitos da flutuação de potencial. À uma mesma potência de excitação, o aumento da temperatura também fornece energia suficiente para que os portadores ocupem estados de energia mais elevados e, assim, deixem de refletir o efeito das flutuações de potencial.

Para a potência de 10 mW o efeito descrito acima já não é perceptível (Fig. 25) pois, devido à grande quantidade de portadores (éxcitons) criados, ocorre a saturação dos estados de energia referentes aos “vales” das flutuações de potencial.

Nas Figuras 23 e 25 pode-se observar, para as temperaturas mais elevadas, uma cauda exponencial para o lado de maiores energias. Esta assimetria no espectro está relacionada com a distribuição térmica estatística dos portadores na mini-banda de condução e torna-se mais evidente para potências maiores devido à participação de um número maior de portadores.

Para uma análise sistemática do efeito da potência sobre as flutuações de potencial, mostramos os três gráficos da variação do pico de energia em função da temperatura na Fig. 27. A curva é mostrada para o intervalo de 9 a 130 K para possibilitar maior clareza na visualização. Vale lembrar que a obtenção dos valores dos pontos para potências baixas apresenta maior dificuldade e, conseqüentemente, maior incerteza na posição do pico, assim, a curva para $P = 0,1$

mW (em vermelho) pode apresentar um comportamento mais (ou menos) “inclinado” do que o mostrado na figura.

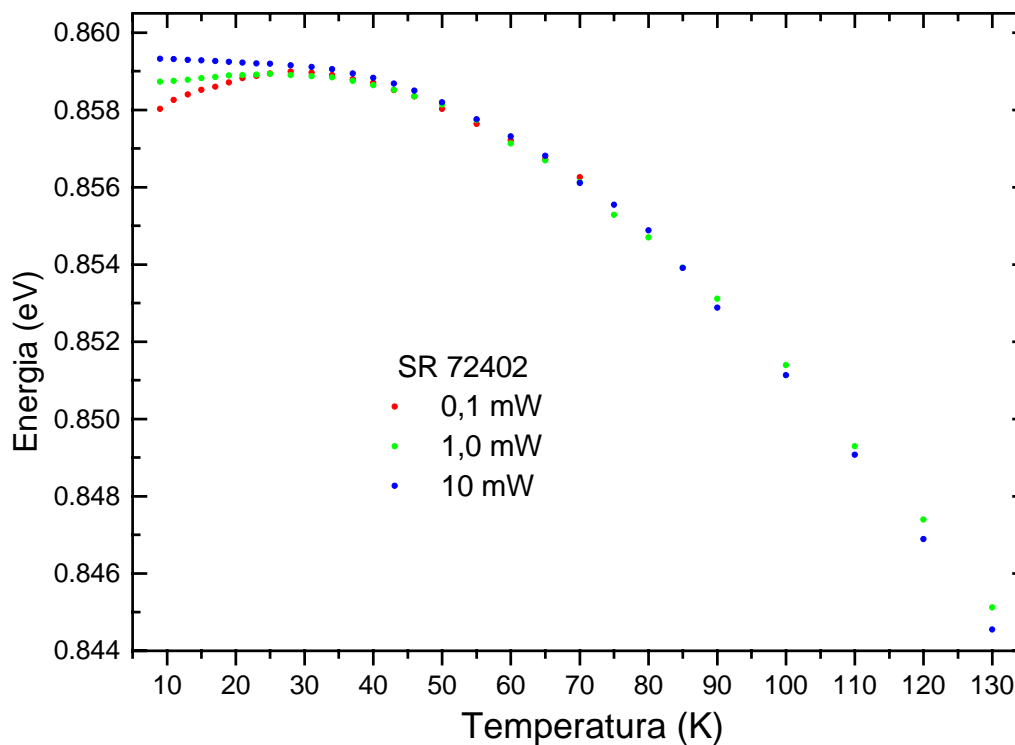


Figura 27 – Variação do pico de energia em função da temperatura para a SR 72402 para as potências de 0,1, 1 e 10 mW.

Pode-se notar, através da Fig. 27, que quando a intensidade de excitação é diminuída o valor do “blueshift” aumenta (de 0,2 meV para $P = 1$ mW para 1,0 meV para $P = 0,1$ mW) e que a posição de seu valor máximo se desloca para maiores temperaturas (de ~ 25 K para $P = 1$ mW para ~ 28 K para $P = 0,1$ mW). Para intensidades de excitação suficientemente altas o “blueshift” desaparece e o espectro de PL em função da temperatura comporta-se de forma semelhante ao dos materiais III-V tradicionais (livres de flutuações de potencial).

6.5 RESULTADOS E DISCUSSÃO DOS MODELOS TEÓRICOS DE VARIAÇÃO DO “GAP” DE ENERGIA COM A TEMPERATURA

Com a finalidade de avaliarmos a “eficiência” dos modelos que descrevem a variação do “gap” de energia com a temperatura discutidos no Capítulo 3, para a SR 72402, ajustamos, através do programa Origin, a curva de variação do pico de energia com a temperatura à potência de 10 mW. Acreditamos que esta curva seja a mais apropriada para a análise desejada pois se refere à menor potência na qual os efeitos das flutuações de potencial não estão presentes. As expressões utilizadas, Eq. (74), Eq. (77) e Eq. (81), referentes aos modelos de Varshni, Viña e Pässler, respectivamente, são rerepresentadas abaixo:

$$E_g(T) = E_g(0) - \alpha_{Var} \frac{T^2}{\beta + T} \quad (74)$$

$$E_g(T) = E_B - a_B \left[1 + \frac{2}{\exp(\Theta_B / T) - 1} \right] \quad (77)$$

$$E_g(T) = E_g(T=0) - \frac{\alpha\Theta}{2} \left[\sqrt[p]{1 + \left(\frac{2T}{\Theta}\right)^p} - 1 \right] \quad (81)$$

Os ajustes são mostrados na Fig. 28.

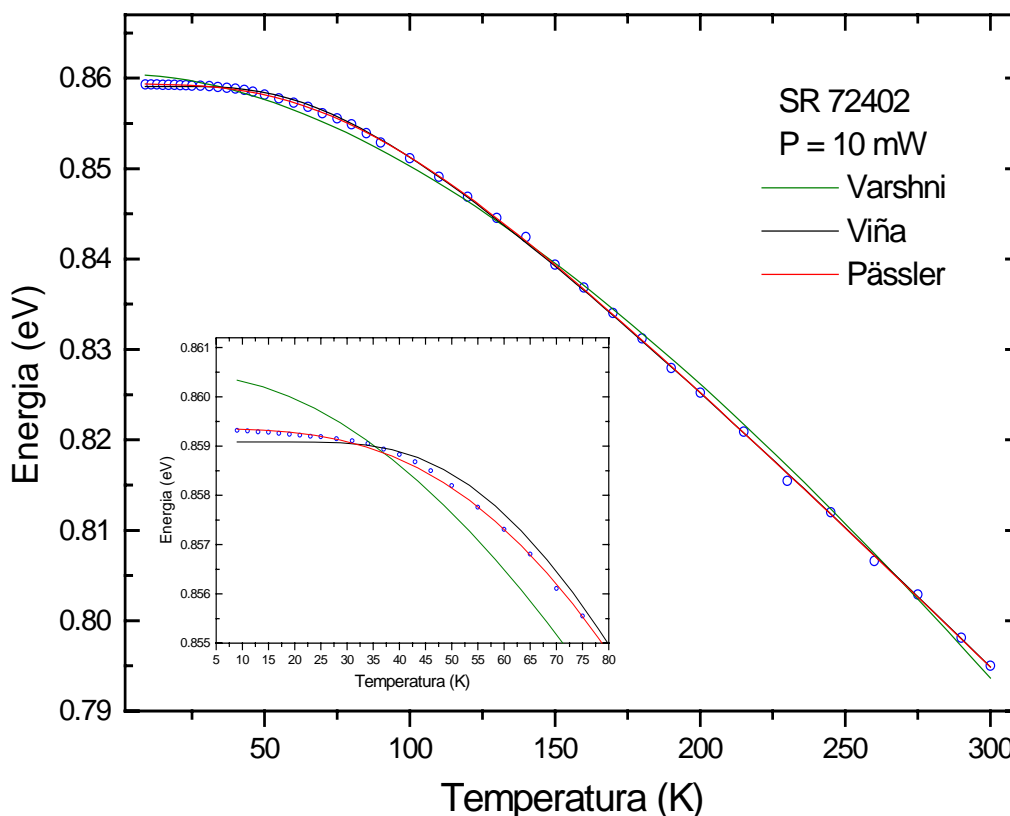


Figura 28 – Ajuste através dos modelos de Varshni, Viña e Pässler para a curva de variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura para a potência de 10 mW. Uma ampliação da região de baixas temperaturas é mostrada em detalhe.

Assim como mostrado na Fig. 10 para o caso do GaAs “bulk”, também para a SR 72402, analisando visualmente os gráficos na região de baixas temperaturas, pode-se notar que o modelo de Varshni superestima a curva experimental, o modelo de Viña a subestima e o modelo de Pässler fornece o melhor ajuste.

Na Tabela 06, apresentamos os valores dos parâmetros obtidos para os ajustes utilizando os três modelos para a SR 72402.

Tabela 6 – Parâmetros obtidos para o ajuste da variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura utilizando os modelos de Varshni, Viña e Pässler.

Amostra	$E_g(0)$ meV	α_{Var} (10^{-4} eV/K)	β (K)	ρ	S^2 (meV) ²
	E_B (meV)	a_B (meV)	Θ_B (K)		
	$E_g(0)$ meV	α (10^{-4} eV/K)	Θ (K)		
SR 72402	860.4 ± 0.2	5.5 ± 0.4	445 ± 52	-	$S^2(Var)$ 0.6
	898.5 ± 0.6	39.43 ± 0.63	240 ± 3	-	$S^2(Vin)$ 0.08
	859.4 ± 0.1	3.20 ± 0.03	199 ± 4	3.1 ± 0.1	$S^2(Pas)$ 0.05

Onde Var, Vin e Pas são as iniciais de Varshi, Viña e Pässler respectivamente.

Ainda na Tabela 06, além dos parâmetros envolvidos nos modelos teóricos, também é mostrado o valor de S^2 , que representa o valor do desvio quadrático médio e é utilizado como critério de avaliação da qualidade da reprodução da curva descrita pelos pontos experimentais^[29].

O procedimento realizado para chegar ao melhor ajuste é: inserimos no programa Origin a expressão a ser ajustada aos pontos experimentais definindo os coeficientes a serem ajustados. Num próximo passo inserimos os valores aproximados dos coeficientes para iniciar o cálculo da curva. Em seguida o programa calcula o valor de S^2 . O programa repete estes passos até obter o menor valor de S^2 , obtendo assim os melhores valores dos parâmetros para as equações que descrevem os dados experimentais.

Através da Tabela 06 pode-se comprovar a conclusão obtida anteriormente através das Fig. 28: a expressão obtida com o modelo proposto por Pässler apresenta os melhores resultados comparativamente aos outros dois modelos minimizando o S^2 .

Na Figura 29, a seguir, mostramos os ajustes realizados, através da expressão de Pässler, para os resultados experimentais obtidos da variação de temperatura para a SR 72402 e para o $In_{0,53}Ga_{0,47}As$ “bulk”^[32]. Os dados referentes ao $In_{0,53}Ga_{0,47}As$ “bulk” foram obtidos de medidas de fotoluminescência da camada “buffer” de uma amostra contendo poços quânticos simples e acoplados de InGaAs/InGaAlAs crescida em condição de rede casada sobre InP e com uma composição de Al semelhante à SR 72402. Os dois “conjuntos de dados” foram obtidos utilizando-se as

mesmas condições experimentais. A curva referente ao InGaAs “bulk” foi deslocada verticalmente (na escala de energia) para permitir uma melhor comparação.

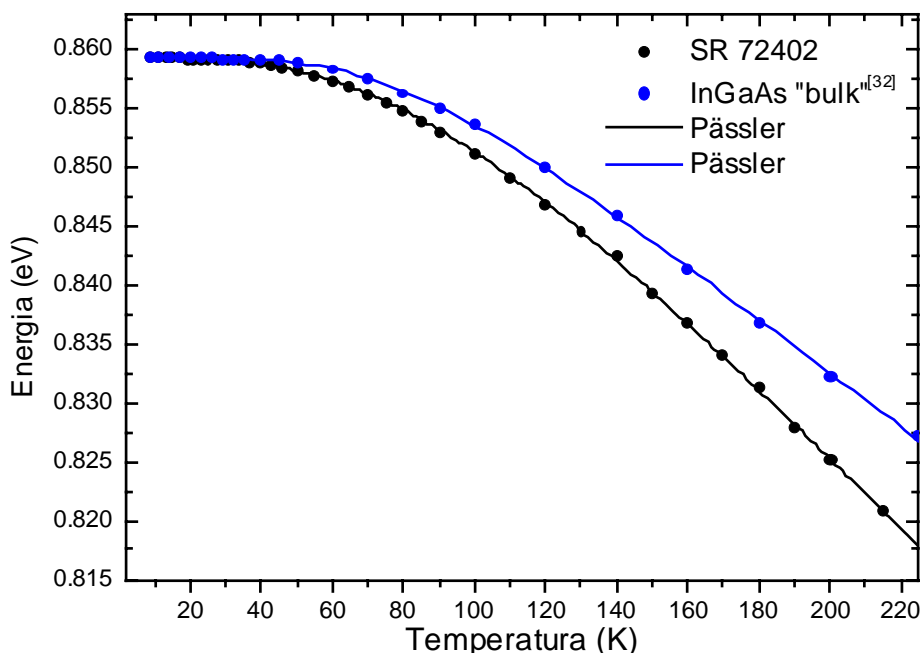


Figura 29 – Ajuste através do modelo de Pässler para a curva de variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura para a SR 72402 e para o InGaAs “bulk”^[32]. Os dados foram obtidos nas mesmas condições experimentais. A curva para o InGaAs “bulk” foi deslocada verticalmente para uma melhor comparação.

Na Tabela 07, apresentamos os valores dos parâmetros obtidos para os ajustes mostrados na Fig. 29.

Tabela 7 – Parâmetros obtidos para o ajuste da variação do pico de fotoluminescência em função da temperatura utilizando o modelo de Pässler para a SR 72402 e o InGaAs “bulk” (Fig. 29).

Amostra	$E_g(0)$ meV	α (10^{-4} eV/K)	Θ (K)	ρ	S^2 (meV) ²
SR 72402	859.4 ± 0.1	3.20 ± 0.03	199 ± 4	3.1 ± 0.1	0.05
InGaAs “bulk”	$859,4 \pm 0.1$	2.30 ± 0.03	171 ± 4	4.2 ± 0.2	0.02

Através dos resultados mostrados na Tab. 07 podemos constatar que existem diferenças entre os parâmetros α , Θ e ρ (o valor do parâmetro $E_g(0)$ para o

InGaAs “bulk” representa o valor obtido para o ajuste realizado *com* a curva deslocada na escala de energia) obtidos para a super-rede e para o material “bulk”.

Estas diferenças indicam que a curva que descreve a variação do pico de energia em função da temperatura para a super-rede (heteroestrutura) não apresenta o mesmo comportamento que a curva referente ao material “bulk”. Este resultado, da mesma forma como observado por outros autores para outros materiais e/ou heteroestruturas^[29-32,36,37], mostra que a presença adicional das barreiras (as quais contém Al), na SR 72402, influencia no comportamento da variação do pico de energia em função da temperatura, comparativamente ao material “bulk” (constituente do poço).

7 CONCLUSÕES

Neste trabalho investigamos uma super-rede semicondutora de $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}/\text{In}_{0,52}\text{Ga}_{0,235}\text{Al}_{0,24}\text{As}$, a SR 72402, crescida através da técnica de epitaxia por feixe molecular (MBE) sobre InP. A técnica usada para a realização deste estudo foi a fotoluminescência (PL), que foi utilizada para a realização de medidas em função da potência de excitação e da temperatura.

Os resultados obtidos para a variação de potência à baixas temperaturas possibilitaram classificar as transições 1 e 2 (de mais baixas energias) como sendo referentes à impurezas e a transição 3 como recombinação excitônica. O deslocamento das transições 1 e 2 para energias maiores com o aumento da potência pode ser explicado através de duas maneiras distintas: *i)* saturação dos sítios que apresentam maior energia de ligação, próximos ao centro do poço ou *ii)* saturação dos pares ($D^0 - A^0$) mais distantes em favor dos pares mais próximos. A variação de potência ainda forneceu indicativos da presença de pequenas flutuações de potencial, efeito confirmado posteriormente através da análise com a temperatura.

A variação de temperatura, especialmente aquela realizada para a condição de potência mais baixa (1mW), além de corroborar as conclusões obtidas com a variação de potência, permitiu a formulação de duas possibilidades acerca da origem das transições: *i)* a transição 1 (energia mais baixa) ser devida ao Silício aceitador e a transição 2 ao Carbono aceitador e *ii)* a transição 1 ser devida ao Silício aceitador localizado na região do poço e a transição 2 ao Silício aceitador localizado nas barreiras. Algumas informações corroboram a hipótese *i)*: o fato das energias de ligação estimadas para os aceitadores envolvidos nessas transições, $(13,2 \pm 2,0 \text{ meV})$ e $(25,3 \pm 2,0 \text{ meV})$, concordarem com as energias de ligação do Carbono e do Silício, respectivamente, no InGaAs “bulk” e o conhecimento de que a SR 72402 é dopada intencionalmente com Silício e que o Carbono é um dos dopantes não-intencionais fortemente presentes em amostras crescidas através da técnica de MBE. Contudo, o fato da amostra ser uniformemente dopada (dopagem nos poços e nas barreiras) não anula a hipótese *ii)*, não possibilitando determinar inequivocamente a origem dessas transições.

A variação de temperatura a 0.1 mW de potência também evidenciou os efeitos de flutuações de potencial, através da observação de um pequeno “blueshift” ($\sim 1\text{meV}$, entre as temperaturas de 9 e 28 K). Este resultado permite constatar a boa qualidade da amostra. O “blueshift” com a temperatura ainda esteve presente para a curva com a potência de 1 mW, sendo que para as medidas realizadas com potência de 10 mW este efeito foi completamente anulado.

O valor teórico para a transição $e_1\text{-hh}_1$ a 9 K é 862,1 meV, o qual, considerando a estimativa para a energia de ligação do éxciton, resultando em um valor de $\sim 858,1\text{ meV}$, condiz com o valor obtido experimentalmente, a 9 K, com a potência de 10 mW: 859,3 meV. Este resultado nos permite, além de comprovar a origem dessa transição, observar a validade dos conceitos teóricos.

Ajustamos, através das expressões de Varshni, Viña e Pässler, os dados obtidos para a variação de temperatura a 10 mW (adequada por não apresentar efeitos de flutuações de potencial) e constatamos que o resultado obtido para nossa super-rede dopada concorda com os resultados obtidos para o caso de materiais “bulk”, como o GaAs: o modelo de Varshni superestima a curva experimental, o modelo de Viña a subestima e o modelo de Pässler resulta no melhor ajuste, pois fornece o menor valor para S^2 . Assim, a utilização do modelo de Pässler faz-se obrigatória.

Observamos, através da análise dos parâmetros da equação de Pässler obtidos para o ajuste das curvas da variação da transição excitônica com a temperatura para o InGaAs (material constituinte dos poços da super-rede analisada) e para a SR 72402, que os comportamentos dessas curvas são distintos.

Algumas propostas adicionais surgem como extensão deste trabalho, por exemplo: i) o estudo de super-redes não intencionalmente dopadas, o que auxiliaria na identificação acerca da origem das transições associadas às impurezas; ii) uma investigação mais detalhada a respeito dos parâmetros envolvidos nos modelos de ajuste da variação da transição excitônica com a temperatura, analisando sistematicamente os casos “bulk” e heteroestrutura e iii) a utilização de técnicas experimentais alternativas para investigação de outras propriedades físicas da amostra, como por exemplo, a realização de medidas de magneto-fotoluminescência para a obtenção de um valor experimental para a energia de ligação excitônica.

REFERÊNCIAS

A. D. Lúcio. “Estudo das Propriedades Ópticas de Dispositivos de Poços Quânticos Quaternários do Tipo InGaAsP/InP e de Super-redes Ternárias do Tipo InAlAs/InGaAs/InP”, dissertação de mestrado, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte (1998).

A. Kangarlu, H. R. Chandrasekhar, M. Chandrasekhar, Y. M. Kappor. Phys. Rev. B, 37, 1035 (1988).

A. Manoogian, J. C. Wolley. Can. J. Phys. 62, 285 (1984).

A. Mereuta, A. Mircea, A. Rudra, V. Iakovlev, A. Syrbu, G. Suruceanu, C. A. Berseth, A. Caliman, K. Leifer, E. Kapon. 10th European Workshop on MOVPE, Lecce (Italy), PS.V. 13 (2003).

A. Sandhu, Y. Nakata, S. Sasa, K. Kodama, S. Hiyamizu. Jpn. J. Appl. Phys. 26, 1709 (1987).

Applications of Multiquantum Wells, Selective Doping and Superlattices, in Semiconductors and Semimetals. Edited by R. K. Willardson, A. C. Beer. Academic Press (1987).

B. J. Skromme, R. Bhat, M. A. Koza. Solid State Communications. 66, 543 (1988).

C. Kittel. Introdução à Física do Estado Sólido. 5. Ed. Rio de Janeiro, Guanabara Dois S. A. (1978).

C. Weisbuch, B. Vinter. Quantum Semiconductor Structures – Fundamentals and Applications. Academic Press, Inc. (1991).

C.D. Thurmond. J. Electrochem. Soc. 122, 1133 (1975).

D. K. Gaskill, N. Bottka, L. Aina, M. Mattingly. Appl. Phys. Lett. 56, 1269 (1990).
D.S. Chemla, D. A. B. Miller, P. W. Smith, A. C. Gossard, W. Wiegmann. IEEE J. Quantum Electron. QE-20, 265 (1984).

E. C. Valadares, M. B. V. Moreira, J. C. Bezerra, I. F. L. Dias. *Ciência Hoje*. 6, 45 (1987).

E. Grilli, M. Guzzi, R. Zamboni, L. Pavesi. *Phys. Rev. B*, 45, 1638 (1992).

E. Idiart-Alhor. "Etude et optimisation de lasers semiconducteurs à puits quantiques dans le système InGaAs/InGaAlAs/InP pour télécommunications optiques". Thèse de Doctorat, Université Paris 6, 1996.

E. Towe. *J. Appl. Phys.* 53, 5136 (1982).

F. Capasso, C. Gmachl, R. Paiella, A. Tredicucci, A. L. Hutchinson, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. Y. Cho, H. C. Liu. *IEEE J. Sel. Top. Quant.* 6, 931 (2000).

G. Bastard. *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Physics*. Les Editions de Physique, Les Ulis Cedex (1988).

H. Y. Fan. *Phys. Rev.* 82, 900 (1951).

J. Bleuse, P. Voisin, M. Allovon, M. Quillec. *Appl. Phys. Lett.* 53, 2632 (1988).

J. Böher, A. Krost, D. B. Bimberg. *Appl. Phys. Lett.* 63, 1918 (1993).

J. Flipowicz, C. Ghezzi, L. Tarricone. *Solid State Communications*. 74, 533 (1990).

J. I. Davies, A. C. Marshal, M.D. Scott, R. J. M. Griffiths. *Appl. Phys. Lett.* 53, 276 (1988).

J. Singh. *Physics of semiconductors and their heterostructures*. Edited by A. T. Brown, McGraw Hill, p. 167 (1993).

K. H. Goetz, D. Bimberg, H. Jürgensen, J. Selders, A.V. Solomonov, G. F. Glinskii, M. Razeghi. *J. Appl. Phys.* 54, 4543 (1983).

K. Nagayama, M. Kakui, M. Matsui, T. Saitoh, Y. Chigusa. *Electr. Lett.* 38, 20, p. 1168 (2002).

K. Radhakrishnan, T. H. K. Patrick, H. Q. Zheng, P. H. Zhang, S. F. Yonn. *Microeletronic Engineering*, 51-52, 441-448 (2000).

K. Takemasu, T. Munattaka, M. Kobayashi, H. Wada and T. Kamijoh. *Electr. Lett.* 34, 12 (1998).

L. C. Poças. "Estudo das propriedades ópticas em heteroestruturas de InGaAs/In(Ga)AlAs, por fotoluminescência", tese de doutorado, Universidade Estadual de Londrina, Londrina (2005).

L. Esaki, R. Tsu. *IBM J. Res. Dev.* 14, 61 (1970).

L. Pavesi, M. Guzzi. *J. Appl. Phys.* 75, 4779 (1994).

L. Viña, S. Logthetidis, M. Cardona. *Phys. Rev. B*, 30, 1979 (1984).

M. B. Panish, H. C. Casey. *J. Appl. Phys.* 40, 163 (1969).

M. Geddo, V. Bellani, G. Guizzetti. *Phys. Rev. B*, 50, 5456 (1994).

M. Kubota, H. Hawano, K. Takemasa, M. Kobayashi, H. Wada, T. Munataka. *Jpn. J. Appl. Phys.* 39, 2297 (2000).

M. Sacilotti, F. Motisuke, Y. Monteil, P. Abraham, F. Iikawa, C. Montes, M. Furtado, L. Horiuchi, R. Landers, J. Morais, L. Cardoso, J. Decobert, B. Waldman. *J. Crystal Growth*. 124, 589 (1992).

M. V. M. Pereira. "Magneto-éxcitons em super-redes semicondutoras de InGaAs/InAlAs", dissertação de mestrado, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte (2004).

M.A. Herman, H. Sitter. *Molecular Beam Epitaxy*, Springer-Verlag, Berlin, p. 314

P. Abraham, M. A. Garcia Perez, T. Benyattou, G. Buillot, M. Sacilotti, X. Letartre. *Semicond. Sci. Technol.* 10, 1285 (1995).

P. B. Allen, M. Cardona. *Phys. Rev. B*, 23, 1495 (1981).

P. Lautenschlager, M. Garriga, M. Cardona. Phys. Rev. B, 36, 4813 (1987).

P. Lautenschlager, M. Garriga, S. Logothetidis, M. Cardona. Phys. Rev. B, 35, 9174 (1987).

P. O. Holtz, B. Monemar, M. Sundaram, J. L. Merz, A. C. Gossard. Physica Scripta T39, 188 (1991).

P. Pearsall, L. Eaves, J.C. Portal. J. Appl. Phys. 54, 1037 (1983).

P.W. Yu, E. Kuphal. Solid State Commun. 49, 907 (1984).

R. Bhat, M. Koza, K. Kash, S. Allen, W. Hong, S. Schwartz, G. Chang, P. Lin. J. Crystal Growth. 108, 441 (1991).

R. Eisberg, R. Resnick. Física Quântica – Átomos, Moléculas, Sólidos, Núcleos e Partículas. 4. ed. Editora Campus Ltda (1979).

R. Kumar, S. S. Prabhu, A. S. Vergurlekar. Physica Scripta. 56, 308 (1997).

R. Pässler, G. Oelgart. J. Appl. Phys. 82, 2611 (1997).

R. Pässler, Solid State Electronics. 39, 1311 (1996).

R. Pässler. J. Appl. Phys. 83, 3356 (1998).

R. Pässler. J. Appl. Phys. 88, 2570 (2000).

R. Pässler. Phys. Rev. B, 66, 085201 (2002).

R. Pässler. Phys. Stat. Sol. (b), 200, 155 (1997).

R. Pässler. Phys. Stat. Sol. (b), 193, 135 (1996).

R. Schmidt, K. Lischka, W Zulehner. Phys. Rev. B, 45, 8989 (1992).

R.C. Miller, A. C. Gossard, W.T. Tsang, O. Munteanu, Phys. Rev. B, 25, 3871 (1982).

Roberto Cingoloni, Klaus Ploog. Advances in Physics. 40, 558 (1991).

S. A. Lourenço, I. F. L. Dias, E. Laureto, J. L. Duarte, D. O. Toginho Filho, E. A. Meneses, J. R. Leite. Eur. Phys. J. B, 21, 11 (2001).

S. A. Lourenço, I. F. L. Dias, J. L. Duarte, E. Laureto, H. Iwamoto. Superlatt. Microstruct. 29, 225 (2001).

S. A. Lourenço, I. F. L. Dias, J. L. Duarte, E. Laureto, L. C. Poças, D. O. Toginho Filho, J. R. Leite. Braz. J. Phys. 34, 517 (2004).

S. A. Lourenço. "Variação Térmica das Transições Excitônicas na Liga Ternária $Al_xGa_{1-x}As$ e em Poços Quânticos de $AlGaAs / GaAs$ ", dissertação de mestrado, Universidade Estadual de Londrina, Londrina (2000).

S. Chelles. "Etude de faisabilité de modulateurs électroabsorbants en onde guidée insensibles à la polarisation". Thèse de Doctorat, Université Paris 6, 1995.

S. Gaziorowicz. Física Quântica. Rio de Janeiro. Editora Guanabara Dois (1979).

S. Gopalan, P. Lautenslager, M. Cardona. Phys. Rev. B, 35, 5577 (1987).

Sandra R. Selmic, Tso-Min Chou, Jieh-Ping Sih, Jay B. Kirk, Art Mantie, Jerome K. Butler, David Bour, Gary A. Evans. IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. v. 7, n. 2, (2001).

T. Ishikawa, T. Higashi, T. Uchida, T. Yamamoto, T. Fujii, H. Shoji, M. Kobayashi, H. Soda. IEEE Photonics Technology Letters. 10, 1703 (1998).

V. C. Montanher. "Propriedades Ópticas de Heteroestruturas Semicondutoras de $GaAs/AlGaAs$ ", dissertação de mestrado, Universidade de São Paulo, São Paulo (1996).

W. T. Masselink, Yia-Chung Chang, H. Morkoc. Phys. Rev. B, 32, 5190 (1985).

Y. Chen, R. Cingolani, L. C. Andrean, F. Bassani. Nuovo Cimento. 10, 847 (1988).

Y. P. Varshni. *Physica (Utrecht)*. 34, 194 (1967).

Y. Sugiyama, T. Inata, T. Fujii, Y. Nakata, S. Muto, S. Hiyamizu. *Jpn. J. Appl. Phys.* 25, 648 (1986).

Z. Hang, D. Yan, F.H. Pollak, G. D. Pettit, J. M. Woodall. *Phys. Rev. B*, 44, 10546 (1991).

ANEXOS

ANEXO I

PARTICIPAÇÃO EM CONGRESSOS, EVENTOS E PUBLICAÇÕES NO PERÍODO DA DISSERTAÇÃO

I) PUBLICAÇÕES

- 1) *Fotoluminescência do InGaAs/InP crescido pela técnica de epitaxia por feixe molecular*. L. C. Poças, **E. M. Lopes**, J. L. Duarte, I. F. L. Dias, E. Laureto, D. O. T. Filho, P. S. S. Guimarães, L. A. Cury, J. C. Harmand. *Semina (Ciências Exatas e Tecnológicas)*. 25 (2), 183 (2004).
- 2) *The effect of potential fluctuations on the optical properties of InGaAs/InAlAs superlattices*. L. C. Poças, **E. M. Lopes**, J. L. Duarte, I. F. L. Dias, S. A. Lourenço, M. Valadares, P. S. S. Guimarães, L. A. Cury, J. C. Harmand. *Journal of Applied Physics*. 97, 1 (2005).

II) PARTICIPAÇÃO EM CONGRESSOS E EVENTOS

- 1) *Efeitos de nas propriedades ópticas do sistema $In_{1-x}Ga_xAs/InP$* . L. C. Poças **E. M. Lopes**, J. L. Duarte, S. A. Lourenço, I. F. L. Dias, E. Laureto, D. O. T. Filho, M. Valadares, P. S. S. Guimarães, L. A. Cury, I. Mazzaro. XXVII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada, 4 a 8 de maio de 2004, Poços de Caldas, MG.
- 2) *Propriedades ópticas de super-redes de InGaAs/InAlAs*. L. C. Poças, **E. M. Lopes**, J. L. Duarte, S. A. Lourenço, I. F. L. Dias, P. G. Sripes, D. F. César, M. Valadares, P. S. S. Guimarães, L. A. Cury. XXVII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada, 4 a 8 de maio de 2004, Poços de Caldas, MG.
- 3) *Propriedades ópticas de super-redes semicondutoras de InGaAs/InGaAlAs:Si*. **E. M. Lopes**, J. L. Duarte, L. C. Poças, I. F. L. Dias, E. Laureto, D. O. T. Filho, D. F. César, P. G. Sripes. IX Semana da Física, 8 a 12 de novembro de 2004, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, PR.
- 4) *Optical investigation of uniformly silicon doped InGaAs/InGaAlAs superlattices*. **E. M. Lopes**, J. L. Duarte, I. F. L. Dias, E. Laureto, J. C. Harmand. 12th Brazilian Workshop on Semiconductor Physics, 4 a 8 de abril de 2005, São José dos Campos, SP.

III) SEMINÁRIOS PROFERIDOS

- 1) *Fotorefletância de super-redes AlInAs/InGaAs*. Seminário apresentado no “XXII Ciclo de Seminários do Grupo de Óptica e Optoeletrônica”. Promovido pelo Departamento de Física, realizado no período de 17 de fevereiro a 24 de março de 2003, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, PR.
- 2) *Variação da recombinação excitônica com a temperatura em poços quânticos*. Seminário apresentado no “XXIII Ciclo de Seminários do Grupo de Óptica e Optoeletrônica”. Promovido pelo Departamento de Física, realizado no período de 19 de maio a 25 de agosto de 2003, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, PR.
- 3) *Estudo de super-redes InGaAs/GaAs por espectroscopia de fotomodulação*. Seminário apresentado no “XXIV Ciclo de Seminários do Grupo de Óptica e Optoeletrônica”. Promovido pelo Departamento de Física, proferido em 17 de novembro de 2003, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, PR.
- 4) *Fotoluminescência de super-redes*. Seminário apresentado no “XXV Ciclo de Seminários do Grupo de Óptica e Optoeletrônica”. Promovido pelo Departamento de Física, proferido no dia 24 de maio de 2004, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, PR.