

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS  
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E TECNOLÓGICAS  
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

# Efeito Aharonov-Bohm em Partículas Neutras

Marcio Daldin Teodoro

Tese submetida ao programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de São Carlos como parte dos requisitos para a obtenção do título de Doutor em Física.

Orientador: Dr. Gilmar Eugenio Marques

São Carlos, 14 de Março de 2011

**Ficha catalográfica elaborada pelo DePT da  
Biblioteca Comunitária/UFSCar**

T314ea

Teodoro, Marcio Daldin.

Efeito Aharonov-Bohm em partículas neutras / Marcio Daldin Teodoro. -- São Carlos : UFSCar, 2011.  
111 f.

Tese (Doutorado) -- Universidade Federal de São Carlos, 2011.

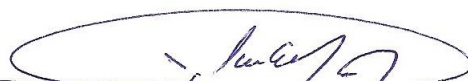
1. Física da matéria condensada. 2. Aharonov-Bohm, Teoria de. 3. Éxcitons neutros. 4. Magneto-luminescência. 5. Semicondutores. I. Título.

CDD: 530.41 (20<sup>a</sup>)

**MARCIO DALDIN TEODORO**

Tese de doutorado submetida à Coordenação do Programa de Pós-Graduação em Física, da Universidade Federal de São Carlos, como requisito parcial para a obtenção do título de doutor em ciências.

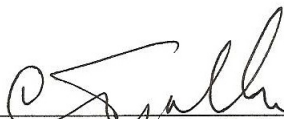
**Aprovado em: 14 de março de 2011**

**BANCA EXAMINADORA**

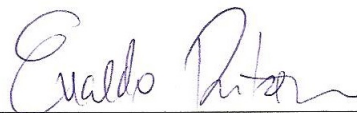
*Prof. Dr. Gilmar Euzênio Marques (Orientador)*  
*Universidade Federal de São Carlos*



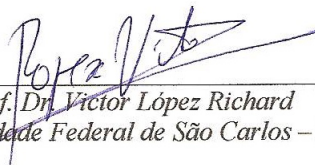
*Prof. Dr. Valmir Antônio Chitta*  
*Universidade de São Paulo – DFMM*



*Prof. Dr. Carlos Trallero Giner*  
*Universidad de Havana – FF*



*Prof. Dr. Evaldo Ribeiro*  
*Universidade Federal do Paraná – DF*



*Prof. Dr. Víctor López Richard*  
*Universidade Federal de São Carlos – DF*

## *Dedicatória*

Dedico essa tese de Doutorado com todo meu carinho e admiração aos meus pais Antônio e Denise, e aos meus irmãos Marcelo, Ronaldo e Fábio, pelos incentivos e apoio incondicional desde sempre, que permitiram a conquista de mais um degrau em minha escalada pela vida.



# *Agradecimentos*

Ao Prof. Dr. Gilmar Eugenio Marques pela orientação impecável e entusiasmo demonstrado diariamente, a liberdade de pensamento e incentivo em ir além, assim como o apoio incondicional em todos os momentos.

Da mesma forma, ao Prof. Dr. Euclides Marega Jr., pela presença em todos os momentos, principalmente pela ajuda inestimável durante o estágio sanduíche.

Ao Prof. Dr. Victor López-Richard pelas discussões, amizade e participação efetiva neste trabalho.

Um agradecimento especial ao Prof. Dr. Gregory J. Salamo da *University of Arkansas* pela orientação e amizade durante o ano de doutorado sanduíche. Aos amigos que me acolheram de forma tão calorosa e pelo prazer dos trabalhos e discussões em conjunto, Yuriy Mazur, Vitaliy Dorogan, Vasyl Knuts, Murad Benamara, Marwim Macedo, Dorel, Robert Sleezer, Morgan Waree, David e a todas as pessoas do grupo.

Ao Prof. Dr. Vivaldo Leira Campos Jr. pelos cálculos e discussões realizadas. Aos Prof. Dra. Maria José S. P. Brasil, Prof. Dr. Fernando Iikawa da UNICAMP e a Prof. Dra. Yara G. Gobato da UFSCar pelas medidas de magnetofotoluminescência e auxílio no trabalho. Da mesma forma, ao Prof. Dr. Ângelo Malachias do LNLS pelas medidas de difração de raios-X.

Aos amigos do grupo, Anibal, Daniel H., Ednilson, Helder, Iram, Jaldair, Lara, Leonilson, Leonardo, Marcio Godoy, Mariama, e Vivaldo pelas amizades e gambiarras no laboratório.

Aos amigos brazucas em Arkansas, Fernanda Onofre, João e Melissa, Eduardo e Milena, e Adriano pelos momentos inesquecíveis (e intensas disputas no guitar hero). A Grace Anne Richardson pela amizade tão sincera e aos professores Bill e Karilyn Moller pelas aulas de inglês, assim como todos os amigos do *International Culture Team* pela amizade e compartilhamento da cultura de tão variadas partes do mundo.

Aos grandes amigos de longa data, Ana Lúcia Ferreira, Camila Mendonça, Daniel Ferreira Cesar, Daniel Scivoletto, Everson Kunzk, Fernanda Souza, Mariana Komatsu, Paula Mardegan, Paulo José dos Reis, Paulo Gomes, e Vanessa Oliveira, aquele abraço.

Aos meus sobrinhos, Renan, Rodrigo e Tiago, e minhas cunhadas, Celoi, Fernanda e Rosane pelo apoio.

Ao Prof. Dr. Pedro Pablo González Borrero pela iniciação as belezas do mundo

nanoscópico e co-orientação do Mestrado, assim como ao Prof. Dr. Ivan Frederico Lupiano Dias pela orientação no Mestrado. Agradeço também ao Prof. Dr. Sidney Lourenço pela ajuda constante desde o mestrado.

Às agencias CNPq, FAPESP, CAPES e *National Science Foundation* pelo suporte financeiro.

A participação de todos foi fundamental para a realização desse trabalho. A todos, o meu reconhecimento!

## Resumo

Em Física clássica, o movimento de uma partícula carregada só é afetado pela presença de um campo magnético se a partícula entrar em uma região do espaço na qual o campo está presente. Ao mesmo tempo, em Física quântica, a partícula contendo carga elétrica pode ser afetada por um potencial eletromagnético  $\vec{A}$ , mesmo em regiões onde o campo magnético  $\vec{B}$  é zero. Esse contraste surpreendente entre Física clássica e Física quântica tem sido provado em interessantes experimentos em materiais semicondutores, metais e supercondutores, e tendo sido denominado efeito Aharonov-Bohm. Mais recentemente, entretanto, muitos trabalhos teóricos têm discutido a plausibilidade da existência desse efeito mesmo para partículas neutras! Nessa tese de Doutorado será demonstrado pela primeira vez a observação experimental do efeito Aharonov-Bohm em éxcitons neutros contidos em anéis quânticos de InAs. Assinaturas desse efeito aparecem como oscilações na intensidade integrada das bandas de emissão em experimentos de fotoluminescência com o aumento do campo magnético e dependem também das dimensões dos anéis. Essas oscilações são afetadas pelos campos de compressão/expansão uniaxial devido a piezoelectricidade provinda da assimetria dos anéis, como revelado pelas imagens de microscopia de força atômica, microscopia eletrônica de transmissão e difração de raios-X utilizando luz síncrotron. Um modelo teórico que descreve o comportamento no padrão de interferência excitônico e sua modulação com a temperatura e campos elétricos uniaxiais foi usado para a interpretação dos resultados experimentais. A detecção das oscilações Aharonov-Bohm mediada pela correlação do par elétron-buraco é um efeito fundamental de mecânica quântica e os estudos mostrados aqui poderão não só instigar outras investigações em Física fundamental assim como em aplicações tecnológicas.

## Abstract

In classical Physics, the motion of an electrically charged particle is affected only by the presence of a magnetic field if the particle enters a region of space in which the field is present. Meanwhile, in quantum Physics, a charged carrier can be affected by the electromagnetic vector potential  $\vec{A}$ , even in regions where the magnetic field  $\vec{B}$  is not present. This surprising contrast between classical and quantum Physics has been experimentally proven in several beautiful experiments in semiconducting, metallic and superconducting material systems, and has been called Aharonov-Bohm effect. More recently, however, several theoretical works have discussed the plausible existence of this effect even for neutral particles! In this PhD Thesis project it is shown the first clear experimental observation of the Aharonov-Bohm effect in neutral excitons in InAs quantum rings. Signatures of this effect appear as oscillations in the intensity of the photoluminescence emission bands with increasing magnetic fields and also depending on the dimensions of the quantum rings. These oscillations are affected by the uniaxial strain field due to the piezoelectricity of the asymmetric InAs rings, as revealed by the atomic force microscopy, transmission electron microscopy images and X-Ray Diffraction measurements using synchrotron light. A theoretical model that describes the behavior of the excitonic interference pattern and its modulation with temperature and uniaxial electric fields has been used for the interpretation of the experimental data. The detection of AB oscillations mediated by electron-hole pair correlation is a fundamental quantum mechanical effect that will trigger further studies in this area of fundamental physics as well as technological applications.

# Sumário

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Transição Estrutural de Pontos Quânticos para Anéis Quânticos</b>	<b>7</b>
2.1	Estrutura Cristalina do GaAs e InAs . . . . .	7
2.2	Formação de Pontos Quânticos . . . . .	8
2.3	De Pontos para Anéis Quânticos . . . . .	10
2.3.1	Espessura da Camada Tampão . . . . .	12
2.3.2	Tempo de Annealing . . . . .	15
2.3.3	Temperatura de Annealing . . . . .	17
2.3.4	Difusão do Índio . . . . .	19
<b>3</b>	<b>Propriedades Ópticas de Nanoestruturas Semicondutoras</b>	<b>26</b>
3.1	Estruturas de Bandas ou Estrutura Eletrônica de Portadores . . . . .	26
3.2	Heteroestruturas Semicondutoras . . . . .	28
3.2.1	Espectro de Energia . . . . .	30
3.2.2	Tempo de Decaimento . . . . .	35
3.2.3	Efeitos da Temperatura . . . . .	36
3.3	Polarização Linear da Luz . . . . .	38
<b>4</b>	<b>Efeito Aharonov-Bohm</b>	<b>44</b>
4.1	Momento Angular . . . . .	44
4.2	Efeito Aharonov-Bohm . . . . .	48
4.3	Efeito Aharonov-Bohm em Nanoestruturas Semicondutoras . . . . .	52
4.4	Efeito Aharonov-Bohm em Éxcitons (Partículas) Neutros(as) . . . . .	56

<b>5</b>	<b>Técnicas Experimentais e Caracterização Estrutural</b>	<b>64</b>
5.1	Epitaxia por Feixe Molecular . . . . .	64
5.1.1	Ambiente de Ultra-Alto-Vácuo . . . . .	66
5.1.2	Preparação do Substrato . . . . .	67
5.1.3	Difração de Elétrons de Alta Energia por Reflexão . . . . .	68
5.1.4	Crescimento Epitaxial . . . . .	69
5.2	Amostras Utilizadas . . . . .	71
5.3	Microscopia de Força Atômica . . . . .	71
5.4	Microscopia Eletrônica de Transmissão . . . . .	73
5.5	Técnica de Fotoluminescência . . . . .	74
5.5.1	Processos Físicos Envolvidos na Fotoluminescência . . . . .	75
5.5.2	Montagem Experimental . . . . .	76
5.5.3	Magnetofotoluminescência . . . . .	76
<b>6</b>	<b>Resultados e Discussão</b>	<b>79</b>
6.1	Caracterização Estrutural . . . . .	79
6.1.1	Microscopia de Força Atômica . . . . .	79
6.1.2	Microscopia Eletrônica de Transmissão . . . . .	80
6.1.3	Difração de Raios-X . . . . .	82
6.2	Caracterização Magneto-Óptica . . . . .	88
6.2.1	Espectros de Fotoluminescência . . . . .	88
6.2.2	Variação do Momento Angular . . . . .	89
6.2.3	Interferência de Aharonov-Bohm em Partículas Neutras . . . . .	91
6.2.4	Efeitos do Campo Elétrico . . . . .	96
6.2.5	Efeitos da Temperatura . . . . .	101
<b>7</b>	<b>Conclusão</b>	<b>108</b>
7.1	Publicações no Período da Tese . . . . .	110
7.2	Trabalhos Apresentados em Congressos Internacionais . . . . .	110

# Capítulo 1

## Introdução

Desde a invenção do transistor em 1947 por Willian Shochley, John Bardeen e Walter Brattain (Nobel/1956), os dispositivos baseados em materiais semicondutores protagonizaram uma revolução na ciência e tecnologia. A criação dos primeiros dispositivos baseados em semicondutores, como circuitos integrados, em 1960, desenvolvimento da memória do tipo DRAM, em 1967, e a criação do primeiro microprocessador, em 1971, permitiram uma evolução na construção dos computadores como os conhecemos hoje. Embora os dispositivos semicondutores baseados no silício cristalino tenham conquistado sua posição como material líder na classe de materiais eletrônicos, outros semicondutores como o arseneto de gálio (GaAs) desempenham atualmente na opto-eletrônica papel equivalente ao silício na microeletrônica. [1]

Gordon Moore, um dos fundadores da Intel, previu em 1965 que a cada 18 meses o número de transistores em um circuito integrado dobraria. De fato, a miniaturização dos componentes eletrônicos levou a microeletrônica a atingir o nível quântico. Neste regime, as estruturas possuem dimensões entre 10 e 100 nm. A miniaturização dos dispositivos e a construção de estruturas em escala nanométrica foram possíveis graças ao desenvolvimento de técnicas de crescimento com precisão atômica. Dentre essas técnicas destaca-se a Epitaxia por Feixe Molecular (MBE). Um exemplo de sofisticação alcançada na fabricação de nanoestruturas é o efeito Hall quântico fracionário, descoberto em 1982 em uma heteroestrutura de camadas alternadas de GaAs e AlGaAs produzidas por MBE que rendeu o Nobel de 1998 a Horst Störmer e a Daniel Tsui.

Todo o conhecimento acumulado em aplicações de nanotecnologia tem geralmente como predecessor os esforços feitos em termos de ciência básica, em especial, a mecânica

quântica. Por esse ponto de vista, nanoestruturas semicondutoras têm sido empregadas como um verdadeiro laboratório de mecânica quântica. Como as dimensões destas nanoestruturas podem ser da ordem do comprimento de onda de De Broglie, efeitos de quantização no movimento dos portadores nas direções espaciais somadas a agentes externos, como aplicação de campos elétrico, magnético, temperatura, etc., criam um cenário de possibilidades quase que ilimitadas para a investigação de efeitos quânticos.

Dentre as diversas geometrias e propriedades de restrições dos movimentos das partículas em alguma direção espacial, destaca-se o crescimento de pontos quânticos. Nesse tipo de nanoestruturas, que geralmente apresentam formatos diversos variando de semi-esférico a piramidais, o confinamento ocorre nas três dimensões e as cargas elétricas possuem propriedades similares aquelas de átomos naturais. Por essa razão, pontos quânticos são chamados de átomos artificiais e têm sido alvo de intensos estudos nas duas últimas décadas. Mais recentemente, utilizando a técnica de epitaxia por feixe molecular, descobriu-se que, sob certas condições específicas de crescimento, é possível remover o centro do material que compõe um ponto quântico, criando uma geometria em forma anelar. [2] Nessa nova arquitetura é possível a observação de efeitos que até então não eram possíveis em outras formas de estruturas quânticas, como por exemplo, partículas em movimento circular dentro do anel gerando correntes persistentes [3] e, assim, abrindo um novo leque de investigação dentro da própria Física de Semicondutores. [4, 5, 6]

Em 1845, Ernst Neumann introduziu o conceito de potencial vetor associado ao campo magnético enquanto estudava a indução magnética em um circuito devido ao movimento relativo de imãs. Esse conceito, embora puramente matemático, foi utilizado por outros grandes nomes da Física em suas teorias, como Kirchhoff, Maxwell e Paul Dirac. A procura por um significado físico para este agente matemático durou mais de cem anos, sendo demonstrado pela primeira vez em 1959 por Aharonov e Bohm. [7] Utilizando o experimento da dupla fenda para elétrons, os dois cientistas mostraram que com a aplicação de um campo magnético extremamente concentrado dentro de um solenóide fixado atrás da fenda, existia um deslocamento no padrão de interferência em relação a situação de campo zero. Como não há nenhuma linha de fluxo magnético para interferir com a passagem dos elétrons, a única explicação plausível para o fenômeno era através da interferência entre o potencial vetor associado ao campo magnético com as partículas quânticas. Essa interferência quântica muito peculiar foi denominada de efeito Aharonov-



Bohm.

O efeito Aharonov-Bohm foi demonstrado em diferentes experimentos de transporte utilizando materiais supercondutores e metais, [8, 9, 10, 11] e, em 2003, foi observado pela primeira vez em experimentos ópticos em anéis quânticos semicondutores. [12] Investigações posteriores em pontos quânticos do tipo-II, em que uma partícula é confinada dentro do poço de potencial, enquanto que a outra partícula de carga oposta é confinada na região da barreira, mostraram que o movimento do centro de massa do par elétron-buraco descreve uma trajetória circular em torno do ponto, criando as condições apropriadas para a observação deste fenômeno. [13, 14]

Independentemente do tipo de experimento ou material utilizado, a condição essencial para a observação do efeito Aharonov-Bohm é a interação entre o potencial vetor e uma partícula carregada. Entretanto, em 1994 foi proposto pela primeira vez a plausibilidade desse fenômeno até mesmo para partículas neutras. [15] Um sinônimo de partícula neutra é o éxciton criado em nanoestruturas do tipo-I. Nesse caso, uma partícula composta por uma carga negativa e outra positiva é unida por uma ligação Coulombiana dentro da mesma região de potencial (portanto a carga total é zero). Um número relevante de trabalhos teóricos desde então foi publicado na tentativa de demonstrar quais seriam as condições ideais para a observação dessa instigante característica. [16, 17, 18, 19]

Nessa Tese de Doutorado será demonstrado pela primeira vez a observação experimental do efeito Aharonov-Bohm para partículas neutras contidas em anéis quânticos de arseneto de índio. As amostras foram crescidas pela técnica de epitaxia por feixe molecular, caracterizadas estruturalmente pelas técnicas de microscopia de força atômica, microscopia eletrônica de transmissão e difração de raios-X utilizando luz síncrotron. Estudos ópticos foram feitos através da técnica de fotoluminescência em função de campos magnéticos externos, intensidade de excitação, temperatura e polarização linear da luminescência. Para explicar os resultados experimentais, foi desenvolvido um modelo teórico simples baseado na correlação do par elétron-buraco levando-se em consideração a existência de um campo elétrico interno nos anéis e efeitos da temperatura.

Este trabalho está organizado da seguinte forma: no capítulo 2 é feita uma revisão sobre a formação de anéis quânticos a partir de pontos quânticos e um estudo detalhado sobre como ocorre essa transição que ainda não foi completamente explicada. Na seqüência, o capítulo 3 é dedicado a uma breve revisão sobre as propriedades ópticas fundamentais

em nanoestruturas semicondutoras. O capítulo 4 é destinado a uma explicação detalhada do efeito Aharonov-Bohm em partículas carregadas e neutras. No capítulo 5 são descritas as técnicas experimentais utilizadas neste trabalho e os princípios físicos da técnica de fotoluminescência. O capítulo 6 é dedicado a uma análise e discussão dos resultados experimentais obtidos e, finalmente, no capítulo 7, são apresentadas as conclusões deste trabalho assim como uma lista das publicações geradas nesse período.

# Referências Bibliográficas

- [1] Pensando o Futuro. O desenvolvimento da física e sua inserção na vida social e econômica do país. Ed. Sociedade Brasileira de Física (2005).
- [2] J. M. García, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. L. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus, and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 14 (1997).
- [3] N. A. J. M. Kleemans, I. M. A. Bominaar-Silkens, V. M. Fomin, V. N. Gladilin, D. Granados, A. G. Taboada, J. M. García, P. Offermans, U. Zeitler, P. C. M. Christianen, J. C. Maan, J. T. Devreese, and P. M. Koenraad, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 146808 (2007).
- [4] A. J. M. Giesbers, U. Zeitler, M. I. Katsnelson, D. Reuter, A. D. Wieck, G. Biasiol, L. Sorba, and J. C. Maan, *Nature Physics* **6**, 173, (2010).
- [5] A. Fuhrer, S. Lüscher, T. Ihn, T. Helnzel, K. Ensslin, W. Wegscheider, and M. Bichler, *Nature* **413**, 822 (2001).
- [6] R. J. Warburton, C. Schäfflein, D. Haft, F. Blockel, A. Lorke, K. Karrai, J. M. García, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff, *Nature* **405**, 926 (2000).
- [7] Y. Aharonov and D. Bohm, *Phys. Rev.* **115**, 485 (1959).
- [8] A. Tonomura, N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo, S. Yano, and H. Yamada, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 792 (1986).
- [9] R. A. Webb, S. Washburn, C. P. Umbach, and R. B. Laibowitz, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 2696 (1985).
- [10] N. Byers and C. N. Yang, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 46 (1961).
- [11] F. Bloch, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1241 (1968).

- [12] M. Bayer, M. Korkusinski, P. Hawrylak, T. Gutbrod, M. Michel, and A. Forchel, Phys. Rev. Lett. **90**, 186801 (2003).
- [13] E. Ribeiro, A. O. Govorov, W. Carvalho Jr., and G. Medeiros-Ribeiro, Phys. Rev. Lett. **92**, 126402 (2004).
- [14] I. R. Sellers, V. R. Whiteside, I. L. Kuskovsky, A. O. Govorov, and B. D. McCombe, Phys. Rev. Lett. **100**, 136405 (2008), Phys. Rev. B **77**, 241302(R) (2008).
- [15] T. Chakraborty and P. Pietiläinen, Phys. Rev. B **50**, 8460 (1994).
- [16] R. A. Römer, M. E. Raikh, Phys. Rev. B **62**, 7045 (2000); Phys. Stat. Sol. (b) **221**, 535 (2000).
- [17] A. Chaplik and Zh. Pis'ma, JEPT Lett. **62**, 900 (1995).
- [18] A. O. Govorov, S. E. Ulloa, K. Karrai, and R. J. Warburton, Phys. Rev. B **66**, 081309(R) (2002).
- [19] A. M. Fisher, V. L. Campo Jr., M. E. Portnoi, and R. A. Römer, Phys. Rev. Lett. **102**, 096405 (2009).

# Capítulo 2

## Transição Estrutural de Pontos Quânticos para Anéis Quânticos

Embora os mecanismos que descrevam corretamente uma transição estrutural de pontos quânticos para anéis quânticos ainda seja questão de debate na comunidade, alguns modelos baseados no equilíbrio termodinâmico e na difusão do índio no sistema têm sido usados na tentativa de explicar essa modificação geométrica. Nesse capítulo serão explorados os efeitos que levam a formação de anéis quânticos de InAs, mostrando em detalhes todas as possibilidades que determinam a mudança estrutural de pontos para anéis.

### 2.1 Estrutura Cristalina do GaAs e InAs

Materiais semicondutores III-V como arseneto de gálio (GaAs), arseneto de índio (InAs) e arseneto de gálio-índio (InGaAs), cristalizam-se em uma estrutura denominada *zinc-blend*, que consiste de duas redes cúbicas de faces centradas interpenetradas e deslocadas ao longo da diagonal principal do cubo. A Figura 2.1 fornece os detalhes da estrutura de uma célula convencional *zinc-blend*. A célula elementar contém dois átomos, um localizado na origem  $(0, 0, 0)$  e outro em  $(a/4, a/4, a/4)$  onde  $a$  é o parâmetro de rede da célula convencional, e cada átomo de *Ga* ou *In* tem quatro átomos de *As* como vizinhos próximos e vice-versa. [1]

Para a direção de crescimento  $[100]$ , a célula unitária é composta por duas monocamadas (ML - do inglês *MonoLayer*), onde uma monocamada é definida como a metade do parâmetro de rede, ou uma camada de gálio mais uma camada de arsênio. O valor de

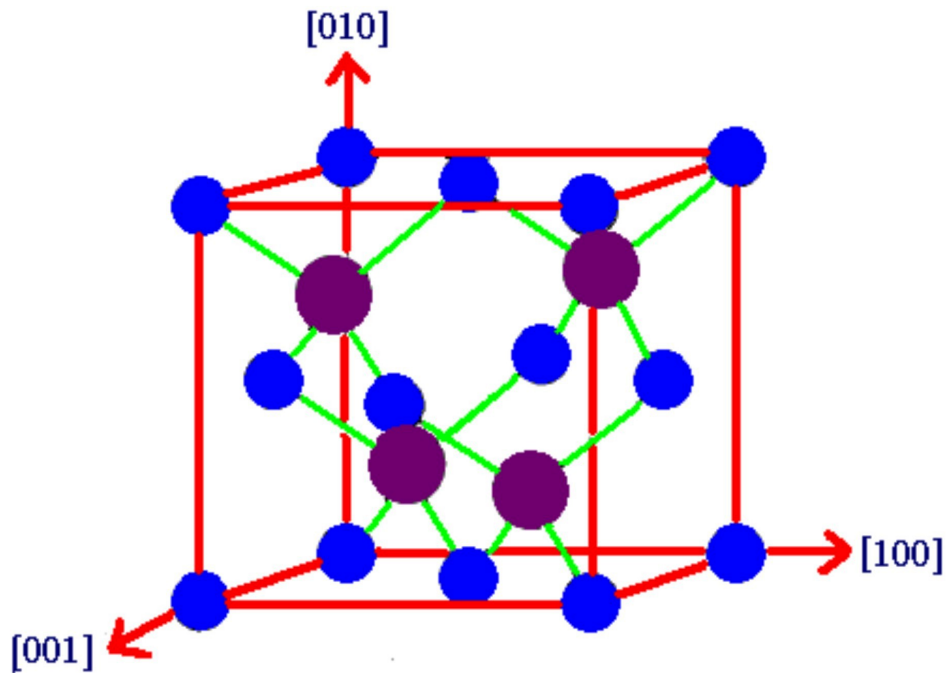


Figura 2.1: Estrutura cristalina *zinc-blend* para semicondutores III-V. As esferas azuis representam átomos de gálio, e as roxas átomos de arsênio para o caso do GaAs. No InAs as azuis representam o índio. [1]

uma ML é calculado pela expressão da distância entre os planos atômicos:

$$d = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (2.1)$$

onde  $d$  é a distância entre os planos e  $h$ ,  $k$  e  $l$  são os índices de Müller. Para o GaAs e InAs os valores dos parâmetros de rede das células convencionais são 5,653 e 6,058 Å, respectivamente. [2] Assim, uma ML na direção [100] possui o valor de 2,83 Å para o GaAs e 3,04 Å para o InAs, gerando uma diferença no parâmetro de rede de 7 %. Esses valores são utilizados no crescimento epitaxial para controlar a espessura dos materiais depositados.

## 2.2 Formação de Pontos Quânticos

Os métodos de crescimento de materiais III-V e suas possíveis combinações são bem conhecidos e estudados. Assim, nessa seção será feita apenas uma breve revisão sobre a formação de pontos quânticos de InAs-GaAs. A formação dessa classe de pontos é realizada geralmente pela técnica de MBE, cujo significado é um crescimento ordenado sobre um substrato. O crescimento heteroepitaxial das ligas GaAs e InAs é feito sob

compressão ou expansão das ligas, devido ao descasamento dos parâmetros de redes desses materiais. Para valores específicos da espessura do InAs, em geral entre 1,4 ML e 2,2 ML, existe a formação de ilhas tridimensionais como uma forma de relaxação do *strain* entre as duas ligas. Essas ilhas podem assumir diversas geometrias, entre elas semi-esféricas, cujas propriedades são iguais a de átomos, chamadas portanto, de átomos artificiais ou pontos quânticos. Todas as propriedades dos pontos dependerão das condições de crescimento.

De maneira geral, o aparecimento das ilhas não acontece para todos os materiais. Se os parâmetros de rede das ligas são muito próximos, o crescimento acontece de camada em camada, dando origem a poços quânticos, por exemplo. Há três diferentes modos de crescimentos epitaxial; monocamada, nucleado e nucleado seguido de monocamada. No primeiro caso, conhecido como Volmer-Weber, a deposição de átomos formam ilhas na superfície do substrato, até ocorrer a junção das ilhas e formar uma monocamada. Os átomos, nesse caso, possuem maior energia de ligação entre si do que com o substrato. No segundo modo, chamado de Frank-Van der Merve, o crescimento ocorre camada por camada, em que os átomos depositados são mais fortemente ligados ao substrato do que entre si. O terceiro caso é um dos mais utilizados na atualidade para o crescimento de pontos quânticos, conhecido como método Stranski-Krastanov, onde é iniciado com o crescimento de uma camada bidimensional, chamada de camada molhada, (do inglês *wetting layer*) e, após a deposição de algumas monocamadas, uma espessura crítica é atingida iniciando a formação de ilhas. [3, 4] A Figura 2.2 ilustra esse método de formação de ilhas quânticas.

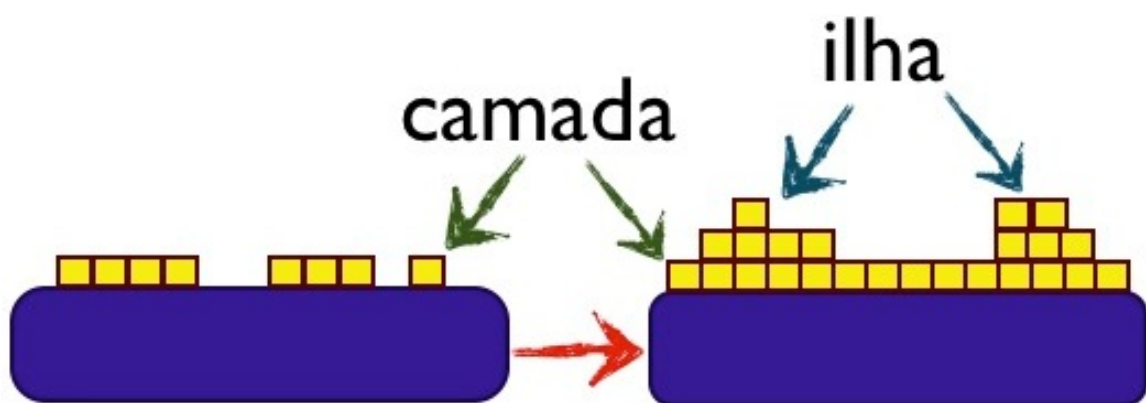


Figura 2.2: Modo Stranski-Krastanov de crescimento representando a formação de camadas e ilhas.

## 2.3 De Pontos para Anéis Quânticos

As condições de crescimento que levam a formação de pontos quânticos têm sido extensivamente investigadas nas duas últimas décadas. Usualmente, dispositivos destinados à caracterização estrutural como, por exemplo, microscopia por força atômica (AFM), foram otimizados e já estão disponíveis. Se as amostras forem estudadas óptica ou eletricamente, então normalmente é crescida uma camada, chamada tampão, com algumas dezenas de nanômetros para proteger as nanoestruturas. Em 1997 García e colaboradores cresceram pontos quânticos de InAs cobertos por uma camada tampão de GaAs com espessura inferior a altura máxima dos pontos. [5] Como resultado, para valores específicos dessa camada houve uma mudança abrupta no perfil dos pontos quânticos; o material contido no centro destas nanoestruturas foi ejetado para as bordas, dando origem a uma estrutura com formato anelar. O crescimento dessas estruturas, chamadas de anéis quânticos, abriu um novo campo na Física de Semicondutores para explorar fenômenos de mecânica quântica e para aplicações em novos dispositivos.

Um dos modos mais utilizados para crescer anéis quânticos atualmente é o método Stransky-Krastanov. Após o crescimento dos pontos quânticos, uma fina camada do mesmo material constituinte da barreira (com altura menor que a altura total dos pontos quânticos) é depositada, seguido por uma interrupção no crescimento em um tempo menor do que um minuto sob fluxo de arsênio. Esse tempo de interrupção é conhecido como tempo de annealing (esta palavra será mantida no termo original do inglês). Nesse período é observado a migração de material do topo dos pontos quânticos em direção a região da camada molhada. Embora um número significativo de artigos têm sido publicado recentemente sobre crescimento e formação, propriedades ópticas e elétricas de anéis quânticos, os princípios que levam ao surgimento dessas estruturas ainda é uma questão que permanece em aberto. Alguns pontos relacionados à cinética de transição ponto-anel, assim como à composição (distribuição dos átomos de índio ao longo do anel) e forma nos limites do equilíbrio termodinâmico têm sido objeto de discussão como possíveis razões para essa mudança. [6, 7, 8, 9, 10] Aqui será apresentado uma revisão de um modelo qualitativo sobre a formação de anéis quânticos no regime de auto-organização.

A Figura 2.3(a) é uma ilustração de um ponto quântico de InAs crescido sobre uma camada de GaAs sob atmosfera de arsênio. Essencialmente o sistema é um problema termodinâmico, onde o GaAs é sólido, InAs é líquido e As é vapor. Portanto, essa questão



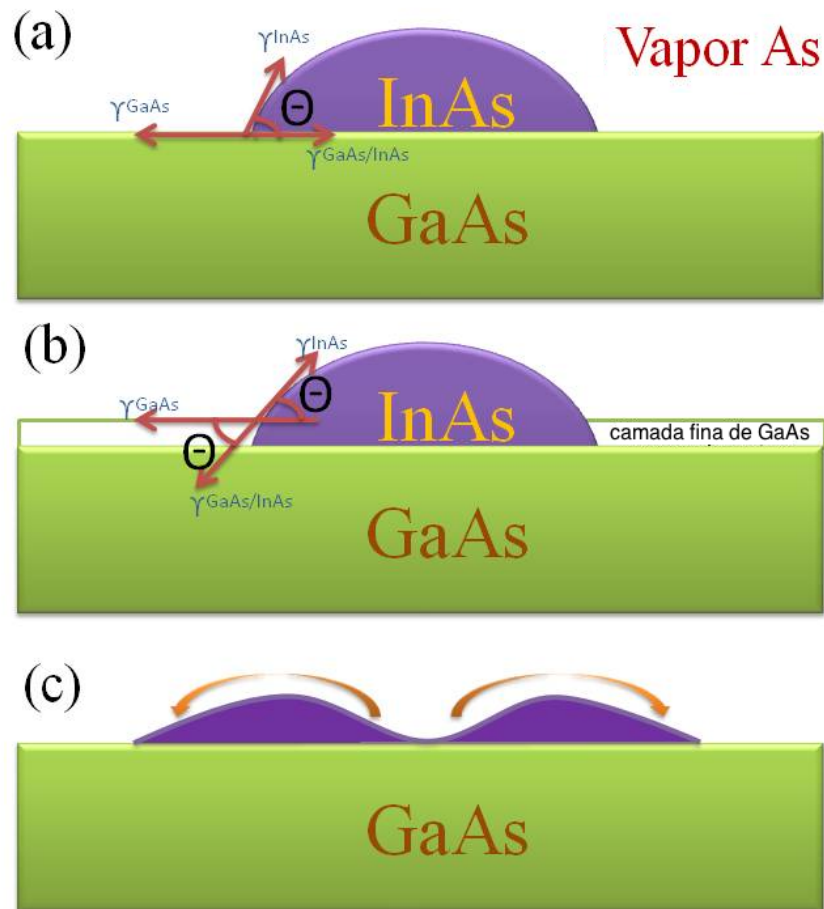


Figura 2.3: Ilustração de um ponto quântico de InAs crescido sobre uma camada de GaAs. São apresentadas as forças entre as três interfaces oriundas das formas tipo-lentes dos pontos. (b) Pontos quânticos parcialmente cobertos com uma fina camada de GaAs. (c) Como resultado do desbalanceamento das forças, parte do material de InAs é removido do centro dos pontos quânticos.

envolve as interfaces sólido-líquido e líquido-vapor. Tal hipótese pode ser tomada devido ao fato que os pontos quânticos não deformam a camada de GaAs, mantendo assim, a forma esférica dos pontos (gotas). Aqui existem tensões em três interfaces, ou energia livre de superfície, atuando na extremidade do ponto quântico. Essas forças são oriundas da interface entre o InAs e a fase de vapor de As (ou vácuo) ( $\gamma^{InAs}$ ), GaAs e vapor de As ( $\gamma^{GaAs}$ ), e GaAs e InAs ( $\gamma^{GaAs/InAs}$ ), respectivamente. No equilíbrio, as forças na superfície são representadas pela equação de Young: [7]

$$\gamma^{GaAs} = \gamma^{GaAs/InAs} + \gamma^{InAs} \cos(\Theta) \quad (2.2)$$

onde o ângulo  $\Theta$  é definido entre as forças por unidade de comprimento. A Figura 2.3(b) mostra o que acontece quando uma fina camada de GaAs é depositada no topo dos pontos quânticos. A adição dessa nova camada provoca um desvio da interface sólido-líquido, assim como a linha de contato. Neste caso, no equilíbrio termodinâmico a equação de Young será reescrita como:

$$\gamma^{GaAs} = \gamma^{InAs} \cos(\Theta) - \gamma^{GaAs/InAs} \cos(\Theta) \quad (2.3)$$

Devido à forma curvilínea das lentes, as forças nas extremidades das interfaces entre os pontos quânticos e a camada de GaAs, representada pela eq. 2.2, e as forças entre os pontos quânticos e a fina camada de GaAs (eq. 2.3) depositada posteriormente são diferentes. Em outras palavras, as equações 2.2 e 2.3 não são equivalentes. O resultado global é um desbalanço da configuração apresentada em termos de uma força de Young não compensada: [11]

$$F = \gamma^{GaAs} - (\gamma^{InAs} - \gamma^{GaAs/InAs}) \cos(\Theta) \quad (2.4)$$

onde  $\gamma^{GaAs} > \gamma^{InAs} \gg \gamma^{GaAs/InAs}$  [12] e  $F$  é a tensão de superfície horizontal resultante e que remove o InAs do topo do ponto quântico para as regiões externas. Este processo difusivo em busca de equilíbrio, acaba formando o anel em escala nanométrica, como representado pela Fig. 2.3(c). [6, 7] Os mecanismos apresentados acima são chamados de processos de retração (tradução literal do inglês *dewetting process*) e não são suficientes para explicar completamente toda a complexidade dos processos físico-químicos envolvidos na formação das estruturas anelares.

Nas seções seguintes, será realizado um estudo de cada etapa da formação dos anéis, como: espessura da camada de GaAs depositada após o crescimento dos pontos, tempo e temperatura de annealing, difusão de índio e suas conseqüências na forma e na composição estrutural dessas nanoestruturas.

### 2.3.1 Espessura da Camada Tampão

Como discutido acima, o primeiro estágio para crescer anéis quânticos consiste na deposição de uma fina camada sobre os pontos quânticos, do mesmo material utilizado no crescimento da barreira. A questão que se põe é o quão espessa deverá ser essa camada? Muitos trabalhos sobre esse tema têm sido publicados na tentativa de encontrar essa

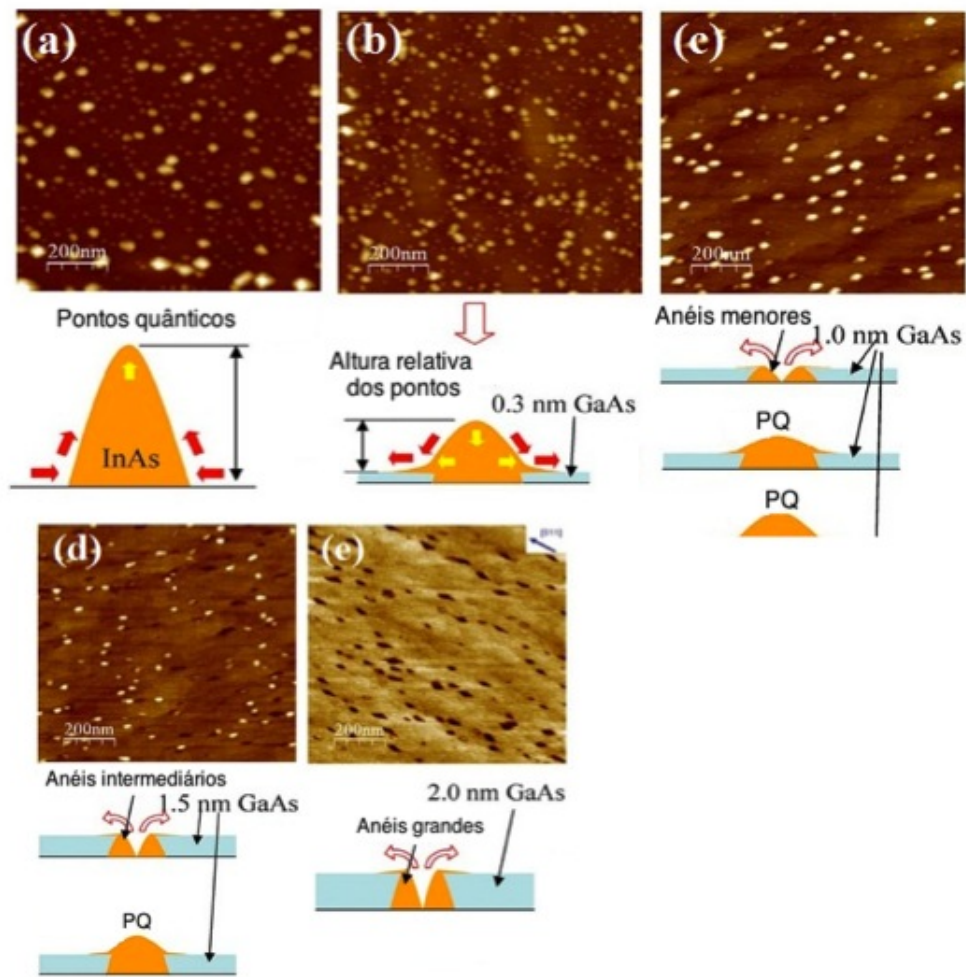


Figura 2.4: Imagens AFM, mostrando pontos quânticos de InAs cobertos com camadas de GaAs de (a) 0 nm, (b) 0,3 nm, (c) 1, (d) 1,5 e (e) 2 nm. [13]

resposta. Já é bem conhecido que pontos quânticos de InAs possuem altura entre 6 e 10 nm e que a espessura da camada depositada para se obter anéis deve ser menor do que esses valores.

As Figuras 2.4(a - e) mostram a evolução na formação de anéis quânticos de InAs, usando imagens de AFM, para espessuras das camadas de GaAs variando entre 0 a 2 nm. [5, 13] As amostras foram crescidas por MBE a  $490\text{ }^{\circ}\text{C}$  e com um tempo de annealing de 30 s. A Figura 2.4(a) mostra os pontos quânticos originais com altura de 7 nm. Após a deposição de uma camada de GaAs com 0,3 nm (Fig. 2.4(b)), a altura média dos pontos diminui com um aumento no diâmetro. Para camadas de GaAs mais finas do que 1,5 nm, somente poucos pontos quânticos tornam-se anéis que apresentam tamanhos menores, e com as amostras contendo uma mistura de ambos pontos e anéis quânticos.

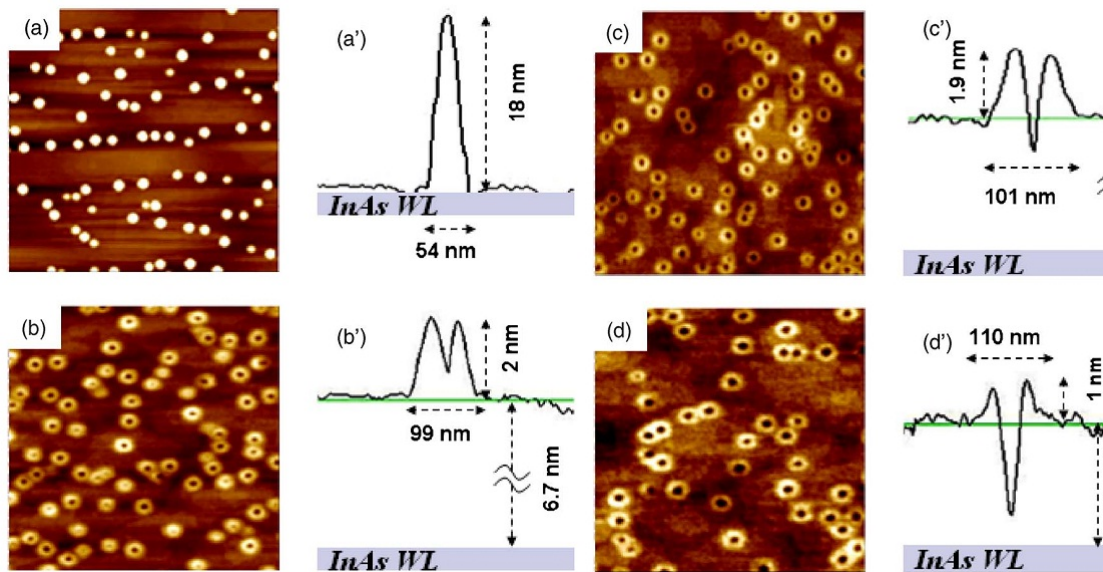


Figura 2.5: Imagens de AFM de pontos quânticos de InAs cobertos com camadas de GaAs com (a) 0 nm, (b) 5,5 nm, (c) 4 nm e (d) 2,5 nm. [6]

Entretanto, na amostra coberta com uma camada de GaAs com 2,0 nm, todos os pontos foram transformados totalmente em anéis quânticos. [13]

Foi verificado que a quantidade de material depositada tem influência direta na transição de ponto para anel. A Figura 2.5 apresenta novamente essa influência, mas agora utilizando camadas mais espessas do que aquelas apresentadas na Fig. 2.4. [6] Os pontos quânticos, nesse caso, foram crescidos a  $540\text{ }^{\circ}\text{C}$ , e as camadas de GaAs a  $505\text{ }^{\circ}\text{C}$  com espessuras de 5,5, 4 e 2,5 nm. Todos os processos foram seguidos por 50 s de annealing à mesma temperatura. Para o valor máximo de espessura, surgem estruturas do tipo vulcão com uma cratera com 1,4 nm em profundidade e borda de 2 nm acima da camada de GaAs. As amostras cobertas com 4 e 2,5 nm mostram claramente estruturas anelares. Além disso, pode-se observar que ao reduzir a espessura da camada de GaAs de 5,5 para 2,5 nm, houve uma redução na altura dos anéis seguido de um aumento no diâmetro. [6, 13]

Voltando agora a Figura 2.3. Como foi discutido naquela ocasião, existem tensões entre as três interfaces e elas variam de acordo com a espessura da camada de GaAs. Devido ao formato semi-esférico dos pontos, o ângulo  $\Theta$  varia com a espessura da camada de GaAs depositada. Se uma camada é relativamente fina, então o ângulo  $\Theta$  aumenta e a força no topo dos pontos aumenta em magnitude. Quanto maior for a intensidade da

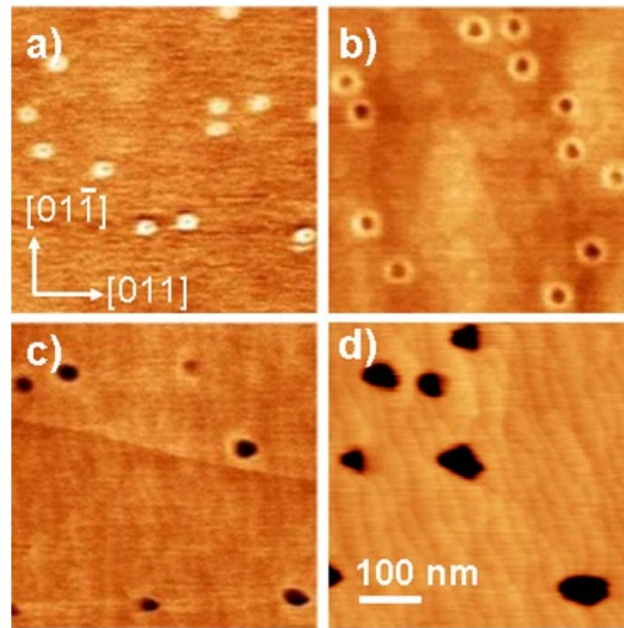


Figura 2.6: Imagens de AFM de anéis de InAs preparados com tempos de annealing de (a) 0s, (b) 30s, (c) 120s, e (d) 360s. [8]

força resultante, maior será a quantidade de material removido. Logo, se a camada de GaAs for muito espessa, a força resultante será de menor intensidade e, então, apenas uma pequena porção de material será ejetada. Por outro lado, se a camada de GaAs for extremamente fina, o ângulo  $\Theta$  tenderá a noventa graus, cuja função cosseno é zero, assim, apenas a tensão no arseneto de gálio na equação 2.3 permanecerá, e não será suficiente para remover o InAs contido no centro dos pontos. Portanto, há valores otimizados da espessura da camada de GaAs que levam a formação de anéis, que de acordo com a literatura, encontram-se em torno de 2 a 4 nm. [6, 7]

### 2.3.2 Tempo de Annealing

Usualmente após a formação dos pontos quânticos, o crescimento é interrompido durante alguns segundos para melhorar a qualidade da forma dessas nanoestruturas. Após a deposição de uma fina camada de GaAs, o crescimento pode, mais uma vez, ser interrompido por um determinado intervalo de tempo para também melhorar a forma dos anéis. Nos dois procedimentos, esse período de tempo é chamado de tempo de annealing. A Figura 2.6 mostra imagens de AFM de anéis quânticos de InAs para diferentes tempos de annealing. Em todos os casos, a temperatura de annealing foi de  $490\text{ }^{\circ}\text{C}$  e os pontos

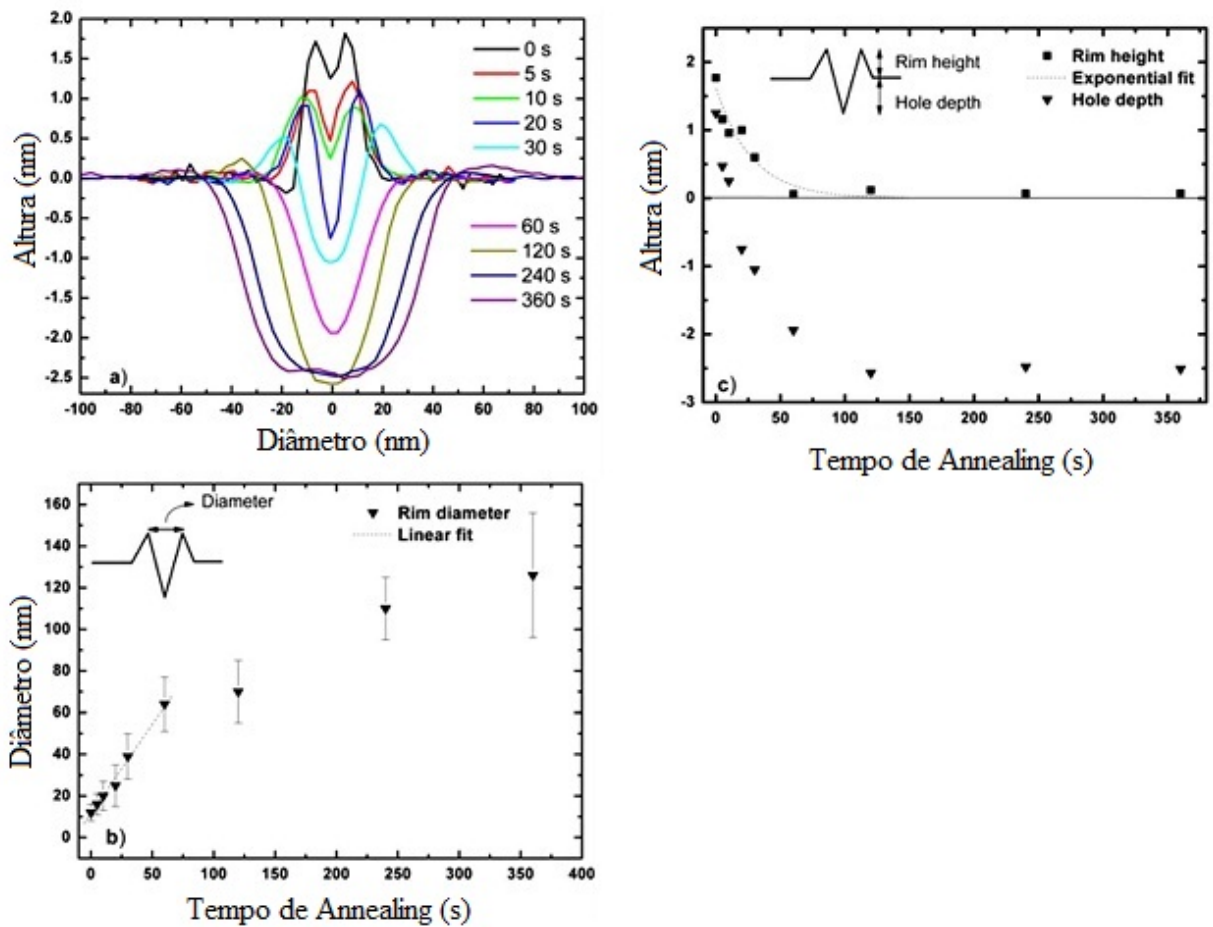


Figura 2.7: (a) Perfil dos anéis obtidos pela técnica de imagens AFM para tempos de annealing entre 0 e 360 s. (b) Diâmetro do anel medido entre os ápices das bordas do anel como função do tempo de annealing. (c) Tamanho das alturas máxima (borda) e mínima (buraco) em função do tempo de annealing. [8]

foram cobertos com uma camada de GaAs com 2 nm de espessura. [8] As imagens mostram a forma anelar das estruturas, após a deposição da camada de GaAs, assim como um aumento nas dimensões dos anéis para os tempos de annealing mais longos. Para tempos superiores a 120 s, o tamanho dos buracos aumentam significativamente, destruindo a geometria de anel e criando estruturas chamadas de nano-buracos.

A evolução da forma dos anéis na direção cristalina  $[1\bar{1}0]$  é apresentada na Figura 2.7(a). Várias características interessantes aparecem após a formação dos anéis. Em primeiro lugar, é notável a redução na altura dos anéis comparada aos pontos quânticos que os precederam; pontos tinham originalmente 15 nm enquanto anéis apresentam uma redução em torno de 10 vezes nessa altura devido a migração de InAs do centro para as



extremidades. Para a amostra cujo tempo de annealing é zero e mostrado na Fig. 2.6(a), apenas uma depressão superficial pode ser vista no centro e as dimensões laterais permanecem as mesmas dos pontos quânticos originais (25 nm). Aumentando-se o tempo de annealing, o buraco no centro dos pontos quânticos torna-se mais profundo e o tamanho lateral aumenta devido a difusão planar de material. Em  $t = 20$  s, o material removido do centro atinge a camada molhada e possivelmente a camada de GaAs. Após 30 s, a forma de anel é observada com um valor máximo de 1 nm na altura para cima e para baixo em relação a linha de referência. Para tempos maiores que 30 s a forma anelar desaparece e apenas um buraco permanece dentro do GaAs, cujo tamanho aumenta proporcionalmente com o tempo de annealing. [14]

Outro ponto importante, especialmente para estudos ópticos, é o tamanho da altura máxima do anel onde o par elétron-buraco estará confinado. Todas as propriedades ópticas dependerão deste valor. A Figura 2.7(b) mostra a variação da distância entre as duas bordas de maior altura do anel em função do tempo de annealing, mostrando que para longos tempos esse diâmetro é tão grande que torna-se invisível nas imagens de AFM (incerteza excessivamente grande). Para tempos de annealing comumente usados no crescimento de anéis, usualmente entre 30 e 60 s, o diâmetro tem uma variação entre 30 e 80 nm. A Figura 2.7(c) mostra como a altura das bordas na altura máxima e mínima (profundidade do buraco no centro) dos anéis varia quando o tempo de annealing é aumentado. Uma tendência exponencial é observada para os dois casos, uma vez que após 120 s o buraco atinge a camada de GaAs e o material contido na altura máxima dos anéis migra para as regiões vizinhas. [8]

### 2.3.3 Temperatura de Annealing

Outra possibilidade observada para melhorar a qualidade dos pontos/anéis quânticos é alteração na temperatura de annealing. Normalmente para pontos/anéis de InAs a temperatura do substrato é mantida em torno de 520 a 540°C, e após a formação destas nanoestruturas a temperatura pode ser reduzida para iniciar o processo de annealing. Esse passo pode ser feito como descrito na seção anterior, mantendo a temperatura fixa e variando o tempo de annealing ou, também, mantendo o tempo constante e variando-se a temperatura. As Figuras 2.8(a) e (b) mostram as diferenças nos perfis dos anéis para temperaturas de annealing de 450 e 470°C. [6] As duas amostras foram crescidas nas

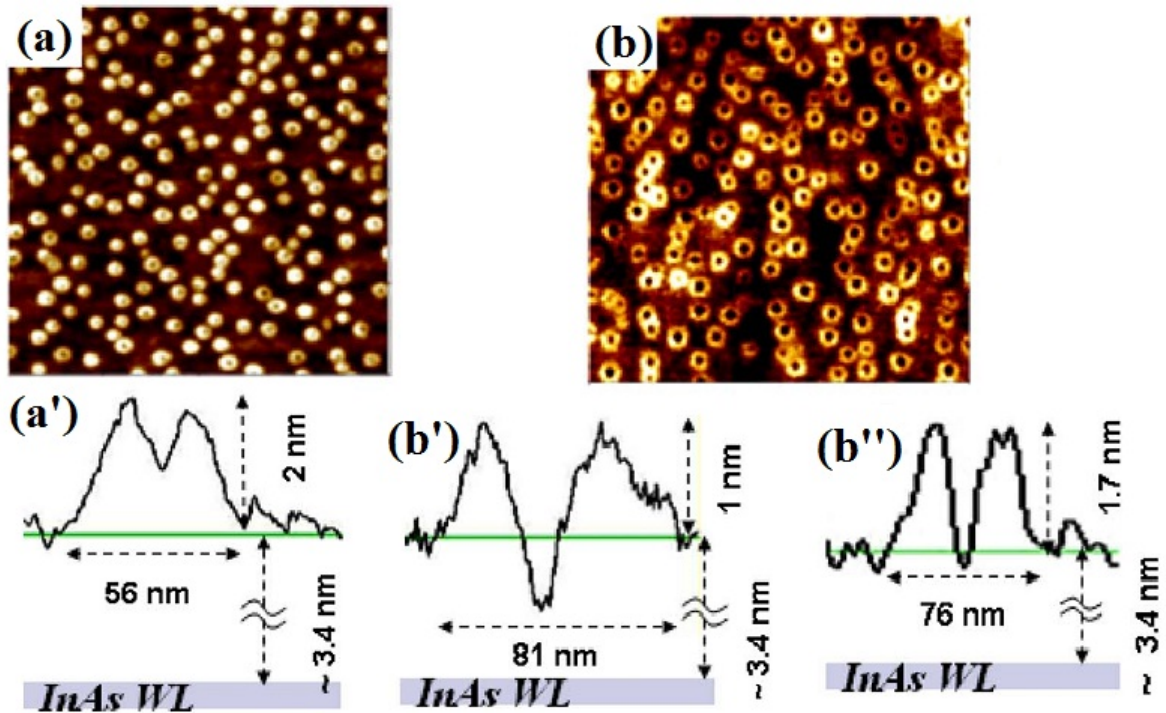


Figura 2.8: Imagens AFM de anéis com temperaturas de annealing de (a) 450 °C e (b) 470 °C. (a'), (b') e (b'') representam a evolução dos anéis a partir de pontos quânticos, em que (b') e (b'') são os perfis de dois grupos de anéis com tamanhos distintos. [6]

mesmas condições, com tempo de annealing de 60 s e os pontos quânticos cobertos com uma camada de GaAs de 2,5 nm. Para a menor temperatura de annealing a migração de material do topo dos pontos quânticos é menor do que para as estruturas crescidas com a mais alta temperatura de annealing. No primeiro caso, as estruturas apresentam formas do tipo vulcão, enquanto que no segundo, estruturas de anéis são claramente observadas, uma vez que a elevação da temperatura aumenta a quantidade de InAs migrado do centro para as bordas dos pontos.

As Figuras 2.8(a') e (b'/b'') mostram detalhes da migração do material do topo dos pontos quânticos para as bordas. Na Figura 2.8(a') apenas uma pequena quantidade de material é transferida, similar às estruturas obtidas na Figura 2.6(a) para um tempo de annealing de 0 s. Entretanto, quando a temperatura é aumentada para 470 °C, a transferência de material para regiões externas ao centro dos pontos atinge a camada de GaAs e a formação de anéis quânticos é observada. Aqui deve ser notado que o tamanho das estruturas são sensíveis à temperatura de annealing. Para altas temperaturas pode-se observar a formação de anéis com menores alturas e maiores diâmetros quando comparados



com amostras de anéis formados sob baixas temperaturas de annealing.

Outro ponto importante que ocorre durante a formação de pontos/anéis é a distribuição bimodal dessas estruturas. As Figuras 2.8(b') e (b'') mostram claramente tal comportamento, onde aparecem dois conjuntos de anéis: no primeiro caso são anéis com menores alturas e maiores tamanhos laterais, e no segundo, anéis com maiores alturas e menores tamanhos laterais, respectivamente. Tal característica é devido ao fato que existem condições específicas para um crescimento otimizado de pontos quânticos. Quando essa situação é alcançada, qualquer deposição extra de índio pode levar a uma nova nucleação e a formação de um novo conjunto de pontos quânticos. Assim, pontos quânticos maiores são oriundos dos tamanhos otimizados, enquanto que pontos menores são originados de nucleações posteriores. [15] Outro ponto importante que pode explicar as diferenças nas dimensões anelares é a difusão anisotrópica do índio. Durante o crescimento átomos de índio podem se deslocar de um ponto quântico para outros na vizinhança, levando a formação de dois ou mais conjuntos de pontos com diferentes tamanhos. Portanto, se dois conjuntos de pontos quânticos são formados durante o crescimento, da mesma forma é esperada a obtenção de dois conjuntos de anéis. Durante o procedimento de annealing com variação de tempo ou temperatura, esses dois conjuntos de pontos irão criar dois conjuntos de anéis com diferentes tamanhos, como foi observado na Figuras 2.8(b') e (b''). A formação desses dois grupos de nanoestruturas é de fundamental importância nas investigações ópticas, uma vez que nanoestruturas com diferentes tamanhos levam a diferentes propriedades no confinamento de portadores nas estruturas. [6, 16]

### 2.3.4 Difusão do Índio

Um ponto importante a ser considerado durante o crescimento de qualquer nanoestrutura é como os elementos químicos espalham-se pela superfície após serem incorporados na rede cristalina. O modelo cinético mostra diferentes taxas de difusão na superfície para os átomos da família III da tabela periódica. Por exemplo, os átomos de índio possuem uma maior mobilidade do que átomos de gálio em temperaturas e tempos típicos de annealing. Além disso, a difusão do índio é anisotrópica, sendo mais rápida ao longo da direção  $[1\bar{1}0]$  do que na direção  $[110]$ , devido à reatividade química ser anisotrópica para a migração de átomos do grupo III. [1] Os efeitos da segregação do índio podem mudar a forma e a composição dos pontos quânticos de InAs, influenciando nos níveis de

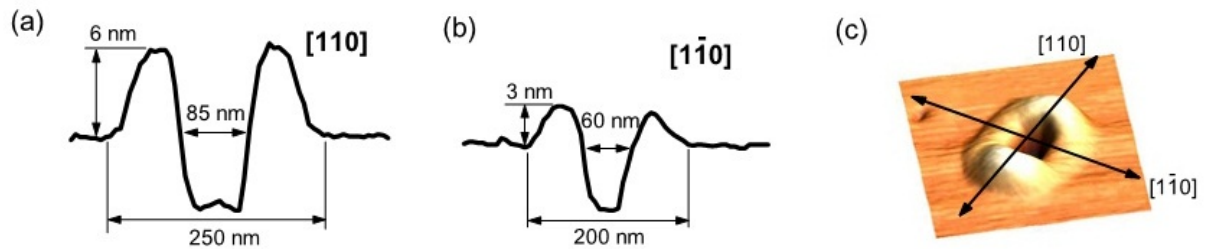


Figura 2.9: Perfis de imagens AFM de anéis quânticos de InAs ao longo das direções [110] e (b)  $[1\bar{1}0]$ . A altura e o tamanho lateral são claramente diferentes em ambas as direções devido a anisotropia no coeficiente de difusão do índio nessas direções. (c) Imagens tridimensionais mostrando a alongação dos anéis na direção [110]. [16]

energia dos estados confinados. [5, 17, 18, 19] Essa anisotropia provoca uma tendência de apresentar alongação dos pontos quânticos de InAs na direção  $[1\bar{1}0]$  quando comparados a direção [110]. Como resultado dessa alongação dos pontos, anéis quânticos não serão completamente circulares, mas alongados na direção  $[1\bar{1}0]$  também, como pode ser visto na Figura 2.9. [16]

Antes da formação dos anéis, pode-se imaginar apenas os pontos quânticos envoltos por uma fina camada de GaAs. Após o processo de annealing, parte do material de InAs dos pontos será removido do topo, podendo migrar para as direções em volta. A partir desse cenário, espera-se que os anéis não serão formados por InAs puro, mas uma mistura entre InAs e o GaAs oriundo da fina camada depositada, ou seja, a estrutura final será composta por um anel quântico de  $In_xGa_{1-x}As$ , com uma concentração de In mais pronunciada no topo do que nas bordas dos anéis.

As Figuras 2.10(a) e (b) mostram as concentrações de índio nas superfícies de anéis quânticos de InAs para tempos de annealing de 0 e 30 segundos, respectivamente. [8] As concentrações médias de  $In$  na região planar são aproximadamente de 0,23% (Fig. 2.10(a)) e 0,52% (Fig. 2.10(b)) para os respectivos tempos de annealing. [20, 21] A concentração de índio no topo dos pontos quânticos predecessores era de 0,76%. Essa significativa redução é associada com a difusão de material para as bordas dos anéis, após a deposição da fina camada de GaAs. [22, 23] Para a amostra com tempo de annealing de 30 s, a concentração de  $In$  na superfície aumenta em relação à amostra com tempo de annealing zero, indicando uma redistribuição dos átomos de índio nas regiões vizinhas durante o processo de annealing. Outra característica interessante é como a concentração de índio

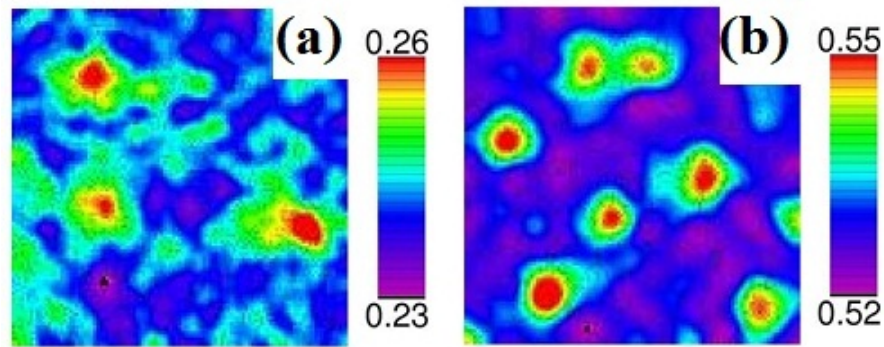


Figura 2.10: Mapas da concentração de índio em anéis quânticos de InAs para tempos de annealing de (a) 0 s e (b) 30 s. [8]

varia do centro dos anéis para as bordas (veja escalas no lado direito das Fig. 2.10(a) e (b)). Essa concentração diminui do centro em direção as regiões externas, sendo 0,26% e 0,55% no centro e 0,23% e 0,53% nas bordas para 0 e 30 segundos, respectivamente. [8] Como será discutido no capítulo 6, a variação na concentração de índio desempenha uma importante regra nas propriedades ópticas dessas estruturas.

Muitos dos mecanismos apresentados nas seções anteriores podem explicar a transição de ponto para anel quântico, entretanto, a difusão do índio, que não é um resultado de um processo de equilíbrio, não tem argumentos suficientes para explicar essa transição por si só. Como discutido anteriormente, para algumas condições foram observadas a coexistência de anéis e pontos quânticos na mesma amostra (veja Fig. 2.4(b) e Fig. 2.8(a)). Tal característica pode ser originada de um processo abrupto ao invés de uma formação contínua do buraco pelo processo de difusão. Essa evidência experimental sugere que um mecanismo adicional deve contribuir na formação dos anéis e que ainda não foi levado em consideração. [4]

Considerando ainda a segregação de índio, García et. al. [19] estudaram o acúmulo de tensão como função da quantidade de material migrada, tanto para um filme com apenas uma monocamada de In como também para pontos quânticos de InAs. A Figura 2.11(a) mostra a evolução do acúmulo de tensão para uma monocamada de In crescida sobre uma camada de GaAs. Primeiro é depositado o filme durante 30 segundos e, então, o crescimento é interrompido por 20 segundos e, finalmente, uma outra camada fina (mais fina do que 10 nm) de GaAs é depositada. A tensão total acumulada é de 2,25 N/m. Esse resultado pode ser explicado assumindo que apenas uma fração dos átomos de índio

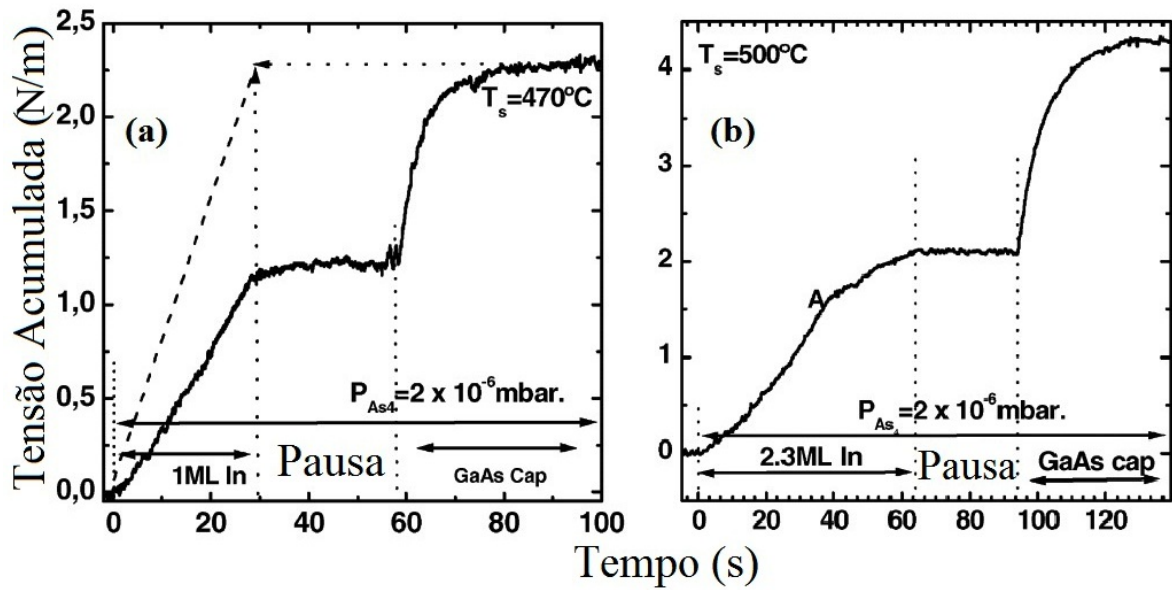


Figura 2.11: Evolução do acúmulo de tensão durante a deposição de (a) uma monocamada de índio e (b) 2,3 monocamadas no processo de obtenção de pontos quânticos. As duas amostras foram crescidas por epitaxia por feixes moleculares em uma atmosfera de  $As_4$ . As medidas foram feitas usando uma técnica de deflexão de laser ao longo das direções perpendiculares. [19, 24, 25, 26]

são incorporados como InAs, sendo o restante acumulados na superfície e, assim, não contribuindo para a tensão na superfície dos dots.

Embora índio e arsênio sejam depositados simultaneamente, durante o crescimento da camada tampão de GaAs os átomos de In excedentes (oriundos da superfície) podem ser incorporados até a exaustão completa. A tensão acumulada também não depende da temperatura de crescimento e, para temperaturas acima de  $450\text{ }^\circ\text{C}$ , aproximadamente cinquenta por cento do In não será incorporado como InAs na camada molhada (wetting layer). [24] Esse resultado mostra que a migração de índio é controlada pelo equilíbrio termodinâmico a partir da grande energia da tensão superficial associada com a incorporação pseudomórfica de InAs, além do processo de troca de cinética entre átomos da coluna III na superfície dos dots. [19]

A grande segregação de índio observada na Figura 2.11(a) tem uma forte influência na formação dos pontos quânticos. A Figura 2.11(b) demonstra a evolução da tensão para pontos quânticos crescidos a  $500\text{ }^\circ\text{C}$  com deposição de duas monocamadas. Um aumento de 50% na tensão em relação ao caso anterior é observada no ponto A correspondendo a

deposição de 1,4 monocamadas. A partir desse ponto é possível observar a formação de ilhas tridimensionais. Devido ao grande descasamento dos parâmetros de rede do InAs e GaAs, a energia de tensão e energia das ligações químicas competem entre si. Como resultado geral observa-se uma grande saturação de índio na superfície que determina a razão entre os átomos de In ligados no InAs e livres na superfície (não ligados a InAs). Um ponto que pode ser levado em consideração é a relaxação da tensão, embora tal análise seja complicada neste momento, uma vez que existe transferência de massa entre os átomos de In da superfície, ilhas de InAs e pontos quânticos, uma vez que estas três fases aparecem após a formação dos pontos quânticos mas constituem processos de quase-equilíbrio. A dramática mudança ocorre na tensão acumulada após a deposição da camada tampão de GaAs, quando comparado com o sistema mostrado na Fig. 2.11(a). A tensão total acumulada nos pontos quânticos é de aproximadamente 4 N/m, sendo associada com a incorporação de In. Outra característica notável, nesse caso, é que a tensão não é uniformemente distribuída ao longo dos pontos. Átomos de gálio alteram a configuração entre o InAs e o índio líquido. [27] Durante a cobertura dos pontos de InAs, átomos de In incorporam na matriz na forma da liga de  $In_xGa_{1-x}As$ , como também foi reportado para anéis quânticos apresentados na Fig. 2.10. [8, 19] Portanto, existe uma importante relação entre a difusão do índio e a tensão nos pontos quânticos. Se os pontos apresentam uma tensão significativa, torna-se bastante razoável a existência de tensão nos anéis da mesma ordem de grandeza, uma vez que durante a formação dos anéis observa-se uma elongação geométrica extra devido a deposição da camada fina de GaAs e a elongação dos anéis na direção  $[1\bar{1}0]$ .

# Referências Bibliográficas

- [1] S. Blakemore, *J. Appl. Phys.* **53**, R123 (1982).
- [2] S. Tiwari and D. J. Frank, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 630 (1992).
- [3] J. E. Ayers, *Heteroepitaxy of Semiconductors: Theory, Growth and Characterization*, CRC Press, Taylor & Francis Group, (2007).
- [4] I. Daruka and A. L. Barabási, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3708 (1997).
- [5] J. M. García, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. L. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus, and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 14 (1997).
- [6] H-S. Ling and C-P. Lee, *J. Appl. Phys.* **102**, 024314 (2007).
- [7] R. Blossey and A. Lorke, *Phys. Rev. E* **65**, 021603 (2002).
- [8] V. Baranwal, G. Biasiol, S. Heun, A. Locatelli, T. O. Menten, and M. N. Orti, *Phys. Rev. B* **80**, 155328 (2009).
- [9] C. Zandonella, *Nature (London)* **424**, 721 (2003).
- [10] D. Granados and J. M. García, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 2401 (2003).
- [11] F. Brochard-Wyart, P. G. De Gennes, H. Hervet, and C. Redon, *Langmuir* **10**, 1566 (1994).
- [12] D. J. Bottomley, *J. Vac. Sci. Technol. B* **17**, 259 (1999).
- [13] J. -H. Dai, J. -H. Lee, and S. -C. Lee, *IEEE. Photon. Technol. Lett.* **20**, 1041, (2008).
- [14] E. Steimetz, T. Wehnert, H. Kirmse, F. Poser, J. T. Zettler, W. Neumann, and W. Richter, *J. Cryst. Growth* **221**, 592, (2000).

- [15] A. Barabasi, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2565 (1997).
- [16] A. Aierken, T. Hakkarainen, J. Riikonen, and M. Spoanen, *Nanotechnology* **19**, 245304 (2008).
- [17] R. Songmuang, S. Kiravittaya, and O. G. Schmidt, *J. Cryst. Growth* **249**, 416 (2003).
- [18] J. M. García, T. Mankand, T. Holtz, P. J. Wellman, and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3272 (1998).
- [19] J. M. García, D. Granados, J. P. Silveira, and F. Briones, *Microelect. Journal* **35**, 7 (2004).
- [20] G. Biasiol, S. Heun, G. B. Golinelli, A. Locatelli, T. O. Mendes, F. Z. Guo, C. Hofer, C. Teichert, and L. Sorba, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 223106 (2005).
- [21] S. Heun, G. Biasiol, V. Grillo, E. Carlino, L. Sorba, G. B. Golinelli, A. Locatelli, T. O Mendes, and F. Z. Guo, *J. Nanosci. Nanotechnol.* **7**, 1721 (2007).
- [22] A. Lorke, R. J. Luyken, J. M. García, and P. M. Petroff, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, 1857 (2001).
- [23] O. Dehaese, X. Wallart, and F. Mollot, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 52 (1995).
- [24] J. P. Silveira and F. Briones, *J. Cryst. Growth* **201**, 113 (1999).
- [25] J. A. Floro, E. Chason, S. R. Lee, R. D. Twestern, R. Q. Hwang, and L. B. Freund, *J. Electron. Mater.* **26**, 969 (1997).
- [26] J. M. García, J. Silveira, and F. Briones, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 409 (2000).
- [27] D. Bottomley, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 783 (1998); *Appl. Phys. Lett.* **80**, 4747 (2002).

# Capítulo 3

## Propriedades Ópticas de Nanoestruturas Semicondutoras

Neste capítulo é feita uma revisão sobre as propriedades ópticas de materiais semicondutores nanoestruturados. Serão estudadas as estruturas eletrônicas de portadores em materiais volumétricos que compõem uma determinada heteroestrutura e os éxcitons contidos nos perfis de potenciais das mesmas, levando-se em consideração como tempo de recombinação excitônico assim como a temperatura afeta a energia de ligação dos éxcitons. Para finalizar, é investigado como é possível identificar propriedades ópticas associadas com assimetrias nos perfis de potencial, usando técnicas de análise da polarização linear da luz emitida durante uma recombinação excitônica.

### 3.1 Estruturas de Bandas ou Estrutura Eletrônica de Portadores

A rede recíproca da rede cúbica de face centrada é uma rede cúbica de corpo centrado, sendo que a primeira zona de Brillouin desta rede recíproca é um octaedro truncado. Na Figura 3.1(a) é apresentada a primeira zona de Brillouin e alguns pontos de alta simetria neste espaço recíproco. [1]

Na Figura 3.2(a) é mostrada a estrutura eletrônica do GaAs na direção [100] e na Figura 3.2(b) para o InAs. O mínimo da banda de condução (BC) com momento angular orbital  $L = 0$ , e o máximo da banda de valência (BV) com momento angular orbital  $L = 1$ , estão localizados no mesmo ponto de alta simetria  $\Gamma$  ( $\vec{k} = 0$ ) da zona de Brillouin. Com a



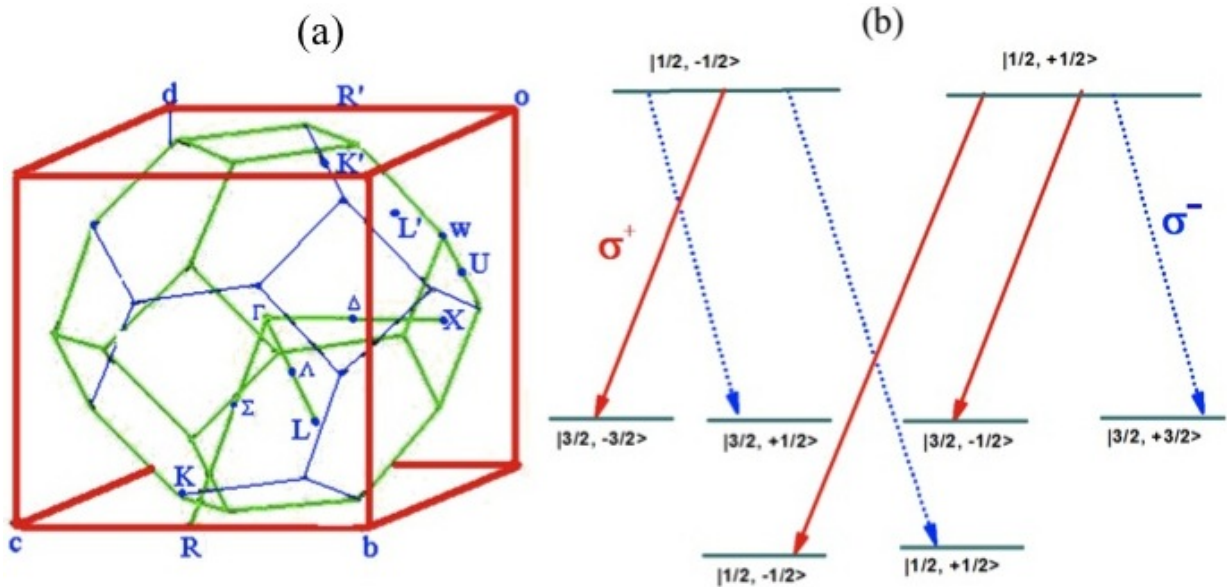


Figura 3.1: (a) Primeira zona de Brillouin da rede cúbica de face centrada mostrando os principais pontos de alta simetria. [1] (b) Polarizações circulares da luz emitida em transições interbandas e dentro da aproximação de dipolo elétrico.

inclusão de spin,  $S = 1/2$ , estes estados apresentam três multipletos com momento angular total,  $J = L + S$ . Na banda de condução há um duplete com  $J = 1/2$ ,  $M_J = \pm 1/2$ , e na banda de valência um multiplete com  $J = 3/2$ ,  $M_J = \pm 3/2, \pm 1/2$  e outro com  $J = 1/2$ ,  $M_J = \pm 1/2, \pm 1/2$ , como ilustrado na Figura 3.1(b). Na ausência de acoplamento spin-órbita, as seis bandas de valência são degeneradas no ponto  $\Gamma$  ( $\vec{k} = 0$ ). A inclusão do acoplamento spin-órbita levanta a degenerescência dos seis níveis de valência e originam o quadrupeto simetria  $\Gamma_8$  e  $J = 3/2$ , e o duplete simetria  $\Gamma_7$  e momento angular  $J = 1/2$ . Em semicondutores III-V um quadrupeto tem sempre energia maior que o duplete, e a separação de energia entre eles é representada pelo símbolo  $\Delta$ . Em torno de  $\vec{k} = 0$ , todos os estados de valência, também denominados de buracos quando vazios por algum tipo de excitação, apresentam curvaturas diferentes próximo do ponto desta simetria. A diferença nas curvaturas dos ramos de energia destes estados, de acordo com a definição de massa efetiva  $\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar} \frac{d^2 E(\vec{k})}{dk^2}$ , faz com que as massas efetivas dos buracos que ocupam tais estados (falta de elétrons) sejam distintas. Os buracos de maior massa são denominados buracos pesados "hh" (do inglês *heavy hole*), e os buracos de menor massa são chamados de buracos leves "lh" (do inglês *light hole*). A transição fundamental para materiais III-V de *gap* direto envolve o máximo da banda de valência em  $\Gamma_8^V$  e o mínimo da banda condução  $\Gamma_6^C$  e é representada por  $E_g^\Gamma$  e a regra de seleção para as transições ópticas entre as bandas de condução e de valência (interbandas dentro da aproximação de dipolo elétrico), são

$\Delta J = 1, M_J = \pm 1$  para polarizações circulares,  $\sigma^\pm$ , como indicado na Figura 3.1(b).

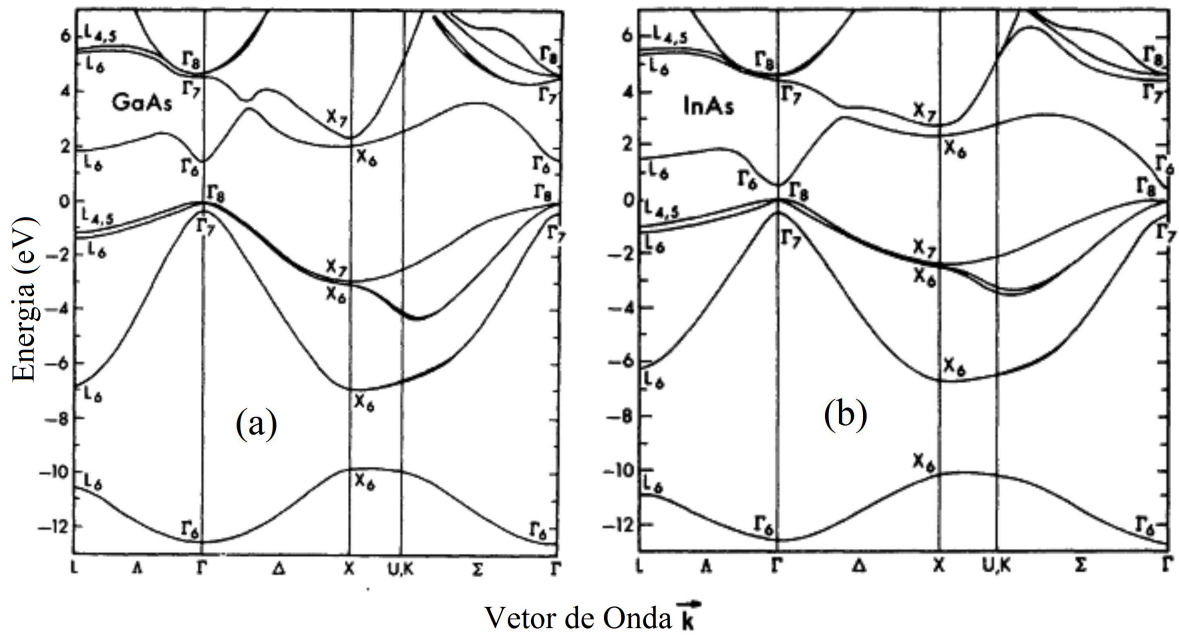


Figura 3.2: Estrutura de bandas (*bulk*) para os diferentes portadores no espaço dos momentos, para (a) GaAs e (b) InAs. [2]

O *gap* de semicondutores depende da temperatura e para o GaAs tem valores  $E_g^\Gamma = 1,519$  eV em  $T = 2$  K e  $1,424$  eV em  $T = 300$  K, [1] enquanto que para o InAs o valor é de  $E_g^\Gamma = 0,417$  eV em  $T=2$  K. [3] Para o caso do GaAs e InAs volumétricos, no ponto de simetria  $\Gamma$  os estados de buracos apresentam a mesma energia, ou seja, são degenerados. Por esta razão, as transições entre elétrons e buracos (falta de elétrons), no *bulk*, ocorrem principalmente entre os níveis de elétrons e níveis de buraco pesado, pois não se distingue buracos leves de pesados em virtude desta degenerescência. Porém, os estados possuem curvaturas diferentes na banda de valência, o que leva à diferenças nas massas efetivas para os dois materiais. No arseneto de gálio a massa efetiva dos elétrons no vale  $\Gamma$  é de  $0,067m_0$  enquanto que para o arseneto de índio assume o valor de  $0,026m_0$ . [4, 5]

## 3.2 Heteroestruturas Semicondutoras

A busca pela miniaturização de dispositivos e novas fronteiras na Física levou ao desenvolvimento de técnicas de crescimento que permitem a construção de estruturas em escala nanométrica. Dentre essas técnicas destaca-se a epitaxia por feixe molecular (veja capítulo 5). Esta técnica é utilizada com sucesso na preparação de materiais volumétricos

e heteroestruturas de camadas alternadas de semicondutores distintos. Heteroestruturas semicondutoras são compostas por camadas de diferentes materiais crescidos sobre uma base cristalina (substrato), sendo formadas por um semiconductor intercalado entre outros dois semicondutores com *gap* de energia maior em relação ao primeiro. Na Figura 3.3 é apresentado o perfil de potencial de uma heteroestrutura semicondutora com as bandas de valência e condução.

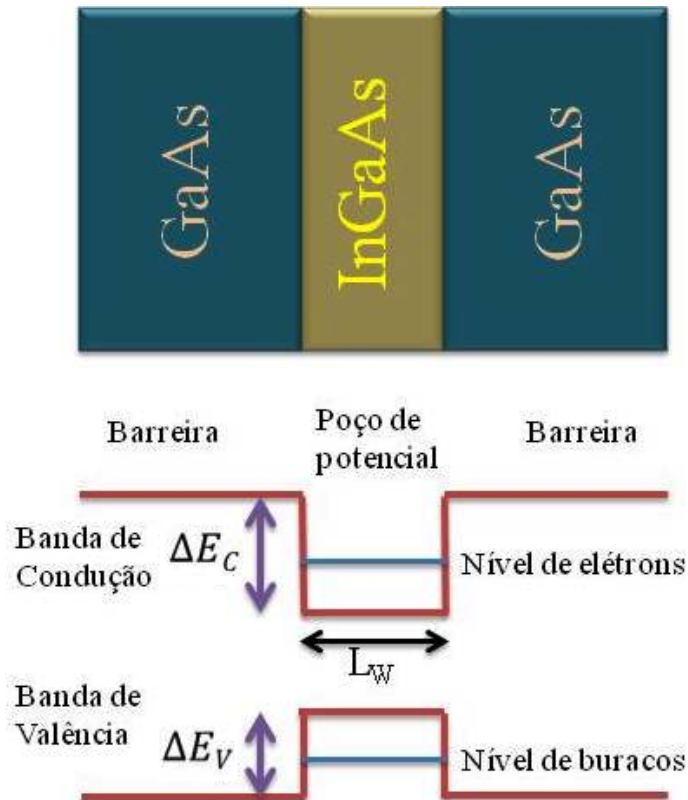


Figura 3.3: Perfil de potencial de uma heteroestrutura semicondutora composta por dois materiais semicondutores com diferentes valores dos *gaps* de energia,  $E_g^F$ .

O controle preciso da quantidade de material depositado em processos de crescimento possibilitou a criação de estruturas com dimensões inferiores ao comprimento de onda de De Broglie ( $\lambda_B$ ) do elétron, dando origem à quantização dos níveis de energia devido aos efeitos de confinamento. Devido às camadas dos materiais com *gaps* diferentes, existe a formação de uma região de confinamento na direção de crescimento (o poço de potencial) de portadores de carga com níveis de energia característicos e distintos dos materiais volumétricos individuais que compõem a heteroestrutura. Tomando como exemplo um poço formado pelas ligas GaAs/InGaAs/GaAs, elétrons e/ou buracos estão confinados (em uma direção) nas camadas de InGaAs pelo potencial das barreiras do GaAs, devido às descontinuidades das bandas de condução e de valência de ambos materiais. As es-

truturas produzidas são chamadas de estruturas de baixa dimensionalidade, podendo ser bidimensionais (2D), unidimensionais (1D) e zero-dimensionais (0D) quando as dimensões do sistema ( $L_W$ ) forem comparáveis ao comprimento de onda  $\lambda_B$ , em uma, duas, ou três direções, respectivamente. Quando uma das direções é comparável a  $\lambda_B$ , o sistema é conhecido como poço quântico. Limitando o movimento em duas direções, são obtidos os chamados fios quânticos e, no último caso, com o movimento quantizado em todas as direções, são obtidas estruturas chamadas de pontos quânticos. As heteroestruturas semicondutoras podem ser divididas ainda em duas classes: as do tipo I e do tipo II. No primeiro caso, elétrons e buracos estão confinados na mesma região de potencial ou no mesmo material; no segundo caso, um dos portadores de carga é confinado no poço de potencial enquanto que o outro portador é confinado na região da barreira. Como nessa tese as heteroestruturas estudadas são todas do tipo I, a Física que discutiremos na seqüência estará focada neste caso, onde usaremos um modelo simplificado de Hamiltoniano (modelo parabólico) dentro da aproximação de massa efetiva.

### 3.2.1 Espectro de Energia

O confinamento dos portadores de carga na direção de crescimento leva à formação de níveis de energia discretos tanto para elétrons como para buracos. A função de onda e os estados quantizados das energias dos portadores nas bandas de condução e valência podem ser calculados através da equação de Schrödinger para o modelo parabólico. Para resolver esta equação aplicada inicialmente ao caso bidimensional, separa-se então a parte que descreve o movimento dos portadores no plano x-y (movimento livre) da parte onde o movimento é quantizado (z). A função de onda que descreve buracos e elétrons em suas respectivas bandas pode ser escrita como:

$$\Psi(x, y, z) = \psi(x, y)\varphi(z), \quad (3.1)$$

onde o primeiro termo do lado direito ( $\psi(x, y)$ ) descreve o movimento bidimensional livre e o segundo termo o movimento quantizado ( $\varphi(z)$ ). Os estados do sistema são descritos por dois parâmetros: um vetor de onda  $\vec{k}$  para especificar o movimento livre no plano x-y, e um número quântico "n" para indicar os níveis de energia na direção z. A energia total do sistema é obtida pela soma das energias dos níveis quantizados, e do movimento no

plano x-y:

$$E^{total}(n, \vec{k}) = E_n + E(\vec{k}), \quad (3.2)$$

onde  $E_n$  é a energia quantizada do n-ésimo nível de energia, e  $E(\vec{k})$  é a energia associada ao movimento livre dos portadores no plano  $x-y$ . Neste plano, as funções de onda dos elétrons e buracos podem ser escritas em termos de ondas planas da forma:

$$\psi(x, y) = \frac{1}{\sqrt{A}} \exp^{i(\vec{k} \cdot \vec{r})}, \quad (3.3)$$

onde  $A$  é uma constante de normalização. A energia correspondente a este movimento é justamente a energia cinética:

$$E(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m^*}, \quad (3.4)$$

em que  $m^*$  é a massa efetiva dos portadores. Assim, a energia total para elétrons e buracos nos n-ésimos níveis de energia é:

$$E^{total}(n, \vec{k}) = E_n + \frac{\hbar^2}{2m^*} (\vec{k}_x^2 + \vec{k}_y^2), \quad (3.5)$$

onde  $E_n$  depende do perfil de potencial e várias aproximações para a estrutura do potencial real podem ser encontradas na literatura.

Considerando agora um poço de potencial com barreira infinita, como mostrado na Figura 3.4, em que o centro do poço quântico é o centro de coordenadas. Então, o potencial pode ser escrito como: [6]

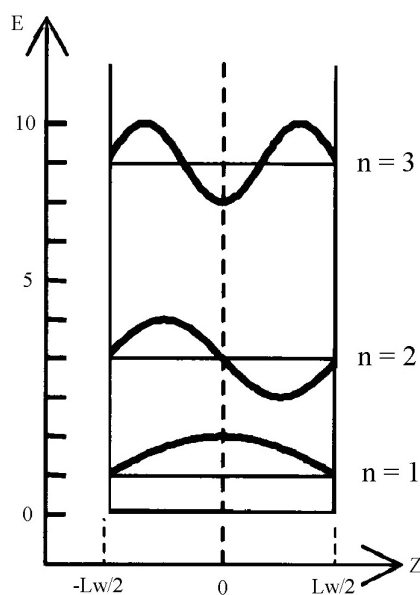


Figura 3.4: Perfil de um poço de potencial com largura  $L_W$  e barreiras de alturas infinitas. [6]

$$U(z) = \begin{cases} 0 & \text{para } -\frac{L_W}{2} < z < \frac{L_W}{2} \\ \infty & \text{para } z \leq -\frac{L_W}{2} \text{ ou } z \geq \frac{L_W}{2} \end{cases} \quad (3.6)$$

A equação de Schrödinger independente do tempo, unidimensional, para a região do poço, onde  $U(z) = 0$ , é escrita na forma:

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2\varphi(z)}{dz^2} = E\varphi(z). \quad (3.7)$$

Como a barreira é infinita, a probabilidade de uma partícula tunelar do poço para a barreira é zero, assim, a eq.(3.7) está sujeita a condição de contorno em que  $\varphi = 0$  nas interfaces. A solução é da forma:

$$\varphi_n(z) = \sqrt{\frac{2}{L_W}} \text{sen} \left( k_n z + \frac{n\pi}{2} \right), \quad (3.8)$$

onde  $n$  é o número quântico principal, e  $k_n = \frac{n\pi}{L_W}$ .

Esta forma da função de onda descreve uma onda dentro de um poço com *nós* nas interfaces, como ilustrado na Figura 3.4. A energia que corresponde ao  $n$ -ésimo nível de energia é dada por: [6, 7]

$$E_n = \frac{\hbar^2 k_n^2}{2m^*} = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left( \frac{n\pi}{L_W} \right)^2 \quad (3.9)$$

e a energia total é descrita por:

$$E^{total}(n, \vec{k}) = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left( \frac{n\pi}{L_W} \right)^2 + \frac{\hbar^2(k_x^2 + k_y^2)}{2m^*}, \quad (3.10)$$

onde  $E^{total}(n, \vec{k})$  é a soma dos autovalores da energia na direção  $z$  e a energia correspondente ao movimento livre nas direções  $x$  e  $y$ . As funções de onda dos três primeiros níveis são mostradas na Figura 3.4. O estado em  $n = 1$  é chamado de estado fundamental e os demais, estados excitados. De acordo com a eq. 3.10, as energias são inversamente proporcionais à massa efetiva e ao quadrado da largura do poço.

Baseado na resolução do sistema bidimensional apresentado até agora, é possível expandir a solução para o caso zero dimensional, ou pontos quânticos. Nesse sistema, cargas elétricas são confinadas nas três direções espaciais, semelhante ao caso de uma partícula confinada em uma caixa de lado  $L_W$ . Reescrevendo a equação de Schrödinger (eq. 3.7) para uma partícula confinada em um potencial de uma caixa, sendo infinito fora da caixa e zero no seu interior:

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V(x, y, z) \right] \psi(x, y, z) = E\psi(x, y, z), \quad (3.11)$$

em que o potencial  $V(x, y, z) = V_x(x) + V_y(y) + V_z(z)$  é o potencial de confinamento nas três direções e os autovalores da energia são dados por  $E = E_x + E_y + E_z$ . A função de onda para elétrons ou buracos (eq. 3.1) é reescrita nesse caso levando em consideração o confinamento tridimensional: [8]

$$\Psi(x, y, z) = \varphi(x) \cdot \varphi(y) \cdot \varphi(z). \quad (3.12)$$

Substituindo essa equação na anterior, e dividindo o resultado por  $\Psi(x, y, z)$ , obtém-se:

$$\left[ \frac{1}{\varphi(x)} \frac{d^2\varphi(x)}{dx^2} - \frac{2m^*}{\hbar^2} V_x(x) \right] + \left[ \frac{1}{\varphi(y)} \frac{d^2\varphi(y)}{dy^2} - \frac{2m^*}{\hbar^2} V_y(y) \right] + \left[ \frac{1}{\varphi(z)} \frac{d^2\varphi(z)}{dz^2} - \frac{2m^*}{\hbar^2} V_z(z) \right] + \frac{2m^*}{\hbar^2} E = 0, \quad (3.13)$$

como a função  $\varphi$  tem dependência com apenas uma das três coordenadas, têm-se então três equações diferenciais unidimensionais:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\varphi(x)}{dx^2} &= -\frac{2m^*}{\hbar^2} [E_x - V_x(x)]\varphi(x), \\ \frac{d^2\varphi(y)}{dy^2} &= -\frac{2m^*}{\hbar^2} [E_y - V_y(y)]\varphi(y), \\ \frac{d^2\varphi(z)}{dz^2} &= -\frac{2m^*}{\hbar^2} [E_z - V_z(z)]\varphi(z). \end{aligned} \quad (3.14)$$

A solução de cada uma dessas equações será:

$$\begin{aligned} \varphi(x) &= \sqrt{\frac{2}{L_W}} \text{sen} \left( \frac{n_x \pi}{L_W} x \right) \quad \text{com} \quad E_x = \frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\pi^2}{L_W^2} n_x^2 \\ \varphi(y) &= \sqrt{\frac{2}{L_W}} \text{sen} \left( \frac{n_y \pi}{L_W} y \right) \quad \text{com} \quad E_y = \frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\pi^2}{L_W^2} n_y^2 \\ \varphi(z) &= \sqrt{\frac{2}{L_W}} \text{sen} \left( \frac{n_z \pi}{L_W} z \right) \quad \text{com} \quad E_z = \frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\pi^2}{L_W^2} n_z^2. \end{aligned} \quad (3.15)$$

Portanto, a solução da equação 3.12 é:

$$\Psi(x, y, z) = \sqrt{\frac{8}{L^3}} \text{sen} \left( \frac{n_x \pi}{L_W} x \right) \cdot \text{sen} \left( \frac{n_y \pi}{L_W} y \right) \cdot \text{sen} \left( \frac{n_z \pi}{L_W} z \right) \quad (3.16)$$

e

$$E_{n_x n_y n_z} = E_x + E_y + E_z = \frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\pi^2}{L_W^2} [n_x^2 + n_y^2 + n_z^2], \quad (3.17)$$

onde  $n_x = 0, 1, 2, \dots$ ,  $n_y = 0, 1, 2, \dots$  e  $n_z = 0, 1, 2, \dots$ . É interessante aqui comparar esse resultado com aquele obtido na equação 3.10 para o poço quântico. Naquele caso, a energia da partícula era discretizada em uma direção, enquanto que para os pontos quânticos

ocorre a quantização nas três direções espaciais, e a energia ainda, nos dois casos é inversamente proporcional a massa efetiva das partículas e ao quadrado da largura efetiva do potencial de confinamento das partículas. [6, 9]

Quando um elétron é excitado para a banda de condução, este pode ligar-se eletrostaticamente a um buraco da banda de valência formando um éxciton. O éxciton pode ser entendido como uma estrutura hidrogenóide em um meio com uma constante dielétrica  $\varepsilon$  e descrito pelo modelo de Bohr. A energia potencial do sistema é dada por:

$$V(r) = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{e^2}{\varepsilon r}, \quad (3.18)$$

onde  $r$  é a distância média que separa as cargas. A massa do sistema elétron-buraco é descrita em termos da massa reduzida ou massa efetiva:

$$\mu = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*}, \quad (3.19)$$

onde  $m_e^*$  e  $m_h^*$  são as massas efetivas dos elétrons e buracos respectivamente. Resolvendo a eq. de Schrödinger utilizando o potencial e a massa definidos acima, encontramos que a energia de ligação ( $E_{exc}$ ) e o raio do éxciton ( $a_n$ ) são dados por:

$$E_{exc} = -\frac{1}{n^2} \frac{\mu}{2\hbar^2} \frac{e^4}{\varepsilon^2} \quad (3.20)$$

e

$$a_n = n^2 \frac{\varepsilon \hbar^2}{e^2 \mu}. \quad (3.21)$$

Ao ocorrer a recombinação excitônica, um fóton é emitido com a energia:

$$h\nu = E_g^{bulk} - E_{exc}, \quad (3.22)$$

onde  $E_g^{bulk}$  é o *gap* de energia do material bulk e  $E_{exc}$  é a energia de ligação do éxciton. [10]

Tratando-se de nanoestruturas quânticas, o éxciton sofre o efeito do confinamento com a redução do seu raio de Bohr, levando a um aumento de sua energia de ligação em relação ao material volumétrico. Assim, é possível observar transições excitônicas até mesmo em temperatura ambiente. [11]

Para baixas intensidades de excitação e baixas temperaturas, só é possível transições envolvendo o primeiro nível de elétron e o primeiro nível de buraco pesado, desde que não haja energia térmica suficiente para excitar o nível de buraco leve. Eventuais buracos que ocupem o nível de  $lh$  relaxam não radiativamente (processos envolvendo emissão de fônons) para o nível de buraco pesado e então ocorre a recombinação elétron-buraco pesado.



Em materiais volumétricos como GaAs, os níveis de energia dos buracos pesados e leves são degenerados no máximo da banda de valência. Em poços quânticos, o confinamento dos portadores provoca um levantamento da degenerescência dos buracos pesados e leves respectivamente, permitindo observar nos espectros de fotoluminescência separadamente as transições entre elétrons e os dois tipos de buracos, em certas condições específicas de temperatura e de potência de excitação óptica.

Assim como em materiais semicondutores volumétricos, elétrons e buracos podem se ligar eletrostaticamente formando éxcitons, com níveis de energia que se encontram abaixo da separação de energia entre níveis de elétron e de buraco (*gap* efetivo), tomando o topo da banda de valência como referência, por exemplo. O éxciton pode ser formado pela ligação entre o elétron com o buraco pesado ou com o buraco leve, e quando ocorre a recombinação do par elétron-buraco, um fóton será emitido com a energia:

$$\begin{aligned} h\nu_{hh} &= E_g^{bulk} + E_n + E_{hhm} - E_{exc}(hh) \\ h\nu_{lh} &= E_g^{bulk} + E_n + E_{lhm} - E_{exc}(lh), \end{aligned} \quad (3.23)$$

onde  $E_n$  é a energia do  $n$ -ésimo nível de energia de confinamento do elétron,  $E_{hhm}$  e  $E_{lhm}$  são os  $m$ -ésimos níveis de energias do buraco pesado e buraco leve respectivamente, e  $E_{exc}$  é a energia de ligação do éxciton relacionada ao buraco pesado  $hh$  ou leve  $lh$ .

### 3.2.2 Tempo de Decaimento

Após a formação do éxciton dentro do poço de potencial, haverá a recombinação do par elétron-buraco. O tempo necessário para ocorrer essa transição é conhecido como tempo de decaimento ou tempo de vida do éxciton  $\tau_R$ . A expressão para o cálculo desse tempo pode ser obtida pela Regra de Ouro de Fermi, a qual relaciona a taxa de transição ( $\Gamma$ ) com o tempo de decaimento  $\Gamma = \frac{1}{\tau_R}$  com a superposição das funções envelope do elétron  $F_e$  e do buraco  $F_h$ : [12, 13, 14]

$$\tau_R = \frac{2m_0\epsilon_0\hbar c^3}{q^2 E_p \omega n_R} \frac{1}{|\langle F_h | F_e \rangle|^2}, \quad (3.24)$$

em que  $q$  é a carga elétrica do elétron,  $m_0$  é a massa de repouso do elétron,  $\epsilon_0$  é a constante de permissividade no vácuo,  $E_p$  é a energia de Kane,  $\hbar\omega$  é a energia de transição,  $n_R$  é o índice de refração do meio e  $c$  é a velocidade da luz no vácuo. Devido à separação espacial dos portadores de carga, a superposição  $|\langle F_h | F_e \rangle|^2$  das funções de onda é menor

em pontos quânticos do tipo II do que em pontos quânticos do tipo I. No primeiro caso é esperado valores de  $\tau_R \sim 10$  ns. Para o segundo, valores típicos são em torno de  $\tau_R \sim 1$  ns. [15, 16, 17, 18]

### 3.2.3 Efeitos da Temperatura

Em geral, a Física de éxcitons formados em nanoestruturas semicondutoras é desenvolvida para baixas temperaturas ou mesmo 0 K. Entretanto, a temperatura pode modificar drasticamente os efeitos excitônicos. Na grande maioria dos materiais semicondutores, o *gap* de energia diminui com a temperatura e, em geral, possui um comportamento aproximadamente quadrático a baixas temperaturas e assintoticamente linear para temperaturas superiores a 100 K. Os mecanismos responsáveis pela redução do *gap* de energia com a temperatura são: a expansão térmica da rede (ETR) e a interação elétron-fônon (IEF). [19, 20] A contribuição da dilatação térmica da rede depende do tipo do material analisado. Para as ligas GaAs e InGaAs (com concentração de índio inferior a 15 %) e à temperatura ambiente, este mecanismo é responsável por cerca de 2 a 20%. [21, 22] Em outros sistemas a dilatação térmica influencia de maneira mais intensa, variando de 20 a 45 %. [20, 23]

O efeito principal do aumento da temperatura é a dissociação do éxciton ou quebra do estado ligado, conhecida como energia de ativação térmica, que pode ser determinada por experimentos de fotoluminescência. A Figura 3.5 é uma ilustração dos níveis de elétron e buraco em uma estrutura do tipo I e suas respectivas energias de ativação térmica  $E_1$  e  $E_2$ . Essas energias, em geral, são divididas em três regimes de acordo com o aumento da temperatura. O primeiro ocorre em baixas temperaturas, em que a energia térmica é insuficiente para quebrar a ligação excitônica, cujo resultado é apenas um deslocamento para menores energias devido a redução do *gap*. [19, 20] No regime de temperaturas intermediárias a energia térmica pode ser suficiente para dissociar os éxcitons. No caso de pontos quânticos, os portadores dissociados são livres para migrarem para a camada molhada, podendo então ser capturados por pontos quânticos maiores que possuam energias de confinamento menores, sendo esse efeito dependente da distribuição dos tamanhos dos pontos na amostra. [24, 25] Nesse regime de temperatura existe um deslocamento da energia para baixas energias mais acentuado em relação ao regime anterior, sendo maior que a variação da energia de *gap* do material. Para altas temperaturas, os portadores que

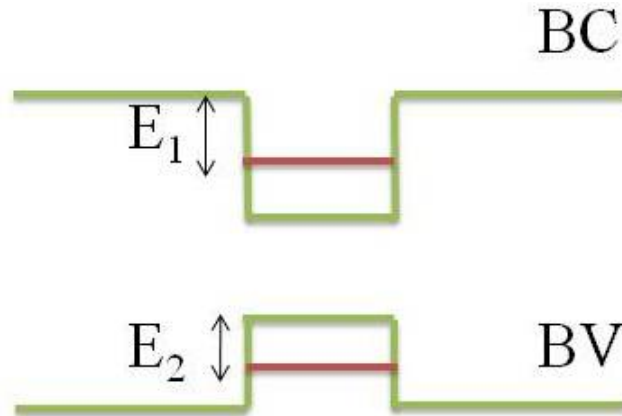


Figura 3.5: Representação esquemática do perfil de potencial de uma estrutura do tipo I, mostrando as energias de ionização do elétron ( $E_1$ ) e do buraco ( $E_2$ ).

foram capturados pelos pontos quânticos maiores passam a ser excitados térmicamente para a camada molhada ou excitados para a camada de arseneto de gálio, sendo que esses processos dominam a intensidade de emissão e a meia largura de linha de emissão. [18]

Após a formação do éxciton e sua conseqüente recombinação, alguns éxcitons recombinam com a taxa  $\frac{n}{\tau_R}$ , enquanto que outros podem ser dissociados com uma taxa dependente da temperatura. Seja  $n$  o número de éxcitons localizados em pontos quânticos com uma determinada energia  $E$ . A taxa de variação temporal será dada por:

$$\frac{dn}{dt} = g - \frac{n}{\tau_R} - \frac{n}{\tau_1} \exp\left(-\frac{E_1}{k_B T}\right) - \frac{n}{\tau_2} \exp\left(-\frac{E_2}{k_B T}\right), \quad (3.25)$$

onde  $g$  é a taxa de criação dos portadores, que em experimentos de fotoluminescência é determinada pela intensidade de excitação do laser,  $\frac{1}{\tau_1}$  e  $\frac{1}{\tau_2}$  são as taxas de ativação com energias  $E_1$  e  $E_2$ , respectivamente. Para o regime estacionário,  $\frac{dn}{dt} = 0$ , assim:

$$n(t) = \frac{g}{\frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_1} \exp\left(-\frac{E_1}{k_B T}\right) + \frac{1}{\tau_2} \exp\left(-\frac{E_2}{k_B T}\right)}. \quad (3.26)$$

Desta maneira, a intensidade da emissão será:

$$I = \frac{I_0}{1 + \frac{\tau_R}{\tau_1} \exp\left(-\frac{E_1}{k_B T}\right) + \frac{\tau_R}{\tau_2} \exp\left(-\frac{E_2}{k_B T}\right)}. \quad (3.27)$$

Esta equação é utilizada para ajustar, por exemplo, a intensidade integrada dos espectros de fotoluminescência em função da temperatura, obtendo os valores de  $E_1$ ,  $E_2$ ,  $\frac{\tau_R}{\tau_1}$  e  $\frac{\tau_R}{\tau_2}$ . [18, 26, 27]

### 3.3 Polarização Linear da Luz

Do ponto de vista ondulatório, uma onda eletromagnética com comprimento de onda relativo à energia do fóton é gerada. Os vetores campo magnético  $\vec{B}$  e elétrico  $\vec{E}$  associados com estas ondas são perpendiculares e quando estiverem orientados em todo o plano de propagação é dito que a luz é não-polarizada ou simplesmente luz natural. Por outro lado, se de alguma forma o vetor campo elétrico é selecionado em uma direção específica de forma a ter uma orientação constante, embora sua amplitude e sinal variem no tempo, a luz é dita linearmente polarizada, como ilustrado na Figura 3.6. Contudo, átomos em estados excitados de energia após certo tempo decaem para seus níveis fundamentais ou de menores energias emitindo, nesse processo de relaxação intrabanda, um fóton de luz de polarização linear, conforme mostrada na Figura 3.7(a) e (b).

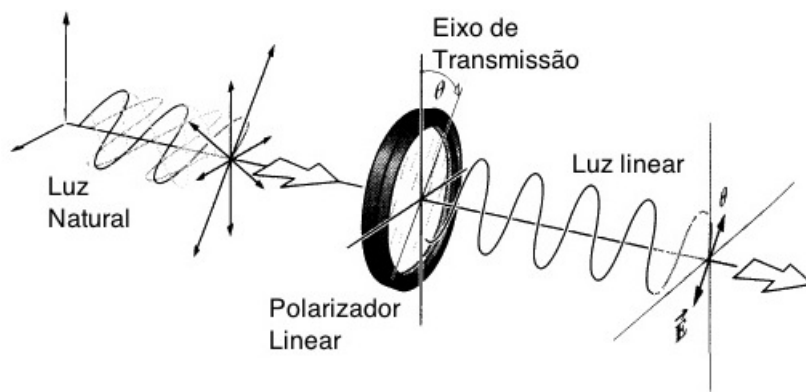


Figura 3.6: Luz natural incidindo sobre um polarizador linear. Após a passagem, o campo elétrico da luz estará oscilando em apenas uma direção, sendo dita linearmente polarizada. [28]

Por outro lado, na recombinação de éxcitons o fóton emitido tem polarização circular, como mencionado anteriormente e mostrado na Figura 3.1(b), e esta polarização pode ser decomposta nas duas polarizações lineares. Caso exista assimetria nos valores de campos elétricos do fóton, a luz terá polarização elíptica. Esse conceito é útil na investigação de propriedades ópticas de semicondutores, uma vez que permite identificar uma recombinação excitônica oriunda de estruturas que possuem assimetrias em seus perfis. Por exemplo, pontos quânticos esféricos são simétricos e nenhuma diferença de polarização linear da luz emitida por éxcitons contidos nessa nanoestrutura é esperada. Entretanto, é possível a obtenção de pontos quânticos alongados em uma direção, assim, através de um estudo das intensidades das polarizações lineares cruzadas é possível identificar as diferenças físicas

que existam na recombinações excitônicas nas duas direções perpendiculares dos pontos quânticos.

Considerando duas ondas eletromagnéticas movendo-se no espaço com mesma frequência, harmônicas e linearmente polarizadas ortogonalmente, ou seja, uma com o vetor campo elétrico propagando-se ao longo da direção  $x$  e outra na direção  $y$ . Essas ondas são representadas pelas seguintes equações:

$$\vec{E}_x(z, t) = E_{0x} \hat{i} \cos(kz - \omega t) \quad (3.28)$$

$$\vec{E}_y(z, t) = E_{0y} \hat{j} \cos(kz - \omega t + \epsilon) \quad (3.29)$$

em que  $z$  é a direção de propagação,  $\omega$  é a frequência angular das oscilações,  $\vec{k}$  é o vetor de onda que determina a direção de propagação, o termo entre parênteses  $(kz - \omega t)$  é a fase da onda e  $\epsilon$  é a diferença relativa das fases das duas ondas. A onda resultante da soma dessas duas ondas será:

$$\vec{E}(z, t) = \vec{E}_x(z, t) + \vec{E}_y(z, t) \quad (3.30)$$

A diferença de fase entre as ondas poderá ser negativa, positiva ou zero, dependendo

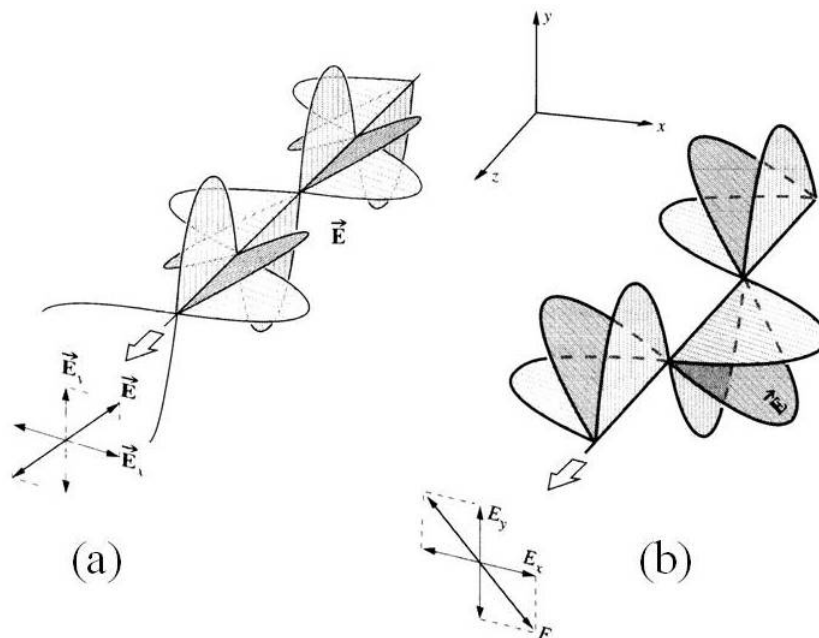


Figura 3.7: Ondas eletromagnéticas com campos elétricos oscilando nas direções  $x$  e  $y$ . O diagrama vetorial mostra os vetores  $\vec{E}$  em ambas as direções e o vetor resultante da soma de ambos. (a) Campos elétricos polarizados no primeiro e terceiro quadrante para uma onda em fase e (b) campos elétricos polarizados no segundo e quarto quadrante para uma onda em antifase. [28]

das posições relativas das ondas em relação a um ponto de referência. Se  $\epsilon = 0$  ou um múltiplo inteiro de  $\pm 2\pi$ , as ondas estarão em fase e a equação anterior é escrita como:

$$\vec{E} = (E_{0x}\hat{i} \pm E_{0y}\hat{j})\cos(kz - \omega t) \quad (3.31)$$

onde o primeiro termo entre parênteses representa a amplitude da onda resultante, ou simplesmente uma onda polarizada linearmente. A Figura 3.7(a) representa as duas ondas descritas pelas equações (3.28) e (3.29) quando o sinal na eq. (3.31) é positivo, ou seja, quando as duas componentes estão em fases. Nesse caso, as ondas propagam-se na direção do plano de observação onde os campos poderão ser medidos. A Figura 3.8 mostra o vetor resultante  $\vec{E}$  oscilando cosenoidalmente completando um ciclo oscilatório a medida que a onda avança ao longo da direção  $z$ .

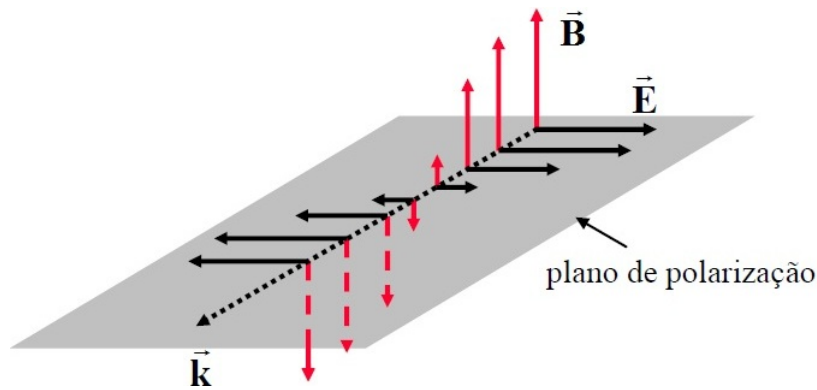


Figura 3.8: Onda plana linearmente polarizada. [28]

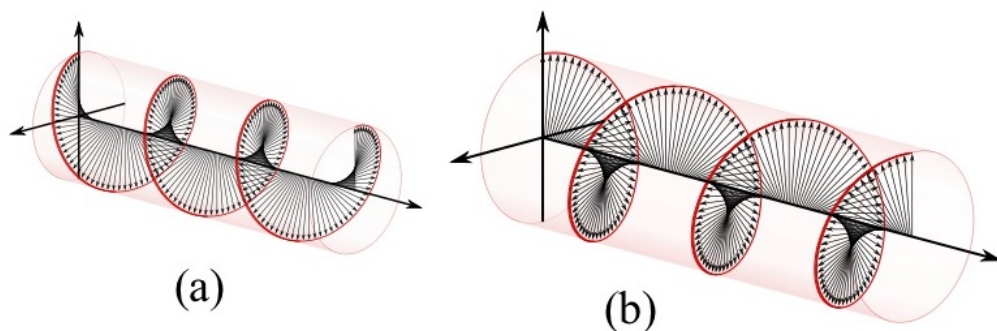


Figura 3.9: Onda plana circularmente polarizada (a) à esquerda e (b) à direita.

Supondo que  $\epsilon$  seja um inteiro ímpar múltiplo de  $\pm\pi$ , então as duas ondas estarão defasadas em  $180^\circ$  e o sinal na eq. (3.31) será negativo. A onda resultante será linearmente polarizada da mesma maneira, porém terá seu plano de oscilação invertido (Fig. 3.6(b)) quando comparado com a situação anterior. [28] Se  $\epsilon = \pm\pi/2$  a onda estará polarizada

circularmente, com polarizações  $\sigma^+$  (à esquerda) conforme Fig. 3.9(a) ou  $\sigma^-$  (à direita), conforme Fig. 3.9(b). Se as amplitudes dos campos elétricos  $\vec{E}_x(z, t)$  e  $\vec{E}_y(z, t)$  são diferentes, as ondas da Fig. 3.9 terão polarizações elípticas à esquerda e à direita respectivamente.

# Referências Bibliográficas

- [1] S. Blakemore, J. Appl. Phys. **53**, R123 (1982).
- [2] J. R. Chelikowsky and M. L. Cohen, Phys. Rev. B **14**, 556 (1976).
- [3] Y. Lacroix, C. A. Tran, S. P. Watkins, and M. L. W. Thewalt, J. Appl. Phys. **80**, 6416 (1996).
- [4] N. Nakwaski, Physica B **210**, 1 (1995) e suas referências.
- [5] I. Vurgftamn, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, J. Appl. Phys. **89**, 5816, (2001).
- [6] M. Fox, Optical Properties of solids, *Oxford master series in condensed matter physics*, New York (2001).
- [7] A. Fracaro and H. Iwamoto, Comunicação Interna - Universidade Estadual de Londrina (2005).
- [8] L. Pauling and E. Wilson, *Introduction to Quantum Mechanics*, McGraw-Hill, New York (1935).
- [9] A. J. Chiquito, Revista Brasileira de Ensino de Física **23**, 159 (2001).
- [10] I. J. Pankove, *Optical Processes in Semiconductors*, Dover Publications, Inc, New York, 1975.
- [11] D. S. Chemla, Phys. Tod. **38**, 35 (1985).
- [12] M. Paillard, X. Marie, E. Vanelle, T. Amand, V. K. Kavelich, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov, and V. M. Ustinov, Appl. Phys. Lett. **76**, 76 (2000).
- [13] G. A. Narvaez, G. Bester, and A. Zunger, Phys. Rev. B **72**, 245318 (2005).



- [14] T. Bretagon, P. Lefebvre, P. Valvin, R. Bardoux, T. Guillet, T. Taliercio, B. Gil, N. Grandjean, F. Semond, B. Damilano, A. Dussaigne, and J. Massies, *Phys. Rev. B* **73**, 113304 (2006).
- [15] P. S. Zory Jr., *Quantum Well Lasers*, Academic Press Inc., (1993).
- [16] M. Grundmann, N. N. Ledentov, O. Stier, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, and Zh. I. Alferov, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 979 (1996).
- [17] J. R. Madureira, M. P. F. de Godoy, M. J. S. P. Brasil, and F. Iikawa, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 212105 (2007).
- [18] P. F. Gomes, Tese de doutorado, Propriedades ópticas de pontos quânticos semicondutores tipo II, Universidade Estadual de Campinas (2009).
- [19] L. Viña, S. Logothetidis, and M. Cardona, *Phys. Rev. B* **30**, 1979 (1984).
- [20] R. Pässler, *Phys. Status Solid. B* **200**, 155 (1997).
- [21] A. Manoogian and J. C. Wolley, *Can. J. Phys.* **62**, 285 (1984).
- [22] J. P. Walter, R. R. L. Zucca, M. L. Cohen, and Y. R. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 102 (1970).
- [23] Z. Hang, D. Yan, F. H. Pollak, G. D. Pettit, and J. M. Woodall, *Phys. Rev. B* **44**, 10546 (1991).
- [24] M. Gurioli, A. Vinattieri, M. Zamfirescu, M. Colocci, S. Sanguinetti, and R. Nötzel, *Phys. Rev. B* **73**, 085302 (2006).
- [25] S. Mackovski, G. Prechtl, W. Heiss, F. V. Kyrichenko, G. Karezewski, and J. Kossut, *Phys. Rev. B* **69** 205325 (2004).
- [26] A. V. Maleev, I. V. Ignatiev, Ilya Ya. Gerlovin, I. E. Kozin, and Y. Masumoto, *Phys. Rev. B* **71**, 195323 (2005).
- [27] M. Sugisaki, H.-W. Ren, K. Nishi, and Y. Masumoto, *J. J. ? of Appl. Phys.* **41**, 958 (2002).
- [28] E. Hecht, *Optics*, Addison Wesley, Forth Edition (2002); S. C. Zilio, *Óptica Moderna Fundamentos e Aplicações*, IFSC-USP.

# Capítulo 4

## Efeito Aharonov-Bohm

Em situações apropriadas, os efeitos do campo magnético no par elétron-buraco contido em nanoestruturas semicondutoras podem induzir o chamado efeito Aharonov-Bohm. Recentemente, experimentos em óptica nessas estruturas quânticas demonstraram a existência de tal efeito para éxcitons carregados (complexos excitônicos: trions positivos e/ou negativos) ou éxcitons contidos em estruturas do tipo II. Nesse capítulo será apresentado uma revisão dos trabalhos mais importantes que demonstraram a existência desse efeito em éxcitons contidos em pontos e anéis quânticos. Para finalizar, será discutida a plausibilidade do efeito Aharonov-Bohm em partículas neutras.

### 4.1 Momento Angular

A Figura 4.1(a) mostra uma partícula carregada em movimento dentro de uma geometria circular, cujas características são descritas pelo momento angular  $\vec{l}$ :

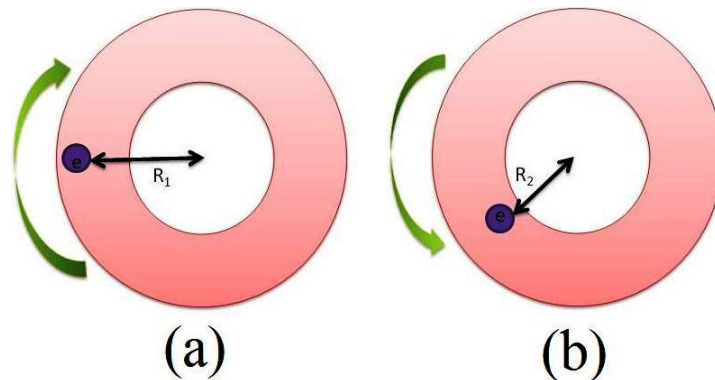


Figura 4.1: (a) Partícula em movimento circular em volta de um anel. (b) Após a aplicação de um campo magnético, a partícula tem seu raio orbital reduzido.

$$\vec{l} = \vec{r} \times \vec{p}, \quad (4.1)$$

em que  $\vec{r}$  é a distância entre a partícula e um ponto de referência e  $\vec{p}$  é o momento linear. De acordo com a Física Clássica, quando uma partícula com carga  $q$  está em movimento circular sob a ação de um campo magnético  $B$ , o raio  $r$  da órbita (Fig. 4.1(b)) muda de acordo com a equação:

$$r = \frac{mv}{qB}. \quad (4.2)$$

Assim, do ponto de vista clássico, quando a intensidade do campo magnético é aumentada, o raio orbital da partícula diminui até, em princípio, atingir o limite físico do anel. No entanto, a descrição completa de uma partícula em movimento circular em um anel é feita através da Mecânica Quântica, [1] onde é possível demonstrar, por exemplo, que uma partícula carregada tem seu momento angular alterado quando o campo magnético é aumentado. Nesse modelo é considerado que elétrons são confinados no anel sob a ação de um potencial parabólico  $\alpha(1 - r/r_0)^2$ , onde  $\alpha$  controla as dimensões dos anéis, sendo inversamente proporcional a sua largura. O Hamiltoniano para uma partícula confinada em um anel sujeito a um campo magnético perpendicular pode ser escrita como:

$$H = \frac{1}{2m^*} \left[ \vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A} \right]^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 (r - r_0)^2, \quad (4.3)$$

onde o primeiro termo do lado direito da eq. 4.3 é a energia cinética e o segundo termo é a energia potencial,  $m^*$  é a massa efetiva dos portadores,  $\vec{p}$  é o momento linear e  $\omega_0$  é a frequência do confinamento radial. O potencial vetor  $\vec{A}$  é descrito em termos de uma simetria de Gauge  $\vec{A} = \frac{1}{2} \vec{B}(x, -y, 0)$ . Em coordenadas polares a equação de Schrödinger pode ser escrita como:

$$\begin{aligned} & -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[ \frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \theta^2} \right] - \frac{ieB\hbar}{2m^*c} \frac{\partial \psi}{\partial \theta} \\ & + \left[ \frac{e^2 B^2 r^2}{8m^*c^2} + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 (r - r_0)^2 - E \right] \psi = 0. \end{aligned} \quad (4.4)$$

Introduzindo o termo:

$$\psi = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} f(r) e^{-il\theta}, \quad (4.5)$$

substituindo na equação 4.4 e fazendo a separação de variáveis:

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[ \frac{d^2 f}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{df}{dr} + \frac{l^2}{r^2} f \right] - \frac{eB\hbar}{2m^*c} lf + \left[ \frac{e^2 B^2 r^2}{8m^*c^2} + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 (r - r_0)^2 - E \right] f = 0. \quad (4.6)$$

Agora é conveniente introduzir os seguintes termos para simplificar os cálculos:

$$\eta = \frac{BeS}{hc}, \alpha = \frac{\omega_0 m^* S}{h}, \quad (4.7)$$

onde  $S$  é a área do anel dada por  $S = \pi r^2$ . Logo, é possível reescrever a eq. (4.6) como:

$$\begin{aligned}\frac{eB\hbar}{2m^*c} &= \frac{\hbar^2}{2m^*r_0^2}2\eta \\ \frac{e^2B^2r^2}{8m^*c^2} &= \frac{\hbar^2}{2m^*r_0^2}\eta^2 \left[ \frac{r}{r_0} \right]^2 \\ \frac{1}{2}m^*\omega_0^2(r - r_0)^2 &= \frac{\hbar^2}{2m^*r_0^2}4\alpha^2 \left[ \frac{r}{r_0} - 1 \right]^2 \\ E &= \frac{\hbar^2}{2m^*r_0^2} \frac{2m^*\pi S}{h^2}4\varepsilon.\end{aligned}$$

Também é conveniente introduzirmos os seguintes resultados:

- Escrevendo o raio do anel como:  $R = (r_0/10^{-9})m$ ;
- Tomando a energia em unidades de  $meV$ . Em termos do raio a energia poderá ser multiplicada pelo termo  $(m_e/m^*)1/(152,4R^2)$ , assim, a energia de confinamento toma a forma dada por  $\hbar\omega_0 = \alpha m_e/(152,4m^*R^2)$ ;
- Para se obter o campo magnético em Tesla é necessário multiplicar  $\eta$  por  $1/(1316R^2)$ .

Se as quantidades adimensionais

$$x = \frac{r}{r_0}, \varepsilon = \frac{2m^*\pi S}{h^2}E \quad (4.8)$$

forem substituídas na eq. (4.6), encontraremos:

$$f'' + \frac{1}{x}f' + \left[ 4\varepsilon + 2\eta l - 4\alpha^2 - (\eta^2 + 4\alpha^2)x^2 + 8\alpha^2x - \frac{l^2}{x^2} \right] f = 0. \quad (4.9)$$

Considerando o caso em que o elétron esteja confinado em um anel unidimensional (movimento orbital sobre um fio), isto é,  $x = 1$ , e a equação anterior toma a forma:

$$[4\varepsilon + 2\eta l - 4\alpha^2 - (\eta^2 + 4\alpha^2) + 8\alpha^2 - l^2]f = 0, \quad (4.10)$$

cuja solução é: [2, 3, 4, 5]

$$\varepsilon = \frac{1}{4}(\eta - l)^2 \quad (4.11)$$

ou

$$E = \frac{\hbar^2}{2m^*R^2} \left[ l - \frac{\Phi}{\Phi_0} \right]^2. \quad (4.12)$$

Portanto, a equação representa os níveis de energia de uma partícula confinada em um anel de dimensões finitas sob um campo magnético, onde  $l$  é o momento angular,

$\Phi$  é o fluxo magnético entre as trajetórias do par elétron-buraco dada por  $\Phi = \pi R^2 B$  e  $\Phi_0 = hc/|e|$  é o fluxo magnético quântico. Então, de acordo com a Física Clássica apresentada na Figura 4.1, o único efeito observado quando a magnitude do campo magnético é aumentada seria a redução do raio orbital da partícula, enquanto que de acordo com a eq. (4.12) determinada por Mecânica Quântica, ao aumentarmos a intensidade do campo magnético ocorrem também variações no momento angular da partícula. [1]

Em 2001 A. Lorke et. al. (Ref. [6]) empregaram a técnica de espectroscopia capacitância-voltagem como função do campo magnético para estudar o comportamento de elétrons na banda de condução de anéis quânticos de InAs. A Figura 4.2(a) mostra a energia dos elétrons como função do campo magnético aplicado de acordo com a equação (4.12). Os resultados mostram que com o aumento do campo magnético, existem oscilações no momento angular do estado fundamental dos elétrons a partir de  $l = 0$  para  $l = \pm 1, \pm 2, \pm 3...$

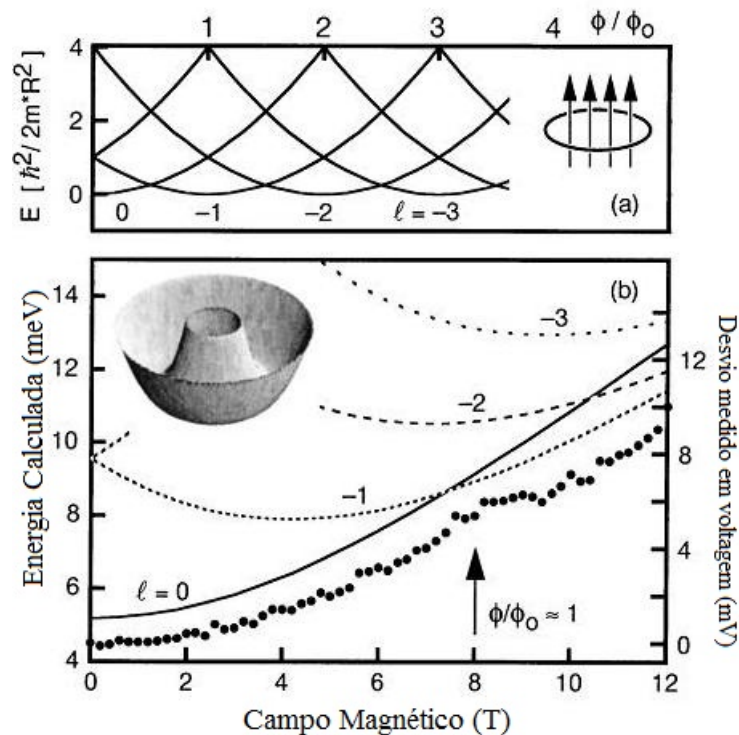


Figura 4.2: (a) Níveis de energia de um elétron confinado em um anel quântico como função do fluxo magnético. (b) Desvio diamagnético dos níveis de energia. [6]

A Figura 4.2(b) mostra os resultados experimentais da energia dos elétrons contidos nos anéis. Em torno de 8 T existe uma variação do momento angular de  $l = 0$  para  $l = -1$ . Linhas sólidas e pontilhadas são os ajustes feitos pela eq. (4.12), representando a

dispersão do campo magnético dos níveis de energia. Portanto, pode ser observada uma boa concordância entre os resultados experimentais e os previstos pelo modelo teórico quântico quando um campo magnético é aplicado, com as variações periódicas do momento angular.

## 4.2 Efeito Aharonov-Bohm

A Figura 4.3(a) mostra o experimento de difração em fenda dupla, onde um feixe de elétrons coerente é separado em duas partes e gerando um padrão de interferência em uma tela colocada a certa distância das fendas. O resultado mostra claramente o comportamento ondulatório das partículas quânticas. Uma outra possibilidade para realizarmos este experimento é adicionar um solenóide atrás das fendas para gerar um campo magnético. Esse campo deve ser extremamente concentrado dentro do solenóide de tal maneira que não ocorra nenhuma interferência com os caminhos percorridos pelos elétrons. De um ponto de vista clássico, esperar-se-ia que nada ocorresse com o padrão de interferência, uma vez que não há interação entre o campo magnético e a trajetória dos elétrons. Entretanto, como mostrado na Figura 4.3(b), quando o campo magnético é aplicado, o padrão de interferência sofre um desvio quando comparado com a situação de campo zero, e com a separação entre os padrões sendo proporcional ao fluxo magnético entre as fendas.

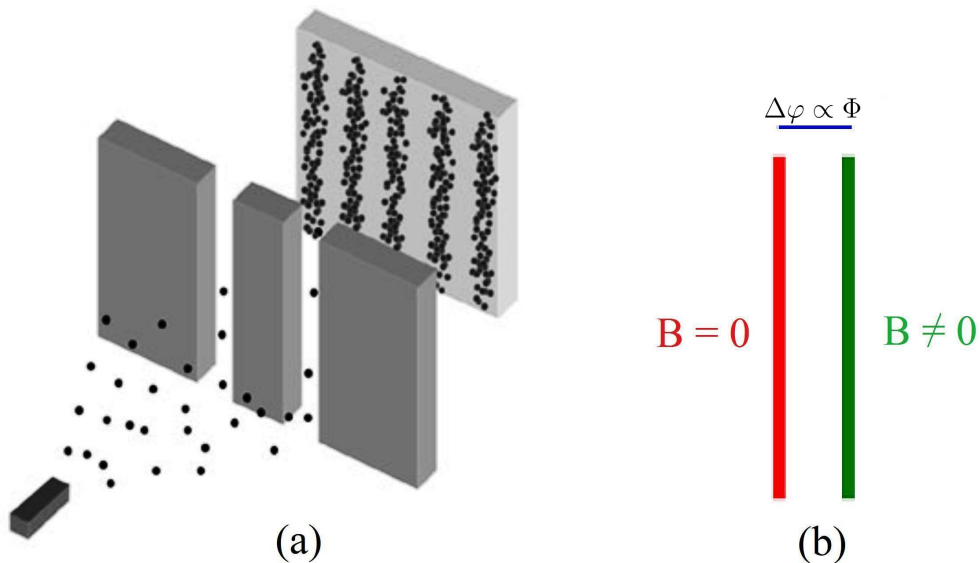


Figura 4.3: (a) Experiência da fenda dupla para elétrons. (b) Um campo magnético aplicado, mesmo sendo nulo na trajetória dos elétrons provoca um desvio na fase  $\Delta\varphi$  do padrão de interferência proporcional ao fluxo magnético  $\Phi$ .

Campo magnético vêm sendo empregado em uma grande gama de experimentos por séculos. Em 1845, Ernst Neumann introduziu o conceito de potencial vetor ( $\vec{A}$ ) associado ao campo magnético enquanto estudava a indução magnética em um circuito devido ao movimento relativo de ímãs. Outros físicos, como Kirchhoff e Maxwell, também usaram esse vetor em seus modelos, e finalmente, Paul Dirac tentou determinar um sentido físico para o potencial vetor através da predição da existência de monopolos magnéticos.

Em 1959, Aharonov e Bohm usaram o conceito do potencial vetor associado ao campo magnético através da equação  $\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$  para explicar os resultados obtidos na experiência da fenda dupla como um fenômeno de interferência quântica, conhecido atualmente como o *Efeito Aharonov-Bohm* (EAB). [7] Nesse trabalho foi demonstrado pela primeira vez a importância e o significado físico do potencial vetor e do potencial escalar  $\phi$ .

De acordo com o experimento da dupla fenda, a corrente elétrica através do solenóide gera um fluxo magnético dado pela seguinte equação:

$$\Phi = \int_S \vec{B} \cdot d\vec{s} = \oint_C \vec{A} \cdot d\vec{l}, \quad (4.13)$$

em que  $C$  é um circuito envolvendo o solenóide e definindo uma área  $S$ . Como o valor do campo magnético  $\vec{B}$  é desprezível em regiões externas ao solenóide finito (exatamente nulo para solenóides infinitos), o potencial vetor  $\vec{A}$  é escolhido de tal maneira que irá satisfazer a equação anterior, permanecendo finito em alguns pontos do circuito  $C$ , qualquer que seja o Gauge escolhido, isto é,  $\vec{A}' = \vec{A} + \vec{\nabla}\Psi$ , onde  $\Psi$  é uma função escalar arbitrária. Essa suposição permite que o fluxo magnético  $\Phi$  seja invariante. Por outro lado, se o campo magnético é zero na região dos elétrons, a força de Lorentz sobre eles será também nula. Assim, a única explicação possível para o desvio observado no padrão de interferência com o campo magnético é através da interação entre o potencial vetor associado ao campo magnético e as trajetórias dos elétrons.

De fato, esse conceito determina um novo sentido ao potencial vetor, que até então era apenas um artifício matemático. Aharonov e Bohm fizeram uso da não-localidade da Mecânica Quântica para demonstrar que a ação do potencial vetor sobre os elétrons ocorre de maneira instantânea. Os resultados dessa idéia motivaram na época um número expressivo de trabalhos, incluindo os desenvolvidos por aqueles autores que consideravam o efeito como local. [8, 9, 10, 11]

Considerando a equação de Schrödinger para um elétron na presença de um potencial eletromagnético  $\Phi$  descrito em termos do potencial vetor  $\vec{A}$ , onde ambos são independentes

do tempo:

$$\frac{1}{2m^*}(-i\hbar\nabla - e\vec{A})^2\psi + V\psi = E\psi, \quad (4.14)$$

e sendo  $V = e\Phi$ . Na região onde o campo magnético é zero, a solução da equação anterior é:

$$\psi = \psi^0(x) \exp \left[ \frac{ie}{\hbar} \int^{S(x)} \vec{A}(x') \cdot d\vec{s}' \right], \quad (4.15)$$

onde  $\psi^0(x)$  satisfaz a equação de Schrödinger com o mesmo valor de  $\Phi$ , mas com  $\vec{A}(x) = 0$ . A integral na equação (4.15) pode ser ao longo de qualquer trajetória, desde que o limite seja o ponto  $S(x)$  e  $\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A} = 0$  ao longo da integral, o que é equivalente à seguinte mudança:

$$\vec{k} \rightarrow \vec{k} - \frac{e}{\hbar}\vec{A}. \quad (4.16)$$

Usando agora o formalismo da função de onda do elétron livre em termos de  $\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})$ , essa solução é usada para provar que a eq. (4.15) satisfaz eq. (4.14):

$$(-i\hbar\nabla - e\vec{A})\psi = \exp \left[ \frac{ie}{\hbar} \int^{S(x)} \vec{A}(x') \cdot d\vec{s}' \right] \left[ (-i\hbar\nabla - e\vec{A}(x))\psi^0 + \psi^0(-i\hbar) \left( \frac{ie}{\hbar} \vec{A}(x) \right) \right]$$

ou

$$(-i\hbar\nabla - e\vec{A})\psi = \exp \left[ \frac{ie}{\hbar} \int^{S(x)} \vec{A}(x') \cdot d\vec{s}' \right] (-i\hbar\nabla\psi^0). \quad (4.17)$$

Observe que o primeiro termo entre parênteses na eq. (4.14) tem uma dependência quadrática. Logo, calculando esse termo baseado no resultado anterior:

$$(-i\hbar\nabla - e\vec{A}(x))^2\psi = \exp \left[ \frac{ie}{\hbar} \int^{S(x)} \vec{A}(x') \cdot d\vec{s}' \right] (-\hbar^2\nabla^2\psi^0). \quad (4.18)$$

Nesse sentido,  $\psi(x)$  satisfaz a equação de Schrödinger com  $\vec{A} \neq 0$ , se  $\psi^0(x)$  satisfizer a equação com  $\vec{A} = 0$ , mas com o mesmo potencial  $V(x)$ .

Considerando agora o experimento da fenda dupla descrito na Fig. 4.3, com um campo magnético aplicado entre as fendas pelas quais os elétrons passam, os dois feixes de elétrons separados pelas fendas irão recombinar e formar um padrão de interferência na tela, cujas funções de onda interferem entre si e devem manter a coerência da fase, assim:

$$\psi(x) = \psi_1^0 \exp \left[ \frac{ie}{\hbar} \int_{fenda1}^{S(x)} \vec{A}(x') \cdot d\vec{s}' \right] + \psi_2^0 \exp \left[ \frac{ie}{\hbar} \int_{fenda2}^{S(x)} \vec{A}(x') \cdot d\vec{s}' \right], \quad (4.19)$$

em que o primeiro termo do lado direito refere-se ao feixe passando pela primeira fenda e o segundo, ao feixe viajando através da outra fenda, respectivamente.



A intensidade do padrão de interferência, ou densidade de elétrons na tela é determinada pela seguinte equação:

$$I(x) = [\psi_1(x) + \psi_2(x)][\psi_1(x) + \psi_2(x)]^*. \quad (4.20)$$

Se o feixe inicial de elétrons foi dividido igualmente entre as duas fendas, ou seja, ambas funções de onda são iguais, a intensidade produzida após a interferência será descrita por:

$$\begin{aligned} I(x) &\propto \cos \left[ \frac{e}{\hbar} \oint \vec{A} \cdot d\vec{s} \right] \\ I(x) &\propto \cos \left[ \frac{e}{\hbar} \int_{area} \vec{B} \cdot \vec{n} da \right] \\ I(x) &\propto \cos \frac{e\Phi}{\hbar}. \end{aligned} \quad (4.21)$$

A quantidade  $\Phi$  na última equação é o fluxo magnético através do caminho dos elétrons. Os resultados dessa análise mostram que mesmo para elétrons que passam pela região onde o campo magnético é zero, ainda assim estarão sob a influência do potencial vetor, sendo que esse resultado só é possível se o fluxo magnético for incluído na equação de Schrödinger. Assim, Aharonov e Bohm fizeram uso do potencial vetor para mostrar que esse efeito trata-se exclusivamente de uma interferência quântica. [7, 12, 13]

O experimento que demonstrou a prova da existência do efeito Aharonov-Bohm foi realizada em 1986 por Tonomura et. al. [14] Nesse experimento eles utilizaram um toróide ferromagnético coberto por um material supercondutor e uma lâmina de cobre para confinar o campo magnético e as funções de ondas dos elétrons nos limites físicos do dispositivo, respectivamente. Esse sistema foi usado para mostrar que uma partícula carregada em movimento circular através de um campo magnético estaria sob a influência do potencial vetor associado a esse campo. Após adquirir o movimento circular sob os efeitos do campo, a partícula tem sua fase, a qual é proporcional ao fluxo magnético, restrita dentro de um caminho fechado. Portanto, todos os fenômenos observáveis dependerão do fluxo magnético através da região excluída, mostrando ser uma função periódica com um período  $\Phi_0 = hc/e$ . [15, 16] Essa característica oscilatória certamente é a principal impressão digital do efeito Aharonov-Bohm.

### 4.3 Efeito Aharonov-Bohm em Nanoestruturas Semicondutoras

Após o experimento realizado em 1986 usando um anel quântico supercondutor, outras possibilidades surgiram para a observação do EAB, dentre eles, investigações utilizando técnicas de transportes em materiais supercondutores e metais. [15, 16, 17, 18] Durante muitos anos a comunidade científica procurou por evidências do efeito AB em experimentos ópticos, cuja primeira observação foi feita em materiais semicondutores em 2003 por Bayer e colaboradores. [19] Nesse trabalho os autores estudaram a emissão óptica a partir de um único anel quântico de  $In_{0,10}Ga_{0,90}As$  sob a aplicação de um campo magnético externo. A Figura 4.4(a) mostra a imagem de um anel quântico construído pela técnica de litografia, e os espectros de micromagnetofotoluminescência ( $\mu MPL$ ) são mostrados na Figura 4.4(b). Existem duas bandas nesses espectros: a primeira no lado de alta energia é devido à recombinação de éxcitons neutros ( $X^0$ ), enquanto que a banda no lado de menor energia é associada a éxcitons carregados ( $X^-$ : dois elétrons ligados a um buraco). A

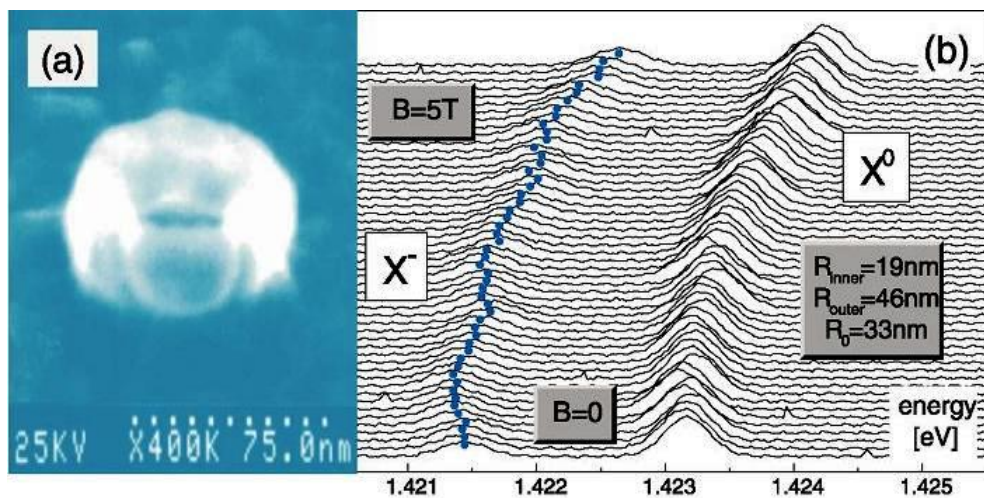


Figura 4.4: (a) Micrografia eletrônica de um único anel quântico com diâmetro externo de 46 nm e interno de 19 nm. (b) Espectros de  $\mu MPL$  circularmente polarizados para diferentes valores de campos magnéticos. [19]

Figura 4.5(a) apresenta os resultados da posição do pico dos espectros de  $\mu MPL$  como função do campo magnético aplicado. Para melhor resolução, os resultados são plotados usando pontos coloridos. Um pequeno desvio para altas energias, devido ao efeito diamagnético, é observado com o aumento do campo magnético para os éxcitons neutros. Nesse caso, não existe evidência das oscilações de Aharonov-Bohm. Por outro lado, éxcitons

carregados  $X^-$  apresentam claramente tais oscilações como função do campo magnético aplicado, e que foram associadas ao efeito Aharonov-Bohm pelos autores desse trabalho. A energia do fóton é igual à diferença entre a energia do éxciton carregado e do elétron nos estados inicial e final do decaimento:  $\hbar\omega = E(X^-) - E(e^-)$ . Como estes estados são

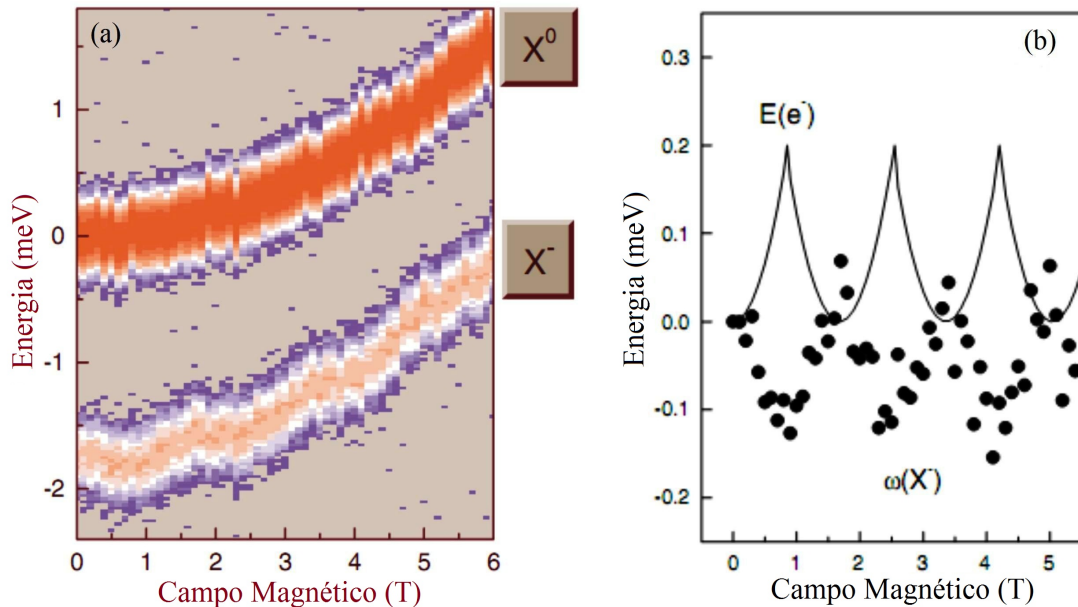


Figura 4.5: (a) Posição do pico dos espectros de  $\mu\text{MPL}$  versus campo magnético. (b) Energia do fóton após a subtração do desvio diamagnético em  $B^2$  (círculos cheios). Linhas sólidas mostram a energia dos elétrons. [19]

oriundos de cargas negativas, então espera-se que ambos apresentem um comportamento oscilatório quando a intensidade do campo magnético for aumentada. Na Figura 4.5(b) é plotada a energia de  $X^-$  em função do campo magnético após a subtração do ajuste dos dados usando uma forma quadrática (a linha sólida é a energia calculada do elétron). Feito isso, claras oscilações surgem com período de 1,7 T. Portanto, esse trabalho demonstrou que as oscilações podem ser observadas quando existe a interação entre partículas carregadas e o potencial vetor. Do contrário, para éxcitons neutros a observação desse efeito não é trivial, uma vez que não se espera a existência de interação entre o campo magnético ou o potencial vetor e uma partícula sem carga elétrica.

No trabalho apresentado acima, os autores reportaram o efeito AB em éxcitons carregados através da posição do pico de magnetofotoluminescência como função do campo magnético aplicado. Em 2004, Ribeiro e colaboradores também observaram as oscilações AB em pontos quânticos de InP (tipo-II) subtraindo os efeitos diamagnéticos da posição do pico de fotoluminescência em função do campo magnético. [20] Mais recentemente,

Sellers et. al. [21] demonstraram a existência das oscilações AB tanto na posição do pico como na intensidade integrada dos espectros de fotoluminescência. Nesse trabalho foi investigada uma amostra de pontos quânticos do tipo-II de ZnTe/ZnSe onde o buraco está confinado dentro do ponto quântico enquanto que o elétron está confinado na região da barreira. A interação Coulombiana cria um par ligado que descreve uma trajetória circular em volta do ponto quântico (veja *inset* da Figura 4.6). Devido a separação radial, elétron e buraco formam um dipolo elétrico rotacionando em uma geometria anelar, onde os raios das duas partículas são distintos devido às diferenças nas massas efetivas. [22] Nesse caso, um momento de dipolo surge na estrutura de potencial, sendo uma barreira para elétrons e um poço quântico para buracos. Além disso, nesse tipo de potencial, o par elétron-buraco é forçado a assumir um alinhamento lateral além do confinamento do buraco, criando a situação apropriada para a observação do efeito Aharonov-Bohm.

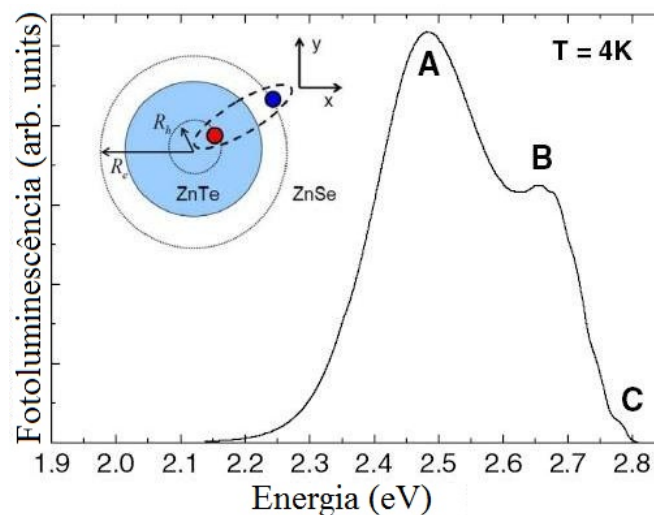


Figura 4.6: Espectro de fotoluminescência de pontos quânticos de ZnTe/ZnSe a 4 K. O *inset* é uma representação esquemática do movimento orbital das duas partículas carregadas. [21]

A Figura 4.6 mostra um espectro de fotoluminescência a 4 K dos pontos quânticos. O pico principal no lado de menor energia (A) é associado à recombinação excitônica dos pontos quânticos de ZnSeTe. O ombro (B) é o resultado da recombinação de éxcitons ligados a pares de átomos de telúrio, os quais substituem isoeletronicamente o selênio. [23, 24, 25] O ombro (C) no lado de maior energia é relacionado a éxcitons livres na matriz de ZnTeSe. [23]

O efeito do campo magnético sobre a posição do pico de energia (A) associado aos pontos quânticos de ZnSeTe é mostrado na Figura 4.7(a). Três oscilações são observadas

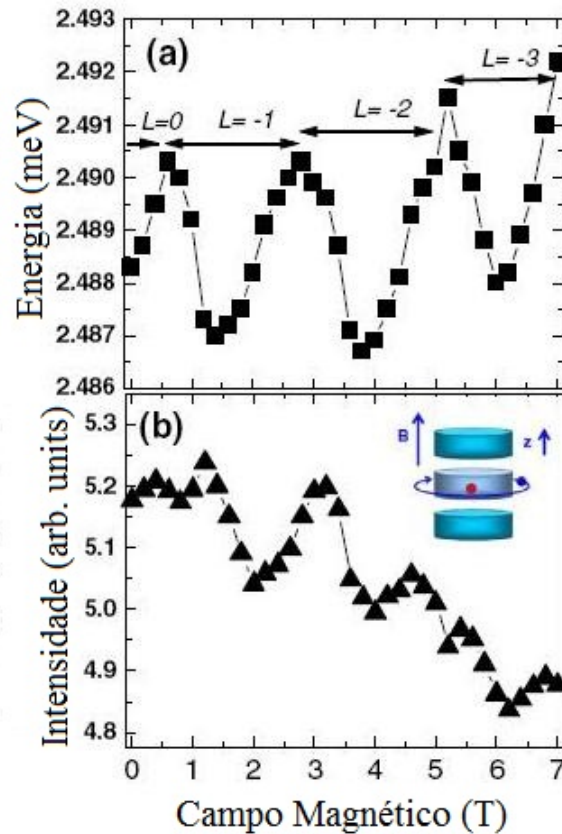


Figura 4.7: (a) Energia do pico e (b) intensidade integrada dos espectros de fotoluminescência de pontos quânticos de ZnSeTe em função do campo magnético aplicado. [21]

claramente e estão relacionadas com as trocas de momento angular em  $L = 0, -1, -2, -3$ . A Figura 4.7(b) apresenta os efeitos do campo magnético perpendicular a um anel na intensidade integrada, mostrando claramente oscilações de Aharonov-Bohm. Os resultados apresentados foram preditos e explicados parcialmente em um trabalho anterior de Govorov e colaboradores, [26] que será discutido na próxima seção. Em resumo, esse trabalho demonstrou que a correlação do par elétron-buraco leva a variações do momento angular quando a magnitude do campo magnético é aumentada. No entanto, embora esta correlação seja de fraca intensidade, ela ainda reflete em oscilações na intensidade integrada e, de acordo com os autores desse trabalho, sua real origem permanecia como um ponto não completamente explicado.

## 4.4 Efeito Aharonov-Bohm em Éxcitons (Partículas Neutros(as))

Como o éxciton é uma partícula com carga líquida zero, não é esperada a observação das oscilações AB, exceto se as partículas se propagassem coerentemente em diferentes trajetórias e, de alguma forma, com um momento de dipolo diferente de zero. [27] Esse caso já foi observado em pontos quânticos do tipo-II onde o par elétron-buraco é separado espacialmente, assemelhando-se ao comportamento de uma partícula carregada, como foi descrito anteriormente. No entanto, em sistemas do tipo-I, como anéis quânticos de In(Ga)As onde elétron e buraco estão confinados dentro do anel, a observação do efeito Aharonov-Bohm permanecia como uma questão em aberto, embora muitos trabalhos teóricos discutiram a possibilidade de sua existência. [26, 28, 29, 30] Em especial, em 2002 Govorov et. al. [26] publicaram um importante trabalho mostrando as condições que poderiam levar a observação do EAB para partículas neutras, desde que elas fossem, de alguma forma, polarizadas espacialmente.

Em primeiro lugar, as oscilações do estado fundamental para éxcitons neutros foram inicialmente preditas como sendo desprezíveis devido à exponencialmente baixa amplitude de tunelamento elétron-buraco ou, ainda, desapareceriam para anéis de larguras finitas. [29, 30] Entretanto, a polarização no plano radial do éxciton em um anel real pode produzir uma forte modulação da força de oscilador sob um campo magnético aplicado, devido ao efeito AB. A Figura 4.8(a) mostra um elétron dentro de uma caixa em movimento circular sob a ação de um fluxo magnético. Considerando um sistema adiabático, após um ciclo completo o sistema retorna ao seu estado original e somente uma fase topológica é acumulada, sendo dada pelo fluxo quântico  $\frac{\Phi}{\Phi_0}$  e equivalente a fase da oscilação AB. O acúmulo de sucessivas fases é chamado de fase de Berry. A Figura 4.8(b) mostra uma situação similar àquela da Fig. 4.8(a), contendo agora um buraco além do elétron. Desde que exista alguma polarização do par ligado, após um ciclo completo as partículas obtêm uma fase topológica novamente, embora elas sejam diferentes, desde que elétrons e buracos possuam trajetórias diferentes. Isso levaria a uma fase relativa proporcional à intensidade do dipolo radial do par elétron-buraco. Essa diferença na fase é devida ao fluxo magnético ser diferente para os caminhos que as partículas circulam. Em uma primeira aproximação, a diferença na fase poderia ser observada na luminescência emitida

pela recombinação excitônica em experimentos de fotoluminescência. Assim, o desvio na fase acumulada seria proporcional à polarizabilidade do par elétron-buraco.

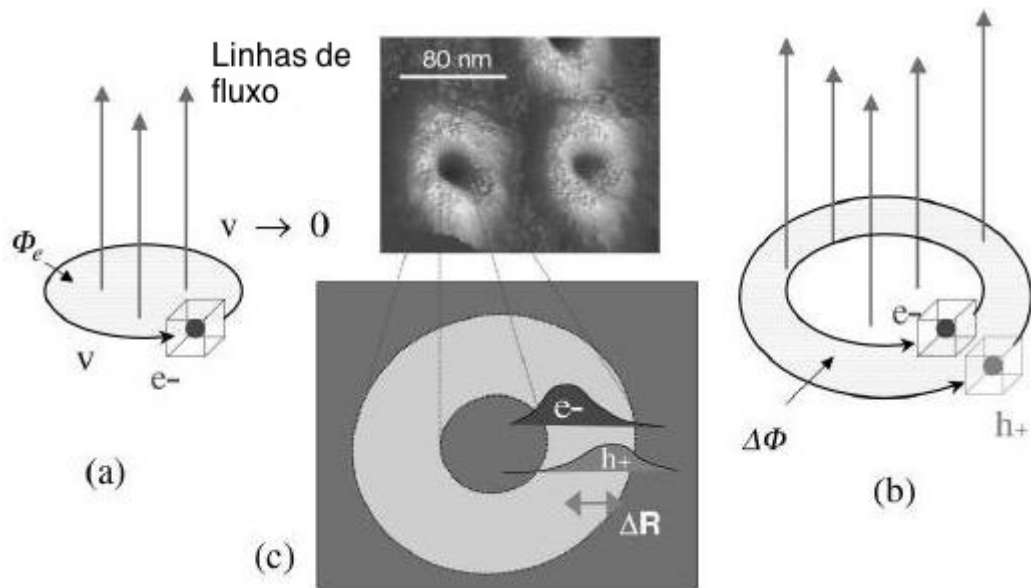


Figura 4.8: (a) Ilustração da fase de Berry para uma única partícula carregada e (b) para um éxciton. (c) Imagens de AFM de um anel quântico de InAs. Devido às diferenças nas massas efetivas, a rotação do elétron e buraco é polarizada na direção radial. [6, 26]

A questão resume-se então em como criar tais éxcitons polarizados. Em um anel quântico qualquer assimetria no potencial de confinamento pode causar a polarização dos éxcitons na direção radial, de forma que elétrons e buracos moveriam-se em trajetórias diferentes. De certa maneira, essa assimetria é esperada, uma vez que elétrons e buracos possuem diferentes massas efetivas, o que poderia levá-los a descreverem diferentes trajetórias.

A Figura 4.8(c) mostra uma imagem AFM de anéis de InAs crescidos sobre GaAs. Devido à pequena massa efetiva, elétrons tendem a tunelar do centro em direção dos dois limites físicos do anel, enquanto que buracos (massa maior) permaneceriam localizados próximo ao raio maior do anel, criando uma polarização excitônica. Essa hipótese é reforçada nestes anéis uma vez que a altura do anel em torno de 1 nm é muito menor do que o tamanho lateral. Assim, é possível assumir que elétrons e buracos movimentam-se somente no plano porque o confinamento na direção vertical (direção de crescimento) é muito forte em relação ao plano radial.

O movimento orbital do éxciton em torno do anel ou em pontos quânticos do tipo-II

é descrito pelo seguinte Hamiltoniano:

$$\hat{H} = \hat{T}_e + \hat{T}_h + U_e + U_h + U_C(|\vec{r}_e - \vec{r}_h|), \quad (4.22)$$

onde  $\vec{r}_{e(h)}$  são as coordenadas dos portadores no plano,  $\hat{T}_{e(h)}$  são as energias cinéticas na presença de um campo magnético normal,  $U_{e(h)}$  são as energias potenciais e  $U_C$  é o potencial Coulombiano de atração entre elétrons e buracos. Considerando que o confinamento é muito maior na direção azimutal do que na radial, então é possível separarmos as variáveis na função de onda excitônica:

$$\Psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = f_e(\rho_e) f_h(\rho_h) \psi(\theta_e, \theta_h), \quad (4.23)$$

onde  $\vec{r} = (\rho, \theta)$  e as funções de onda  $f_{e(h)}$  são fortemente localizadas próximas aos raios  $R_{e(h)}$ . O Hamiltoniano que descreve a função de onda  $\psi(\theta_e, \theta_h)$  é dada por:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{exc} = & -\frac{\hbar^2}{2m_e R_e^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta_e^2} - \frac{i\hbar\omega_e}{2} \frac{\partial}{\partial \theta_e} - \frac{\hbar^2}{2m_h R_h^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta_h^2} \\ & + \frac{i\hbar\omega_h}{2} \frac{\partial}{\partial \theta_h} + \frac{m_e \omega_e^2 R_e^2 + m_h \omega_h^2 R_h^2}{8} + u_C(|\theta_e - \theta_h|), \end{aligned} \quad (4.24)$$

onde  $\omega_{e(h)} = \frac{|e|B}{[m_{e(h)}c]}$  é a frequência ciclotrônica do elétron (buraco). Introduzindo as novas variáveis:  $\Delta\theta = \theta_e - \theta_h$  e  $\theta_0 = (a\theta_e + b\theta_h)/(a+b)$ , onde  $\theta_{e(h)}$  são as coordenadas angulares de cada partícula,  $a = m_e R_e^2$  e  $b = m_h R_h^2$ . O Hamiltoniano da eq. (4.24) pode ser decomposto nas partes que envolvem o movimento de translação do centro de massa do éxciton em volta do anel e o movimento interno:

$$\hat{H}_{ext} = \hat{H}_{rot}(\theta_0) + \hat{H}_{int}(\Delta\theta) \quad (4.25)$$

As autofunções são escritas na forma  $\psi(\theta_e, \theta_h) = \psi_0(\theta_0)\psi_1(\Delta\theta)$  e  $\hat{H}_{rot}$  para o confinamento ao longo da circunferência tem a forma:

$$\hat{H}_{rot}(\theta_0) = \epsilon_0 \left[ -i \frac{\partial}{\partial \theta_0} + \frac{\Phi_{\Delta R}}{\Phi_0} \right]^2, \quad (4.26)$$

onde  $\epsilon_0 = \hbar^2/(2R_0^2 M)$ ,  $R_0 = (R_e + R_h)/2$ ,  $M = (m_e R_e^2 + m_h R_h^2)/R_0^2$ ,  $\Delta R = R_e - R_h$  e  $\Phi_{\Delta R} = \pi(R_e^2 - R_h^2)B = 2\pi\Delta R R_0 B$  é o fluxo magnético através da área entre as trajetórias do elétron e do buraco, como é mostrado na Figura 4.8(b).

Esses resultados são particularmente importantes por serem relacionados diretamente com experimentos de fotoluminescência. Como foi descrito no capítulo 2, que será discutido com maiores detalhes no capítulo 5, durante o crescimento de pontos ou anéis



quânticos é bastante comum a presença de dois grupos dessas nanoestruturas com diferentes tamanhos (crescimento bimodal). Em anéis menores a quantização devido ao movimento cinético pode ser mais forte do que a interação devido à energia potencial do éxciton e esse cenário é basicamente descrito por uma única partícula, correspondendo ao limite onde  $R_{e,h} < a_0^*$ , sendo  $a_0$  o raio efetivo de Bohr no semiconductor do anel. Em anéis maiores, onde  $R_{e,h} > a_0^*$ , o movimento é fortemente correlacionado, ou seja, o centro de massa do par elétron-buraco move-se ao longo do anel.

Para anéis menores, elétron e buraco movem-se independentemente sendo a energia dada por:

$$E_{exc} = E_g + \frac{\hbar^2}{2m_e R_e^2} \left( L_e + \frac{\Phi_e}{\Phi_0} \right)^2 + \frac{\hbar^2}{2m_h R_h^2} \left( L_h + \frac{\Phi_h}{\Phi_0} \right)^2 \quad (4.27)$$

onde  $E_g$  é o *gap* de energia,  $L_e$  e  $L_h$  são os momentos angulares do elétron e do buraco, respectivamente. O fluxo magnético  $\Phi_{e(h)}$  descreve o acúmulo da fase na função de onda de cada partícula enquanto elas circulam em volta do anel. Para anéis de tamanho maiores onde o éxciton é fortemente correlacionado, a energia é determinada por:

$$E'_{exc} = E'_g + \frac{\hbar^2}{2m R_0^2} \left( L + \frac{\Delta\Phi}{\Phi_0} \right)^2 \quad (4.28)$$

onde  $L = L_e + L_h$  é o momento angular total do éxciton. As duas últimas equações mostram exatamente as diferenças entre partículas fraca e fortemente correlacionadas. No primeiro caso, note que o raio e o momento angular são independentes, enquanto que no segundo caso o momento angular e o raio são iguais.

As Figuras 4.9(a) e (c) mostram as diferenças de espectros magnéticos obtidos através das equações (4.27) e (4.28) como função do campo magnético para anéis de tamanhos menores e maiores, respectivamente. Nos dois casos a energia do éxciton aumenta com o aumento da intensidade do campo magnético e têm seus momentos angulares alterados para valores diferentes de zero. Para anéis pequenos, o estado fundamental com  $(L_e, L_h) = (0, 0)$  muda para estados com  $(L_e, L_h) = (0, +1), (-1, +1), (-1, +2)$ , etc, criando uma seqüência de diferentes momentos angulares para o estado fundamental com valores de 0, 1, 0, 1, etc. Para anéis grandes o momento angular muda com o aumento do campo magnético em valores positivos de  $L = 0, 1, 2, 3, \dots$

Em experimentos de espectroscopia, como fotoluminescência, o par elétron-buraco é excitado por uma fonte externa e onde, após um tempo específico, ocorre a recombinação com a emissão de um fóton. De acordo com as regras de seleção dentro da aproximação

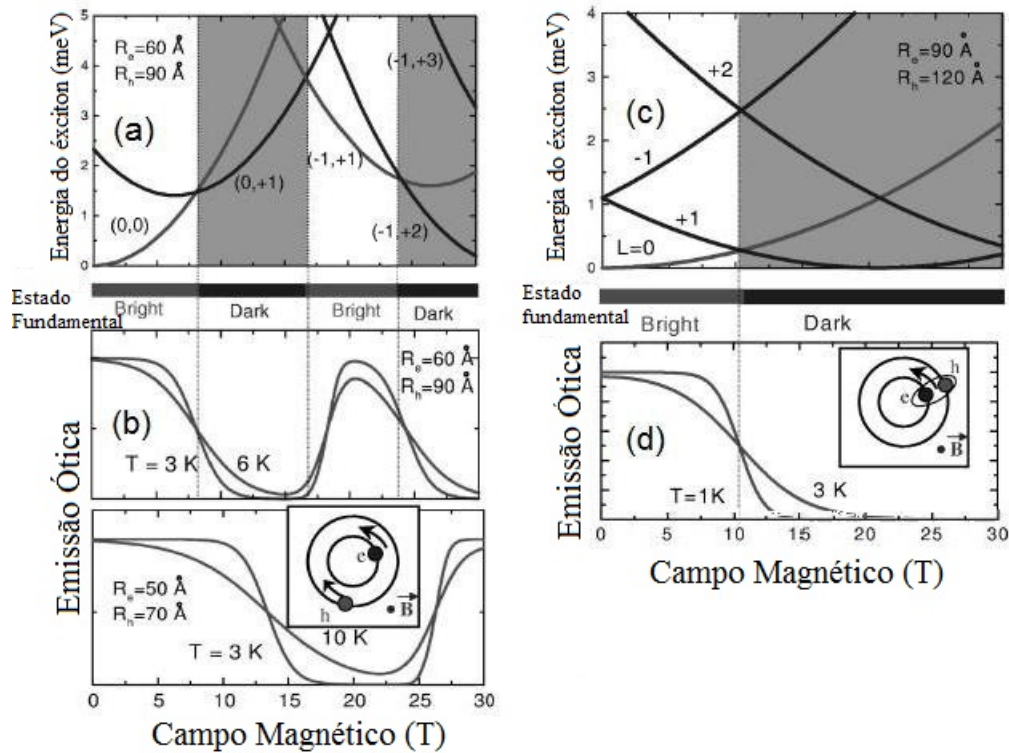


Figura 4.9: Energia do éxciton em função do campo magnético aplicado para (a) anéis menores e (c) anéis maiores. (b) e (d) mostram a dependência da intensidade da emissão excitônica para os dois tamanhos de anéis. Para os momentos angulares diferentes de zero surgem os chamados estados escuros. Com o aumento da temperatura os estados excitônicos excitados tornam-se acessíveis e a supressão é menos pronunciada e a transição óptica até mesmo com valores de momento angular diferentes de zero são permitidas. [26]

dipolo elétrico, somente éxcitons com momento angular zero podem emitir fótons (*bright excitons*). A presença de um campo magnético faz com que o éxciton adquira momentos angulares diferentes de zero, implicando em uma significativa mudança na intensidade de emissão dos anéis quânticos. O comportamento da emissão óptica como função do campo magnético é mostrado na Figura 4.9(b) para anéis quânticos pequenos e na Figura 4.9(d) para anéis maiores. Se a transição óptica para momentos angulares diferentes de zero é proibida, o tempo de vida do éxciton torna-se muito grande e o seu decaimento de dipolo que era permitido torna-se da mesma forma proibido. Os intervalos de energia onde essas transições não são permitidas são conhecidos como estados escuros (tradução livre do inglês *dark states*), os quais não podem ser acessados ópticamente.

A dependência da intensidade de emissão com o campo magnético tem uma relação direta com a interação Coulombiana do éxciton, que está relacionada diretamente com o tamanho do anel. Para anéis maiores essa interação é mais forte, uma vez que o intervalo

de campo magnético onde a intensidade da emissão óptica é um máximo é maior do que para anéis menores. Por outro lado, qualquer que seja o tamanho dos anéis, o intervalo de campo magnético onde é possível se encontrar estados escuros e acessíveis ópticamente tem suas origens no momento de dipolo ao longo da direção radial. Se o momento de dipolo é zero, então não haverá correlação entre elétron e buraco, e as oscilações na energia não são esperadas devido à variação de campo magnético. De acordo com esse modelo, se o momento de dipolo é zero, os raios orbitais dos elétrons e buracos seriam iguais, e o efeito Aharonov-Bohm seria cancelado.

Em resumo, para observar o efeito Aharonov-Bohm em partículas neutras deverá, de alguma forma, existir um momento de dipolo elétrico entre elétron e buraco, o qual poderia ser oriundo de uma assimetria espacial dos anéis quânticos. A intensidade e o período de tais oscilações é uma função das dimensões dos anéis, uma vez que a correlação entre elétrons e buracos depende do tamanho dessas nanoestruturas. [26]

Outro trabalho importante nesse sentido foi apresentado por Chakraborty and Pietilinen, [1] cujo resultado final também é descrito pela equação (4.12). Portanto, um número significativo de trabalhos versando sobre a plausibilidade do efeito AB em éxciton ou partículas neutras podem ser encontrados na literatura, assim como sobre a procura por observação experimental destas oscilações.

# Referências Bibliográficas

- [1] T. Chakraborty and P. Pietilinen, *Phys. Rev. B*, **50**, 8460 (1994).
- [2] Y. Imry, *Quantum Coherences in Mesoscopic Systems*, 221, Plenum, New York (1991).
- [3] M. Büttiker, Y. Imry, and R. Landauer, *Phys. Lett. A* **96**, 365 (1983).
- [4] D. Loss and P. Goldbart, *Phys. Rev. B*, **43**, 13762 (1991).
- [5] R. L. Schult, M. Stone, H. W. Wyld, and D. G. Ravenhall, *Superlatt. and Microstruct.* **11**, 73 (1992).
- [6] A. Lorke, R. Johannes Luyken, A. O. Govorov, J. P. Kotthaus, J. M. García, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2223, (2001).
- [7] Y. Aharonov and D. Bohm, *Phys. Rev.* **115**, 485 (1959).
- [8] R. G. Chambers, *Phys. Rev. Lett.* **5**, 3 (1960).
- [9] H. A. Fowler, L. Marton, J. A. Simpson, and J. A. Suddeth, *J. App. Phys.* **32**, 1153 (1961).
- [10] Wendell Hinkle Furry and Norman Foster Ramsey, *Phys. Rev.* **118**, 623 (1960).
- [11] H. E. Mitler, *Phys. Rev.* **124**, 940 (1961).
- [12] Y. Aharonov and D. Bohm, *Phys. Rev.* **123**, 1511 (1961).
- [13] J. Singh, *Electronic and optoelectronic properties of semiconductor structures*, Cambridge University Press (2003).
- [14] A. Tonomura, N. Osakabe, T. Matsuda, T. Kawasaki, J. Endo, S. Yano, and H. Yamada, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 792 (1986).

- [15] N. Byers and C. N. Yang, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 46 (1961).
- [16] F. Bloch, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1241 (1968).
- [17] R. A. Webb, S. Washburn, C. P. Umbach, and R. B. Laibowitz, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 2696 (1985); S. Washburn and R. A. Webb, *Rep. Prog. Phys.* **55**, 1311 (1992).
- [18] R. D. Parks and W. A. Little, *Phys. Rev.* **133**, A97 (1964).
- [19] M. Bayer, M. Korkusinski, P. Hawrylak, T. Gutbrod, M. Michel, and A. Forchel, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 186801-1 (2003).
- [20] E. Ribeiro, A. O. Govorov, W. Carvalho Jr., and G. Medeiros-Ribeiro, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 126402 (2004).
- [21] I. R. Sellers, V. R. Whiteside, I. L. Kuskovsky, A. O. Govorov, and B. D. McCombe, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 136405 (2008).
- [22] A. B. Kalameitsev, V. M. Kovalev, and A. O. Govorov, *JETP Lett.* **68**, 669 (1998); K. L. Janssens, B. Partoens, and F. M. Peeters, *Phys. Rev. B* **64**, 155324 (2001).
- [23] I. L. Kuskovsky, C. Tian, G. F. Neumark, J. E. Spanier, I. P. Herman, W.-C. Lin, S. P. Guo, and M. C. Tamargo, *Phys. Rev. B* **63**, 155205 (2001).
- [24] A. Muller, P. Bianucci, C. Piermarocchi, M. Fornari, I. C. Robin, R. André, and C. K. Shih, *Phys. Rev. B* **73**, 081306(R) (2006).
- [25] M. D. Pashley, K. W. Haberern, W. Friday, J. M. Woodall, and P. D. Kirchner, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2176 (1988).
- [26] A. O. Govorov, S. E. Ulloa, K. Karrai, and R. J. Warburton, *Phys. Rev. B* **66**, 081309(R) (2002).
- [27] Ta-Chun Lin, Chia-Hsien Lin, Hong-Shi Ling, Ying-Jhe Fu, Wen-Hao Chang, Sheng-Di Lin, and Chien-Ping Lee, *Phys. Rev. B* **80**, 081304(R) (2009).
- [28] R. A. Römer and M. E. Raikh, *Phys. Rev. B* **62**, 7045 (2000).
- [29] H. Hu, J. L. Zhu, D. J. Li, and J. J. Xiong, *Phys. Rev. B* **63** 195307 (2001).
- [30] J. Song and S. E. Ulloa, *Phys. Rev. B* **63** 125302 (2001).

# Capítulo 5

## Técnicas Experimentais e Caracterização Estrutural

Neste capítulo serão descritas as amostras e os sistemas experimentais utilizados nesse trabalho. As técnicas são a epitaxia por feixe molecular, microscopia de força atômica, microscopia eletrônica de transmissão, fotoluminescência e magnetofotoluminescência.

### 5.1 Epitaxia por Feixe Molecular

A técnica de epitaxia por feixe molecular permite o crescimento de estruturas cristalinas de semicondutores, metais e de heteroestruturas através de feixes moleculares ou atômicos. [1, 2] Com esta técnica é possível crescer sólidos com espessuras definidas em escala atômica. Isso é possível graças à baixa velocidade da deposição dos elementos químicos, com uma taxa da ordem de um plano cristalino ou monocamada por segundo. A técnica de MBE é de uma grande versatilidade no crescimento de semicondutores elementares como Si e Ge, binários como GaAs, AlAs, GaN, InP, GaSb, InAs, ligas ternárias tais como AlGaAs, InGaAs, GaAsSb, ligas quaternárias como InGaAsP, AlGaAsSb, etc., assim como no crescimento de heteroestruturas semicondutoras. Existem diversos modelos de máquinas disponíveis de acordo com a necessidade e disponibilidade financeira de cada laboratório além dos tipos de materiais que serão crescidos. Para materiais semicondutores, as mais comuns são as câmaras usadas no crescimento de elementos formados pelas famílias III-V e II-VI da tabela periódica.

A epitaxia por feixe molecular consiste na deposição controlada de átomos ou moléculas

de determinados elementos químicos sobre uma base cristalina (substrato) em condições de ultra-alto-vácuo (UVA). A primeira máquina de MBE (representação esquemática na Figura 5.1) foi construída em meados dos anos 50 no Laboratório da *Siemens Research*. Na época, as condições de vácuo dentro da câmara de reação eram insatisfatórias ( $10^{-3}$  Pa) para um crescimento de alta qualidade, pois a condição de alto vácuo é necessária para impedir a incorporação de impurezas indesejadas, como o carbono, proveniente dos componentes da câmara de crescimento. [3] Dez anos mais tarde, Arthur [4] e Cho [5] no laboratório da Bell conseguiram obter condições de UAV com pressão de  $10^{-11}$  Pa, para estudar aspectos fundamentais da interação de átomos de Ga e moléculas de As com substratos cristalinos de GaAs.

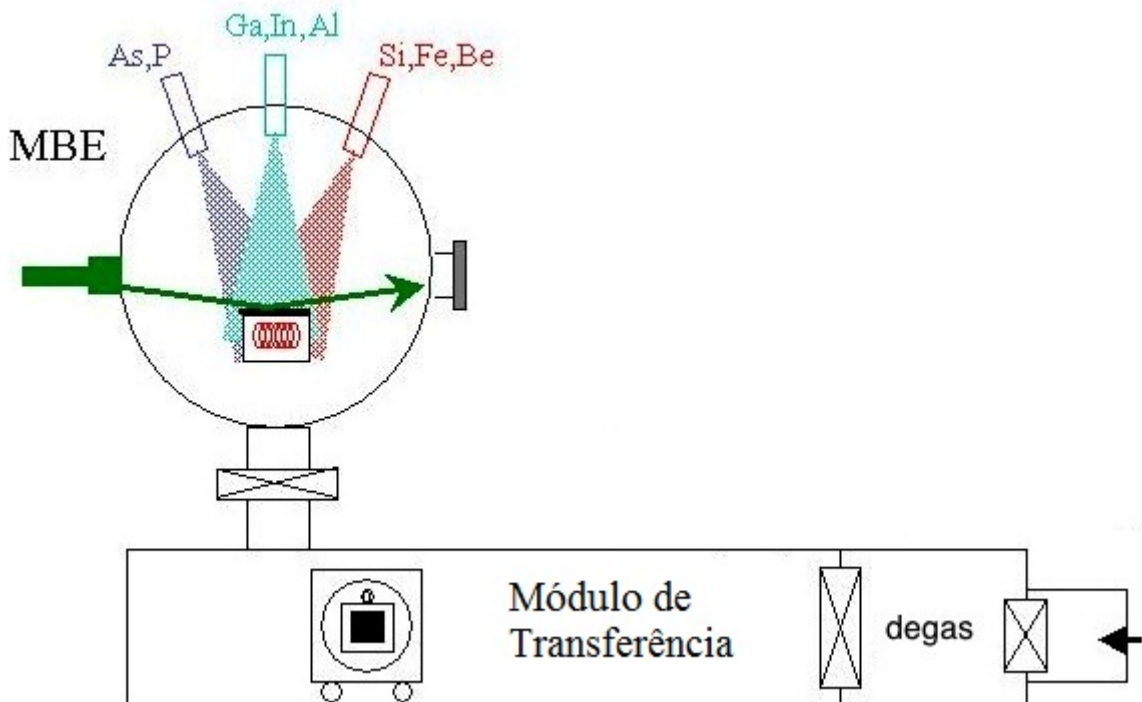


Figura 5.1: (a) Ilustração da técnica de epitaxia por feixe molecular. [6] O substrato é colocado dentro da câmara de crescimento através de um módulo de transferência. Os elementos a serem depositados são evaporados em células de efusão direcionadas ao substrato. A dinâmica de crescimento é monitorada *in situ* pela técnica de RHEED. [7, 8]

Para realizar o crescimento, o substrato passa por um processo de *degas* (degaseificação) no estágio inicial do módulo de transferência, sendo deslocado na seqüência para a câmara de crescimento onde é aquecido a temperaturas típicas de algumas centenas de graus Celsius. Elementos com alto grau de pureza, como arsênio, fósforo, gálio, índio, alumínio, silício, ferro e berílio, são evaporados das células de efusão gerando feixes mo-

leculares direcionados ao substrato aquecido. Os fluxos desses elementos são controlados pela ação de obturadores que podem ser acionados mecanica ou eletronicamente.

### 5.1.1 Ambiente de Ultra-Alto-Vácuo

A condição primária para se atingir um crescimento de dada amostra em escala atômica com alto grau de cristalinidade é manter dentro da câmara de crescimento um ambiente de ultra-alto-vácuo. Essa situação é atingida para pressões da ordem de  $10^{-9}$  Pa, utilizando bombas turbo-moleculares e iônicas de alta potência. Além disso, dentro do ambiente de crescimento é utilizado um filamento de titânio operando a altas temperaturas, fazendo com que moléculas residuais de oxigênio sejam aderidas à resistência e, assim, reduzindo ainda mais a pressão interna. O sistema composto pela câmara e módulo de transferência do substrato ficam em vácuo contínuo e também são isolados um do outro, afim de manter a mínima pressão possível dentro da câmara de crescimento.

Mesmo com uma pressão extremamente baixa, impurezas residuais estão presentes. O substrato geralmente situa-se a 20 cm de distância das células de onde são emergidos os feixes moleculares. Portanto, é desejável que o livre caminho médio ( $L$ ), ou seja, a distância média que um átomo percorre sem colidir com uma impureza, seja maior que a distância entre a abertura das células e o substrato. Se o livre caminho médio for inferior a essa distância, os feixes moleculares/atômicos serão espalhados pelas impurezas e uma quantidade menor de material do que a esperada chegará ao substrato comprometendo, assim, a qualidade do crescimento.

É possível estimar a pressão mínima necessária para um crescimento de alta qualidade utilizando o modelo cinético para um gás ideal, isto é, a massa de todas as partículas são iguais e suas velocidades obedecem a distribuição de Maxwell-Boltzmann, as forças de interação entre essas partículas são desprezadas e a distribuição do gás é isotrópica. Considerando que os feixes oriundos das células de efusão combinam-se com os gases residuais, é possível estimar a pressão residual através da equação: [9]

$$L_f = \frac{1}{\sqrt{2}\pi n_f d_f^2} + \frac{1}{\pi n_g d_{fg}^2 \sqrt{1 + \frac{v_g^2}{v_f^2}}} \quad (5.1)$$

em que  $n_f$ ,  $d_f$  e  $v_f$  são respectivamente a concentração, o diâmetro e a velocidade média do feixe molecular e as letras com índices  $g$  são os mesmos parâmetros para o gás residual dentro da câmara.  $d_{fg}$  é a média aritmética dos diâmetros correspondentes dos elementos



e do gás residual. O primeiro termo do lado esquerdo da equação (5.1) descreve o livre caminho médio, assim,  $\frac{1}{\sqrt{2}\pi n_f d_f^2} = L$ , e a concentração  $n$  está relacionada com a pressão e a temperatura pela equação:

$$n = \frac{p}{k_B T} \quad (5.2)$$

onde  $k_B$  é constante de Boltzmann. Em condições típicas  $v_g \gg v_f$  e, assim, a equação (5.1) pode ser re-escrita como:

$$L_f = \frac{1}{\sqrt{2}\pi n_f d_f^2} + \frac{1}{\pi n_g d_{fg}^2} \quad (5.3)$$

Reescrevendo a equação anterior em termos de  $n_g$  e substituindo nesta nova equação a eq. (5.2), encontra-se o valor da pressão do gás residual:

$$p_g = k_B T \frac{L_f^{-1} - \sqrt{2}\pi n_f d_f^2}{\pi d_{fg}^2} \quad (5.4)$$

Considerando alguns valores característicos para o arseneto de gálio, é possível mostrar que a pressão do gás é da ordem de  $10^{-4}$  Pa, [9, 10] ou seja, essa pressão é muito maior que a alcançada nas máquinas de MBE. Por outro lado, a condição de UAV ainda é necessária, do contrário, impurezas dos próprios componentes da câmara são aderidas ao substrato durante o crescimento, comprometendo a qualidade da amostra. Outro ponto interessante é considerar a pressão usual dentro do MBE e calcular o livre caminho médio dos elementos usando a equação anterior. Utilizando novamente os dados típicos do GaAs, mostra-se que o livre caminho médio é superior a 50 m, ou seja, muito superior aos 20 cm que separam o substrato das aberturas das células de efusão.

### 5.1.2 Preparação do Substrato

Os substratos utilizados são adquiridos comercialmente com os planos cristalinos especificados. São fixados em um bloco de molibdênio através de pinças se o crescimento for realizado individualmente. Quando vários substratos são colocados simultaneamente, utiliza-se então índio fundido para adesão das matrizes ao porta-substrato. Embora a temperatura de fusão do índio seja de  $156^\circ\text{C}$ , enquanto que a temperatura de crescimento é aproximadamente de 3 a 4 vezes mais alta, o índio derretido tem uma alta viscosidade, mantendo o substrato aderido ao bloco durante todo o crescimento.

Na seqüência os substratos são transferidos para um ambiente de pré-vácuo dentro do módulo de transferência e, então, deslocados para o módulo de *degas*. Nesse estágio,

os substratos de GaAs são mantidos a uma temperatura entre 300 e 350 °C durante trinta minutos com o objetivo de eliminar contaminantes, principalmente água contida na superfície.

### 5.1.3 Difração de Elétrons de Alta Energia por Reflexão

Difração de elétrons de alta energia por reflexão (RHEED - do inglês *Reflection High Energy Electron Diffraction*) é um sistema utilizado para monitorar a dinâmica de crescimento em tempo real. O sistema consiste em um canhão de elétrons com uma energia em torno de 20 keV e comprimento de onda de de Broglie de 0,7 Å direcionado para o substrato com um ângulo de aproximadamente 1°. Essa configuração é escolhida de forma que a penetração do feixe incidente seja muito baixa, permitindo, assim, medir a presença de poucas camadas de átomos na superfície do material. O feixe refletido pela superfície atinge uma tela de fósforo, na qual uma câmera de vídeo é acoplada e que envia os sinais de RHEED para um *software* que transforma esses sinais em imagens. Isso permite controlar a taxa de crescimento através das oscilações na intensidade dos sinais de RHEED.

A Figura 5.2 é uma ilustração de como é possível monitorar o crescimento através desta técnica. Em uma superfície perfeitamente plana as intensidades dos feixes de elétrons refletidos tem valor máximo possível. Ao iniciar o crescimento do material, os átomos depositados provocam espalhamento dos elétrons em direções aleatórias e reduzindo, assim, a intensidade do sinal de RHEED analisado no software. Quando o crescimento aproxima-se de uma monocamada (ML) a intensidade deste sinal volta a aumentar, sendo máxima novamente quando uma ML é depositada. Desta maneira, uma oscilação no padrão do RHEED corresponde à deposição de uma monocamada. Portanto, o crescimento é controlado em termos do número de oscilações de RHEED por segundo, ou simplesmente ML/s, que é conhecida como taxa de crescimento. Conhecendo a taxa de crescimento, controla-se a quantidade de material depositado, e assim, a espessura desejada.

Outra importância do estudo destas oscilações é a possibilidade de investigar a reconstrução de uma superfície. Átomos superficiais possuem comportamentos distintos de átomos ligados no volume do cristal, em virtude das diferenças nas ligações químicas. Deste modo, esses átomos podem ser deslocados para outras regiões ou ainda gerar estruturas diferentes daquelas produzidas pelos átomos volumétricos. Esses comportamentos

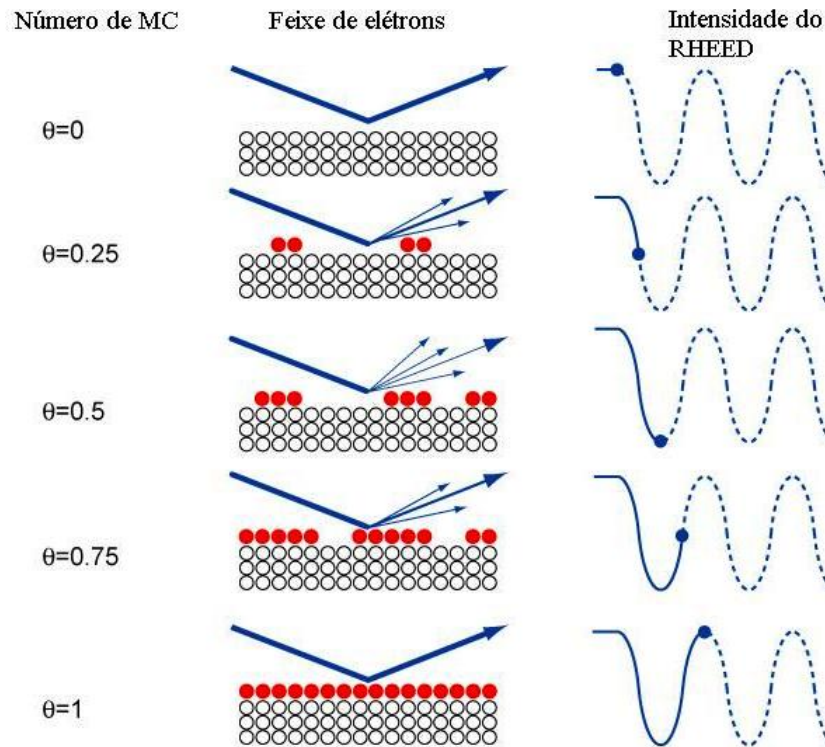


Figura 5.2: Representação esquemática do funcionamento do RHEED. Na coluna da esquerda é apresentado o número de monocamadas depositadas, na coluna do meio, o material e o comportamento do feixe de elétrons e, na última coluna, a intensidade do sinal. Para uma superfície plana a intensidade do sinal é máxima. Quando feixes epitaxiais são direcionados ao substrato, a intensidade do sinal de RHEED diminui em função do espalhamento dos feixes refletidos, ocorrendo uma redução na intensidade do sinal. Após a deposição de uma monocamada completa a intensidade das oscilações de RHEED atingirão valores máximos novamente.

podem ser observados também através de estudos das intensidades RHEED.

#### 5.1.4 Crescimento Epitaxial

O estágio final da preparação do substrato e o início do crescimento começam com a inserção da amostra dentro da câmara de crescimento e o posterior isolamento do módulo de transferência. Na seqüência é feito o resfriamento de toda a máquina de MBE utilizando-se nitrogênio líquido, cujo objetivo é a diminuição da concentração de impurezas residuais. Simultaneamente ao processo de resfriamento, as células de efusão são aquecidas para evaporar, ou sublimar em alguns casos, os elementos que serão depositados. A temperatura das células é mantida por termopares e controladores eletrônicos de potência para se obter uma temperatura constante e gerar um fluxo estável do feixe de material. No caso específico do índio e gálio, suas células de efusão são mantidas com

uma diferença de temperatura em torno de 60 °C entre a base e a ponta para prevenir a condensação de material na saída. Em frente às células existem obturadores que abrem ou fecham as saídas, e interrompendo os feixes a qualquer momento. Este procedimento permite programar o crescimento de diferentes materiais em camadas alternadas e com interrupção abrupta nas interfaces. O controle preciso da abertura ou fechamento dos obturadores é de essencial importância no crescimento controlado em escala atômica.

Após o resfriamento do sistema e preparação das células de efusão, inicia-se o processo de desorção de óxidos contidos na superfície do substrato. Para o GaAs essa temperatura é em torno de 580 °C. O processo de desorção é monitorado via oscilações de RHEED. Os óxidos contidos na superfície do substrato não são cristalinos e nenhum padrão de difração é observado inicialmente. Ao atingir a temperatura necessária para a remoção completa da superfície oxidada, é possível observar padrões nas oscilações do RHEED oriundas da superfície cristalina do substrato. Esta temperatura de desorção dos óxidos para o GaAs é utilizada para calibrar o termopar, sendo usada como referência para o crescimento.

Durante o aumento da temperatura do substrato e de todo o crescimento de materiais III-V, a célula de arsênio é mantida aberta para deixar todo o ambiente de crescimento imerso ou rico em arsênio. O crescimento de semicondutores durante a epitaxia é determinado pelo coeficiente de adesão dos átomos e moléculas que estão chegando na superfície do substrato. No caso dos semicondutores III-V da tabela periódica, o coeficiente de adesão dos elementos do grupo III é 1 (um), enquanto que para os elementos do grupo V é 1/2 (meio). Assim, a velocidade de crescimento é determinada exclusivamente pela taxa de chegada dos elementos do grupo III. [11]

Após a desorção de óxidos a superfície do substrato apresenta um alto grau de rugosidade. Para eliminar essas rugosidades é então crescida uma camada com uma espessura menor do que 1  $\mu\text{m}$ , chamada de camada *buffer*. Usualmente esta camada é crescida com o mesmo material do substrato em uma temperatura de 580 a 600 °C, cuja espessura pode ser determinada pela seguinte fórmula:

$$D = T \times R \times M \quad (5.5)$$

onde  $D$  é a espessura desejada,  $T$  é o tempo de deposição (em segundos),  $R$  é a taxa de deposição (em MC/s) e  $M$  é a espessura de uma monocamada do material. Por exemplo, para o caso do GaAs, escolhendo uma taxa de crescimento de 1 MC/s, sob um tempo de exposição de 30 minutos e, sendo o valor de uma monocamada para este material é 2,83

Å, a espessura da camada *buffer* será de:

$$D = 30(\text{min}) \times 60(\text{s}) \times 1(\text{MC/s}) \times 2,83 = 5094 = 0,5 \mu\text{m} \quad (5.6)$$

Após o crescimento do *buffer* a amostra estará pronta para o crescimento das nanoestruturas desejadas.

## 5.2 Amostras Utilizadas

As amostras utilizadas nessa tese foram crescidas em uma câmara Riber 32P na Universidade de Arkansas. Foram crescidas uma amostra com uma camada de pontos quânticos de InAs e outra de anéis quânticos com as mesmas condições dos pontos para se comparar as diferenças nas propriedades morfológicas e ópticas entre esses dois tipos de nanoestruturas. Em ambos os casos foram utilizados substratos de GaAs semi-isolantes não dopados, os quais foram aquecidos inicialmente a 580 °C para a desorção de óxidos. Sobre estes substratos foram crescidas camadas *buffer* de GaAs com 0,5  $\mu\text{m}$  de espessura. Na seqüência, ciclos com 0,14 MC de InAs com 2 segundos de interrupção entre cada ciclo sob fluxo de  $\text{As}_2$  foram depositados até a formação de 2,2 MC de InAs a 520 °C. Para melhorar a distribuição dos tamanhos, os pontos quânticos passaram por um processo de *annealing* durante 30 s. Toda a dinâmica de crescimento foi monitorada *in situ* pela técnica de RHEED. As taxas de deposição para o InAs e GaAs foram de 0,065 e 1 MC/s, respectivamente.

Após a formação dos pontos quânticos, uma fina camada de arseneto de gálio com 4 nm foi depositada. A partir destes pontos quânticos se obtém a formação dos anéis quânticos. Para estudar as propriedades ópticas, foram crescidas camadas tampão de GaAs com 50 nm. Outras amostras, uma de pontos quânticos e outra de anéis, também foram crescidas sem a deposição desta última camada para o estudo da morfologia dos anéis e pontos quânticos através da técnica de microscopia de força atômica.

## 5.3 Microscopia de Força Atômica

A técnica de microscopia de força atômica (AFM - do inglês *Atomic Force Microscope*) é utilizada na investigação de superfícies através da obtenção de imagens em escala

nanométrica. Estas figuras são tomadas através da interação de forças atrativas e repulsivas entre uma ponta com alguns nanômetros de espessura e a superfície da amostra. No primeiro caso, forças de atração do tipo Van der Waals atuam entre distâncias de 1 a 100 nm. No segundo, quando a ponta ultrapassa o limite de poucos nanômetros, forças repulsivas oriundas do Princípio da Exclusão de Pauli prevalecem. As variações provocadas por essas forças de atração/repulsão quando a ponta percorre uma determinada área é analisada por um *software* que as convertem em imagens.

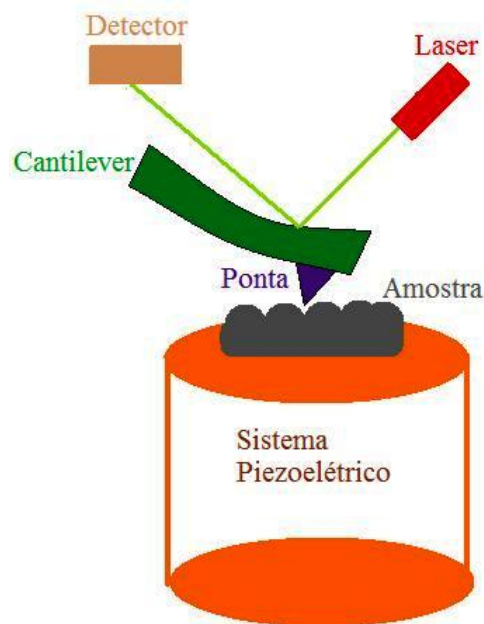


Figura 5.3: Descrição da técnica de AFM. Uma ponta ligada a um cantilever segue o relevo da amostra que é deslocada por um sistema piezoelétrico. Um sistema óptico formado por um laser e um detector analisam a deformação do cantilever.

A Figura 5.3 mostra em detalhes o funcionamento de um dispositivo de microscopia de força atômica (AFM). A amostra é colocada sobre um sistema piezoelétrico, que aplicando tensões adequadas, permite a movimentação nas três direções espaciais. A ponta que varre a amostra é ligada a um material chamado cantilever, que é deformado de acordo com a interação entre as forças da ponta e dos átomos do material. O material que constitui o cantilever obedece à Lei de Hooke. Assim, a constante de deformação determina a sensibilidade do equipamento, em que grandes deflexões implicam em altas sensibilidades. O relevo da amostra provoca deflexões na ponta que, por sua vez, deforma o cantilever. Essas deformações são detectadas por um laser cuja reflexão é enviada a um detector.

As imagens tridimensionais obtidas por AFM são extremamente úteis na análise da forma e das propriedades morfológicas de diversos tipos de materiais. É uma técnica

que não requer preparação especial da amostra, sendo de fácil operação e permitindo a visualização da superfície em três dimensões. As amostras de pontos e anéis quânticos crescidas para estudos utilizando esta técnica não possuem a camada tampão. Através das imagens é possível determinar a largura da base, a altura, a elongação e as características estruturais dos pontos e/ou anéis quânticos. É necessário levar em consideração a configuração da ponta, uma vez que ela influencia diretamente nas medidas realizadas. Uma ponta não adequada leva a perda de resolução da imagem e, podendo levar a interpretações incorretas dos resultados. As imagens AFM de amostras de anéis e pontos mostradas neste trabalho, foram obtidas em um microscópio *Veeco Digital Instrument* na Universidade de Arkansas.

## 5.4 Microscopia Eletrônica de Transmissão

O microscópio eletrônico de transmissão (TEM - do inglês *Transmission Electronic Microscope*) permite a observação de estruturas em escala nanométrica. Diferentemente das imagens obtidas por AFM, a utilização do TEM permite estudar estruturas quânticas, como anéis e pontos, mesmo após a cobertura das amostras com a camada tampão. Isso é de grande importância na Física de Semicondutores, uma vez que é possível inferir com alto grau de precisão a forma geométrica, tamanhos e, ainda, como a tensão se distribui nestas amostras. Os detalhes completos da preparação das amostras e funcionamento de um TEM são complexos e longos, portanto, fogem ao escopo deste trabalho. Nesta seção será feita uma breve análise do equipamento.

O microscópio eletrônico de transmissão consiste em uma fonte que acelera elétrons a uma diferença de potencial entre 50 e 1000 kV, permitindo obter imagens com aumento de até 50 milhões de vezes do tamanho real com uma resolução espacial em torno de 2 Å. O feixe de elétrons é focalizado na amostra (imersa em um ambiente de vácuo) através do uso de um conjunto de lentes eletromagnéticas. Esses feixes são difratados pelo arranjo cristalino da amostra (também é possível medidas em materiais amorfos) e são focalizados, por uma lente objetiva, em uma tela ou chapa fotográfica. Entre a lente objetiva e a tela existem outros conjuntos de lentes que permitem aumentar a imagem ou o diagrama de difração.

As amostras utilizadas precisam de uma preparação especial, que depende do tipo de

imagem que será realizada: transversal ou no plano. Nos dois casos, são necessárias amostras com espessuras entre 500 e 5000 Å, com superfícies extremamente polidas e limpas em ambos os lados. Geralmente as amostras semicondutoras são preparadas utilizando um canhão de átomos de Argônio, cuja finalidade é a obtenção de um pequeno buraco no centro da amostra. O feixe de átomos é incidido inicialmente com um ângulo de 15 graus e, no estágio final da preparação, o valor desse ângulo assim como a energia do feixe de átomos são reduzidos para se obter uma pequena ponta no centro do buraco, que será utilizada para a realização das medidas.

As medidas de transmissão nos anéis quânticos foram feitas com um microscópio FEI TITAN 80-300 (Philips) utilizando um feixe de elétrons com 300 kV equipado com um corretor Cs de imagem. As amostras foram preparadas usando polimento mecânico padrão. Na seqüência, foi realizado um novo polimento usando a técnica *dimpling*: sistema que permite um polimento até a amostra atingir uma espessura de 20  $\mu m$ . Finalmente, as amostras foram deixadas por duas horas no sistema *Ion-Milling* (*Fischione Equipment*) sob baixa energia para se obter o furo necessário para as imagens de TEM. Todas as medidas foram realizadas na Universidade de Arkansas.

## 5.5 Técnica de Fotoluminescência

Fotoluminescência (PL - do inglês *Photoluminescence*) é a emissão espontânea de luz de um material sob excitação óptica. A técnica de fotoluminescência consiste na análise dos canais de recombinação radiativos do par elétron-buraco foto-excitado.

A grande versatilidade desta técnica na caracterização de semicondutores permite o estudo das propriedades ópticas em função da temperatura, intensidade de excitação e campos magnético e/ou elétrico externos. As características dos espectros de emissão de uma amostra permitem identificar impurezas, desordens na composição de ligas, *gaps* de energia, rugosidade de interfaces e investigar níveis discretos de energia. Além disso é uma técnica não-destrutiva e, em princípio, não requer preparação especial das amostras.

A técnica de PL torna-se um pouco limitada para o estudo de materiais de *gap* indireto, sendo difícil de se obter informações quantitativas sobre densidades de dopagem ou de impurezas. [12]



### 5.5.1 Processos Físicos Envolvidos na Fotoluminescência

Materiais semicondutores são caracterizados pela presença de uma banda de valores proibidos de energia (entre 0 e 3 eV), chamada de *gap* de energia. Num semicondutor intrínseco (sem dopagem) à temperatura de 0 K todos os elétrons encontram-se na banda de valência (BV) e todos os estados disponíveis (não ocupados) na banda de condução (BC). Quando um fóton de energia maior que a energia de *gap* incide sobre um semicondutor de *gap* direto, um elétron é promovido para a banda de condução, e um buraco é gerado na banda de valência. Se o fóton incidente possui energia maior que o *gap* de energia do material, elétrons e buracos terão um excesso de energia em relação ao estado fundamental de suas respectivas bandas. Estes portadores sofrem um decaimento intra-banda através de transições não-radiativas (com emissão de fônons), até que os elétrons atinjam o mínimo da banda de condução e os buracos o máximo da banda de valência. Finalmente elétrons e buracos, sem interação Coulombiana, recombinam emitindo fótons de energia igual ao valor do *gap* do material. O processo é representado na Figura 5.4. [13] Com interação Coulombiana, pares elétron-buraco podem formar éxcitons ou complexos excitônicos antes de recombinarem e emitirem luz com energia menor que o *gap*.

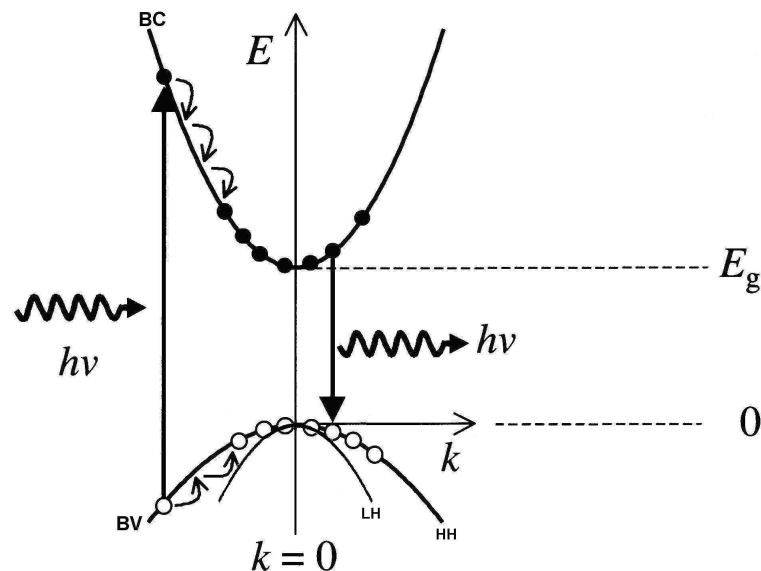


Figura 5.4: Representação da estrutura de bandas de um semicondutor de *gap* direto. Fótons de energia  $h\nu > E_g$  excitam elétrons da banda de valência para a banda de condução. Na seqüência os portadores de carga relaxam para os mínimos de suas respectivas bandas pela emissão de fônons. Cada seta indica a emissão de um fônon acústico. Então, sem interação Coulombiana entre elétrons e buracos, ocorre recombinação via emissão de um fóton com energia igual à energia do *gap*, por par elétron-buraco recombinado.

### 5.5.2 Montagem Experimental

As medidas de fotoluminescência em função da intensidade de excitação e da temperatura foram realizadas no Laboratório de Óptica da Universidade de Arkansas. A Figura 5.5 é uma representação esquemática do sistema utilizado. A amostra é imersa dentro de um criostato refrigerado por um circuito de hélio fechado (CTI - Cryogenics - model 22), que permite uma variação de temperatura de 10 a 300 K, cuja excitação ocorre por meio de um laser de estado sólido de 10 W (Coherent - Verdi-V10) com emissão em 532 nm. Em frente ao criostato, uma lente focalizadora (Mitutoyo - H08000303A) reduz o *spot* do laser em 50 vezes que, aliada a filtros de densidade neutra, permitem variar a intensidade de excitação em aproximadamente dez ordens de grandeza. A mesma lente é utilizada para a coleta da luminescência e incidência numa câmara CCD (do inglês - *charge coupled device*) de InGaAs (Princeton Instruments - 7498-0001) refrigerada com nitrogênio líquido e acoplada a um espectrômetro (Acton Research Corporation - Spectra Pro 2500 i) de 0,5 m.

As medidas em função da intensidade foram feitas no intervalo de  $0,32 \text{ mW/cm}^2$  a  $16,4 \text{ kW/cm}^2$  obtendo um total de quinze espectros por amostra. A dependência com a temperatura foi estudada no intervalo de 10 a 300 K utilizando uma baixa intensidade de excitação ( $73 \text{ mW/cm}^2$ ) para evitar efeitos de muitos corpos entre os portadores.

### 5.5.3 Magnetofotoluminescência

Uma das variações da técnica de fotoluminescência é a magnetofotoluminescência (MPL - do inglês *Magnetophotoluminescence*), que consiste na mesma montagem experimental descrita na Figura 5.5, exceto que neste caso é aplicado um campo magnético, que pode ser orientado no sentido paralelo ou perpendicular à amostra dependendo do modelo do equipamento. Além disso, é possível aplicar campos positivos ou negativos, sendo o sinal escolhido de acordo com o sentido aplicado do campo magnético. As medidas com campo são importantes na Física de Semicondutores, pois permitem o estudo de portadores confinados sob o efeito do campo magnético, que provoca aberturas dos níveis de energia (Efeitos Zeeman e níveis de Landau), estudo de spins, efeito Aharonov-Bohm, além de um grande número de fenômenos de Física Fundamental.

As amostras foram medidas parcialmente na Universidade Estadual de Campinas e outra parte na Universidade Federal de São Carlos. Os sistemas são constituídos por

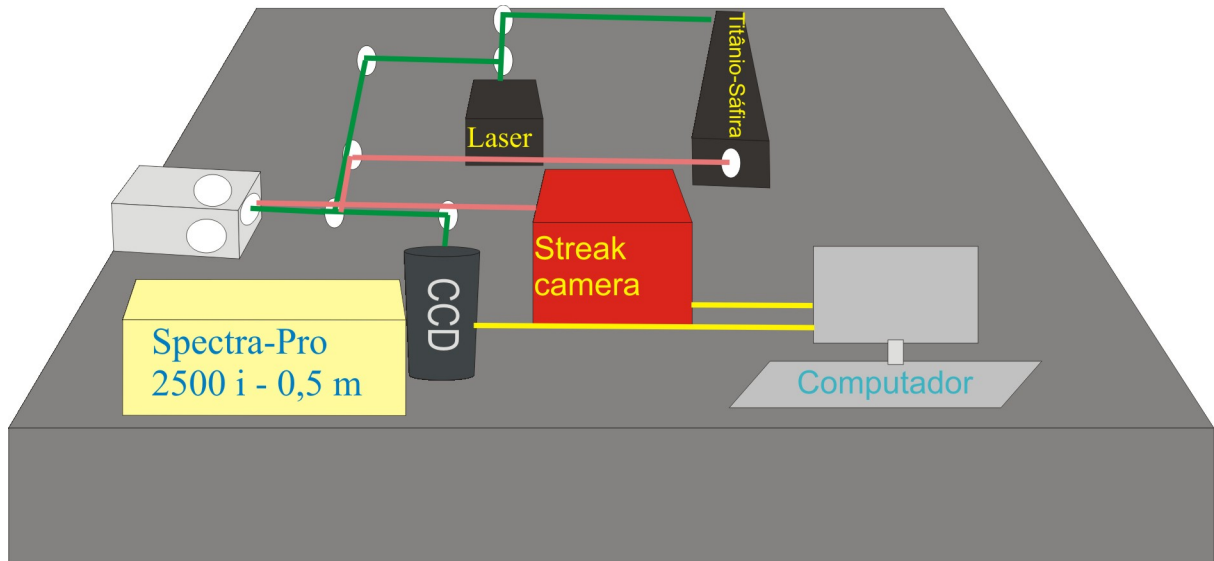


Figura 5.5: Representação da técnica de fotoluminescência utilizada. No sistema é possível realizar medidas com dependência da intensidade de excitação, temperatura, PL resolvida no tempo (PLTR) e PL de excitação (PLE). Um laser de estado sólido de 10 W é utilizado para excitar a amostra dentro de um criostato que permite uma variação de temperatura de 10 a 300 K. A luminescência é analisada via câmara CCD. O mesmo laser pode ser utilizado para excitar o laser de Titânio-Safira, que por sua vez é utilizado em medidas de PLTR ou PLE. No caso de medidas resolvidas no tempo a análise da luminescência é feita com uma câmara do tipo *Streak Camera*.

magnetos supercondutores (Oxford) com campos magnéticos de até 15 Tesla (17 bombeado). Os campos são gerados por uma bobina supercondutora refrigerada com hélio líquido. A bobina e a amostra permanecem em regiões separadas, assim, a temperatura da bobina é em torno de 4,2 K enquanto que a temperatura da amostra pode ser variada de 2 a 300 K. Dependendo da precisão requerida para visualizar pequenos detalhes, as medidas foram feitas de 0 a 15 Tesla com passo de 0,2 T de 0 a 5 T e de 0,5 T de 5 a 15 T. A excitação das amostras foram feitas usando laser de diodo (Laserline) emitindo em 532 nm. A luminescência das amostras foi coletada e analisada utilizando uma CCD de In-GaAs (Princeton Instruments - 7498-0001) refrigerada com nitrogênio líquido e acoplada a um espectrômetro (Acton Research Corporation - Spectra Pro 2500 i) de 0,5 m.

# Referências Bibliográficas

- [1] A. Y. Cho and J. R. Prog., Prog. Solid State Chem. **10**, 157, (1975).
- [2] K. Ploog and H. C Freyhardt, Crystal, Growth, Properties and Applications. Springer, Berlin, 73, (1980).
- [3] J. H. Neave and B. A. Joyce, J. Cryst. Growth **44**, 357 (1978).
- [4] J. R. Arthur, J. Appl. Phys. **30**, 9, 4032, (1968).
- [5] A. Y. Cho, J. Appl. Phys. **41**, 2780, (1970).
- [6] <http://www.uark.edu/misc/salamo/>
- [7] M. A. Herman and H. Sitter in *Molecular Beam Epitaxy*, Springer-Verlag, Berlin, p. 29 and 36 (1989).
- [8] J. H. Neove, B. A. Joecy, P. J. Dobson, and N. Norton, Appl. Phys. A **34**, 179 (1984).
- [9] M. A. Herman and H. Sitter, *Molecular Beam Epitaxy*, Springer series in Materials Science, 2nd Edition (1996).
- [10] L. I. Maissel and R. Glang (editors), *Handbook of Thin Film Technology*, McGraw Hill, New York (1970).
- [11] C. T. Foxon and B. A. Joyce em Kaldin, E.(ed). *Current Physics in material Science*, North-Holland, Amsterdam, **7**, 1 (1981).
- [12] T. H. Groerer, *Photoluminescence in analysis of surfaces and interfaces, in encyclopedia of analytical chemistry*, ed. John and Wiley and Sons Ltd, Chichester (2000).
- [13] M. Fox, *Optical properties of solids, Oxford masters series in condensed matter physics, New York* (2001).

# Capítulo 6

## Resultados e Discussão

Neste capítulo será demonstrado a existência do efeito Aharonov-Bohm em partículas neutras através das discussões dos resultados teóricos e experimentais das caracterizações estruturais e ópticas em anéis quânticos de InAs.

### 6.1 Caracterização Estrutural

#### 6.1.1 Microscopia de Força Atômica

A caracterização estrutural inicial das amostras foi realizada por microscopia de força atômica em amostras de pontos e anéis quânticos de InAs sem a deposição da camada tampão. As Figuras 6.1(a) e (b) mostram essas imagens AFM das amostras de pontos e anéis quânticos de InAs, respectivamente. A estatística feita mostra que os pontos quânticos possuem, em média, 6 nm de altura, 30 nm de diâmetro e densidade de  $2,5 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ . Para os anéis, as dimensões médias nas respectivas direções perpendiculares  $[0\bar{1}1]$  e  $[110]$  são de 57 e 60 nm para o diâmetro externo, 13 e 17 nm para o diâmetro interno, e densidade de  $2,4 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$ . A assimetria detectada nos anéis está relacionada com o coeficiente de difusão anisotrópico do índio (veja seção 2.3.4). [1, 2] Embora os pontos quânticos revelaram serem simétricos, em um trabalho paralelo ao escopo desta tese demonstramos que, após a cobertura dos pontos de InGaAs com a camada tampão de GaAs, uma assimetria também surge no perfil de potencial dessas nanoestruturas. [3] Assim, é esperado que tanto pontos quanto anéis quânticos possuam, inerentemente, uma determinada assimetria após a deposição da camada tampão. Através da imagem mostrada na Figura 6.1(b), é também possível observar a presença de anéis com tamanhos distintos,

cujas diferenças nas dimensões são oriundas de pontos quânticos com tamanhos diferentes. Pontos quânticos menores formam anéis quânticos com raio menor quando comparados aos anéis formados a partir de pontos quânticos maiores que, neste caso, possuem raio interno maior. Na Figura 6.1(c) é mostrada uma imagem tridimensional de um anel quântico em forma de um toróide assimétrico.

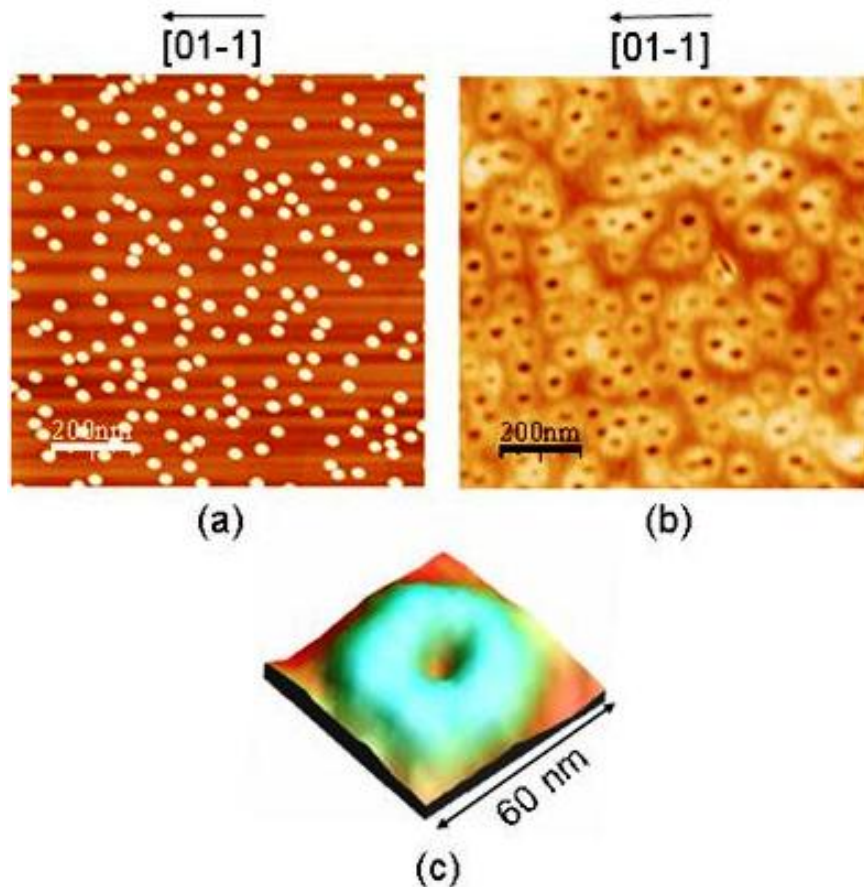


Figura 6.1: Imagens AFM em escala típica ,  $1 \mu m \times 1 \mu m$  para: (a) pontos quânticos de InAs, (b) anéis quânticos formados a partir de pontos quânticos após a deposição de 4 nm de GaAs sob fluxo de  $As_2$ . (c) Imagem tridimensional de um anel quântico com forma toroidal deformada.

### 6.1.2 Microscopia Eletrônica de Transmissão

Um problema que permaneceu em aberto durante certo tempo era a discordância que havia entre os dados experimentais do tamanho usual dos anéis e os cálculos teóricos dessas dimensões. Os tamanhos típicos dos anéis de acordo com estudos por AFM (como apresentados acima), mostravam um raio efetivo em torno de 40 a 60 nm, enquanto que o raio eletrônico estimado através de experimentos magneto-ópticos era em torno de duas

a três vezes inferior. [4] Aparentemente, a justificativa para esta discrepância poderia ser um encolhimento no tamanho dos anéis após a deposição da camada tampão nas amostras destinadas a estudos ópticos ou elétricos. Para resolver essa questão, realizamos medidas de microscopia eletrônica de transmissão (TEM) nos anéis cobertos pela camada tampão, para comparar assim as diferenças nos tamanhos antes e após a deposição desta camada.

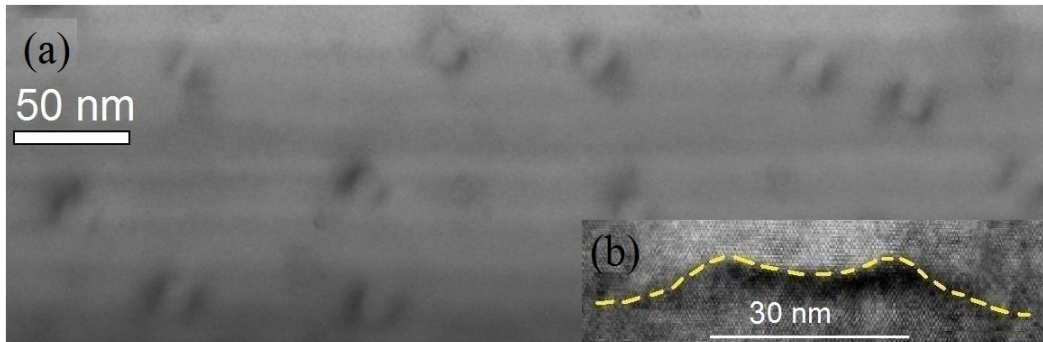


Figura 6.2: Imagens de microscopia de transmissão feitas no plano(a) e transversal (b) aos anéis.

A Figura 6.2(a) é uma imagem de microscopia eletrônica de transmissão obtida no plano da amostra dos anéis tomada próxima ao eixo da zona  $\langle 001 \rangle$  com reflexões no plano (220). A Figura 6.2(b) é uma imagem de TEM transversal de alta resolução desta mesma amostra, mostrando uma altura média dos anéis em torno de 3 nm, e uma distância entre os ápices do anel em torno de 30 nm. A partir das imagens no plano e transversal, observa-se que os anéis quânticos da amostra onde foi depositada a camada tampão possuem de fato, um raio externo menor do que o diâmetro observado na imagem de AFM. As razões para essa redução ainda não são bem conhecidas, e estudos na literatura indicam que mecanismos associados a difusão do índio e a uma reconfiguração no perfil de deformação após a deposição desta camada podem ser a razão para esta redução. [5]

Na Figura 6.2(a) é possível também observar diversos anéis com uma forma alongada, em que as regiões mais escuras nessas figuras correspondem a regiões com anéis com alta concentração de índio. Tal característica é confirmada pela medida de dispersão de energia por raios-X (EDX - do inglês *Energy Dispersive X-Ray*) em um único anel e apresentada na Figura 6.3, onde foi mapeada a concentração de índio ao longo do plano do anel. Essa concentração possui um máximo no ápice do anel, diminuindo a partir do centro para as bordas do anel. Note que próximo do centro do buraco existe somente InAs enquanto que nos extremos do anel existe também a presença de átomos de Gálio oriundos da deposição

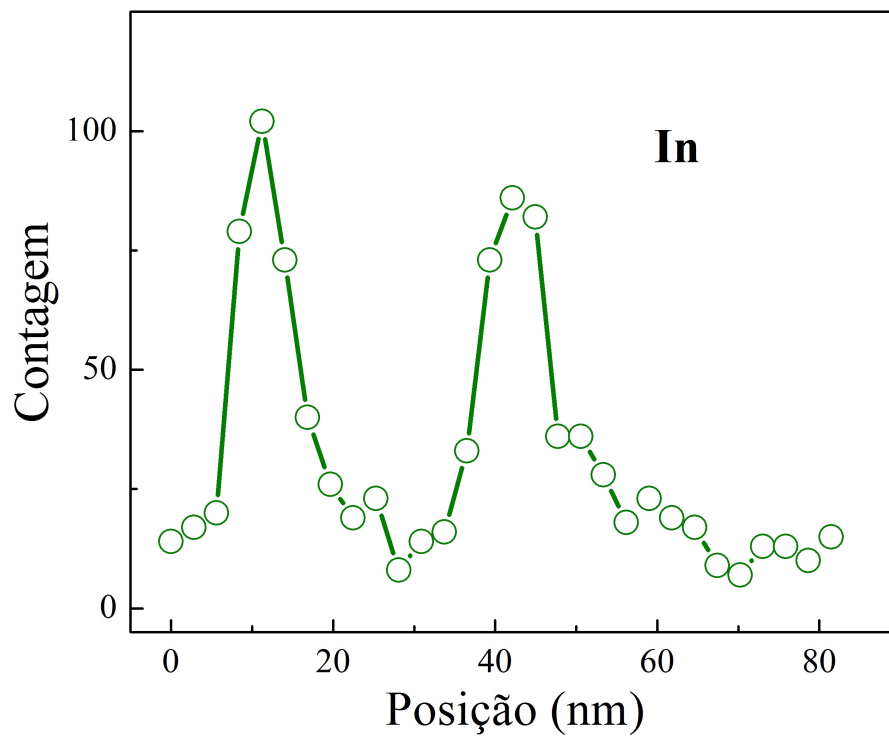


Figura 6.3: Medidas de dispersão de energia por raios-x ao longo do plano de um único anel utilizando um microscópio de transmissão.

da fina camada de GaAs e da camada *buffer*. Assim, as bordas são formadas por ligas de InGaAs. Outra característica que emerge dessa figura é a distância entre os pontos onde a concentração de índio é máxima, em torno de 30 nm, que coincide com o valor obtido da Figura 6.2(b).

Portanto, essas imagens de transmissão para anéis de InAs, tomadas no plano e na transversal, são mostradas pela primeira vez nesse trabalho, confirmando que após a deposição da camada tampão a geometria anelar é mantida. Contudo, os valores das dimensões laterais são menores do que em amostras descobertas de anéis e observados por AFM. Este é um dos pontos ainda não compreendidos: porque as amostras com camadas tampão ficam mais achatadas e ligeiramente menores que em amostras de anéis idênticos mas sem as camadas tampão?

### 6.1.3 Difração de Raios-X

Através das imagens de TEM foi possível determinar a forma e tamanho dos anéis. Entretanto, essas medidas podem apresentar um certo erro, uma vez que foi aplicada a máxima resolução possível do microscópio. Nesse regime de medidas, efeitos da deforma-



ção em volta do anel e contraste obtido pela difração de elétrons podem levar a efeitos de distorção das imagens obtidas. Para confirmar os resultados obtidos por transmissão, foram realizadas medidas de difração de raios-X em regime de baixo ângulo no Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS - Campinas - SP). Devido às altas energias dos raios-X e o aparato único que permite a incidência em ângulo rasante é possível determinar não só a forma mas também como a deformação se distribui ao longo das nanoestruturas, mesmo para aquelas amostras que foram cobertas com a camada tampão com dezenas de nanômetros de espessura. Essas medidas foram realizadas nas amostras de pontos e anéis utilizando o feixe XRD2 do LNLS, e usando um eixo 4+2 do difratômetro. O ângulo inicial  $\alpha_i$  foi fixado em  $0,28^\circ$ , um pouco acima do ângulo crítico do GaAs, maximizando o sinal para as duas amostras cobertas pela camada de 50 nm de GaAs. O sinal difratado foi medido pela integração do ângulo de saída  $\alpha_f$  a partir de 0 até  $0,2^\circ$ . [6] Medidas de difração de raios-X anômalas foram feitas próximas às extremidades de Ga-K, com energias de 10267 eV e 10367 eV, para fornecer o contraste químico que permite o mapeamento da concentração de índio e regiões ricas em gálio dentro das nanoestruturas estudadas. [7, 8]

A Figura 6.4(a) mostra a varredura longitudinal  $\theta - 2\theta$ , na vizinhança da reflexão no plano (220) do GaAs, para as amostras de pontos e anéis quânticos. Além da forma pontiaguda dos picos de Bragg oriundos dos substratos de GaAs, nota-se também um perfil de espalhamento difuso que denota a presença de um gradiente de deformação nas amostras de pontos e de anéis. A partir do eixo da Figura, convertido diretamente no parâmetro de rede no plano, pode-se observar a extensão da relaxação do parâmetro de rede para pontos e anéis quânticos. Embora as duas estruturas sejam cobertas com uma camada tampão de GaAs, o gradiente da deformação observado para os pontos enterrados (*com camada tampão*) é muito maior do que para os anéis, indicando que nos anéis a relaxação da deformação e/ou a interdifusão do GaAs é bem mais efetiva. Perfis similares para varreduras longitudinais foram encontrados nas reflexões (220) e  $(2\bar{2}0)$ , inicialmente sugerindo a ausência de anisotropia na deformação dos dois sistemas. [3]

Para avaliarmos a composição média dos pontos e anéis, usamos medidas de espalhamento anômalo de raios-x (não mostradas aqui) e que foram feitas com energias de 10267 eV, 10364 eV e 10367 eV (na extremidade de Ga-K), permitindo a extração da concentração de gálio e, conseqüentemente, a concentração de índio ( $C_{In} = 1 - C_{Ga}$ ) nas duas

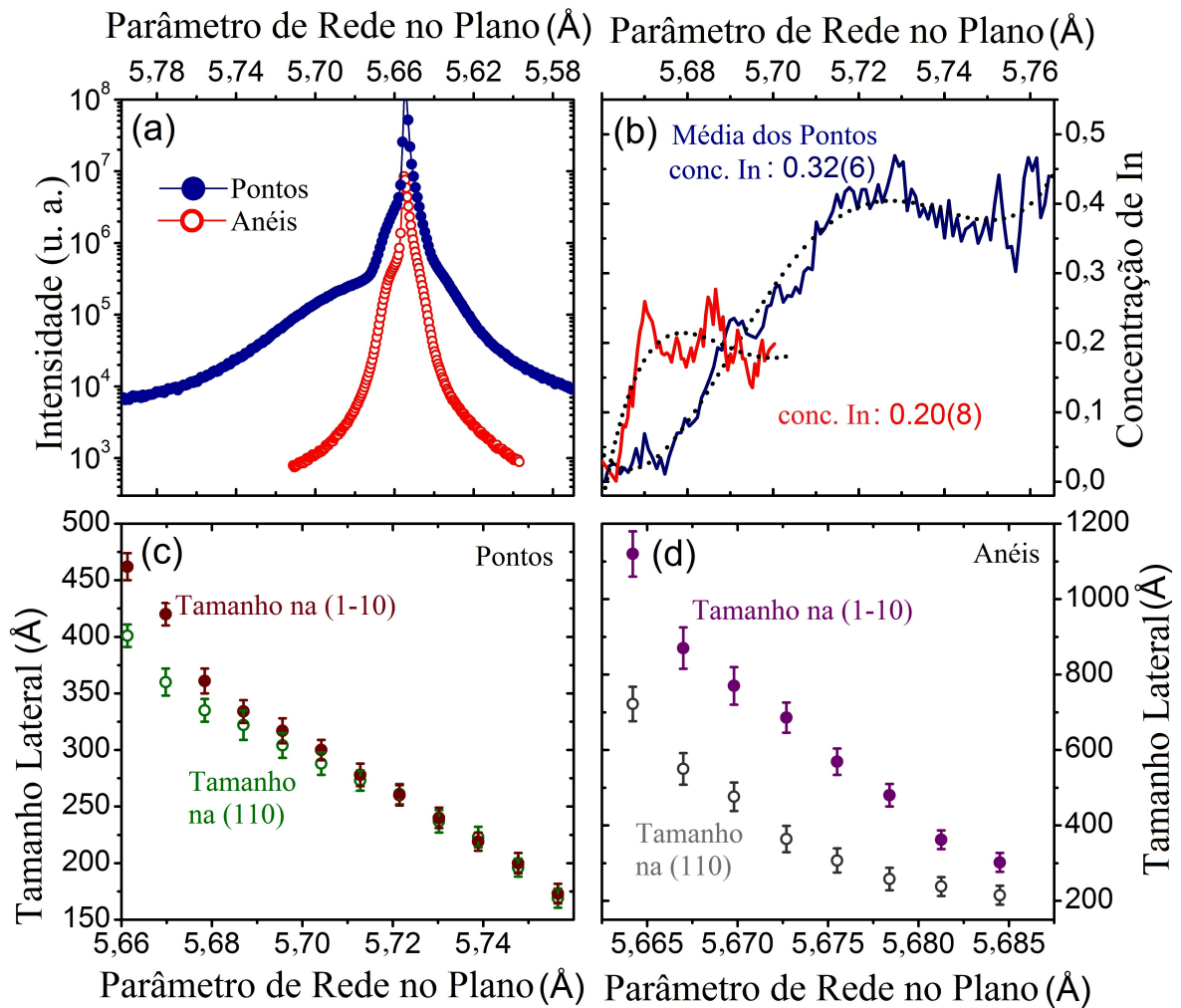


Figura 6.4: (a) Varredura radial na vizinhança do plano (220) do GaAs (pontos sólidos) e (2 $\bar{2}$ 0) (pontos abertos) para as reflexões das amostras de pontos e de anéis. (b) Mapeamento da concentração de índio em função do parâmetro de rede no plano. Tamanho lateral obtido a partir das regiões de deformação nas amostras de pontos (c) e de anéis (d) obtidas pela largura da varredura transversal.

amostras. Nesse caso, comparando as varreduras longitudinais feitas abaixo da energia na extremidade de Ga-K, é possível estimar quantitativamente as composições de Ga (ou In) como função do parâmetro de rede no plano. [7] Os perfis da composição para pontos e anéis são mostrados na Figura 6.4(b). Note que nestes dois casos a concentração aumenta gradualmente de zero para o máximo de 0,27 para anéis e 0,48 para pontos, respectivamente. A localização das regiões com cada composição dentro de anéis e pontos é, entretanto, desconhecida nesse momento através da análise nesse procedimento.

É possível também, quantificar a relaxação da deformação e fazer uma correspondência com o espaço real para as amostras através do estudo dos parâmetros de rede. Varreduras transversais (não mostradas aqui) foram realizadas para posições selecionadas das varre-

duras longitudinais da Figura 6.4(a) fixando a condição  $\theta - 2\theta$  e varrendo a amostra em único ângulo  $\theta$ . Como resultado, cortes transversais levaram a um perfil com um único pico, correspondendo a regiões dentro das amostras com parâmetro de rede fixo. Através da avaliação da largura desses cortes, pode-se restabelecer diretamente o tamanho lateral do parâmetro de rede na região do espaço real. [7] Os tamanhos dos parâmetros de rede nas direções  $[110]$  e  $[1\bar{1}0]$ , e obtidos a partir das varreduras transversais nas reflexões  $(220)$  e  $(2\bar{2}0)$ , são mostrados nas Figuras 6.4(c) e (d) para pontos e anéis, respectivamente. A partir dessas análises observa-se que o tamanho lateral do parâmetro de rede é similar para os pontos quânticos ao longo das direções  $[110]$  e  $[1\bar{1}0]$ , enquanto que uma grande anisotropia é observada para os anéis. O perfil do parâmetro de rede para os anéis é, portanto, muito mais alongado na direção  $[1\bar{1}0]$  do que na direção  $[110]$ . [3] A assinatura do efeito no tamanho da anisotropia, nestas varreduras transversais, é muito mais clara do que para varredura longitudinal devido, provavelmente, às condições de alta deformação que os anéis cobertos pela camada tampão estão sujeitos.

Embora o tamanho lateral do parâmetro de rede não possa ser usado para reconstruir um perfil tridimensional dos anéis e pontos cobertos, os resultados podem ser utilizados, entretanto, na construção de um mapa bidimensional do parâmetro de rede local para as duas amostras. Nas projeções da deformação as áreas com cada parâmetro de rede são desenhadas seguindo a equação de uma elipse  $(\frac{x^2}{L_{[100]}^2}) + (\frac{y^2}{L_{[1\bar{1}0]}^2} \leq 1)$ , onde  $x, y$  e  $L_{[100]}, L_{[1\bar{1}0]}$  são as coordenadas e o tamanho do parâmetro de rede ao longo das direções  $[110]$  e  $[1\bar{1}0]$ , respectivamente. [3] As Figuras 6.5(a) e (b) mostram as projeções do parâmetro de rede no plano  $(a//)$  para pontos e anéis quânticos obtidas a partir da avaliação das Figuras 6.4(c) e (d). O tamanho do buraco no centro dos anéis foi introduzido artificialmente levando em consideração os resultados obtidos por técnicas de AFM e de TEM.

A análise da projeção pode ser estendida através da correlação local do parâmetro de rede e os resultados da composição da Fig. 6.4(b). Uma vez que nessa figura a composição local é obtida para cada parâmetro de rede, informação da composição pode ser diretamente correlacionada com a projeção do parâmetro de rede equivalente da Fig. 6.5(a-b). Os resultados dos mapas da composição química, ou concentração de índio, são mostrados nas Figuras 6.5(c) e (d) para os pontos e anéis, respectivamente. Os mapas são baseados no ajuste polinomial representados pelas linhas tracejadas na Fig. 6.4(b), fornecendo um perfil da composição suavizada dentro da barra de erro da técnica da difração anômala

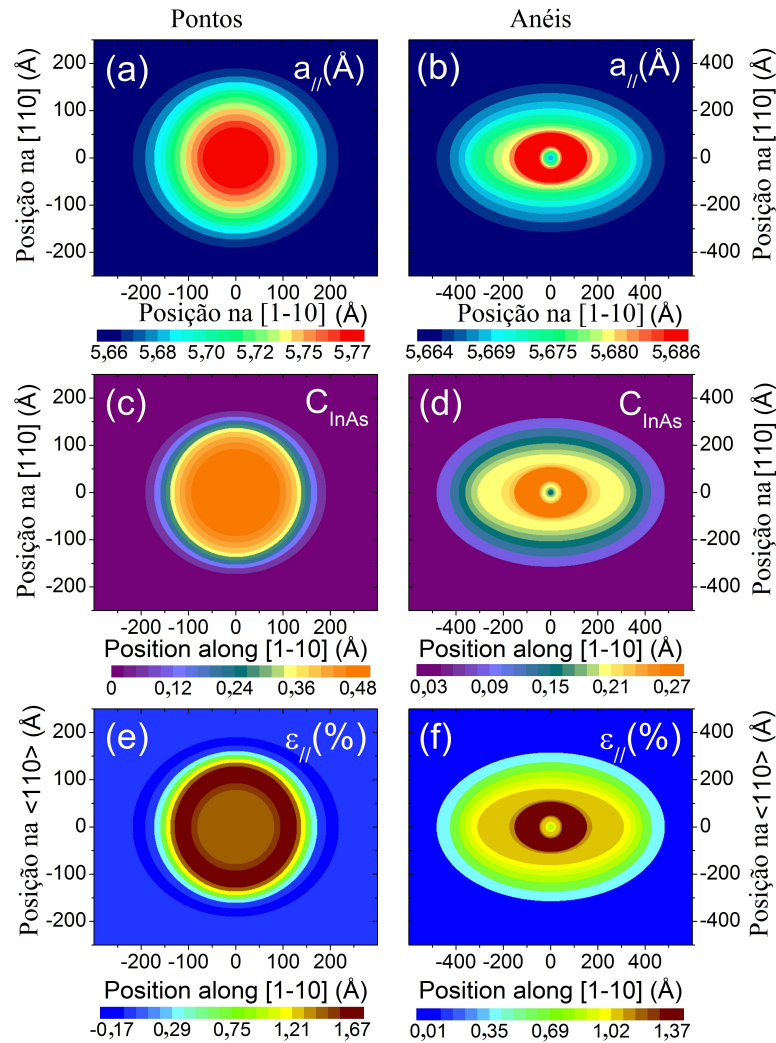


Figura 6.5: Projeções no plano do parâmetro de rede para pontos (a) e anéis quânticos (b). (c) e (d) mostram as representações da concentração de índio para cada região do parâmetro de rede dos pontos e dos anéis. Projeções da deformação elástica no plano, obtidas através da consideração do desvio do parâmetro de rede medido pela relaxação na concentração da liga, são mostradas nos painéis (e) e (f).

e evitando flutuações estatísticas que podem afetar o perfil das projeções. Os resultados das projeções mostram que as regiões centrais das duas nanoestruturas são mais ricas em índio do que as regiões externas.

Finalmente, a projeção da deformação local no plano ( $\varepsilon_{//}$ ) pode ser obtida, uma vez que  $\varepsilon_{//} = (a_{//} - a)/a$ , onde  $a_{//}$  é o parâmetro de rede local no plano a partir das projeções das Figuras 6.5(a) e (b), e  $a$  é o parâmetro de rede do material volumétrico obtido pela lei de Vegard para as ligas InAs e GaAs. Pode-se observar nos mapas das Figs. 6.5(e-f) que a região de maior deformação para os anéis está extremamente localizada na região central do anel. Por outro lado, o máximo da projeção da deformação para

os pontos quânticos é localizada em uma região de tamanho intermediário. Note que nos pontos quânticos surge uma forte deformação no centro das nanoestruturas e cuja magnitude é reduzida progressivamente em direção às extremidades. De acordo com esses resultados podemos verificar que, em média, os pontos quânticos possuem um diâmetro de 40 nm na direção  $[0\bar{1}1]$  e em torno de 37 nm na direção  $[110]$ , sendo ligeiramente assimétricos. Entretanto, essa assimetria é muito mais pronunciada nos anéis quânticos, sendo possível observar claramente uma alongação presente. Na direção  $[0\bar{1}1]$  o diâmetro mede em torno de 100 nm enquanto que na direção  $[110]$  esse valor é de 70 nm. As diferenças observadas nessas medidas comparadas com as obtidas nas imagens AFM se devem ao fato da difusão anisotrópica de índio para as bordas externas após a deposição da camada tampão e à conseqüente substituição de átomos de Ga por átomos de In (formação de ligas InGaAs). Outro efeito causado por essa migração anisotrópica é a observação de uma drástica redução na intensidade da deformação no centro da amostra. Outro fato interessante é notado quando comparamos o resultado apresentado na Figura 6.5(b) com aquele obtido por microscopia de transmissão transversalmente ao plano da amostra e mostrado na Figura 6.2(b). A imagem TEM mostrou que a distância entre os ápices dos anéis é de aproximadamente 30 nm, sendo que este mesmo valor na Figura 6.5(f) corresponde a distância na direção  $[0\bar{1}1]$  em que a intensidade da deformação é máxima. Essa boa concordância nas duas medidas corrobora as análises anteriores.

## 6.2 Caracterização Magneto-Óptica

### 6.2.1 Espectros de Fotoluminescência

Inicialmente as amostras foram estudadas opticamente pela técnica de magnetofotoluminescência (MPL) a baixas temperaturas. Na Figura 6.6(a) são mostrados os espectros de MPL em 0 e 15 T a temperatura de 2 K para os pontos quânticos, enquanto que na Figura 6.6(b) são apresentados os espectros nas mesmas condições para a amostra contendo anéis quânticos. Deve ser lembrado que a única diferença entre as amostras é que após a formação dos pontos quânticos ocorreu a deposição de uma fina camada de GaAs com 4 nm de espessura, levando à formação dos anéis. Comparando os espectros das duas amostras, observa-se um desvio grande para altas energias na posição do pico da amostra de anel em relação a de pontos quânticos. Esse desvio para o azul ( $\sim 60$  meV) é devido à redução vertical do potencial efetivo de confinamento dos anéis em relação aos pontos. [9]

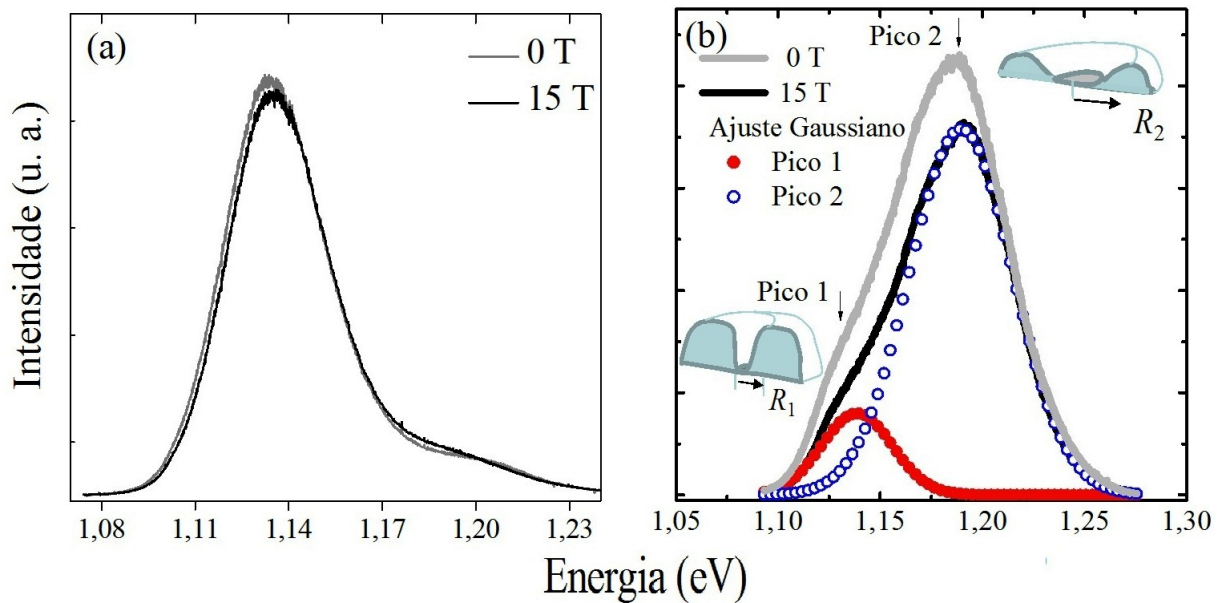


Figura 6.6: Espectros de magnetofotoluminescência a 0 e 15 T dos (a) pontos quânticos e (b) dos anéis quânticos de InAs. Para os anéis há duas bandas de energia associadas a emissões excitônicas provindas de dois grupos de anéis com diferentes tamanhos.

Nos espectros de fotoluminescência dos anéis observamos dois picos de emissão: um ombro no lado de menor energia com menor intensidade, e o pico principal no lado de maior energia com maior intensidade de emissão. Como pode ser notado na Figura 6.6(b), os espectros de PL foram deconvoluídos por duas curvas Gaussianas, uma para cada banda

de emissão. Os círculos vermelhos preenchidos representam o ajuste feito para a emissão no lado de menor energia, e os círculos azuis abertos representam o ajuste realizado para a emissão do pico de maior energia, respectivamente. Essas duas emissões são associadas à recombinação excitônica a partir de anéis com tamanhos distintos. As diferenças nas dimensões são associadas à difusão do índio após a deposição da camada fina de GaAs que leva a formação dos anéis (veja capítulo 2) e ao fato que a espessura da camada de GaAs depositada é constante, assim, pequenas flutuações na altura dos pontos quânticos levam a diferentes áreas expostas, as quais resultam em diferentes forças dirigidas para fora, criando anéis de tamanhos distintos. Como os tamanhos das nanoestruturas influenciam diretamente na energia de ligação dos éxcitons, dois conjuntos de anéis levam a emissão de duas bandas de energia. Através das posições dos picos de fotoluminescência, associa-se o ombro no lado de menor energia aos anéis quânticos com tamanhos maiores em relação aos anéis responsáveis pela emissão do pico mais intenso no lado de maior energia (veja ilustrações dos tamanhos dos anéis na Figura 6.6(b)). Essas duas emissões eram esperadas, uma vez que os resultados obtidos na microscopia de força atômica (Figura 6.1(b)) demonstraram a existência de duas famílias de anéis. A partir de agora serão analisadas as características das duas bandas de emissões dos anéis em função do campo magnético aplicado, que serão chamadas de pico 1 ou anéis 1 (QR1) e pico 2 ou anéis 2 (QR2), respectivamente.

## 6.2.2 Variação do Momento Angular

As Figuras 6.7(a) e (b) mostram o comportamento da posição do pico de energia dos espectros de MPL em função do campo magnético. Neste caso os valores dos pontos experimentais da energia foram subtraídos do valor da energia a 0 T para se obter o desvio diamagnético da energia em meV. O desvio magnético para as duas classes de anéis encontra-se em torno de 6 meV. Para o mesmo intervalo de campo magnético esse desvio nos pontos quânticos (Figura 6.6(a)) é de apenas 1,8 meV. Um critério utilizado para entender o desvio diamagnético devido a um campo magnético aplicado perpendicularmente ao plano do anel, é determinado pela extensão da função de onda do éxciton no plano do anel. Efeitos de localização levam a uma compressão da função de onda e assim reduzem a intensidade do desvio magnético. Os resultados experimentais mostram que esse desvio é claramente maior para os anéis do que para os pontos quânticos, indicando que os efeitos

de localização são desprezíveis nos anéis quando comparados a pontos quânticos. [10, 11]

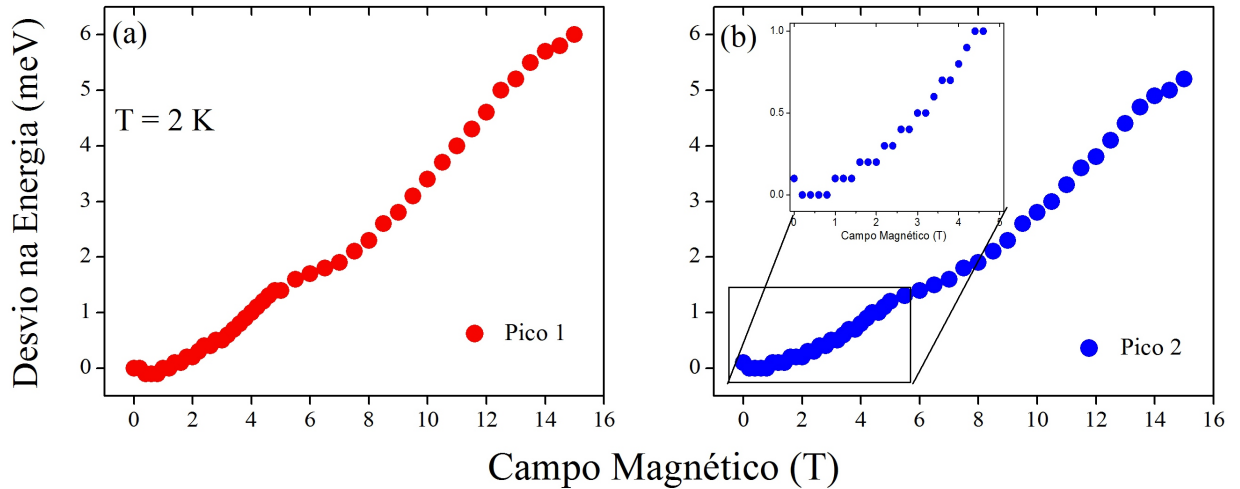


Figura 6.7: Posição do pico de energia em função do campo magnético: (a) para a emissão dos anéis de tamanhos maiores (ombro no lado de menor energia); (b) para a emissão dos anéis menores (pico principal no lado de maior energia).

Outra característica que surge dos resultados dos desvios diamagnéticos observados nas Figuras 6.7(a) e (b) são as trocas dos momentos angulares na região de 5,5 T característica de estruturas anelares quando estão sob a ação de um campo magnético externo. O *inset* da Figura 6.7(b) mostra em maiores detalhes o desvio magnético em função do campo magnético de 0 a 5 T. A aparente flutuação que aparece, menor do que 0,5 meV, no desvio magnético observado nas duas bandas de emissões é atribuída a uma flutuação sistemática obtida no processo de ajuste dos espectros de fotoluminescência por curvas Gaussianas, portanto, não podem ser consideradas como oscilações reais. Como discutido no capítulo 4, as características observadas na Figura 6.7 já foram reportadas em outros estudos. [11, 12] Entretanto, nesses trabalhos os autores associam os resultados ao efeito Aharonov-Bohm, cujo significado é um fenômeno unicamente de interferência quântica entre o potencial vetor e uma partícula carregada. No entanto, os resultados dos trabalhos onde foram estudados a posição do pico de magnetofotoluminescência, incluindo os apresentados acima, descrevem simplesmente a variação do momento angular da partícula carregada ou do éxciton com o aumento do campo magnético, que surge da quantização do momento angular quando o potencial vetor é inserido na equação de Schrödinger sob um potencial de confinamento anelar. [4]



### 6.2.3 Interferência de Aharonov-Bohm em Partículas Neutras

Como discutido acima, alguns trabalhos associam o comportamento da posição do pico de PL em função do campo magnético aplicado perpendicularmente ao plano do anel com a troca de momento angular, e outros dizem que tal comportamento é devido ao efeito Aharonov-Bohm. Essa dúvida não surge quando as oscilações são observadas na intensidade integrada, correspondente a área sob a curva do espectro de fotoluminescência, sendo que a intensidade integrada é uma grandeza que descreve a magnitude da ligação do par elétron-buraco. Nas Figuras 6.8(a) e (b) são mostrados os resultados experimentais da intensidade integrada em função do campo magnético para os dois conjuntos de anéis quânticos. Claramente são observadas oscilações para os dois casos, cuja magnitude encontra-se muito acima do erro experimental, correspondendo as oscilações de Aharonov-Bohm oriundas de éxcitons ou partículas neutras.

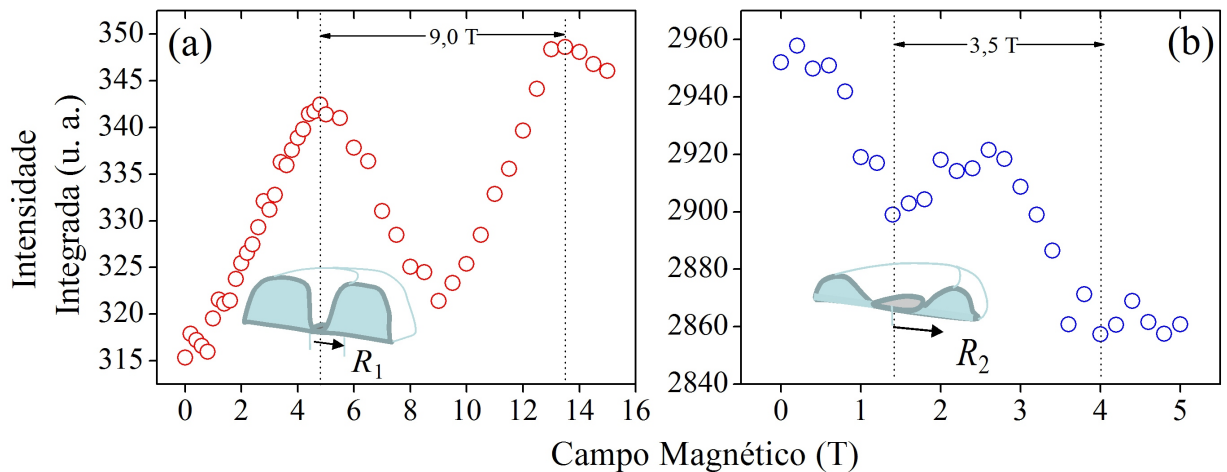


Figura 6.8: Intensidade integrada dos espectros de fotoluminescência relativas as emissões dos anéis (a) 1 e (b) 2 em função do campo magnético aplicado, respectivamente.

As oscilações observadas são claramente dependentes das dimensões dos anéis. No caso dos anéis maiores (QR1) as oscilações ocorrem em um intervalo de 15 Tesla com um período de 9 T e correspondendo ao intervalo no campo magnético entre dois máximos. Enquanto que para os anéis menores (QR2), o intervalo é de 5 T com um período de 3,5 T. Além disso, quando comparadas as duas oscilações, os máximos e mínimos ocorrem em oposição de fase, com diferentes valores nos intervalos de campo magnético e período. Na seqüência, serão explicadas as razões para os diferentes períodos e seqüências nas fases das oscilações. [13]

Vamos considerar um anel sob o efeito de um campo magnético aplicado perpendicular

ao plano do anel e concentrado no centro. O fluxo magnético que atravessa o anel deve ser igual ao fluxo quântico:

$$\Phi = \Phi_0 \quad (6.1)$$

$$B\pi r^2 = \frac{hc}{e} \quad (6.2)$$

em que  $B$  é o período do campo magnético (9 e 3,5 T),  $r$  é o raio efetivo do anel,  $h$  é a constante de Planck,  $c$  é a velocidade da luz e  $e$  é a carga elementar do elétron. Desta maneira, utilizando a equação acima, determinamos raios médios de 22,5 nm e 11,6 nm para os grupos de anéis 1 e 2, respectivamente.

A segunda característica, a seqüência fora de fase dos máximos e mínimos para os anéis 1 e anéis 2, é uma questão central nessa discussão. Para explicá-las, será desenvolvido um modelo simples para a interação do par elétron-buraco interagindo em um anel unidimensional e à temperatura de zero Kelvin, [14, 15]. Na seqüência, levaremos também em consideração a presença de campos elétricos no plano do anel e efeitos da temperatura.

O entendimento do efeito Aharonov-Bohm para partículas neutras pode ser explorado através de um modelo simples que descreve a correlação entre a interferência AB e a interação elétron-buraco. De acordo com esse modelo, o Hamiltoniano de duas partículas para um elétron e um buraco, interagindo através de um potencial de contato em um anel de raio  $R$ , largura zero e atravessado por um fluxo magnético  $\Phi = \pi R^2 B$ , é descrita por:

$$\hat{H}_0 = \frac{(\hat{P}_e + \frac{e\Phi}{2\pi Rc})^2}{2m_e} + \frac{(\hat{P}_h - \frac{e\Phi}{2\pi Rc})^2}{2m_h} - V\delta(\theta_e - \theta_h), \quad (6.3)$$

onde foi utilizado a simetria de gauge da referência [16].  $\theta_{e(h)}$  é a posição angular do elétron (buraco),  $\hat{P}_{e(h)} = \frac{\hbar}{iR}\partial/\partial\theta_{e(h)}$  e  $m_e$  e  $m_h$  são as massas efetivas do elétron e buraco, respectivamente. A interação Coulombiana de atração entre elétron e buraco foi simulada através do termo que descreve o potencial  $V\delta(\theta_e - \theta_h)$ . O parâmetro  $V$  é escolhido de tal forma que o estado fundamental do éxciton obtido neste modelo ajuste sua energia de ligação, cujo valor é de 4,35 meV. [17]

Este Hamiltoniano torna-se separável se for feita uma mudança de coordenadas do centro de massa e da posição relativa do par elétron-buraco,  $\Lambda = (m_e\theta_e + m_h\theta_h)/M$ ,  $\theta = \theta_e - \theta_h$ , respectivamente, onde  $M = m_e + m_h$ . A autofunção do éxciton será dada por:

$$\Psi(\Lambda, \theta) = \frac{e^{iJ\Lambda}}{\sqrt{2\pi}} e^{-i\frac{\Phi}{\Phi_0}\theta} \chi(\theta), \quad (6.4)$$

em que  $\Phi_0 = \frac{hc}{e}$ ,  $J$  é um número inteiro,  $\theta$  é a posição angular relativa do par elétron-buraco, e a função  $\chi$  satisfaz o teorema de Bloch e a seguinte condição de contorno: [14]

$$\chi(\pi) = e^{i2\pi p} \chi(-\pi), \quad (6.5)$$

onde  $p$  pode ser restrito à primeira zona de Brillouin com  $p \in (-1/2, 1/2]$ . É interessante notar aqui que  $|\chi(\theta)|^2$  representa a densidade de probabilidade de encontrar elétron e buraco em uma posição angular separada por um ângulo  $\theta$ . A periodicidade de  $\Psi(\Lambda, \theta)$  em  $\theta_e$  e  $\theta_h$  determina que o momento angular do centro de massa do par elétron-buraco, em unidades de  $\hbar$ , assume valores inteiros de  $J = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$  e  $\gamma J + 2(\Phi/\Phi_0 - p) \in \mathbf{Z}$  (onde  $\gamma = (m_h - m_e)/M$ ) e, ainda, esses dois parâmetros devem possuir a mesma paridade. Desta maneira, dado um valor inteiro de  $J$ , o parâmetro  $p$  pode ser determinado unicamente no intervalo  $(-1/2, 1/2]$ . Uma vez determinado o valor de  $p$ , é possível resolver o problema dos autovalores para  $\chi$  sob as condições de contorno da equação 6.5. As autofunções correspondentes podem ser determinadas exatamente e a energia do éxciton obtida a partir de um conjunto de equações transcendentais, como reportado na referência [13].

Neste momento, é fácil entender que muitas das propriedades do sistema serão invariantes quando o fluxo magnético através do anel for alterado por números múltiplos do fluxo quântico, como por exemplo, a energia do éxciton. A Figura 6.9(a) ilustra a dependência da energia excitônica a  $T = 0$  K relacionada à transição excitônica entre elétron e buraco pesado com o fluxo magnético. O primeiro nível de energia nesse caso corresponde a estados claros, ou estados que podem ser ocupados por éxcitons, enquanto que os primeiros estados excitados são estados escuros que não podem ser acessados opticamente. [18] Com o aumento do fluxo magnético, a partir de  $\Phi/\Phi_0 = 0$  até  $\Phi/\Phi_0 = 1/2$ , os estados escuros se aproximam do nível excitônico.

É possível analisar também em função do fluxo magnético a força de oscilador, que é relacionada ao movimento relativo do par elétron-buraco, descrito por  $\chi$  na equação 6.4. A temperatura de zero Kelvin, a força de oscilador do estado fundamental,  $J = 0$ , é dada por:

$$I_0 = \left| \int_0^{2\pi} \Psi_0(\Lambda, 0) d\Lambda \right|^2 = \frac{|\chi(0)|^2}{2\pi}, \quad (6.6)$$

sendo uma função periódica do fluxo magnético, como representado na Figura 6.9(b). Nesses cálculos foram considerados os seguintes parâmetros de banda do InAs: massa no plano  $m_h = (\gamma_1 + \gamma_2)^{-1}$  e  $m_e = 0,026$ , onde  $\gamma_1 = 20,4$ , e  $\gamma_2 = 8,3$ . [17] Note que foram

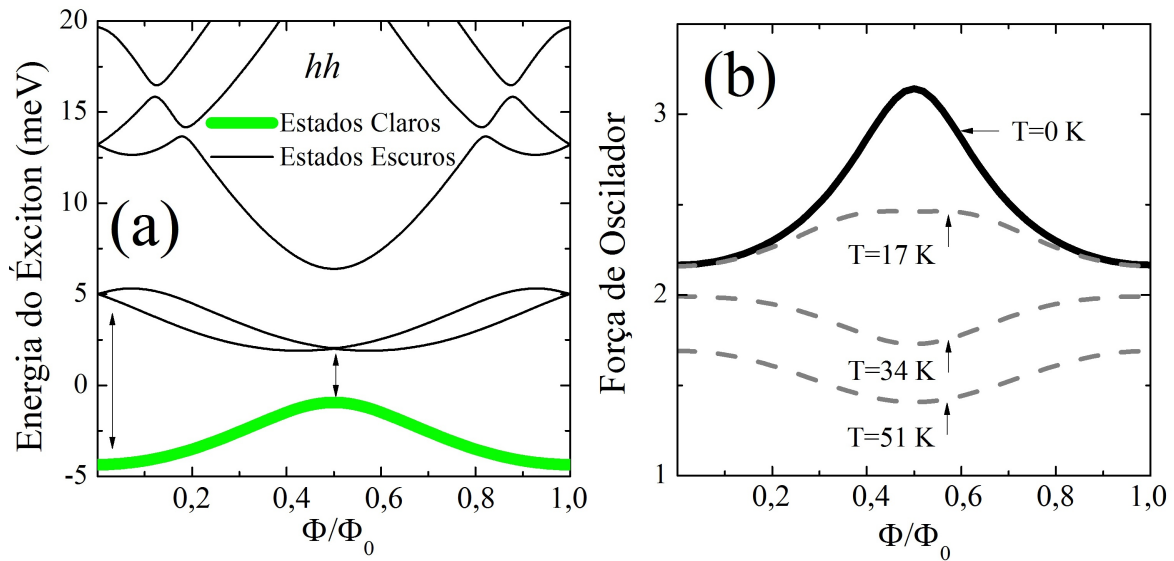


Figura 6.9: Dependência do fluxo magnético para os primeiros estados do nível excitônico relacionado ao buraco pesado com energia de ligação de 4,35 meV: a curva em verde corresponde a éxcitons em estados claros, enquanto que as curvas em cinza correspondem a éxcitons oriundos de estados escuros. (b) Força de oscilador à diferentes temperaturas como função do campo magnético.

usadas as massas de buraco pesado no plano (100), presumindo que o éxciton relacionado ao buraco leve, com massa  $m_h = (\gamma_1 - \gamma_2)^{-1}$ , ocupa posições em energia mais elevadas devido a efeitos de compressão/deformação.

Para entender melhor as oscilações apresentadas na Figura 6.9(b), em termos da interferência Aharonov-Bohm, mostramos na Figura 6.10(a) o cálculo da densidade de probabilidade  $|\chi|^2$  para fluxo zero e  $\Phi/\Phi_0 = 1/2$ , e sua relação com a força de oscilador (Figura 6.10(b)). Para os dois casos de fluxos magnéticos, a função  $\chi^2$  tem período de  $2\pi$ , mas para  $\Phi/\Phi_0 = 1/2$ , a função de onda  $\chi$  satisfaz a condição de contorno anti-periódica da eq. 6.5, levando a um cancelamento da densidade de probabilidade em  $\theta = \pm\pi$ , o qual simula um aumento no confinamento da função de onda e, conseqüentemente, sua concentração próximo a  $\theta = 0$ . Os resultados apresentados nessa figura mostram claramente que tanto para a aplicação de um fluxo magnético, quanto para o caso de fluxo zero, a densidade de probabilidade de encontrar elétron e buraco pesado juntos é máxima. Sem a presença do fluxo magnético, existe uma probabilidade em torno de 10% de encontrar elétron e buraco em direções opostas dentro do anel, entretanto, quando o fluxo magnético é aplicado e igual a  $1/2$ , essa probabilidade é nula, mostrando que é impossível encontrar elétron e buraco em posições opostas, como ilustrado na Figura 6.10(a). A correspondência entre a probabilidade de se encontrar elétron e buraco juntos ou separados com

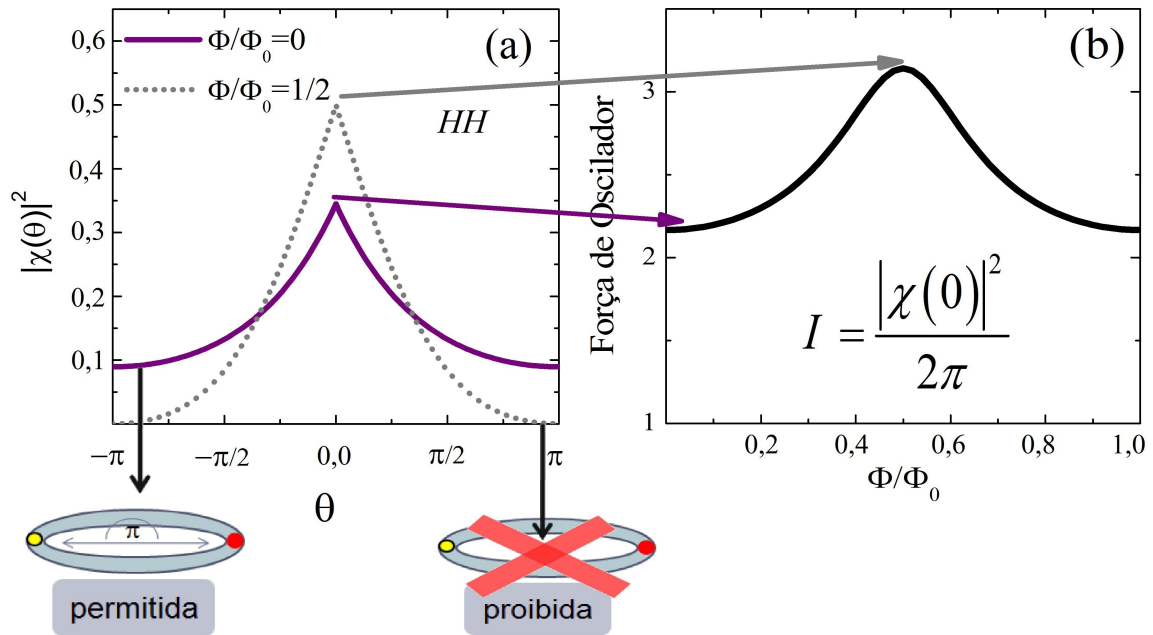


Figura 6.10: Densidade de probabilidade de encontrar elétron e buraco pesado em diferentes posições angulares  $\theta$ : Linhas contínuas correspondem a  $\Phi = 0$  e linhas pontilhadas a  $\Phi/\Phi_0 = 1/2$ . Os desenhos da parte inferior ilustram onde é possível ou não se encontrar elétron e buraco em direções opostas dentro do anel. (b) Intensidade da força de oscilador em função do fluxo magnético em  $T = 0$  K.

a força de oscilador é apresentada na (Figura 6.10(b)). Na região onde  $\chi^2$  é máximo, a curva com fluxo magnético igual a zero corresponde a um mínimo na força de oscilador, enquanto que  $\Phi/\Phi_0 = 1/2$  corresponde a um máximo na força de oscilador.

É importante salientar aqui que se a interação entre elétron e buraco não for considerada, ou seja, o segundo termo que simula o potencial de interação Coulombiana na Hamiltoniana da eq. 6.3 for desprezado, a correlação  $e - hh$  desaparece e as oscilações da força de oscilador se anulam. Portanto, a ligação Coulombiana que existe entre as partículas, mesmo que seja relativamente fraca por ser uma interação de curto alcance, é fundamental para a observação da interferência de Aharonov-Bohm através das oscilações na intensidade integrada dos espectros de fotoluminescência, como foi sugerido nas referências [18, 19]. As Figuras 6.11(a) e (b) ilustram como são os movimentos relativos de elétrons e buracos pesados dentro do anel com (partículas correlacionadas) e sem (partículas não-correlacionadas) a interação Coulombiana, respectivamente.

Como demonstrado no capítulo 2, Baranwal e colaboradores demonstraram recentemente que a concentração de índio em anéis de InAs é máxima no ápice do anel e tem seu valor reduzido à medida que se afasta do centro para as extremidades. [20] Esses resultados foram confirmados em nossos anéis mesmo após a cobertura das nanoestruturas com a

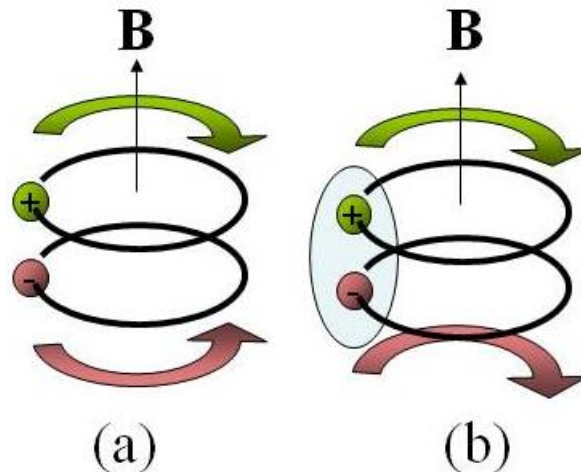


Figura 6.11: Movimento relativo entre elétrons e buracos (a) sem considerar (partículas não-correlacionadas) e (b) considerando (partículas correlacionadas) a interação Coulombiana. No primeiro caso elétrons e buracos deslocam-se em direções contrárias devido às cargas elétricas serem opostas. No segundo as duas cargas elétricas movem-se juntas (centro de massa) ao longo do anel.

camada tampão de GaAs, como demonstrado na Figura 6.3. A diferença na concentração de índio ao longo do anel cria um maior potencial de confinamento na região onde há mais In, atraindo o par elétron-buraco na região do ápice do anel e deslocando sua função de onda na direção do centro do anel. Essa característica associada aos efeitos piezoelétricos presente nos anéis introduz um momento de dipolo efetivo entre o par elétron-buraco, deslocando o buraco para o fundo e o elétron para o topo do anel. [21] O momento de dipolo do éxciton dentro do anel é positivo e foi determinado experimentalmente que o centro de gravidade do elétron é aproximadamente 1 nm acima do centro de gravidade do buraco. [22] Esses resultados estão em acordo com a teoria desenvolvida nessa tese que demonstra que elétron e buraco circunscrevem o anel juntos próximos ao raio interno.

#### 6.2.4 Efeitos do Campo Elétrico

A presença de um campo elétrico interno no plano nos anéis é um efeito que também gera assimetria e poderia levar à inversão do máximo da força de oscilador, e conseqüentemente explicar a ocorrência de inversão de máximos e mínimos nas oscilações AB observadas nas Figuras 6.8(a) e (b). Campos internos são causados pela compressão uniaxial e a subsequente piezoeletricidade que pode ser relativamente forte em estruturas de pontos quânticos de InGaAs, devido ao descasamento do parâmetro de rede entre GaAs e InAs. [21, 23] O campo elétrico  $F$  no plano ao longo do eixo- $x$  pode ser introduzido na

Hamiltoniana do sistema como:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + eFR(\cos(\theta_e) - \cos(\theta_h)). \quad (6.7)$$

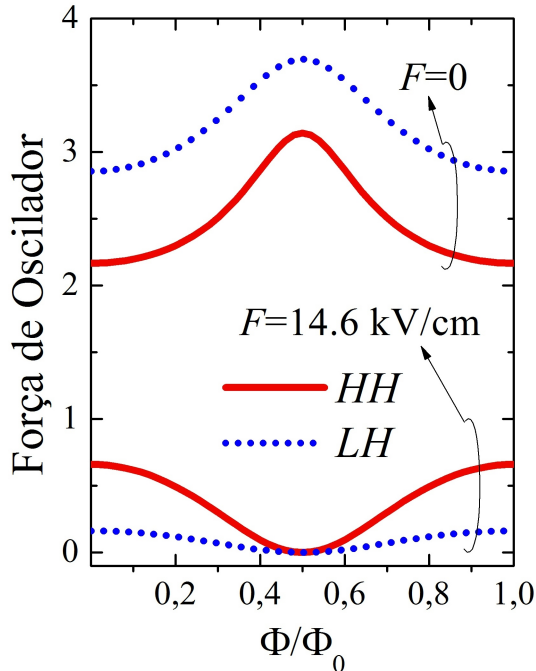


Figura 6.12: Estado fundamental da força de oscilador para éxcitons de buracos pesados (curvas sólidas) e para buracos leves (curvas pontilhadas) como função do fluxo magnético e para dois valores de campos elétricos no plano.

Para resolver esse problema, é possível adotar um conjunto de bases das autofunções de  $\hat{H}_0$  para encontrarmos as novas soluções. É relativamente fácil mostrar que o campo elétrico somente acopla estados cujo momento angular do centro de massa [ $J$  na eq. 6.4] difere de um. Em termos gerais, espera-se que a força de oscilador diminua com o aumento do campo elétrico, uma vez que a separação entre elétrons e buracos será aumentada. Na Figura 6.12 é mostrado o comportamento da força de oscilador como função do fluxo magnético aplicado tanto para éxcitons relacionados com o buraco pesado quanto para o buraco leve com dois valores de campo elétrico no plano para  $T = 0$  K. [13] A inversão no máximo da força de oscilador com a aplicação do campo elétrico é evidente, mostrando que a presença de um campo elétrico na amostra pode justificar as diferentes seqüências de máximos e mínimos nas oscilações Aharonov-Bohm observadas para os dois tamanhos de anéis. Quanto maior for a magnitude do campo elétrico, maior será a projeção dos estados ímpares do estado fundamental com uma função angular par  $\chi$ . Isso é particularmente importante para  $\Phi/\Phi_0 = 1/2$  acima do campo crítico, quando o estado fundamental é

uma função ímpar com força de oscilador nula. [13] Certamente, para um anel quântico de largura (seção reta) finita, essa redução extrema não deve ser esperada.

Os efeitos de campos elétricos internos em anéis discutidos acima foram descritos em trabalhos anteriores em anéis alongados. [21] Como discutido no capítulo 2, durante o crescimento de anéis de InAs, devido às diferenças nos parâmetros das ligas, uma anisotropia nos campos de compressão/expansão é formada no plano (001) levando a uma elongação dos anéis na direção  $[1\bar{1}0]$ . [24] Esse efeito que é observado em muitos anéis de InAs/GaAs leva à formação de campos elétricos internos devido aos efeitos de piezoelectricidade. Para verificar a presença destes campos foram feitas medidas de fotoluminescência em função da intensidade de excitação do laser.

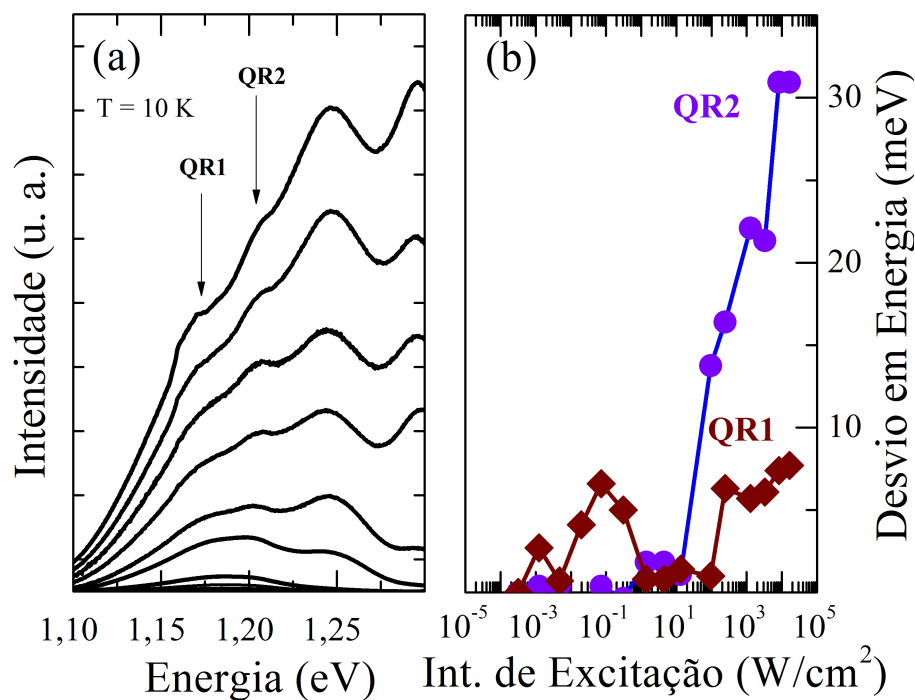


Figura 6.13: (a) Espectros de fotoluminescência em função da intensidade de excitação no intervalo de  $0,36 \text{ mW/cm}^2$  -  $16,4 \text{ kW/cm}^2$ . (b) Posição do pico dos espectros de PL em função da intensidade de excitação.

A Figura 6.13(a) apresenta os espectros de fotoluminescência a 10 K em função da intensidade de excitação. Com o aumento da intensidade de excitação, surgem picos adicionais no lado de maior energia, atribuídos ao preenchimento dos estados excitados do grupo de anéis (QR2) com menores espessuras (banda de emissão dominante). Com o aumento da intensidade de excitação do laser, há um aumento na população de portadores nos anéis, que leva a uma blindagem do campo elétrico interno.

A Figura 6.13(b) mostra os resultados do desvio da energia (posições dos picos de



energia subtraídos do valor da posição do pico para menor intensidade de excitação) em função da intensidade de excitação. Fica claro que para os anéis quânticos maiores e mais achatados (*QR2*) há um desvio para altas energias, sugerindo que há uma blindagem do campo elétrico interno nesses anéis. Esse desvio para altas energias no entanto, não é observado para os anéis menores e mais espessos (*QR1*), onde a posição do pico permanece praticamente constante com a variação da intensidade de excitação, mostrando que para essa classe de anéis os efeitos de campos elétricos são desprezíveis. Esses resultados corroboram a hipótese do modelo teórico usado para explicar a intensidade das oscilações observadas nas emissões das bandas nos experimentos de magnetofotoluminescência. Entretanto, um ponto que não está claro é porque os efeitos do campo elétrico interno nos *QR1* são desprezíveis, enquanto que os efeitos da alongação deveriam existir em todos os anéis. Uma possível explicação para isso é que a largura dos anéis correspondente aos *QR1* é maior que para os *QR2*, como demonstrado acima, e os efeitos de tensão podem ser menores para os *QR1* do que para os *QR2*, assim resultando em um campo piezoelétrico muito menor. Portanto, as seqüências de mínimos e máximos observados nas oscilações da intensidade dos *QR2*, são atribuídos ao efeito Aharonov-Bohm combinado com a presença de um campo elétrico no plano dos anéis.

Para confirmar os resultados sobre esta questão do campo elétrico, foram realizados experimentos de fotoluminescência usando luz da emissão polarizada linearmente para avaliarmos os efeitos da anisotropia das nanoestruturas. Os espectros de fotoluminescência linearmente polarizados dos pontos e anéis quânticos para as direções  $[110]$  e  $[1\bar{1}0]$  a 10 K são mostrados nas Figuras 6.14(a) e (b), respectivamente. Na Figura 6.14(c) são apresentadas as curvas Gaussianas utilizadas para ajustar os picos (*QR1* e *QR2*) da Figura 6.14(b). Como pode ser observado, os picos dos anéis no lado de menor energia têm as mesmas intensidades para polarizações lineares nas duas direções perpendiculares, isto é, a altura dos picos são as mesmas, assim, a polarização para essa classe de anéis é nula. Por outro lado, o pico principal dos anéis assim como os picos dos pontos quânticos exibem uma polarização de aproximadamente 5%.

Mesmo para anéis perfeitamente simétricos, onde as posições médias de elétrons e buracos são iguais, existe uma separação dos picos de densidade de probabilidade dos portadores nas respectivas direções perpendiculares. [21] É esperado que para anéis assimétricos, essa separação seja maior, e a presença de um campo piezoelétrico quebraria

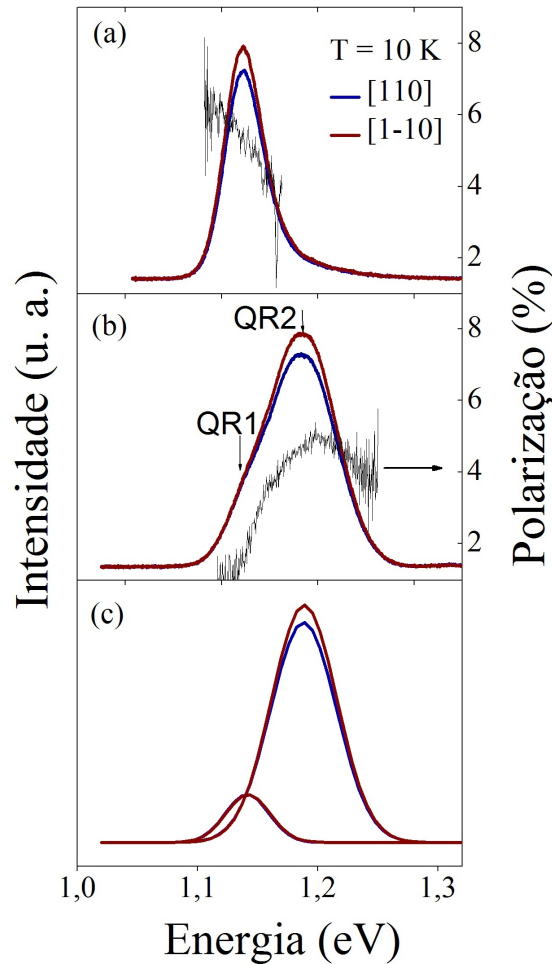


Figura 6.14: Medidas de fotoluminescência resolvidas em polarização linear para (a) pontos quânticos e (b) anéis quânticos. Na escala a direita é mostrado o grau de polarização. (c) Curvas gaussianas utilizadas para deconvoluir os espectros dos anéis.

a simetria cilíndrica do par elétron-buraco, distanciando os portadores um do outro. O quão longe os portadores podem ser separados é uma dependência direta da intensidade do campo piezoelétrico. Se o campo é forte, então a função de onda do elétron/buraco será localizada em um mínimo de potencial com uma fraca sobreposição nas suas funções de ondas. Por outro lado, se o campo piezoelétrico é fraco, a função de onda do elétron será delocalizada em torno do anel devido à sua pequena massa efetiva, embora a função de onda do buraco permaneça mais localizada. [21] Dessa maneira, o campo piezoelétrico pode ser mais forte em anéis *QR2* do que em anéis *QR1*. Para o primeiro caso quando esse campo é fraco, as funções de onda de elétrons e buracos são extendidas no anel (uma vez que a razão entre os raios nas direções  $[110]$  e  $[1\bar{1}0]$  é pequena), e nenhuma polarização poderia ser observada nos espectros de PL, como foi demonstrado na Fig. 6.14(b), assim como o desvio para altas energias da posição do pico em função da intensidade de excita-

ção mostrada na Figura 6.13 ser nulo. O grau de polarização apresentado pelos anéis do pico de maior emissão ( $QR2$ ) é então devido ao intenso campo piezoelétrico dentro desse conjunto de anéis e à assimetria nas duas direções perpendiculares, também confirmado pelo desvio para altas energias da posição do pico em função da intensidade de excitação. Outro ponto que pode ser levado em consideração aqui é relacionado com a altura dos anéis. De acordo com Warburton e colaboradores, [22] a tensão é mais concentrada em anéis com altura menor do que em anéis com alturas maiores. Assim, pode ser considerado que o conjunto de anéis 2 possui uma altura menor do que os anéis 1, o que está em boa concordância com os resultados de polarização linear mostrados aqui, assim como a hipótese inicial sobre as dimensões dos dois conjuntos de anéis.

Os resultados obtidos com essas medidas de polarização linear também estão em bom acordo com os resultados obtidos por difração de raios-X apresentados na Figura 6.5, onde foram mapeados a deformação/compressão ao longo dos planos dos pontos e anéis quânticos, respectivamente. Como também foi discutido no capítulo 4, a grande maioria dos artigos teóricos propunham que para ser observado o efeito AB em partículas neutras, deveria necessariamente haver a presença de um campo elétrico que separasse o par elétron-buraco, criando assim as condições apropriadas para a observação desse efeito. Um dos méritos dessa tese foi demonstrar que é possível a existência do efeito Aharonov-Bohm mesmo sem a presença desse campo elétrico, mostrando assim, que a característica fundamental para a observação deste fenômeno é a correlação excitônica.

## 6.2.5 Efeitos da Temperatura

Um segundo efeito investigado que poderia ser o causador da inversão nas seqüências de máximos e mínimos nas oscilações é a temperatura. Para levar em consideração esse efeito, a equação 6.6 pode ser escrita de uma maneira mais geral como:

$$I(T) = \frac{\sum_J I_J e^{-E_J/k_B T}}{\sum_n e^{-E_n/k_B T}}, \quad (6.8)$$

onde  $I_J$  é a força de oscilador para o  $n$ -ésimo estado  $J$  com função de onda  $\Psi_J$ ,  $I_J = |\int_0^{2\pi} \Psi_J(\Lambda, 0) d\Lambda|^2$ . Voltando agora nas Figs. 6.9(a) e (b), a Figura 6.9(a) foi calculada a energia do éxciton a  $T=0$  K como função do fluxo magnético, e encontrado o comportamento do estado fundamental (estados claros) e os primeiros estados excitados (estados escuros). Com o aumento da temperatura, portadores começam a popular níveis de mais

altas energias com a conseqüente diminuição da ocupação do estado fundamental, fazendo com que os níveis de estado claro e escuro se aproximem, reduzindo a força de oscilador e sua amplitude. Para temperaturas relativamente altas, o efeito da temperatura transforma o máximo da força de oscilador em um mínimo em  $\Phi/\Phi_0 = 1/2$  para éxcitons relacionados ao buraco pesado, como mostrado na Figura 6.9(b). Portanto, a temperatura é o segundo efeito capaz de explicar as inversões nos máximos e mínimos das oscilações referentes às duas classes de anéis.

Para investigar esse efeito, foram realizados experimentos de fotoluminescência em função da temperatura no intervalo de 10 a 280 K. A Figura 6.15 mostra espectros de fotoluminescência para diferentes valores de temperatura. No regime de baixas temperaturas os espectros de PL são dominados pela emissão dos anéis quânticos *QR2*. Com o aumento da temperatura, a intensidade relativa entre as emissões dos anéis *QR1* e *QR2* modifica-se, sendo que acima de 160 K a intensidade de emissão dos anéis *QR1* supera a intensidade de emissão dos anéis *QR2*. Essa inversão a altas temperaturas é atribuída a a transferência de portadores entre as duas classes de anéis via camada molhada, favorecendo os estados de menores energias, similarmente aos efeitos já observados em pontos quânticos.

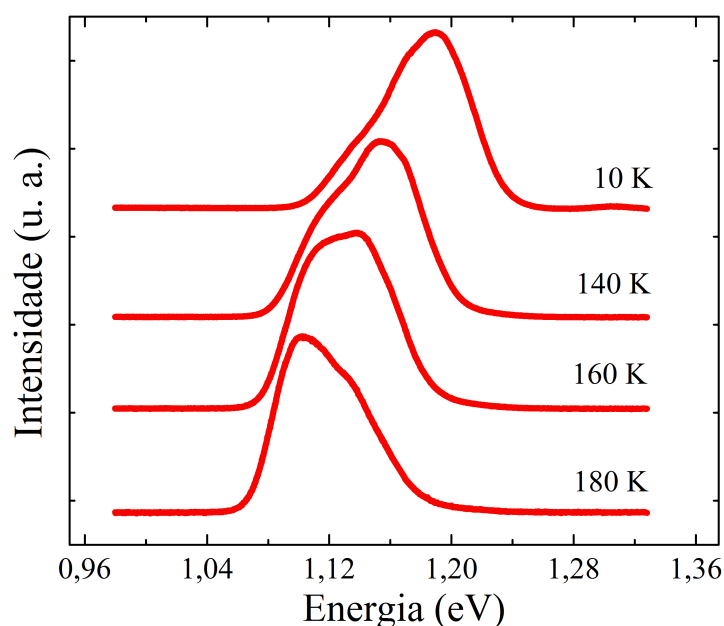


Figura 6.15: Espectros de fotoluminescência dos dois conjuntos de anéis quânticos em função da temperatura.

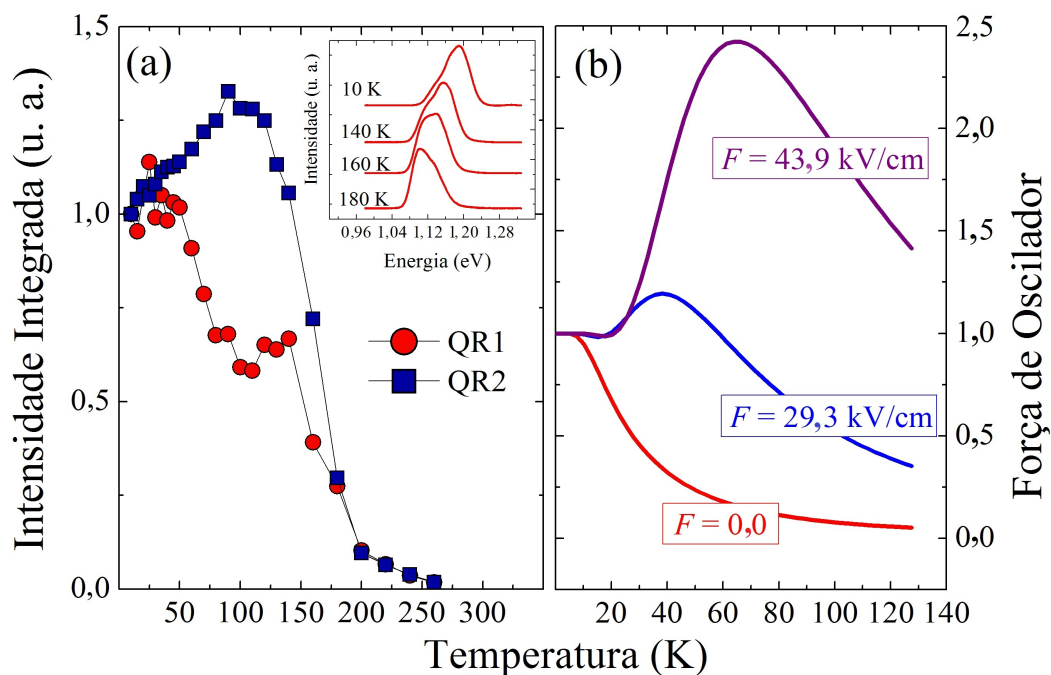


Figura 6.16: Intensidade integrada normalizada a 10 K em função da temperatura, para as emissões dos dois conjuntos de anéis. (b) Cálculo da força de oscilador (normalizada a 0 K) em função da temperatura e para três diferentes intensidades de campos elétricos.

Na Figura 6.16 é mostrado o comportamento da intensidade integrada da PL para cada banda de emissão em função da temperatura. O decaimento da intensidade integrada com a temperatura é esperado devido à ocupação de estados escuros (Fig. 6.9). Entretanto, como pode ser observado, para os anéis quânticos 2 há um aumento na intensidade integrada entre 10 K e 100 K, enquanto que para a primeira classe de anel só existe uma diminuição da intensidade com o aumento da temperatura. A Figura 6.16(b) é o resultado da força de oscilador em função da temperatura considerando diferentes valores de campos elétricos. Quando o campo elétrico é zero, a curva teórica reproduz os resultados da intensidade integrada dos anéis quânticos do grupo 1 (*QR1*). Considerando a presença de um campo elétrico interno nos anéis, a força de oscilador apresenta um aumento na sua magnitude considerando o intervalo de temperatura de 0 a 100 K aproximadamente, reproduzindo os resultados obtidos para a intensidade integrada dos anéis quânticos do grupo 2 (*QR2*). Portanto, os resultados mostram novamente, em corroboração com os resultados obtidos através do estudo da intensidade de excitação, que existe de fato um campo elétrico interno nos anéis do grupo 2 (*QR2*), enquanto que esse campo nos anéis do grupo 1 é desprezível.

A Figura 6.17 mostra os resultados da intensidade integrada em função do inverso da

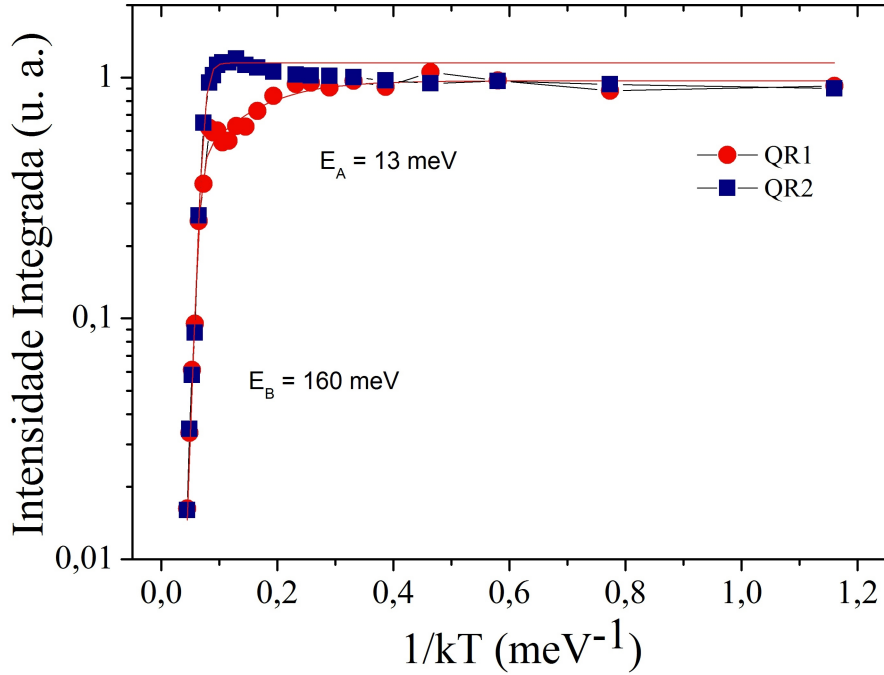


Figura 6.17: Intensidade integrada em função do inverso da temperatura, para as emissões dos dois grupos de anéis.

temperatura para os dois conjuntos de anéis. Os dados experimentais foram fitados pela equação descrita no capítulo 2:

$$I = \frac{I_0}{1 + A \exp\left(-\frac{E_A}{k_B T}\right) + B \exp\left(-\frac{E_B}{k_B T}\right)}, \quad (6.9)$$

onde  $E_A$  e  $E_B$  são as energias de ativação térmica. Essas energias foram obtidas pelo diagrama de Arrhenius, de onde é possível inferir informações sobre a transferência de portadores. Uma das energias de ativação obtida para os anéis do grupo 1 é de  $E_A = 13 \text{ meV}$ , valor próximo a separação de energia entre os estados claros e escuros mostrados na Figura 6.9(a). Esta mesma energia não foi obtida para os anéis do conjunto 2 devido ao comportamento anômalo da intensidade integrada (aumenta com a temperatura até o valor de 100 K), não permitindo um ajuste preciso dos pontos experimentais nesse intervalo de temperatura. O valor obtido da segunda energia de ativação foi de aproximadamente 160 meV, relacionada à energia correspondente à temperatura ( $T > 150 \text{ K}$ ) na qual inicia-se o processo de dissociação dos éxcitons. Esse valor é aproximadamente o mesmo para as duas classes de anéis. A energia de 160 meV é aproximadamente o valor estimado para a separação de energia entre anéis quânticos e a camada molhada. Esse resultado confirma que a inversão nas seqüências de máximos e mínimos para os anéis do grupo 2 (QR2) da Figura 6.8(b) não pode ser atribuído a efeitos induzidos pela temperatura, uma vez

que somente para temperaturas acima de  $T = 150$  K observa-se uma redução efetiva da ocupação do estado fundamental. Contudo, este valor estimado é muito acima do que a temperatura em que as oscilações foram detectadas,  $T = 2$  K. Assim, nossa interpretação é que as oscilações AB em partículas neutras são produzidas pelas assimetrias induzidas pelos campos piezoelétricos internos.

# Referências Bibliográficas

- [1] D. Granados and J. M. García, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 2401 (2003).
- [2] A. Lorke, R. Blossey, J. M. García, M. Bichler, and G. Abstreiter, *Mater. Sci. Eng. B* **88**, 225 (2002).
- [3] L. Villegas-Lelovsky, M. D. Teodoro, V. Lopez-Richard, C. Calseverino, A. Malachias, E. Marega Jr., B. L. Liang, Yu. I. Mazur, G. E. Marques, C. Trallero-Giner, and G. J. Salamo, *Nanoscale Res. Lett.* **6**, 56 (2010).
- [4] A. Lorke, R. J. Luyken, A. O. Govorov, J. P. Kotthaus, J. M. García, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2223 (2000).
- [5] P. Offermans, P. M. Koenraad, J. H. Wolter, D. Granados, J. M. García, V. M. Fomin, V. N. Gladilin, and J. T. Devreese, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 131902 (2005).
- [6] A. Malachias, R. Magalhães-Paniago, B. R. A. Neves, W. N. Rodrigues, M. V. B. Moreira, H.-D. Pfannes, A. G. de Oliveira, S. Kycia, and T. H. Metzger, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 4342 (2001).
- [7] L. N. Coelho, R. Magalhães-Paniago, A. Malachias, J. G. Zelcovit, and M. A. Cotta, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 021903 (2008).
- [8] A. Malachias, W. N. Rodrigues, M. V. B. Moreira, S. Kycia, and R. Magalhães-Paniago, *J. Phys. D* **36**, 249 (2003).
- [9] F. Suárez, D. Granados, M. L. Dotor, and J. M. García, *Nanotechnology* **15**, 126 (2004).
- [10] M. Bayer, S. N. Walck, T. L. Reinecke, and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **57**, 6584 (1998).



- [11] M. Bayer, M. Korkusinski, P. Hawrylak, T. Gutbrod, M. Michel, and A. Forchel, Phys. Rev. Lett. **90** 186801 (2003).
- [12] I. R. Sellers, V. R. Whiteside, I. L. Kuskovsky, A. O. Govorov, and B. D. McCombe, Phys. Rev. Lett. **100**, 136405 (2008).
- [13] Andrea M. Fischer, V. L. Campo Jr., M. E. Portnoi, and R. A. Römer, Phys. Rev. Lett. **102**, 096405 (2009).
- [14] A. Chaplik, Pis'ma Zh. Éksp, Teor. Fiz., **62**, 885 (1995) [JETP Lett. **62**, 900(1995)]
- [15] R. A. Römer and M. E. Raikh, Phys. Rev. B **62**, 7045 (2000), Phys. Stat. Sol. (b), **221**, 535 (2000).
- [16] Y. Aharonov and D. Bohm, Phys. Rev. **115**, 485 (1959).
- [17] Landölt-Börnstein Comprehensive Index, edited by O. Madelung and W. Martienssen (Springer, Berlin, 1996).
- [18] A. O. Govorov, S. E. Ulloa, K. Karrai, and R. J. Warburton, Phys. Rev. B **60**, 081309(R) (2002).
- [19] T. Chakraborty and P. Pietiläinen, Phys. Rev. B **50**, 8460 (1994).
- [20] V. Baranwal, G. Biassol, S. Heun, A. Locatelli, T. O. Mendes, M. N. Orti, and L. Sorba, Phys. Rev. B **80**, 155328 (2009).
- [21] J. A. Barker, R. J. Warburton, and E. P. O'Reilly, Phys. Rev. B **69**, 035327 (2004).
- [22] R. J. Warburton, C. Schulhasuer, D. Haft, C. Shäflein, K. Karrai, J. M. García, J. M. García, W. Shoenfeld, and P. M. Petroff, Phys. Rev. B **65**, 113303 (2002).
- [23] A. Schliwa, M. Winkelkemper, and D. Bimberg, Phys. Rev. B **76**, 205324 (2007).
- [24] M. Hank, Yu. I. Mazur, E. Marega Jr., Z. Y. AbuWaar, G. J. Salamo, P. Schäfer, and M. Schmidbauer, Appl. Phys. Lett. **91**, 043103 (2007).

# Capítulo 7

## Conclusão

Nessa tese de Doutorado demonstramos pela primeira vez, utilizando espectroscopia óptica, o efeito Aharonov-Bohm em partículas neutras modulado pela existência de um campo elétrico interno. As oscilações de Aharonov-Bohm, observadas através da intensidade integrada dos espectros de fotoluminescência em função do campo magnético, são consistentes com a existência de dois conjuntos de anéis quânticos com diferentes tamanhos. As diferenças nas dimensões das nanoestruturas levaram à existência de oscilações com diferentes períodos e inversões nos seus máximos e mínimos. Tais inversões nas sequências desses máximos e mínimos foram explicadas através de um modelo teórico simples para um anel no qual foi considerada tanto a correlação entre elétron e buraco como inclui os efeitos de temperatura e de campo elétrico interno planar.

A presença do campo elétrico foi confirmada experimentalmente através da análise dos efeitos do aumento da intensidade de excitação sob a recombinação excitônica em experimentos de fotoluminescência, mostrando que o campo elétrico é dependente das dimensões anelares. Através da mesma técnica, efeitos causados pela temperatura confirmaram as hipóteses do campo elétrico interno, assim como descartaram a temperatura como sendo uma outra possível causa para a inversão das fases das oscilações, uma vez que os experimentos com campo magnético foram realizados em temperaturas bem inferiores àquela em que a presença de estados escuros tornam-se relevantes.

Mostramos ainda as diferenças nas propriedades morfológicas e ópticas em amostras de anéis quânticos em relação a outra amostra com um conjunto idêntico de pontos quânticos que não foram transformados em anéis. Através das imagens de microscopia de força atômica e de microscopia eletrônica de transmissão determinamos as dimensões das

nanoestruturas antes e depois da deposição da camada tampão. De forma inédita, a concentração de índio e a configuração da compressão/expansão do parâmetro de rede ao longo do plano dos anéis foram determinadas pelas técnicas de TEM e difração de raios-X utilizando luz síncrotron, respectivamente.

Portanto, demonstramos que os efeitos piezoelétricos induzem a modulação das oscilações de Aharonov-Bohm. Além disso, a interação Coulombiana é um fator crucial para as observações relatadas nessa tese; sem ela, a correlação entre elétron e buraco não existiria e as oscilações AB não seriam observadas.

Esperamos que estes estudos sejam usados em trabalhos futuros para estudos de outros materiais nanoestrurados.

## 7.1 Publicações no Período da Tese

- V. G. Dorogan, Zh. M. Wanga, Vas. P. Kunets, M. Schmidbauer, Y. Z. Xie, M. D. Teodoro, P. M. Lytvyn, Yu. I. Mazur, and G. J. Salamo, Materials Letters, aceito para publicação, (2011).
- L. F. dos Santos, Y. Galvão Gobato, M. D. Teodoro, V. Lopez-Richard, G. E. Marques, M. J. S. P. Brasil, M. Orlita, J. Kunc, D. K. Maude, M. Henini, and R. J. Airey, Nanoscale Res. Lett. **6**, 101 (2011).
- M. D. Teodoro, V. L. Campo Jr., V. Lopez-Richard, E. Marega Jr., G. E. Marques, Y. Galvão Gobato, F. Iikawa, M. J. S. P. Brasil, Z. Y. AbuWaar, V. G. Dorogan, Yu. I. Mazur, M. Benamara, and G. J. Salamo, Phys. Rev. Lett **104**, 086401 (2010).
- D. F. Cezar, M. D. Teodoro, H. Tsuzuki, V. Lopez-Richard, G. E. Marques, J. P. Rino, S. A. Lourenço, E. Marega Jr., I. F. L. Dias, J. L. Duarte, P. P. González-Borrero, and G. J. Salamo, Phys. Rev. B **81**, 233301 (2010).
- Vas. P. Kunets, M. D. Teodoro, V. G. Dorogan, P. M. Lytvyn, G. G. Tarasov, R. Slezzer, M. E. Ware, Yu. I. Mazur, J. S. Krasinski, and G. J. Salamo, Appl. Phys. Lett. **97**, 262103 (2010).
- L. Villegas-Lelovsky, M. D. Teodoro, V. Lopez-Richard, C. Calseverino, A. Malachias, E. Marega Jr., B. L. Liang, Yu. I. Mazur, G. E. Marques, C. Trallero-Giner, and G. J. Salamo, Nanoscale Res. Lett. **6**, 56 (2010).
- D. F. Cesar, M. D. Teodoro, V. Lopez-Richard, G. E. Marques, E. Marega Jr., V. G. Dorogan, Y. I. Mazur, and G. J. Salamo, Carrier transfer in the optical recombination of quantum-dots, artigo submetido ao Physical Review B.

## 7.2 Trabalhos Apresentados em Congressos Internacionais

- M. D. Teodoro, G. E. Marques, V. Lopez-Richard, and G. J. Salamo, Aharonov-Bohm oscillations in neutral particles. 2<sup>nd</sup> EuroMagNET summer school "*Science in High Magnetic Fields*", (2010) Ameland, Holanda.

- M. D. Teodoro, G. E. Marques, V. Lopez-Richard, E. Marega Jr., and G. J. Salamo, Optical Aharonov-Bohm interference from neutral excitons in type-I nanorings. 19<sup>th</sup> International Laser Physics Workshop, 2010, Foz do Iguaçu, PR.
- M. D. Teodoro, V. L. Campo Jr., V. Lopez-Richard, E. Marega Jr., G. E. Marques, Y. Galvão Gobato, F. Iikawa, M. J. S. P. Brasil, Z. Y. AbuWaar, V. G. Dorogan, Yu. I. Mazur, M. Benamara, and G. J. Salamo, Magneto characterization of quantum rings for applications in the areas of security and biomedical imaging, I encontro Nacional da Rede Nacional de Nanobiotecnologia Aplicada à Medicina e à Defesa (*ReN<sup>2</sup>AMeD*), 2010, São Carlos, SP
- D. F. Cesar, V. Lopez-Richard, G. E. Marques, M. D. Teodoro, S. A. Lourenço, I. F. L. Dias, J. L. Duarte, P. P. González-Borrero, and E. Marega Jr., Temperature modulation of recombination by strain-induced effects in heterostructures grown along [n11] directions. 14<sup>th</sup> Brazilian Workshop on Semiconductor Physics, 2009, Curitiba, PR.
- M. D. Teodoro, G. E. Marques, V. Lopez-Richard, V. L. Campo Jr., Y. G. Gobato, M. J. S. P. Brasil, F. Iikawa, E. Marega Jr., and G. J. Salamo, Electron-hole spatial correlation of excitonic complexes in quantum rings. 14<sup>th</sup> Brazilian Workshop on Semiconductor Physics, 2009, Curitiba, PR.
- M. D. Teodoro, I. F. L. Dias, P. P. González-Borrero, S. A. Lourenço, E. Laureto, J. L. Duarte, E. Marega Jr., and G. J. Salamo, Optical emission properties of GaAs/AlGaAs multiquantum wells on non-(100)-oriented surfaces. 14<sup>th</sup> Brazilian Workshop on Semiconductor Physics, 2009, Curitiba, PR.
- S. A. Lourenço, P. P. González-Borrero, I. F. L. Dias, J. L. Duarte, M. D. Teodoro, Competition study of confinement potential fluctuation and band-gap renormalization on excitonic transitions in GaAs/AlGaAs quantum wells. 14<sup>th</sup> Brazilian Workshop on Semiconductor Physics, 2009, Curitiba, PR.