

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

TESE DE DOUTORADO

**Relaxação de spin em nanoestruturas semicondutoras
0 e 2D**

Vanderli Laurindo Junior

São Carlos - SP
2023

VANDERLI LAURINDO JUNIOR

**RELAXAÇÃO DE SPIN EM NANOESTRUTURAS
SEMICONDUCTORAS 0 E 2D**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de São Carlos para cumprimento dos requisitos necessários à obtenção do grau de Doutor em Ciências

Orientador: Prof. Dr. Marcio Daldin Teodoro

São Carlos - SP
2023



UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS

Centro de Ciências Exatas e de Tecnologia
Programa de Pós-Graduação em Física

Folha de Aprovação

Defesa de Tese de Doutorado do candidato Vanderli Laurindo Junior, realizada em 01/03/2023.

Comissão Julgadora:

Prof. Dr. Marcio Daldin Teodoro (UFSCar)

Prof. Dr. Adenilson Jose Chiquito (UFSCar)

Prof. Dr. Iouri Poussep (USP)

Prof. Dr. Paulo Freitas Gomes (UFG)

Prof. Dr. Leandro Malard Moreira (UFMG)

*Dedico esta tese a minha Mãe e a memória de meu Pai.
Que sempre me incentivaram a estudar e fizeram
sempre
o possível e o impossível para que nada faltasse.*

Agradecimentos

A Deus.

Primeiramente gostaria de agradecer ao Prof. Dr. Marcio Daldin Teodoro por me receber em seu lab, pela orientação e, principalmente, pela paciência. Seu entusiasmo, incentivo e presença fazem de você um orientador ímpar.

Ao Prof. Dr. Victor López-Richard pelas discussões e contribuições para a realização desse trabalho. Ao Prof. Dr. Gilmar Eugenio Marques pelo suporte e auxílio. Ao Prof. Dr. Euclides Marega Jr. pelas discussões e pelas amostras fornecidas.

Aos meus colaboradores internacionais Gregory Salamo, Yuriy Mazur e Benito Alén.

Ao Dr. José Francisco Miras Domenegueti (Chico) por toda a ajuda dentro do laboratório durante as montagens experimentais e alinhamentos.

Aos amigos do Grupo de Nanoestrutura Semicondutora (GNS-UFSCar), Edson Cardozo de Oliveira, Fernando Maia de Olivera, Edgar Guarin, Andrea Naranjo, Gabriel Jacobsen, Diana Navroski e Leonardo Villegas, pelos bolos, conversa fiada e pelas discussões científicas.

Aos amigos do ITA, Larissa, Flavia, Armstrong e Heitor. Aos amigos da UFES Anderson e Juliana.

À minha mãe Joaquina pelo carinho e incentivo. À minha esposa Veronica por toda paciência e pelos 9 anos de namoro praticamente a distância. Ao meu irmão por sempre me apoiar e incentivar nessa carreira.

Aos meus amigos de longa data obrigado pela compreensão por quase sempre está ausente.

Aos meus afilhados pela compreensão durante esse período de ausência.

Ao CNPq pela concessão da Bolsa, à CAPES pelos meses iniciais da Bolsa, e à FAPESP pelo apoio financeiro.

*«Enjoy every minute of life.
Never second-guess life.»*
Michael Jordan

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS

Resumo

UFSCar

Centro de Ciências Exatas e de Tecnologia

Programa de Pós-Graduação em Física

Doutor em Ciências

Relaxação de spin em nanoestruturas semicondutoras 0 e 2D

por Vanderli Laurindo Junior

Essa tese contém um compilado dos trabalhos desenvolvidos, sendo dividida em três partes. Na primeira parte foram descritos os mecanismos de decoerência homogênea e não homogênea de éxcitons em poços quânticos de GaAs/AlGaAs. Foi demonstrado que, para baixas temperaturas, os principais mecanismos de decoerência são os espalhamentos por fônons acústicos e a interação de curto alcance. Além disso, através da técnica de magneto fotoluminescência resolvida em polarização circular foi apresentada uma modulação para uma das componentes de *spin* do éxciton em decorrência de uma competição entre as interações de curto alcance e o espalhamento via *spin-flip*. Na segunda parte desta tese, foi detalhada a influência da orientação cristalina na relaxação de *spin*. Em um primeiro momento, foi demonstrado que as oscilações observadas na intensidade integrada da fotoluminescência em alto campo magnético são decorrentes do processo de relaxação através dos níveis de Landau das sub-bandas dos elétrons e buracos, na qual a orientação cristalina não tem influência sobre as características das oscilações. Ademais, foi demonstrado no presente estudo que a inversão de *spin* ocorre apenas para a orientação cristalina da superfície GaAs (311)A, à qual é observada tanto com a dependência da temperatura como para a dependência com a potência de excitação. Por fim, foi criado um modelo para explicar a inversão de *spin*, sem a necessidade de uma conjectura como até aqui proposto. Na terceira e última parte estão apresentados os resultados do controle magnético da transferência de portadores para amostras híbridas compostas por ponto quântico de InAs/GaAs - poço quântico de InGaAs/GaAs separadas por diferente espessuras de uma camada de GaAs. Para a amostra híbrida mais espessa a emissão da fotoluminescência tem o mesmo comportamento que as amostras de referência,

enquanto que para a amostra híbrida mais fina foi observado um aumento da intensidade integrada do QW com o aumento da magnitude do campo magnético, ao qual foi atribuída uma mudança no acoplamento entre o QD e QW, bem como uma mudança na dinâmica dos portadores.

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS

Abstract

UFSCar

Centro de Ciências Exatas e de Tecnologia
Programa de Pós-Graduação em Física

Doctor in Science

Spin relaxation in 0 and 2D semiconductors nanostructures

by Vanderli Laurindo Junior

This thesis contains a compilation of the work developed and is divided into three main parts. The first part describes the homogeneous and inhomogeneous decoherence mechanisms of excitons in GaAs/AlGaAs quantum wells. It was demonstrated that, for low temperatures, the main decoherence mechanisms are associated to the acoustic phonon scattering and short-range interactions. Furthermore, the results of magneto-photoluminescence with the luminescence resolved with circular polarization, a modulation for one of the spin components of the exciton was presented as a result of a competition between short-range interactions and spin-flip scattering. In the second part of this thesis, the influence of substrate orientation on spin relaxation mechanism is detailed. Firstly, it was shown that the oscillations in the integrated intensity of the luminescence in the high magnetic field regime are due to the relaxation process through the Landau levels of the electron and hole subbands, whereby the substrate orientation has no influence on these oscillations. Furthermore, it has been shown in the present study that spin inversion occurs only for the orientation of the GaAs (311)A surface, which is observed both with temperature and power dependence. Finally, a theoretical framework was created in order to explain the spin inversion, without the need of a conjecture as previously proposed. In the third and final part, the results of the magnetic control of carrier transfer are presented for the hybrid samples composed of InAs/GaAs quantum dot - InGaAs/GaAs quantum well separated by different GaAs spacer layer. For the thicker spacer, the photoluminescence emission has the same behavior as the reference ones. In comparison, for the thinner hybrid sample, an increase in the integrated QW intensity was observed with an increasing in magnetic field, which was attributed to a change in the coupling between QD and QW as well as a change in the carrier dynamics.

Conteúdo

Agradecimentos	iv
Resumo	vi
Abstract	viii
Lista de Figuras	xi
Lista de Abreviações	xvii
1 Introdução	18
1.1 Motivação	18
1.2 Heteroestrutura semicondutora	19
1.2.1 Poço quântico	19
1.2.2 Ponto Quântico	21
1.2.3 Estrutura híbrida Poço Quântico - Ponto Quântico	21
1.3 Orientação cristalina	23
1.4 Fotoluminescência e regra de seleção óptica	24
1.5 Éxciton em campo magnético	26
1.5.1 Níveis de Landau	26
1.5.2 Efeito Zeeman	28
1.5.3 Deslocamento diamagnético	28
2 Detalhes experimentais	30
2.1 Amostras	30
2.2 Caracterização experimental	32
2.2.1 <i>Setup</i> experimental	32
2.2.2 Microscopia confocal	33
2.2.3 Calibração da polarização	35
3 Análise dependente do <i>Spin</i> nos processos de decoerência homogênea e não homogênea de éxcitons sob campos magnéticos	37
3.1 Resumo	37

3.2	Introdução	38
3.3	<i>Setup</i> experimental e amostra	38
3.4	Temperatura efetiva dos portadores	39
3.5	Flutuações de potencial	42
3.6	Efeitos do campo magnético	46
3.7	Conclusões Parciais	52
4	Magneto-absorção e o controle da inversão da polarização de spin em poços quânticos	54
4.1	Resumo	54
4.2	Introdução	54
4.3	<i>Setup</i> experimental	55
4.4	Propriedade ópticas gerais	55
4.5	Dependência com a potência de excitação	56
4.6	Dependência do <i>spin</i> com a temperatura	60
4.7	Magneto-absorção	63
4.8	Modelo para inversão da polarização de <i>spin</i>	64
4.9	Conclusões Parciais	72
5	Controle Magnético da transferência de excíton na nanoestrutura híbrida de ponto quântico (QD)- Poço quântico (QW)	73
5.1	Resumo	73
5.2	Introdução	74
5.3	<i>Setup</i> experimental e amostras	75
5.4	Caracterização Magneto-óptica dos pontos quânticos	76
5.5	Caracterização Magneto-Óptica do poço quântico	77
5.6	Estruturas híbridas InAs QD- InGaAs QW	79
5.7	Acoplamento entre QD-QW e controle da transferência de excíton .	83
5.8	Conclusões	86
6	Considerações Finais	88
6.1	Artigos publicados em revistas internacionais durante o Doutorado	89
6.2	Artigos em preparação	89
	Bibliografia	90

Lista de Figuras

1.1	Representação esquemática da banda de valência (BV) em vermelho e da banda de condução (azul) para um QW de GaAs. E a indicação dos níveis de energia quantizado para o elétron ($E_{1,2}$), do buraco pesado (HH_1) e o <i>gap</i> de energia (E_g) do GaAs. Adaptado de Ref.[7]	20
1.2	Ilustração da estrutura híbrida formada por um poço quântico de InGaAs e ponto quântico de InAs. Nesta estrutura o estado fundamental do QW foi propositalmente desenhado para ter uma hibridização (J) com o terceiro estado excitado do QD. Adaptado de Ref.[9]	22
1.3	Representação das ligações químicas em diferentes planos cristalinos. Adaptado de Ref.[18]	23
1.4	Representação esquemática do processo de relaxação dos portadores por excitação óptica.	24
1.5	Regra de seleção óptica para os buracos pesados (HH), buracos leves (LH) e <i>split-off</i> (SO), banda de condução (BC) e banda de valência (BV) para o GaAs (a) <i>bulk</i> e (b) poço quântico(QW). Com as respectivas probalidades de σ^\pm . Adaptado de Ref.[21]	25
2.1	Representação esquemática das amostras de poço quântico de GaAs com barreiras de $Al_{0,36}Ga_{0,64}As$ depositados em substratos com orientação cristalina (100) ou (311).	31
2.2	Representação esquemática da amostras híbrida. (a) QD de InAs referência; (b) QW de InGaAs de referência; (c) estrutura híbrida de 20 nm e (d) estrutura híbrida 2 nm.	31
2.3	Lado esquerdo: Representação esquemática do criostato attoDry1000. Lado direito: Ilustração da óptica associada ao microscópio confocal para as medidas de fotoluminescência.	32

- 2.4 Princípio da microscopia confocal adaptada para micro-fotoluminescência. Os pinholes são os *core* da fibra óptica. Em azul observa-se o caminho do feixe, enquanto que a detecção, em verde, capta apenas a luz emitida do ponto focal. A sobreposição do caminho da excitação e detecção deve ser o mais precisa possível para coletar a máxima emissão provocada pela excitação no ponto focal. (adaptado de Ibbidi)[30] 33
- 2.5 Ilustração da cabeça do microscópio localizado sobre o criostato. No total 4 canais independentes são utilizados, são eles: Excitação (I), detecção(II), inspeção (III) e imageamento/inspeção(IV). Destacado em vermelho e verde os canais de excitação e detecção, respectivamente. 34
- 2.6 Caracterização da polarização da luz transmitida pelo *setup* experimental após as janelas ópticas. Em vermelho os resultados para a detecção e em preto para a excitação. 36
- 3.1 (a) Espectros de emissão da PL para diferentes densidades de potência a temperatura da rede cristalina de 3,6 K. b) Inverso da temperatura efetiva dos portadores em função da densidade de fluxo normalizada \tilde{F} . As linhas sólidas simulam a variação da temperatura efetiva através do espalhamento por fônons LO. 39
- 3.2 (a) Espectro de PL para diferentes temperaturas da rede cristalina a uma densidade de potência constante de 60 W/cm^2 . O lado de maior energia da transições e-hh e e-hh1 foram ajustadas usando a função de Boltzmann (linhas tracejadas). b) Temperatura efetiva para a transição e-hh e e-hh1 em função da temperatura da rede. A linha preta representa os portadores termalizados com a rede cristalina ($T_{\text{eff}} = T_L$). 41
- 3.3 (a) Posição do pico de energia da PL (E_p) em função da temperatura para densidade de potência do *laser* de $2 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ e 60 W/cm^2 . As linhas apresentam as simulações baseadas na Eq. 3.7. A dependência com a temperatura de $\sqrt{\Delta E_p k_B T_L} \simeq \sigma \sqrt{1 - \beta}$ para (b) $P = 2 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ e (c) $P = 60 \text{ W/cm}^2$. São apresentadas as simulações em linhas azuis obtidas usando as funções de grau σ (linha espessa pontilhada) e $(1 - \beta)^{1/2}$ (linha fina pontilhada). 43

- 3.4 a) Representação esquemática das larguras características das flutuações de potencial, λ_μ e λ_g comparada com o raio excitônico r_{exc} . b) Dependência da temperatura com a razão calculada λ_μ/λ_g obtidas para Fig.3.3. 44
- 3.5 a) FWHM em função da temperatura da rede cristalina para a transição e-hh e $P = 60 \text{ W/cm}^2$ (pontos). A simulação apresentada da FWHM considera as contribuições homogênea e não homogênea (linha laranja). A função usada $\sigma(T_L)$ na simulação está no inset da Fig.3.5a. b) O espectro simulado da PL com o mesmo σ e β para $T_L = 4 \text{ K}$ (linha azul) e $T_L = 20 \text{ K}$ (linha vermelha), obtida usando a Eq. 3.8 e função Gaussiana (linhas tracejadas) de acordo com Eq. 3.9. 45
- 3.6 Dependência do campo magnético com: a) intensidade integrada e b) FWHM da transição e-hh a $T_L = 3,6 \text{ K}$, obtidos com $P = 60 \text{ W/cm}^2$ (painel superior) e $P = 6 \times 10^2 \text{ W/cm}^2$ (painel inferior). Círculos fechados e abertos representam as componentes ópticas da emissão medida σ^- e σ^+ , respectivamente. A figura inserida em a) apresenta a intensidade integrada em $T_L = 20 \text{ K}$ 47
- 3.7 Ilustração das flutuações de potencial provocadas pela rugosidade ao longo da interface GaAs/AlGaAs e do par elétron-buraco confinado no QW, com elipsóides simbolizando o tamanho do éxciton em a) $B = 0$ e b) $B \neq 0$. C) Representação da dinâmica de relaxação de *spin* e regras de seleção ópticas na presença de campo magnético. 48
- 3.8 a) Deslocamento experimental da posição do pico em função do campo magnético para as polarizações σ^+ (circulo azul) e σ^- (pontos vermelhos). b) Alargamento homogêneo calculado para elétrons e buracos e sua dependência com o campo magnético. A contribuição não homogênea também é apresentada. A figura apresenta a simulação com os valores da massa efetiva para QW de GaAs (linhas contínuas), enquanto que para o GaAs bulk são representados por linhas pontilhadas. 51

3.9	a) Dados experimentais do grau de polarização circular (quadrados verdes). b) Valores experimentais da FWHM extraídos para as duas componentes ópticas em função do campo magnético. A figura apresenta a simulação com os valores da massa efetiva para o QW de GaAs (linhas contínuas), enquanto que para o GaAs bulk são representados por linhas pontilhadas.	52
4.1	Espectros de fotoluminescência para ambas as amostras em temperatura de 3,6 K com a mesma potência de excitação ($0.5 \mu\text{W}$).	56
4.2	Gráficos da intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (100), para as seguintes potências de excitação: (a) $0,005\mu\text{W}$, (b) $0,05\mu\text{W}$, (c) $0,5\mu\text{W}$, (d) $5\mu\text{W}$ e (e) $19 \mu\text{W}$	57
4.3	Gráficos da intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (311)A, para as potências de excitação de (a) $0,005\mu\text{W}$, (b) $0,05\mu\text{W}$, (c) $0,5\mu\text{W}$, (d) $5\mu\text{W}$ e (e) $19\mu\text{W}$	58
4.4	Dependência da DCP em função do campo magnético, em diferentes potências de excitação para os (a) MQWs de GaAs (100) e (b) MQWs GaAs (311)A.	59
4.5	Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (100), para temperaturas de (a) 3,6 K, (b) 20 K e (c) 60 K.	60
4.6	Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (311)A, para temperaturas de (a) 7 K, (b) 10 K, (c) 20 K, (d) 30 K, (e) 40 K e 60 K.	61
4.7	Grau de polarização circular e sua dependência com campo magnético para diferentes temperaturas a uma potência de excitação constante para as amostras (a) GaAs (100) e (b) GaAs (311)A.	62
4.8	Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (100) com excitação usando um <i>laser</i> com emissão em 660 nm, para temperaturas de (a) 3,6 K e (b) 20 K.	63
4.9	Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (311)A com excitação em 660 nm, para temperaturas de (a) 3,6 K, (b) 7,5 K, (c) 10 K e (d) 20 K.	64
4.10	Intensidade integrada em função do campo magnético (lado esquerdo), e cálculo do coeficiente de absorção e sua dependência com campo magnético (lado direito) para (a) MQW GaAs (100) e (b) MQW GaAs (311)A.	65

- 4.11 Representação esquemática do modelo de 4-níveis para as transições ópticas permitidas no GaAs sob aplicação de campo magnético. As linhas pontilhadas indicam a banda de valência enquanto que as linhas contínuas a banda de condução. $\Delta E_{h,e}$ a abertura Zeeman para os buracos ou elétrons, τ_0 o tempo de vida, $\tau_s^{h,e}$ tempo de relaxação de *spin* dos buracos ou elétrons e τ_{e0} termo referente aos portadores que não contribuem nas transição ópticas. 66
- 4.12 Cálculo do grau de polarização circular usando o modelo de 4-níveis e sua dependência com (a) Temperatura e (b) Potência. Para um determinado campo magnético finito e diferentes tempos de relaxação *spin* do buraco e elétron. 67
- 4.13 Representação esquemática do modelo de 8-níveis e suas transições ópticas permitidas considerando o estado fundamental e um estado excitado sob a aplicação de campo magnético. As linhas pontilhadas correspondem a banda de valência sendo ΔE_h e ΔE_h^x o estado fundamental e primeiro excitado dos buracos pesados, respectivamente. As linhas contínuas indicam a banda de condução com o ΔE_e e ΔE_e^x o estado fundamental e primeiro excitado dos elétrons, respectivamente. $\tau_{co,co}$ tempo de relaxação de *spin* coerente dos elétrons e buracos, $\tau_{inco,inco}$ tempo de relaxação de *spin* incoerente dos elétrons e buracos. $\tau_{e0,ex}$ termo referente aos portadores que não contribuem nas transição ópticas. 69
- 4.14 Cálculo da DCP em função da temperatura para (a) 1 μ W, (b) 10 μ W e em função da temperatura. (c) DCP a temperatura fixa de T = 2 K com diferentes valores de α e (d) para 3 diferentes valores de temperatura. Para um determinado campo magnético finito. 70
- 4.15 Dados experimentais da DCP (círculos pretos) em função da (a) Potência e (b) Temperatura. As linhas sólidas são os ajustes do modelo de 8-níveis. Os dados experimentais foram extraídos a campo magnético de 4 Tesla. 71
- 5.1 Espectros de fotoluminescência à 4 K do estado fundamental do ponto quântico a 0 e a 9 T para ambas as polarizações para (a) baixa e alta (b) potência de excitação, respectivamente. Em azul sem aplicação de campo magnético e em preto a polarização (σ^+) e em vermelho (σ^-) sob campo magnético de 9 Tesla. 77

5.2	Intensidade integrada do estado fundamental do QD e sua dependência com o campo magnético para (a) baixa potência de excitação e (b) para alta potência de excitação em função do campo magnético. As esferas vermelhas representam a polarização circular σ^- e as em preto a componente σ^+	78
5.3	Espetros de fotoluminescência da transição e1-hh1 sem campo magnético (azul) e para as duas polarizações circulares σ^- (vermelho) e σ^+ (preto) para (a) baixa e (b) alta potência de excitação.	79
5.4	Gráfico em forma de mapa de cores da Fotoluminescência em função do campo magnético. A linhas vermelhas e verdes são guia para os olhos dos níveis de Landau da transição $e1 - hh1$ e da transição $e2 - hh2$, respectivamente.	80
5.5	Intensidade integrada em função do campo magnético para a transição e1-hh1 (a) baixa potência de excitação e (b) alta potência de excitação. As esferas vermelhas e pretas representam a componente de polarização circular σ^- e σ^+ , respectivamente.	81
5.6	(a) Espetros de fotoluminescência da estrutura híbrida QD-QW-20 nm sem campo (azul) e a 9 T para σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). (b) Intensidade integrada em função do campo magnético aplicado para as duas componentes de polarização circular σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). Lado direito intensidade do QW e lado esquerdo intensidade do QD.	81
5.7	(a) Espetros de fotoluminescência da estrutura híbrida QD-QW-2nm sem campo magnético aplicado (azul) e a 9 T para σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). (b) Intensidade integrada em função do campo magnético aplicado para as duas componentes de polarização circular σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). Lado direito intensidade do QW e lado esquerdo intensidade do QD.	82
5.8	Deslocamento diamagnético das nanoestruturas em função do campo magnético aplicado.	84
5.9	Escala semilogarítmica da Intensidade Integrada da emissão do QW contido na estrutura híbrida QD-QW-2nm em função do campo magnético aplicado. A linha em vermelho é o ajuste semiclássico do modelo WKB para tunelamento5.4.	86

Lista de Abreviações

BC	Banda (de) Condução
BV	Banda (de) Valência
LL	<i>Landau Level</i> (Nível de Landau)
MBE	<i>Molecular Beam Epitaxy</i> (Epitaxia por feixe molecular)
PL	<i>PhotoLuminescence</i> (Fotoluminescência)
QW	<i>Quantum Dots</i> (ponto quântico)
QW	<i>Quantum Well</i> (poço quântico)

Capítulo 1

Introdução

1.1 Motivação

Nas últimas décadas, nanoestruturas semicondutoras têm sido amplamente utilizadas com grande sucesso em aplicações em diversas tecnologias como detectores, fontes de luz, armazenamento de dados, entre outros.[1] Embora as nanoestruturas semicondutoras sejam largamente estudadas, um novo avanço na manipulação e compreensão das suas propriedades ópticas, elétricas, vibracionais e de *spin* está sendo atingido. Além disso, com o desenvolvimento das técnicas de crescimentos, nanoestruturas com alta qualidade podem ser obtidas e novos fenômenos antes previstos podem ser observados como, por exemplo, a detecção do férmion de Majorana.[2]

Com a tendência da diminuição do tamanho dos transistores devido ao avanço das técnicas de crescimentos e os processos de micro-fabricação, abriram-se as portas para o estudo de nanoestruturas como poço quântico (QW) e ponto quântico (QD) que apresentam fenômenos físicos interessantes, como por exemplo, a quantização dos estados que oferecem uma variedade de aplicações em dispositivos de alta performance. Atualmente, QW são utilizados em *lasers*, detectores e células solares, enquanto que QD em diodos, televisores e fontes de fóton únicos.[3, 4] Outra aplicação que ganhou grande interesse é o uso do *spin* do elétron do QD como candidatos a bits quânticos. Neste sentido, grandes esforços da comunidade científica estão voltados para o desenvolvimento de novas estruturas bem como o melhor aproveitamento das propriedades físicas que as mesmas podem oferecer. Com base nesse aspecto, devido ao confinamento espacial, os mecanismos de relaxação de *spin* podem ser suprimidos e tempos de relaxação de até 1s foram observados.[5] Contudo, os mecanismos de coerência e decoerência devem ser estudados para que novos avanços científicos e tecnológicos possam ser alcançados. Neste sentido, esta tese pretende contribuir para a investigação dos processos envolvendo a relaxação de portadores de cargas e seus *spins* a partir de poços quânticos de GaAs/AlGaAs e estruturas híbridas compostas por poço quântico de InGaAs/GaAs e ponto quântico de InAs/GaAs, com foco nos mecanismos de decoerência e influência da orientação cristalina na relaxação do *spin* do *éxciton*, bem

como no mecanismo de acoplamento eletrônico entre níveis ressonantes entre QD-QW.

1.2 Heteroestrutura semicondutora

Uma heteroestrutura semicondutores é composta de diferentes camadas de semicondutores cristalinos com diferentes *gap* energias e/ou diferentes parâmetros de rede. Com o uso de avançadas técnicas de crescimentos epitaxiais, como a Epitaxia por Feixe Molecular (MBE), é possível crescer camadas tão finas quanto algumas camadas atômicas. O perfil de potencial dessas estruturas pode ser desenhado de forma que suas aplicações sejam realizadas em dispositivos como diodo emissor de luz (LED), células solares, transistor de efeito de campo (FET), entre outros. Dentre as heteroestruturas mais estudadas estão o poço quântico (QW) e o ponto Quântico (QD), que apresentam confinamento na direção de crescimento nas três direções espaciais, respectivamente. Essa tese tem enfoque nessas duas heteroestruturas.

1.2.1 Poço quântico

Poço quântico é um dos tipos de nanoestruturas semicondutoras com dimensão nanométrica na qual os níveis de energia associados aos portadores de carga são quantizados em sub-bandas em uma única direção. A Figura 1.1 é uma representação do perfil de potencial de um poço quântico. Esta estrutura é formada através da junção de um semicondutor de *gap* menor – o poço - entre dois outros semicondutores com energia de *gap* maior – as barreiras formando o perfil de potencial do tipo poço quântico com barreiras de altura finita.[6]

O confinamento dos portadores na direção de crescimento leva a formação de níveis de energias discretos tanto para elétrons na banda de condução quanto para buracos na banda de valência. A função de onda correspondente a cada estado quantizado das energias dos portadores é calculada pela equação de Schrödinger. Para solucionar essa equação, primeiramente, separa-se a parte que descreve o movimento dos portadores nos planos de movimento livre x-y, da parte onde o movimento é confinado (z). A equação de Schrödinger para os estados de elétrons no poço quântico pode ser escrita como:[8]

$$-\left[\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V(z) \right] \psi(x, y, z) = E\psi(x, y, z) \quad (1.1)$$

onde m^* é a massa efetiva do elétron. A função de onda ψ pode ser separada em sua dependência em z (direção de crescimento) e do movimento livre das componentes do plano x-y:

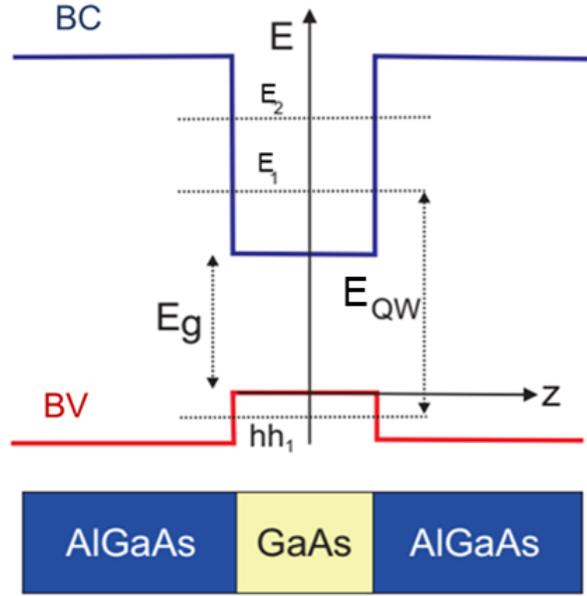


Figura 1.1: Representação esquemática da banda de valência (BV) em vermelho e da banda de condução (BC) em azul para um QW de GaAs. E a indicação dos níveis de energia quantizado para o elétron ($E_{1,2}$), do buraco pesado (HH_1) e o *gap* de energia (E_g) do GaAs. Adaptado de Ref.[7]

$$\psi(x, y, z) = e^{i(k_x x)} \cdot e^{i(k_y y)} \phi(z) \quad (1.2)$$

onde $\phi(z)$ satisfaz a equação:

$$-\left[\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2}{dz^2} + V(z) \right] \phi(z) = E_n \phi(z) \quad (1.3)$$

Considerando a barreira de potencial do tipo finita, a função de onda associada ao portador dentro do poço decai exponencialmente para a região de barreira, sendo descrita por uma função periódica do tipo seno ou cosseno no poço. Ao combinar a função de onda e a sua derivada nas fronteiras pode-se mostrar que a energia e as funções de ondas associadas são dadas pela solução de equações transcendentais:

$$k \cdot \tan \frac{kl}{2} = k \quad (1.4)$$

$$k \cdot \cot \frac{kl}{2} = -k \quad (1.5)$$

onde, $k = \left(\frac{2m^*E}{\hbar^2} \right)^{1/2}$ é o valor do vetor de onda dentro do poço e $k = \left(\frac{2m^*(V_c - E)}{\hbar^2} \right)^{1/2}$ é o valor do vetor de onda na barreira, paralelos a direção de crescimento z . Essas equações podem ser resolvidas numericamente e a solução fornece os níveis de energia E_1 e E_2 para elétrons representados na Figura 1.1. Com os níveis de energias sendo:

$$E_n(k) = E_n + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (1.6)$$

Esse resultado indica que a função de onda não é zero fora do QW. Isso significa que a uma possibilidade da função de onda da partícula ser diferente de zero nas barreiras de AlGaAs. Esta propriedade é fundamental para as estruturas híbridas que serão aqui estudadas.

1.2.2 Ponto Quântico

O termo ponto quântico (QD) se refere a estruturas em que o confinamento dos portadores de carga ocorre em todas as direções espaciais. Tal confinamento tridimensional leva os pontos quânticos a estados eletrônicos análogos ao de átomos, com energia discreta e densidade de estado do tipo delta para os casos ideais onde um único QD é caracterizado,[8]e, por isso, são também chamados de átomos artificiais.

Os pontos quânticos auto organizados são crescidos pela técnica de Stranski-Krastnov, onde uma fina camada de InAs é crescida no topo do substrato de GaAs. Para a formação dos QDs os parâmetros de rede dos materiais têm que ser diferentes entre si, variando de 1 e 10%. Devido ao descasamento dos parâmetros de rede é introduzido uma tensão nas interfaces da heteroestrutura. Para a heteroestruturas semicondutoras de InAs/GaAs, a deposição de InAs sobre o substrato de GaAs gera uma tensão de, aproximadamente, 7%. Quando atinge uma espessura crítica, a tensão entre as camadas pode ser minimizada através da formação de estruturas similares a ilhas. À mudança na superfície pode ser modificada por diversos fatores, tais como substrato, temperatura de crescimento e composição. Ainda assim, esse método de deposição mesmo para a heteroestrutura com o maior descasamento de rede, a formação de uma pequena camada bidimensional conhecida como *wetting layer* (WL). Por fim, para há formação do QDs é geralmente depositado sobre as ilhas um filme de material da mesma composição do substrato.

1.2.3 Estrutura híbrida Poço Quântico - Ponto Quântico

Um tipo de nanoestrutura que tem chamado bastante a atenção da comunidade científica é a híbrida QD-QW, ilustrada na Figura 1.2. Este tipo de combinação consiste na formação de um poço quântico e de uma camada de pontos quânticos separados entre si por uma determinada espessura através de uma camada espaçante e que ao mesmo tempo forma a barreira de potencial para o poço e ponto quânticos. Estes semicondutores híbridos apresentam injeção de *spin* ultrarrápidos do QW para o QDs, detectores infravermelhos, memórias baseada em QD e *lasers* de cascata quântica.[10–

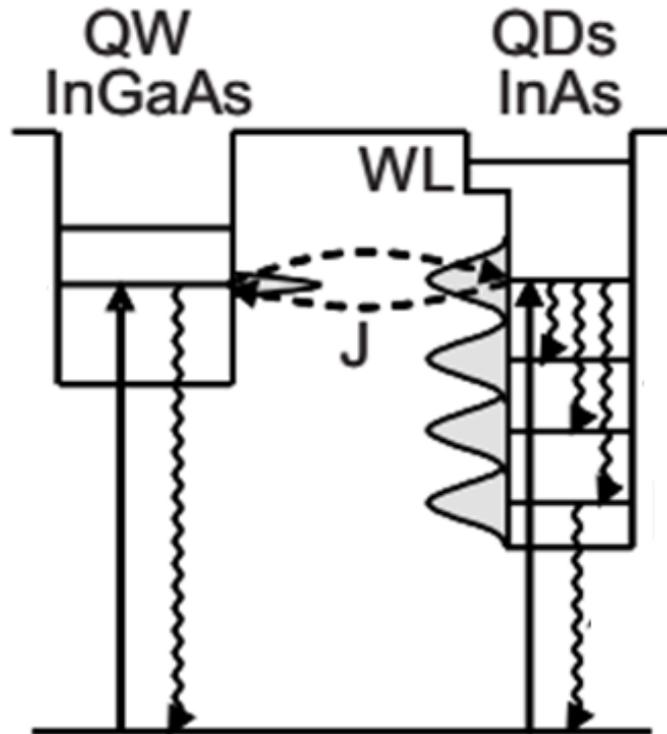


Figura 1.2: Ilustração da estrutura híbrida formada por um poço quântico de InGaAs e ponto quântico de InAs. Nesta estrutura o estado fundamental do QW foi propositalmente desenhado para ter uma hibridização (J) com o terceiro estado excitado do QD. Adaptado de Ref.[9]

13] Em casos como este, o poço quântico tem o papel de ser um reservatório de portadores de carga energeticamente frio para os pontos quânticos, em que o nivelamento entre os níveis de energia de ambas pode ocorrer de forma ressonante ou não. No caso do tunelamento ressonante o estado fundamental do QW está alinhado com um dos estados excitados do QD, cujo resultado observado é o tunelamento muito mais rápido para elétrons do que os buracos, devido a natureza da massa efetiva dos buracos pesados.

Para o caso do tunelamento não ressonante, que ocorre quando a energia do estado fundamental do QW e estados excitados dos QD não estão alinhados, o tunelamento acontece através de emissão de fônons ópticos longitudinais (LO) e processos Auger. Para primeiro mecanismo (emissão de fônons ópticos), o elétron deve ceder o excesso de energia recebido do processo de excitação na forma de um fônon LO para os portadores do QW, tunelando então para o QD. Este mecanismo torna-se mais eficaz em baixas potências de excitação. No segundo mecanismo (processos de Auger), não há limitação para perda de energia, porém, esse processo de tunelamento só é notável para altas potências de excitação.[9, 14, 15]

1.3 Orientação cristalina

Todos os semicondutores crescidos através de técnicas epitaxiais têm sua deposição sobre um determinado substrato e, portanto, sua superfície é de fundamental importância, especialmente quando o crescimento é feito por poucas monocamadas. Como consequência, a estrutura depositada deve apresentar a mesma estrutura cristalina da orientação do substrato, sendo a mais utilizada para semicondutores III-V da tabela periódica é o plano (100).[16] As propriedades ópticas, eletrônicas e de transportes das nanoestruturas semicondutoras, em especial dos poços quânticos, são extremamente dependentes da orientação do substrato. Esta propriedade estrutural induz variações significativas em todas as propriedades físicas das nanoestruturas crescidas, como a massa efetiva dos buracos da banda de valência, indução de *strain* nas interfaces, raio de Bohr do éxciton, alteração das propriedades de interface e do confinamento quântico. Portanto, quando os poços quânticos são crescidos em planos não convencionais, esses efeitos são alterados em relação a (100).[17] Para compreender a influência da orientação cristalina no crescimento das nanoestruturas semicondutoras e nas suas propriedades ópticas e elétricas, a Figura 1.3 ilustra a disposição da geometria das ligações químicas presente na superfície do substrato de Arseneto de Gálio (GaAs) em diferentes orientações.

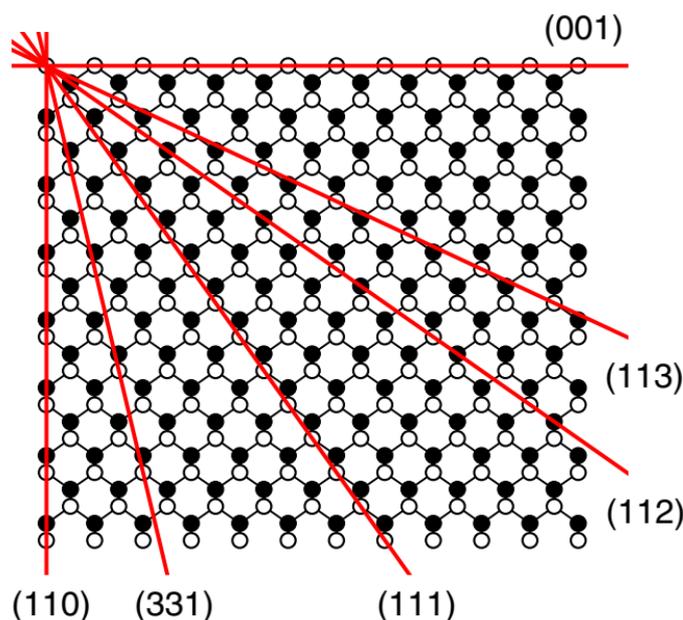


Figura 1.3: Representação das ligações químicas em diferentes planos cristalinos. Adaptado de Ref.[18]

A Figura 1.3 apresenta a disposição ao longo do plano (100), em que círculos vazios representam átomos do grupo III da tabela periódica e círculos preenchidos átomos do grupo V. Como pode ser visto ao longo da vertical, há uma sequência de ligações duplas e simples que ligam os átomos de camadas sucessivas. Para a superfície (111),

a configuração entre sucessivas camadas é de ligações simples, com ligações simples e duplas em alternância entre átomos das diferentes famílias que se ligam entre si. Um ponto importante a se ressaltar é que as ligações para a estrutura (211) apresentam duas vezes mais sítios com ligações pendentes que sítios com ligações duplas. Com isso, as propriedades superficiais da orientação (111) prevalecem sobre a (100). Ao analisar o caso da superfície (311), é possível observar que esta consiste em número iguais de sítios com ligações pendentes simples e duplas relacionadas, terminando com átomos de Ga e As. Sendo assim, as componentes (111) e (100) tem participações equivalentes.[19] Finalmente, quando as superfícies são terminadas em átomos do grupo III, o plano cristalino descrito entre parênteses é seguido pela letra "A", e quando terminado em átomos do grupo V a letra "B".

1.4 Fotoluminescência e regra de seleção óptica

Semicondutores são materiais que apresentam *gap* de energia que podem atingir até 6 eV.[20] Uma das técnicas mais utilizadas para estudar tais materiais é fotoluminescência, que pode ser descrita em 4 etapas como ilustrado na Figura 1.4, sendo a primeira a excitação, a segunda a relaxação por emissão de fônons, a terceira a termalização e, finalmente, a recombinação.

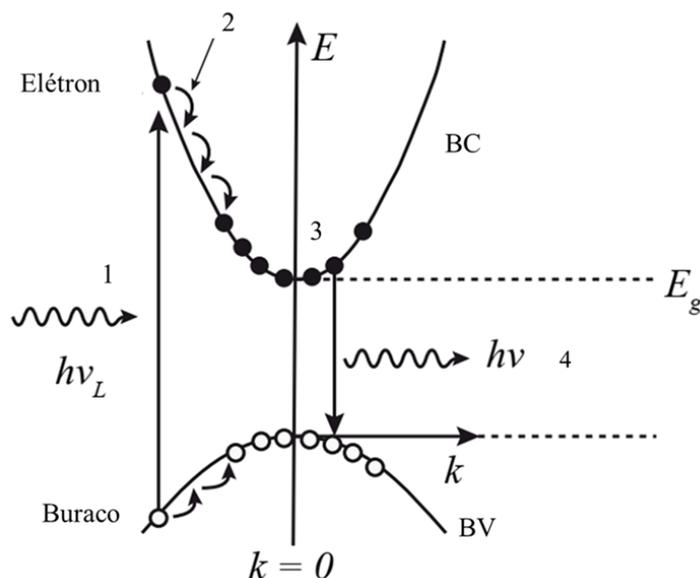


Figura 1.4: Representação esquemática do processo de relaxação dos portadores por excitação óptica.

Na primeira etapa, uma fonte de iluminação (*laser*) com energia maior ou igual ao *gap* de energia da estrutura promove elétrons da banda de valência para a banda de condução, deixando assim buracos na banda de valência. Na segunda etapa, elétrons

e buracos perdem energia emitindo fônons. Na terceira etapa, os portadores termalizam para o mínimo da banda de energia formando um par elétron-buraco para então recombinarem emitindo luz. Através da perda de energia da recombinação um fóton é emitido e posteriormente analisado contendo toda a informação característica da estrutura e fornece informações valiosas que podem ser usadas para compreender os mecanismos de coerência e decoerência dos portadores.

Após a excitação de uma estrutura semicondutora de *gap* de energia direto (GaAs e InAs), o ponto de menor energia da banda de condução BC e o ponto maior energia da banda de valência tem o mesmo momento no ponto Γ ($k = 0$). Assim, as transições interbandas podem ocorrer sem a contribuição de fônons. Se uma fonte luminosa circularmente polarizada à esquerda (σ^-) ou à direita (σ^+), é absorvida por uma amostra semicondutora ela induz uma emissão polarizada de mesmo *spin*. A Figura 1.5 ilustra a regra de seleção óptica para as estruturas semicondutoras estudadas na presente tese.

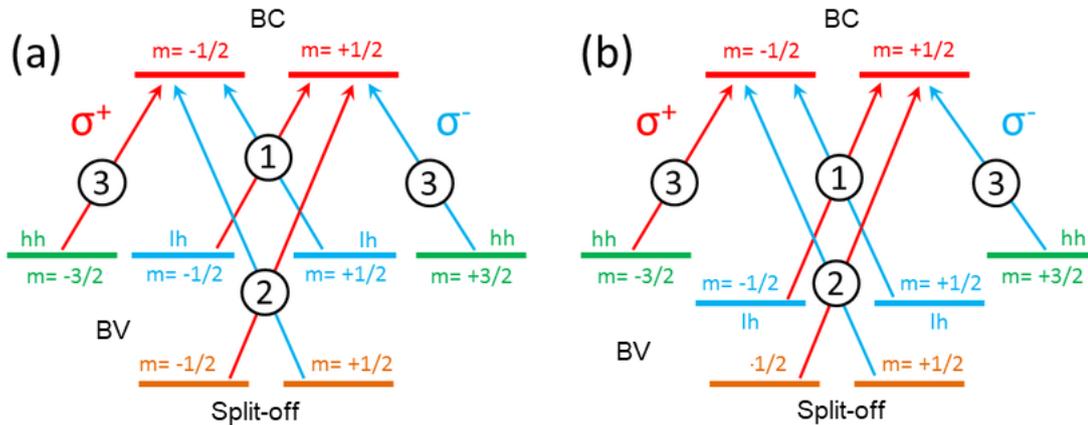


Figura 1.5: Regra de seleção óptica para os buracos pesados (HH), buracos leves (LH) e *split-off*(SO), banda de condução (BC) e banda de valência (BV) para o GaAs (a) *bulk* e (b) poço quântico(QW). Com as respectivas probabilidades de σ^\pm . Adaptado de Ref.[21]

Para semicondutores em sua forma *bulk* Fig.1.5(a), as transições possíveis para σ^+ são: (1) buracos pesados da banda de valência com $m = -3/2$ e elétrons da banda de condução com $m = -1/2$, (2) Buracos leve da BV com $m = -1/2$ e elétrons da BC com $m = 1/2$ e, por fim, (3) buracos do *split-off*(SO) com $m = -1/2$ e elétrons da BC com $m = 1/2$. Na condição de $E_g < \hbar\omega < E_g + \Delta_{SO}$ os buracos pesados e leves das sub-bandas são excitados simultaneamente por serem degenerados no ponto $K = 0$. A densidade de elétrons *spin* polarizado sendo n_\uparrow e n_\downarrow com $S_z = +1/2$ e $S_z = -1/2$, respectivamente. A polarização de *spin* pode ser definida como:[22]

$$P = \frac{n_\uparrow - n_\downarrow}{n_\uparrow + n_\downarrow} \quad (1.7)$$

Para o caso de GaAs em sua forma *bulk*, durante a fotoexcitação os portadores são degenerados na proximidade do ponto Γ e podem participar na transição óptica com

diferentes propabilidade. Onde a probabilidade de transições envolvendo $e - HH$ é 3x maior do que os $e - LH$, a probabilidade:

$$P = \frac{1 - 3}{1 + 3} = -50\% \quad (1.8)$$

Após a excitação dos portadores, as informações relativas ao *spin* podem ser extraídas a partir das regras de seleção que devem ser obedecidas e que estão descrita na Figura 1.5, bem como a conservação de momento angular. Esta última estabelece que a excitação com luz polarizada circularmente geram transições apenas com $\Delta J_s = \pm 1$. Se a amostra é excitada com luz polarizada σ^- apenas transições do estado dos buracos pesados (HH) da BV ($m_s = +3/2$) para a BC ($J_z = +1/2$) formam o par $e=h$.

Para o caso do QW Fig.(1.5b), o confinamento quântico também gera uma quebra na degenerescência do topo da banda de valência, separando-a em sub-bandas de buraco leve ($m = \pm 1/2$) e pesado ($m = \pm 3/2$). Esta separação ocorre devido a uma redução de simetria translacional na direção de crescimento dos poços e se dá de maneira *anticrossing*, pois a banda de sub-buraco pesado é elevada, enquanto a sub-banda de buraco leve é rebaixada.[23] Dessa forma, a excitação com apenas umas das sub-bandas é permitida (HH-BC) com uma probabilidade de obter uma polarização de *spin* de 100%.

1.5 Éxciton em campo magnético

Na presença de campo magnético externo na direção do crescimento, elétrons e buracos tem seus níveis de energia modificados. Para portadores livres, o campo magnético modifica sua órbita e força os portadores a realizarem um movimento ciclotrônico com frequência $\omega_c = eB/m^*$ na direção perpendicular ao campo magnético. Além disso, o campo magnético quebra a degenerescência de *spin* fazendo com que uma abertura dos níveis de *spin* seja observada, sendo este fenômeno conhecido com abertura Zeeman. Por fim, a função de onda do éxciton (e ou h) é afetada na presença do campo magnético levando ao efeito conhecido como deslocamento diamagnético.[24]

1.5.1 Níveis de Landau

Quando semicondutores são colocados em altos campos magnéticos, a energia dos portadores livres torna-se quantizada conhecidos como níveis de Landau (LLs). Numa aproximação semi-clássica. Devido as forças de Lorentz, em uma aproximação semi-clássica, as partículas têm sua trajetória. alterada e giram em torno do campo magnético externo com frequência ciclotrônica dada por:

$$\omega_c = eB/m^*, \quad (1.9)$$

do qual pode-se determinar o raio ciclotrônico como sendo:

$$r_c = \frac{m^*v}{eB} = \frac{v}{\omega_c}, \quad (1.10)$$

Se o elétron completa ao menos um período da órbita antes de sofrer espalhamento ($\omega_c \geq 1/\tau$, com τ sendo o tempo de relaxação do momento(espalhamento). A energia do elétron em altos campos magnéticos tornam-se quantizada. os estados estacionários podem ser considerados como aqueles para os quais a circunferência de sua órbita é composta por um número inteiro de comprimentos de onda. Esta condição leva os níveis de energia $E = n\hbar\omega_c$ ($n = 1,2,3,\dots,n$).

No caso do QW, com campo magnético \vec{B} na direção de crescimento z . A força de Lorentz é $q\vec{v} \times \vec{B}$. Consideremos um potencial vetor como $\vec{A} = [0, b_x, 0]$, o Hamiltoniano da banda de condução torna-se:[25]

$$\begin{aligned} H &= \frac{1}{2m_e^*} [p_y + eA_y]^2 + \frac{p_z^2}{2m_e^*} + U(z) + g^* \mu_B \sigma \cdot \vec{B} \\ &= \frac{1}{2m_e^*} [i\hbar \frac{\partial}{\partial y} + eB_x]^2 + \frac{p_z^2}{2m_e^*} + U(z) + g^* \mu_B \sigma \cdot \vec{B} \end{aligned} \quad (1.11)$$

Com $U(z)$ sendo o potencial de confinamento do QW, g^* o fator-g efetivo.

A função de onda do Hamiltoniano para os níveis de Landau pode ser separada em termos orbital e de *spin*. Os auto-valores do termo de spin são $\pm 1/2 g^* \mu_B B$. E a função de onda orbital pode ser separada em 3 partes:

$$\psi = \frac{e^{ik_y y}}{L^{1/2}} f(z) \phi(z) \quad (1.12)$$

A solução para z é

$$H_z f_m(z) = \left[\frac{p_z^2}{2m_e^*} + V_{QW}(z) \right] f(z) = E_m f_m(z) \quad (1.13)$$

As soluções dessa equação são os auto-valores e a função envelope para o QW ($B = 0$). A solução parte x da função de onda do orbital é

$$H_x f_n(x) = \left\{ \frac{p_x^2}{2m_e^*} + \frac{1}{2m_e^*} [\hbar k_y + cB_x]^2 \right\} f(z) = E_n \phi(x) \quad (1.14)$$

A equação (1.14) é similar a equação do oscilador harmônico com frequência $\omega_c = eB/m^*$ e centro de massa em $x = -\hbar c/eB$. Dessa forma podemos escrever de forma simplificada os níveis de Landau como:

$$E = E_0 + (n + 1/2)\hbar\omega_c \pm 1/2 g^* \mu_B B \quad (1.15)$$

onde E_0 é o estado de menor energia, n é o número quântico do nível de Landau e $\hbar\omega_c$ é a energia de separação entre os níveis, g^* é o fator-g efetivo.

Em baixos campos magnéticos em QW, os elétrons estão ligados a buracos, o que impossibilita caracterizá-los como portadores livres. Contudo, os elétrons podem ser classificados como portadores livres quando o campo magnético aumenta e a energia ciclôtrônica se torna superior à energia de ligação do par elétron-buraco. Desta forma, deslocamento de energia da fotoluminescência é determinado pelo primeiro nível de Landau da Eq.1.15. Em altas potências de excitação mais de um nível de Landau pode ser observado experimentalmente na PL.

1.5.2 Efeito Zeeman

A aplicação do campo magnético externo paralelo à direção de crescimento quebra a degenerescência dos estados de *spin* \uparrow e \downarrow . A abertura em energia entre os dois níveis é dada pela seguinte expressão:

$$\Delta E_Z = g_e \mu_B B, \quad (1.16)$$

onde g_e é o fator-g de Landè e μ_B é o magnéton de Bohr.

O fator-g é adimensional e ele determina quão forte será a abertura dos níveis sob a influência de campo magnético e o seu sinal determina qual o estado é o de menor energia. Em semicondutores o fator-g pode ser determinado através de medidas de fotoluminescência com um campo magnético externo aplicado. Através da medida de PL polarizada o fator- g_x do éxciton pode ser determinado, no qual a abertura dos níveis de energia pode ser experimentalmente observada, sendo uma combinação dos fatores g dos elétrons e buracos ($g_{ex} = g_e + g_h$).

1.5.3 Deslocamento diamagnético

Em um baixo campo magnético aplicado a energia do éxciton aumenta quadraticamente. Caso a energia do deslocamento diamagnético seja maior que a energia de ligação a dependência com o campo magnético sofre alteração. De modo geral, a energia do éxciton varia de acordo com:[26]

$$E_{\uparrow\downarrow}(B) = E_0 + g_{ex} \mu_B B + \gamma_{dia} B^2, \quad (1.17)$$

onde E_0 é a energia do éxciton, g_{ex} é o fator-g do éxciton e γ_{dia} é o coeficiente diamagnético. O termo de dependência linear (B) está relacionado à abertura Zeeman. Dessa forma, é possível escrever o deslocamento diamagnético como:

$$\Delta E_{\uparrow\downarrow} = \gamma_{dia} B^2. \quad (1.18)$$

O valor de γ_{dia} é uma constante específica do material. O deslocamento diamagnético pode ser observado nos espectros de PL com aplicação de campo magnético externo e caracterizado como um deslocamento para o azul (*blueshift*) da energia, em outras palavras o campo magnético aumenta a energia de confinamento. Vale ressaltar que os outros fatores como qualidade da amostra (nível de defeitos) e tipo de heteroestrutura (QD ou QW) podem modificar o deslocamento diamagnético.[27]

Dado os conceitos básicos relacionados a este trabalho, os próximos capítulos serão descritos como segue. No capítulo 2 é apresentado as técnicas experimentais desta tese. Primeiramente, é realizada uma descrição das amostras que foram analisadas. Então, são apresentadas as técnicas experimentais de caracterização óptica e de *spin*. O capítulo 3 apresenta os resultados para o QW de GaAs com orientação cristalina (100) em que serão representados os principais mecanismos de decoerência do éxciton e a tentativa de manipulação da coerência com campo magnético. Os resultados da influência do substrato na relaxação de *spin* estão apresentados no capítulo 4, bem como o mecanismo de magneto-absorção e a inversão da polarização de *spin*. No capítulo 5 estão descritos os resultados das amostras híbridas de QD-QW, com discussão sobre o papel do campo magnético no mecanismo de transferência de cargas e no mecanismo de acoplamento das nanoestruturas. Por fim, o capítulo 6 apresenta as considerações finais desta tese e as contribuições científicas obtidas.

Capítulo 2

Detalhes experimentais

Este capítulo descreve as principais técnicas experimentais utilizadas nesta tese. Para melhor compreensão, duas partes são apresentadas: (I) Descrição das amostras estudadas (tópico 2.1), com detalhes da (II) técnica de caracterização óptica empregada (tópico 2.2).

2.1 Amostras

As nanoestruturas estudadas nessa tese foram crescidas no Instituto de Nanociências e Engenharia da Universidade de Arkansas - U.S.A. No total foram crescidos dois conjuntos de amostras para diferentes propósitos: (I) Nanoestrutura de múltiplos poços quânticos (MQW) baseada nas ligas GaAs/AlGaAs e (II) estruturas híbridas de ponto quântico e poço quântico (QD-QW) com composição de InAs/GaAs e InGaAs/GaAs, respectivamente.

O primeiro conjunto de amostras de múltiplos poços quânticos de GaAs foi crescido utilizando um equipamento Riber 32P de epitaxia por feixe molecular (MBE). No total foram crescidas duas amostras simultaneamente nos substratos de GaAs com planos cristalinos (100) e (311)A. Os substratos foram aquecidos a uma temperatura de 600 °C com um fluxo de As/Ga com razão de 15. A taxa de crescimento das camadas foi controlada utilizando a técnica de RHEED e mantida em 0,5 ML/s sobre o substrato (100). A estrutura da amostra está apresentada na Fig.2.1. Uma camada buffer de GaAs de 0,3 μm foi crescida seguida pelo poço quântico de GaAs com largura de 5,5 nm e as barreiras de $\text{Al}_{0,36}\text{Ga}_{0,64}\text{As}$ com 30 nm de espessura. A estrutura de poço contém 20 unidades, sendo finalizados com um *cap layer* de 6 nm.

O segundo conjunto de estruturas é composto por um total de 4 amostras, sendo duas estruturas híbridas de QD-QW e duas amostras de referência. As estruturas foram planejadas de maneira que a emissão de fotoluminescência do estado fundamental do QW e o estado fundamental do QD estejam espectralmente separadas, mas o terceiro estado excitado do QD encontra-se em ressonância com o nível fundamental do QW. Dessa forma, o tunelamento de portadores entre o QW e QD ocorre de maneira

GaAs cap layer	6 nm	} 20x
Al _{0,36} Ga _{0,64} As	30 nm	
GaAs	5,5 nm	
Al _{0,36} Ga _{0,64} As	30 nm	
GaAs buffer	0,3 μm	
Substrato GaAs Orientação (100) ou (311)		

Figura 2.1: Representação esquemática das amostras de poço quântico de GaAs com barreiras de Al_{0,36}Ga_{0,64}As depositados em substratos com orientação cristalina (100) ou (311).

coerente e pode ser controlado por parâmetros externos. Estas estruturas híbridas também foram crescidas por MBE em substrato de GaAs (100), com uma camada buffer de 300 nm de GaAs depositada em temperatura de 580 °C para suavizar a superfície do substrato. A temperatura foi então reduzida para 530 °C para o crescimento do poço quântico de In_{0,13}Ga_{0,87}As com largura de 14 nm. Na sequência, uma camada espaçante com 2 ou 20 nm de GaAs foi crescida. Posteriormente, foram depositadas duas monocamadas de InAs, seguidos pela formação do QD, e finalmente 50 nm de *cap layer* foram crescidos, como ilustrado na Figura 2.2. Além disso, duas amostras de referência foram crescidas, uma contendo apenas QDs e outra com QW utilizando-se as mesmas condições de crescimento das amostras híbridas, como ilustrado na Fig.2.2.

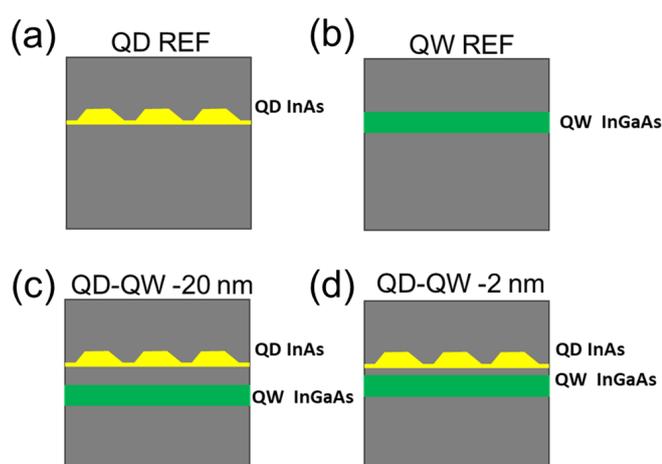


Figura 2.2: Representação esquemática das amostras híbridas. (a) QD de InAs referência; (b) QW de InGaAs de referência; (c) estrutura híbrida de 20 nm e (d) estrutura híbrida 2 nm.

2.2 Caracterização experimental

Nesta seção será apresentado o *setup* experimental e a técnica de caracterização óptica utilizada para o desenvolvimento desta tese de doutorado, em que todos os estudos foram feitos utilizando um magneto-criostato associado a técnica de fotoluminescência. O princípio de excitação e detecção do sinal das amostras foi realizado com a técnica de microscopia confocal.

2.2.1 Setup experimental

Os resultados experimentais apresentados nessa tese foram realizados no *setup* experimental descrito esquematicamente na Figura 2.3, consistindo de um criostato de ciclo fechado com um acesso via óptica livre. O criostato é equipado com uma bobina supercondutora capaz de aplicar campos magnéticos de até 9 T. A amostra é fixada em uma base metálica de ouro em um chip apropriado para a condução térmica. Após o preparo, o chip é inserido no porta amostras sobre microposicionadores piezoelétricos que permitem o controle espacial em x , y e z , com resolução de até 10 nm e deslocamento total de até 5 mm. A amostra permanece em uma posição central onde o campo magnético é uniforme e perpendicular ao plano da amostra (geometria Faraday).

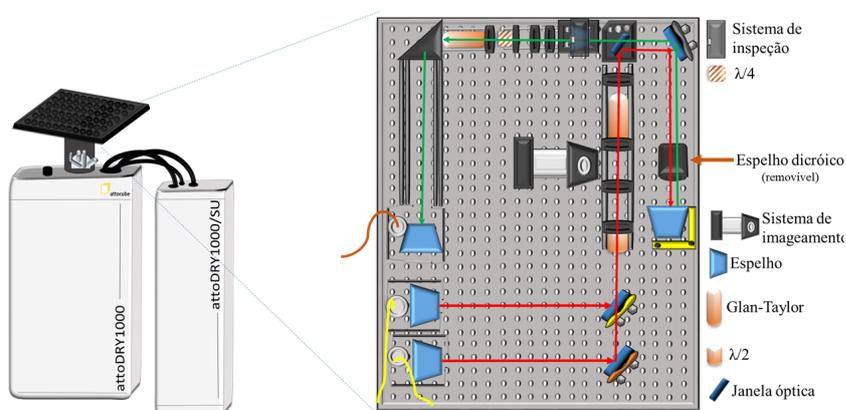


Figura 2.3: Lado esquerdo: Representação esquemática do criostato attoDry1000. Lado direito: Ilustração da óptica associada ao microscópio confocal para as medidas de fotoluminescência.

A principal parte do *setup* experimental é a pequena mesa óptica localizada no topo do criostato, em que as linhas em vermelho indicam o caminho óptico da excitação e a linha em verde representa o caminho da detecção do sinal emitido pela amostra. A seguir, serão descritos em detalhes cada componente óptico e sua função para a detecção das componentes de spin.

2.2.2 Microscopia confocal

A microscopia confocal é uma técnica de imageamento com objetivo de aumentar a resolução e o contraste óptico através do uso de uma fonte luminosa focalizada em um diâmetro limitado pela difração da luz e do uso de um *pinhole* para coletar o sinal apenas do ponto focal e rejeitar a luz originada dos entornos deste ponto. Na espectroscopia por micro-fotoluminescência o microscópio confocal é utilizado para coletar a luminescência do plano focal aumentando a resolução espacial do *setup* experimental.[28, 29]

Neste trabalho, o microscópio confocal pode ser separado em duas partes principais como ilustrado na Figura 2.4: a de excitação, dedicada a enviar a fonte luminosa (*laser*) e a detecção para coletar a luz emitida (luminescência) pela amostra. A combinação desses dois canais é realizada utilizando janelas ópticas constituídas de quartzo, que refletem 7% da luz incidente e transmitem 93% da luz originada pela amostra, quando posicionadas em um ângulo de noventa graus em relação ao plano de incidência da luz. Neste *setup*, também é feito uso de um divisor de feixes, de um LED e uma CCD para formar o canal de inspeção, o qual é utilizado para o alinhamento dos feixes através da sobreposição dos canais de excitação e detecção.

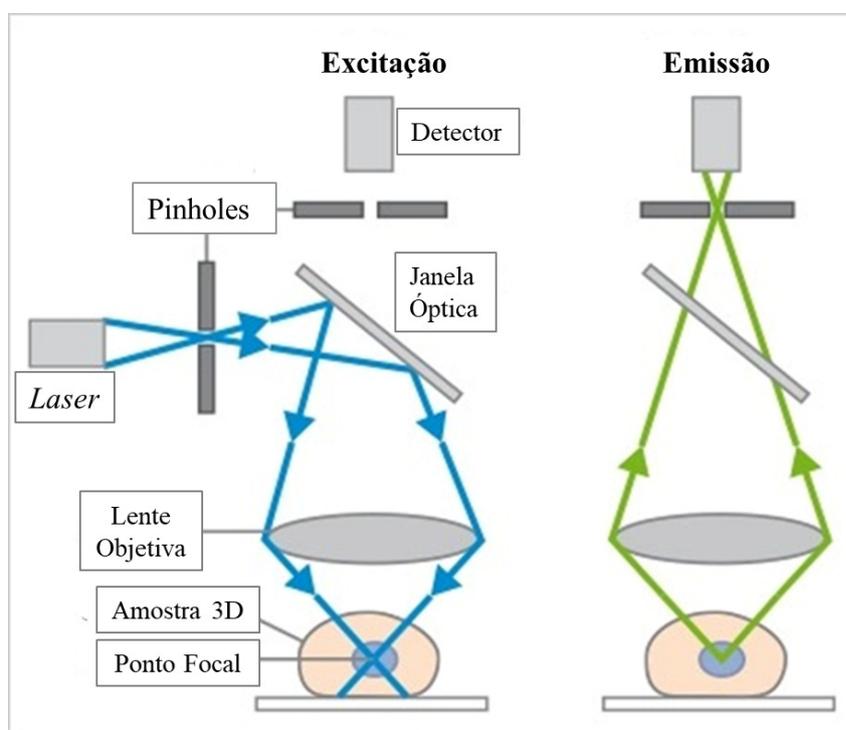


Figura 2.4: Princípio da microscopia confocal adaptada para micro-fotoluminescência. Os pinholes são os *core* da fibra óptica. Em azul observa-se o caminho do feixe, enquanto que a detecção, em verde, capta apenas a luz emitida do ponto focal. A sobreposição do caminho da excitação e detecção deve ser o mais precisa possível para coletar a máxima emissão provocada pela excitação no ponto focal. (adaptado de Ibidi)[30]

A mesa óptica apresentada na Figura 2.5 apresenta o caminho óptico descrito na cabeça do microscópio confocal. Neste sistema, utilizamos um total de 4 caminhos ópticos independentes: Dois de excitação, um de detecção e um canal extra utilizado para imageamento e inspeção da superfície da amostra.

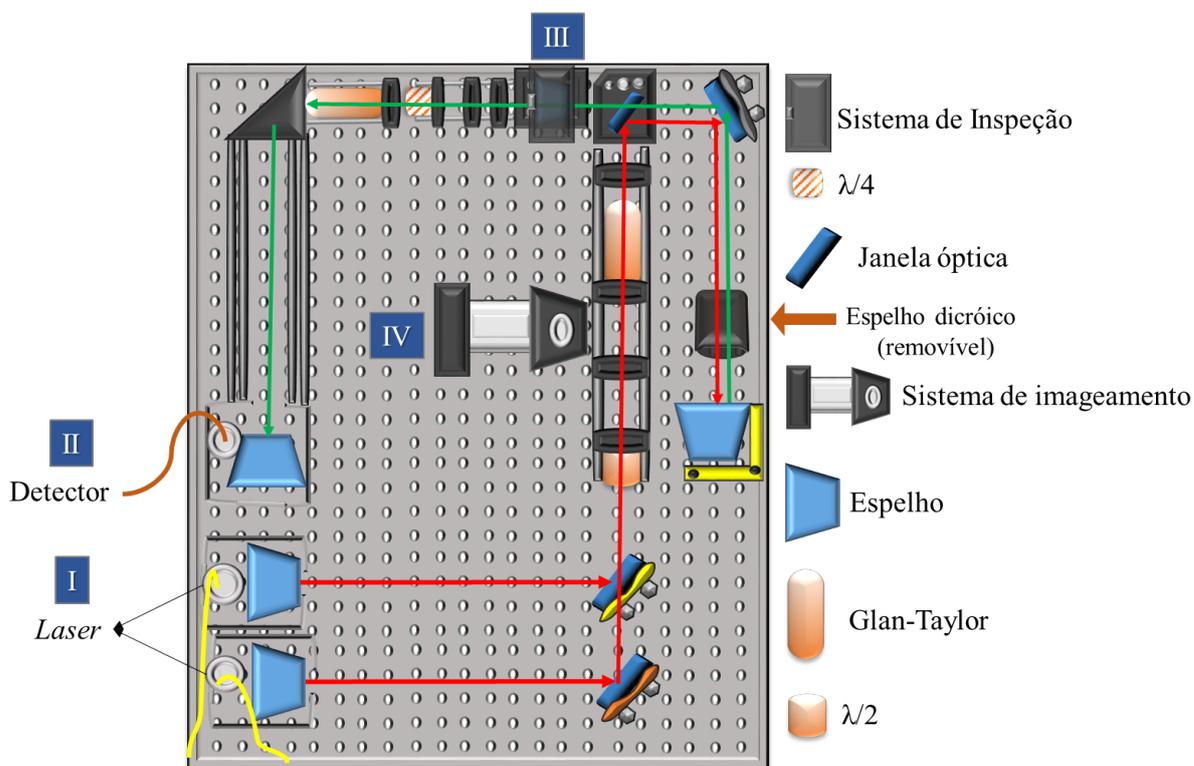


Figura 2.5: Ilustração da cabeça do microscópio localizado sobre o criostato. No total 4 canais independentes são utilizados, são eles: Excitação (I), detecção(II), inspeção (III) e imageamento/inspeção(IV). Destacado em vermelho e verde os canais de excitação e detecção, respectivamente.

O caminho para excitação começa pela fonte luminosa (*laser*). A luz linearmente polarizada é guiada até a mesa óptica por fibras do tipo mono-modo, com uma lente esférica utilizada para colimar o feixe com aproximadamente 5 mm de diâmetro. Dois espelhos são utilizados para guiar o feixe em linha reta na direção da primeira janela óptica (que atua como divisor de feixes). O feixe de laser atravessa então uma placa de $\lambda/2$ e posteriormente um polarizador linear Glan-Taylor. O uso da placa de $\lambda/2$ é para alinhar a polarização do laser com a polarização desejada para excitação, seja ela linearmente polarizada paralela ao plano da mesa, ou perpendicular ao mesmo plano. Neste trabalho, foi utilizada uma polarização linear perpendicular ao plano da mesa, a qual foi denominada como componente *S*. Após a reflexão do feixe pelo divisor, os dois últimos espelhos direcionam o feixe de laser para a janela do criostato, que em seguida é focalizado na amostra por uma lente objetiva com abertura numérica de 0,68. Nesta tese a polarização de excitação sempre foi linear, mas caso seja necessário a

excitação circular, é possível posicionar uma placa de $\lambda/4$ após o último espelho antes do criostato para obtenção da excitação circular à direita ou esquerda.

A luz emitida pela amostra é então coletada pela mesma lente objetiva. O feixe de luz é refletido pelos dois espelhos e transmitido através das duas janelas ópticas posicionadas em 90° entre si, desta forma, as componentes de polarização perpendiculares são invertidas entre si entre as duas janelas, e os seus efeitos na polarização da luz emitida pela amostra são mutuamente cancelados. Posteriormente, a luz emitida atravessa a placa de $\lambda/4$ e o polarizador linear Glan-Taylor, permitindo assim a análise da polarização. Ainda, o polarizador linear é colocado em 90° em relação a polarização do canal de excitação, minimizando a transmissão do laser retrorefletido pela amostra. Além disso, é feito uso de um filtro passa banda para filtrar o laser e coletar apenas o sinal da luminescência originada pela amostra. Finalmente, a luminescência é direcionada para o espectrômetro por meio de uma fibra multimodo com $50 \mu\text{m}$. Para situações que requerem o máximo de rejeição de luz fora do foco, uma fibra mono modo de $5 \mu\text{m}$ de *core* pode ser usada permitindo assim a obtenção da máxima confocalidade possível.

Como a resolução espacial do microscópio depende principalmente das características da lente objetiva que focaliza o feixe na amostra, neste sistema foi feito uso de uma lente esférica com abertura numérica de 0,68 e distância focal de 1.6 mm. Considerando o critério de Rayleigh, estima-se que o *spot* do laser na amostra seja de $\approx 1 \mu\text{m}$. Como o pinhole deste microscópio confocal é o próprio *core* da fibra óptica, é importante reconhecer as limitações do sistema. Para estudar amostras uniformes como as utilizadas nesta tese a fibra multi-modo é suficiente, oferecendo uma coleta de luz espalhada maior do que o próprio diâmetro da excitação.

2.2.3 Calibração da polarização

Para as medidas de polarização de spin, o controle preciso do grau de fidelidade da polarização da luz de excitação e detecção se faz necessário. O grau de polarização circular (DCP) da emissão das amostras é caracterizada por:

$$DCP = \frac{I^{\sigma^+} - I^{\sigma^-}}{I^{\sigma^+} + I^{\sigma^-}}, \quad (2.1)$$

onde I^{σ^+} e I^{σ^-} são as intensidades integradas das componentes de polarização circular.

A caracterização dos canais de excitação e detecção tem caminhos diferentes. Para a excitação, após passar pelo polarizador linear, uma fração da luz linearmente polarizada é refletida pela janela óptica. Em seguida, uma placa de $\lambda/4$ é posicionada a 45° em relação ao eixo da luz linearmente polarizada e, por fim, um polarizador linear é utilizado como analisador. No canal de detecção, tanto o polarizador linear como a placa de $\lambda/4$ são posicionados anteriormente às janelas ópticas e a luz transmitida

através das janelas passam pelo analisador (polarizador linear). Em ambos os casos o analisador posicionado após o último espelho antes a janela de acesso ao criostato varia entre 0 e 360°.

A figura 2.6 apresenta a medida de caracterização da polarização tanto para o canal da excitação como para o da detecção. A escolha da posição das janelas ópticas foi propositalmente de modo que seus planos estejam em 90° entre si, invertendo assim as componentes S e P entre uma janela e outra, cujo resultado final é o cancelamento de qualquer desvio de polarização provocado pela próprias janelas. O gráfico foi montado em escala polar para identificar visualmente alguma alteração na polarização circular. Nota-se que tanto para a excitação quanto para a detecção, as intensidades são praticamente equivalentes, tendo um pequeno desvio para o canal da excitação. Isto é um indicativo de que a caracterização de spin polarizada apresentada nessa tese é altamente confiável e com precisões superiores a 98%.

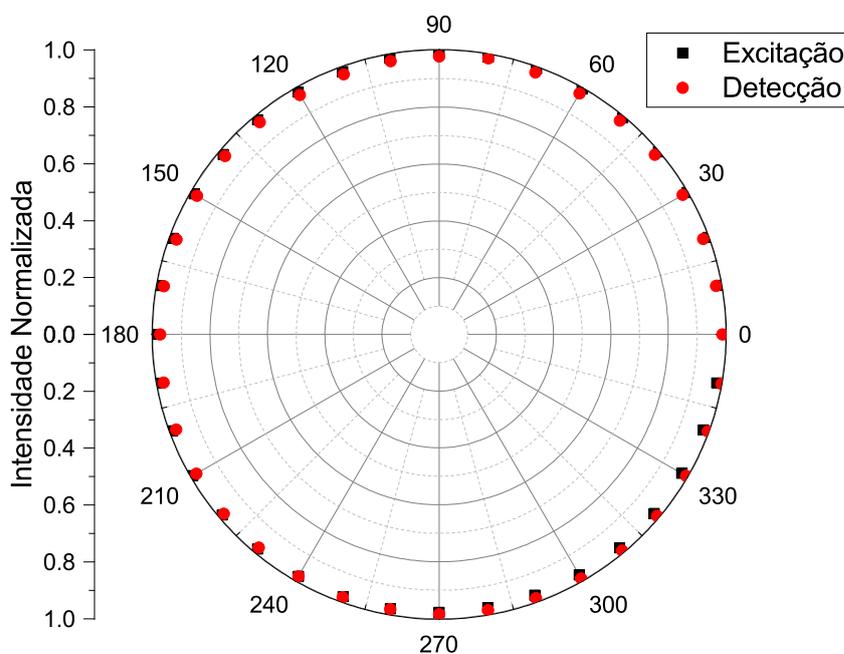


Figura 2.6: Caracterização da polarização da luz transmitida pelo *setup* experimental após as janelas ópticas. Em vermelho os resultados para a detecção e em preto para a excitação.

Capítulo 3

Análise dependente do *Spin* nos processos de decoerência homogênea e não homogênea de éxcitons sob campos magnéticos

Adaptado de:

V. Laurindo, Jr., E. D. Guarin Castro, G. M. Jacobsen, E. R. C. de Oliveira, J. F. M. Domenegueti, B. Alén, Yu. I. Mazur, G. J. Salamo, G. E. Marques, E. Marega, Jr., M. D. Teodoro, and V. Lopez-Richard

"Spin-dependent analysis of homogeneous and inhomogeneous exciton decoherence in magnetic fields"

Phys. Rev. B **105**, 045414 (2022)

3.1 Resumo

Neste capítulo será discutido os efeitos combinados da potência de excitação óptica, rugosidade entre as interfaces, temperatura da rede cristalina e do campo magnético aplicado na coerência de *spin* dos estados excitônicos em poços quânticos múltiplos de GaAs/AlGaAs. Para baixas potências de excitação e temperatura da rede cristalina entre 4 e 50 K, o espalhamento por fônons acústicos e a interação de curto alcance são os principais mecanismos de decoerência. Além disso, as flutuações de potencial do *gap* de energia tornam-se relevante neste intervalo de temperatura e potência, onde conseguimos extrair a partir da largura de linha a meia altura (FWHM) as contribuições da decoerência. Através da magneto fotoluminescência com polarização circular revelou-se um aumento não monotônico da intensidade integrada para uma das componentes de *spin* em baixos campos magnéticos. Esse efeito foi descrito como uma competição entre interações de curto alcance e espalhamento via *spin-flip*, modulados pelo tempo de relaxação do momento.

3.2 Introdução

O *spin* eletrônico em semicondutores tornou-se um potencial candidato para o desenvolvimento da *spintrônica* e tecnologias de informação quântica.[31, 32] Isso tem sido estudado em uma variedade de semicondutores que abrangem as conhecidas ligas III-V, II-VI e mais recentemente monocamadas de dicalcogenetos de metais de transição [33–36] e grande esforço tem sido devotado para controlar e aumentar o tempo de coerência de *spin*. [37–39]

No regime de excitação óptica não ressonante, portadores de *spin* foto-gerados perdem energia através de processos de espalhamento seguido pela recombinação radiativa do éxciton. Esse processo de fotoluminescência (PL) é mediado por mecanismos de decoerência que alargam a largura de linha da emissão óptica do éxciton, fornecendo informação sobre o tempo no qual o éxciton pode ser coerentemente manipulado. [40] Sob a aplicação de campo magnético externo, o confinamento adicional no plano x-y pode favorecer os processos de espalhamento. Além disso, um aumento do tempo de relaxação de *spin* do éxciton [41] pode levar a formação de coerência espontânea. [42–45] Portanto, compreender como e em qual condição diferentes mecanismos de decoerência do éxciton são acionados é de vital importância. Para responder essas questões, neste capítulo foram investigados os processos de relaxação do éxciton e o efeito de um campo magnético externo no ajuste da coerência de *spin* em poços quânticos. Reduzindo a temperatura da rede e para baixas potências de excitação, a presença de flutuações de potencial do *gap* estabiliza a temperatura efetiva dos portadores a valores maiores que a temperatura da rede cristalina. Aplicando campo magnético nesse regime, a coerência de *spin* do éxciton pode ser manipulada. Nesse caso, a combinação de interações de curto alcance e espalhamento através de *spin-flip* são os principais mecanismos de decoerência, como demonstrado por nossas simulações.

3.3 Setup experimental e amostra

Uma heteroestrutura de múltiplos poços quânticos (MQW) foi crescida via epitaxia de feixe molecular em um substrato semi-isolante, e consiste de 20 QWs com largura do poço de 55 Å com barreira de Al_{0,36}Ga_{0,64}As com largura de 300 Å, espessa o suficiente para evitar o tunelamento entre os QWs. As medidas de PL foram realizadas em temperaturas que variam entre 3,6 K até 80 K por meio de um microscópio confocal com a amostra colocada dentro de um criostato magnéto-óptico. Campos magnéticos de até 6 T foram aplicados em temperaturas criogênicas. Um *laser* de diodo linearmente polarizado foi utilizado como fonte de excitação ($\lambda = 730$ nm) com *spot* na amostra de aproximadamente 1 μm de diâmetro. Um conjunto de polarizadores e placas de ondas foram utilizados para identificar as componentes de emissão óptica circularmente

polarizada a direita (σ^+) e circularmente polarizada á esquerda (σ^-) da amostra, as quais foram aopladas em uma fibra óptica de $50 \mu\text{m}$ de diâmetro, dispersadas em um espectrômetro de 75 cm e detectadas por uma CCD de silício.

3.4 Temperatura efetiva dos portadores

Os espectros de PL obtidos para diferentes potência de excitação a uma temperatura fixa de $T = 3,6 \text{ K}$ são mostrados na Fig3.1a. A principal emissão com pico em $1,615 \text{ eV}$ associada a transição elétron-buraco, nomeada e-hh, corresponde a recombinação do estado excitônico fundamental $1s$ [46]. Em altas potências de excitação outra emissão em $1,625 \text{ eV}$, nomeada e-hh1, associada ao éxciton $2s$ é observada. [46, 47]

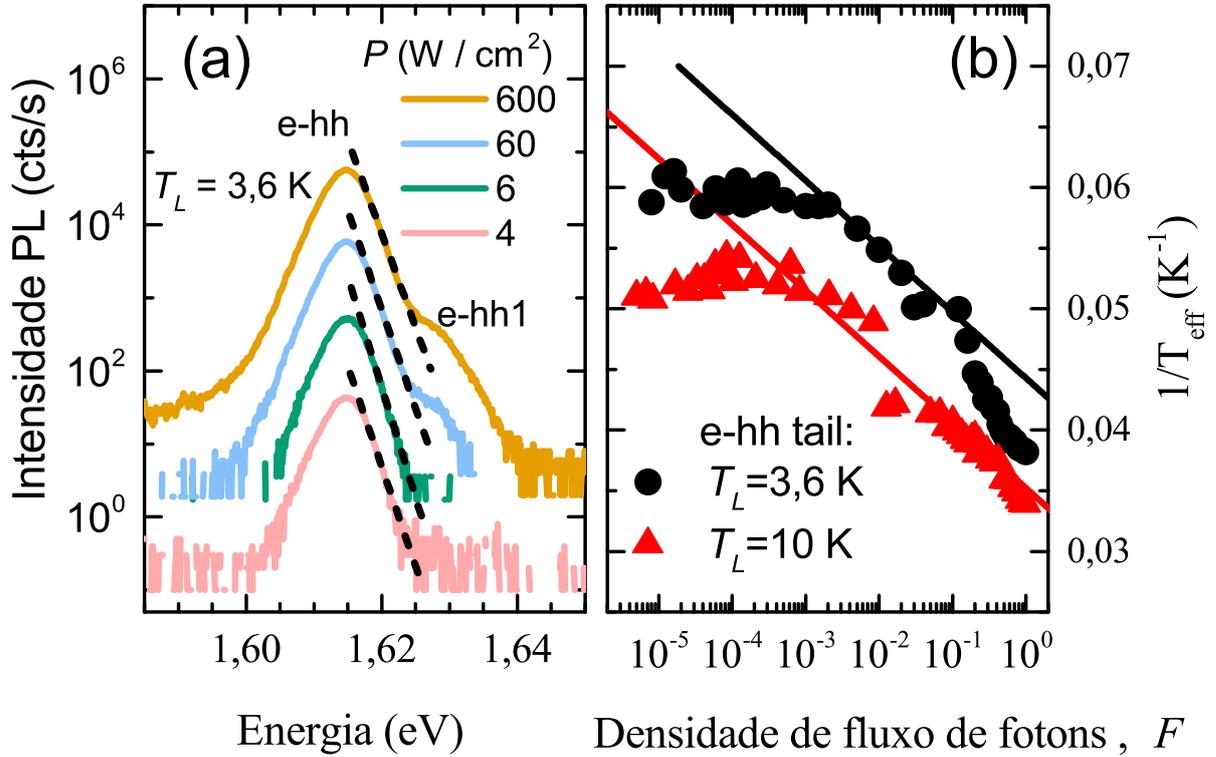


Figura 3.1: (a) Espectros de emissão da PL para diferentes densidades de potência a temperatura da rede cristalina de $3,6 \text{ K}$. b) Inverso da temperatura efetiva dos portadores em função da densidade de fluxo normalizada \tilde{F} . As linhas sólidas simulam a variação da temperatura efetiva através do espalhamento por fônons LO.

Dentro da aproximação de banda parabólica, a intensidade da PL (L) em poços quânticos pode ser calculada como sendo proporcional:[23]

$$L \propto \langle u_h | \mathbf{ffl} \cdot \mathbf{p} | u_e \rangle^2 D(\hbar\omega, T_e, T_h), \quad (3.1)$$

onde $\langle u_h | \mathbf{ffl} \cdot \mathbf{p} | u_e \rangle^2$ é o elemento da matrix dipolar e

$$D(\hbar\omega, T_e, T_h) = \frac{m_r}{\pi\hbar^2} f_{\mu_e}^{\text{FD}} \left(E_g + E_1^e + \frac{m_r}{m_e} \mathcal{E}, T_e \right) f_{-\mu_h}^{\text{FD}} \left(E_1^h + \frac{m_r}{m_h} \mathcal{E}, T_h \right) H(\mathcal{E}), \quad (3.2)$$

sendo $\hbar\omega$ a energia do fóton emitido e $f_{\mu_i}^{\text{FD}}(E, T)$ a função de distribuição de Fermi-Dirac para o subistemas de elétron e buraco ($i = e, h$) com a temperatura efetiva T_e e T_h , e o potencial químico μ_e e $-\mu_h$, respectivamente. Os potenciais químicos são medidos a partir do topo da banda de valência. A massa reduzida é $m_r = m_e m_h / (m_e + m_h)$, $H(\mathcal{E})$ é a função degrau, e $\mathcal{E} = \hbar\omega - (E_g + E_1^e + E_1^h)$ com E_g com sendo o *gap* e $E_1^{e(h)}$ a energia do estado fundamental para elétrons e buracos.

Como pode ser observado na Fig.3.1(a), o lado de maior energia do espectro de PL possui uma assimetria, cuja distribuição de Fermi-Dirac pode ser aproximada da função de Boltzmann,

$$f_{\mu}^{\text{FD}}(E, T) \Big|_{\frac{E-\mu}{k_B T} \gg 1} = f^{\text{B}}(E, T) = \exp\left(-\frac{E-\mu}{k_B T}\right), \quad (3.3)$$

e a qualidade dessa aproximação pode ser verificada usando como referência a redução relativa da função distribuição independentemente da posição do potencial químico μ . Isso pode ser facilmente demonstrado através de,

$$\frac{f^{\text{B}}(E, T) - f_{\mu}^{\text{FD}}(E, T)}{f_{\mu}^{\text{FD}}(E, T)} 100\% < 10\%, \quad (3.4)$$

uma vez que $f_{\mu}^{\text{FD}}(E, T) < 1/11$. Portanto, a redução relativa de pelo menos uma ordem de grandeza, onde $f_{\mu}^{\text{FD}}(E, T) = 1$ por si só garante uma discrepância abaixo de 10% da aproximação de Boltzmann em relação a distribuição de Fermi-Dirac. Sob tal aproximação, a Eq.3.2 segue como,

$$D(\hbar\omega, T_e, T_h) = \frac{m_r}{\pi\hbar^2} \exp\left(-\frac{E_g + E_1^e + \frac{m_r}{m_e} \mathcal{E} - \mu_e}{k_B T_e}\right) \exp\left(-\frac{E_1^h + \frac{m_r}{m_h} \mathcal{E} + \mu_h}{k_B T_h}\right) H(\mathcal{E}), \quad (3.5)$$

e a intensidade torna-se proporcional a

$$L(\hbar\omega) \propto \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{k_B T_{\text{eff}}}\right) \quad (3.6)$$

com $(T_{\text{eff}})^{-1} \equiv m_r[(m_e T_e)^{-1} + (m_h T_h)^{-1}]$ sendo a temperatura efetiva do par e-h. Uma

discussão da natureza da T_{eff} e as fontes que contribuem podem ser encontradas na ref [48]. Embora esta referência indique a possibilidade dos subsistemas de elétrons e buracos não estarem termalizados,[23, 48] e pelo fato das amostras estudadas não serem dopadas, não temos motivos para assumir que a temperatura dos portadores (elétrons e buracos) sejam diferentes, então $T_e = T_h = T_{\text{eff}}$.

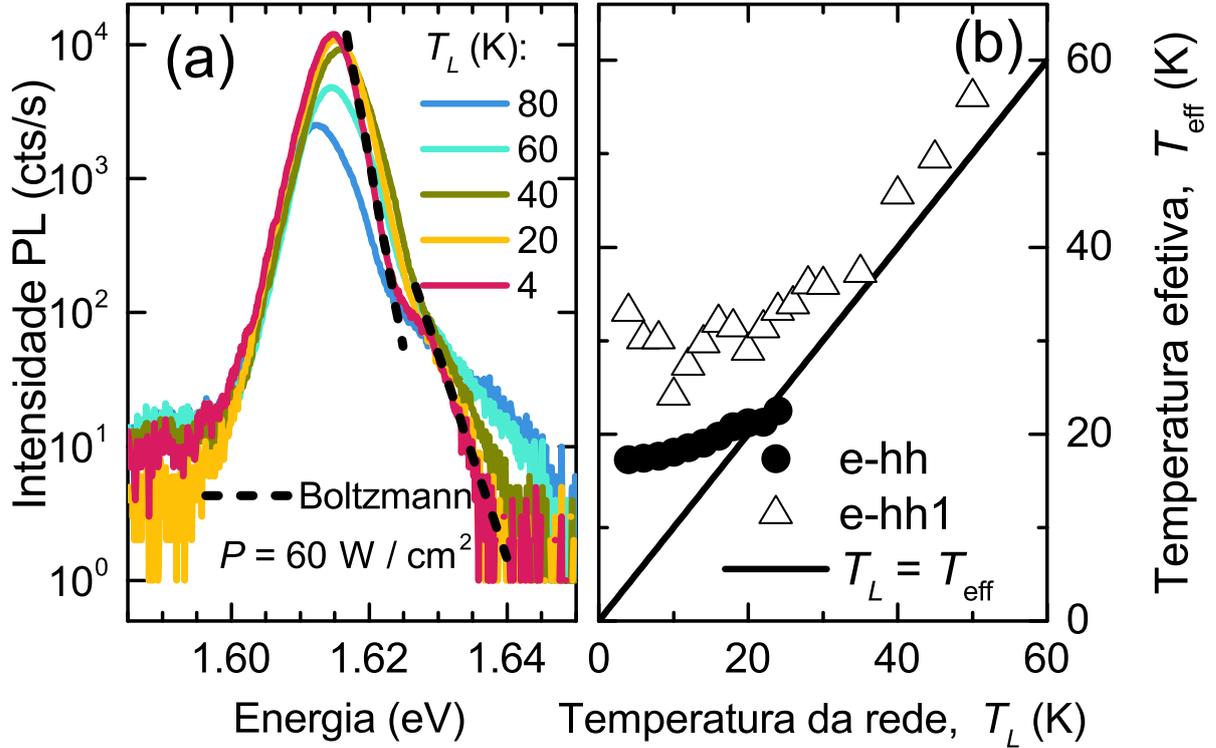


Figura 3.2: (a) Espectro de PL para diferentes temperaturas da rede cristalina a uma densidade de potência constante de 60 W/cm^2 . O lado de maior energia da transições e-hh e e-hh1 foram ajustadas usando a função de Boltzmann (linhas tracejadas). (b) Temperatura efetiva para a transição e-hh e e-hh1 em função da temperatura da rede. A linha preta representa os portadores termalizados com a rede cristalina ($T_{\text{eff}} = T_L$).

Seguindo a aproximação demonstrada acima, a da cauda PL em alta energia e-hh na Fig.3.1a (linhas tracejadas preta) pode ser descrita como uma função de distribuição Boltzmann, como indicado na Eq. 3.6. O inverso T_{eff} extraído da cauda de maior energia para a emissão e-hh é apresentado na Fig.3.1b em função da densidade de fluxo do fóton definida como $F = P/\hbar\omega_1$, com P sendo a densidade de potência e $\hbar\omega_1$ a energia do *laser*. Na Fig.3.1b, a densidade de fluxo foi normalizada em relação ao máximo valor experimental, $\tilde{F} = F/F_{\text{max}}$ para duas temperaturas da rede cristalina. Quando o espalhamento por fônon longitudinal ópticos (LO) é o processo de relaxação de energia mais eficiente, a relação $F \propto \exp\{-\hbar\omega_{\text{LO}}/(k_B T_{\text{eff}})\}$ é esperada, com $\hbar\omega_{\text{LO}} = 36,5 \text{ meV}$ sendo a energia do fônon-LO GaAs. [49] Como descrito na Fig.3.1b pelas linhas sólidas, há uma boa concordância entre o ajuste e os dados experimentais para altos valores de incidência de fótons ($\tilde{F} > 10^{-3}$). Em baixas potências de excitação a temperatura efetiva desvia dessa tendência, estabilizando em valores de 17 K

para $T_L = 3,6$ K e 19 K para $T_L = 10$ K. Isso indica uma redução do espalhamento através de fônon-LO, aumentando a contribuição relativa da interação portador-portador a qual estabiliza a temperatura efetiva. [50] Como será demonstrado abaixo, essa diminuição é acionada em um regime onde as flutuações de potencial provocadas pela rugosidade na interface de GaAs/AlGaAs [51] tem um papel fundamental. [52]

O espectro de PL obtido com densidade de potência de 60 W/cm^2 é apresentado na Fig.3.2a para várias temperaturas da rede. Nesse caso, a emissão e-hh1 é observada e T_{eff} é mostrado na Fig.3.2b para ambas as emissões e-h e e-hh1 em função da temperatura da rede cristalina. A condição de termalização com a temperatura da rede, $T_{\text{eff}} = T_L$, também é representada. Os estados excitados apresentam temperatura efetiva maior que o estado fundamental e, aumentando a temperatura T_L uma maior termalização com a rede cristalina é observada. Para temperaturas maiores que 25 K, ocorre o aparecimento de uma nova transição óptica próximo de 1,620 eV que impede a extração de valores confiáveis de T_{eff} . A estabilização da temperatura efetiva em baixa temperatura da rede indica uma diminuição da relaxação através de processos mediados por fônons que impedem a termalização com a rede cristalina.

3.5 Flutuações de potencial

Para acessar os diferentes papéis relativos aos mecanismos de decoerência, a largura de linha à meia altura (FWHM) do espectro de emissão pode ser investigada. Embora a perda de coerência por processos irreversíveis no tempo podem ser mapeados analisando como a FWHM varia com a temperatura e campos externos, esse parâmetro pode ser afetado devido as flutuações de potencial da variação espacial das fontes de luz (Éxcitons nesse caso). Portanto, o papel desempenhado pelas flutuações de potencial deve ser determinado. Para compreender esse efeito, a temperatura da rede cristalina e sua dependência com a posição do pico da transição e-hh é apresentada na Fig.3.3a para duas densidades de potências de *lasers* junto com as simulações usando a expressão modificada do modelo de Pässler-p, onde os dois últimos termos do lado direito foram adicionados considerando a energia devido ao confinamento do elétron e buraco no poço quântico, [53]

$$E_p(T_L) = E_g - \frac{\alpha\Theta}{2} \left[\sqrt[p]{1 + \left(\frac{2T_L}{\Theta}\right)^p} - 1 \right] + E_1^e + E_1^h, \quad (3.7)$$

onde E_g é a energia de gap em $T_L = 0$ K, e $E_1^e + E_1^h = 98$ meV é a energia extra devido ao confinamento no QW, $\alpha = 5,405 \times 10^{-4}$ eV/K, [54] $\Theta \equiv \hbar\omega_{LO}/k_B$ com $\hbar\omega_{LO} = 36$ meV para GaAs, enquanto $p = 2,5$ para 60 W/cm^2 e $p = 2,45$ para $2 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ é o parâmetro relacionado ao formato da função elétron-fônon espectral. [53, 55] O desvio

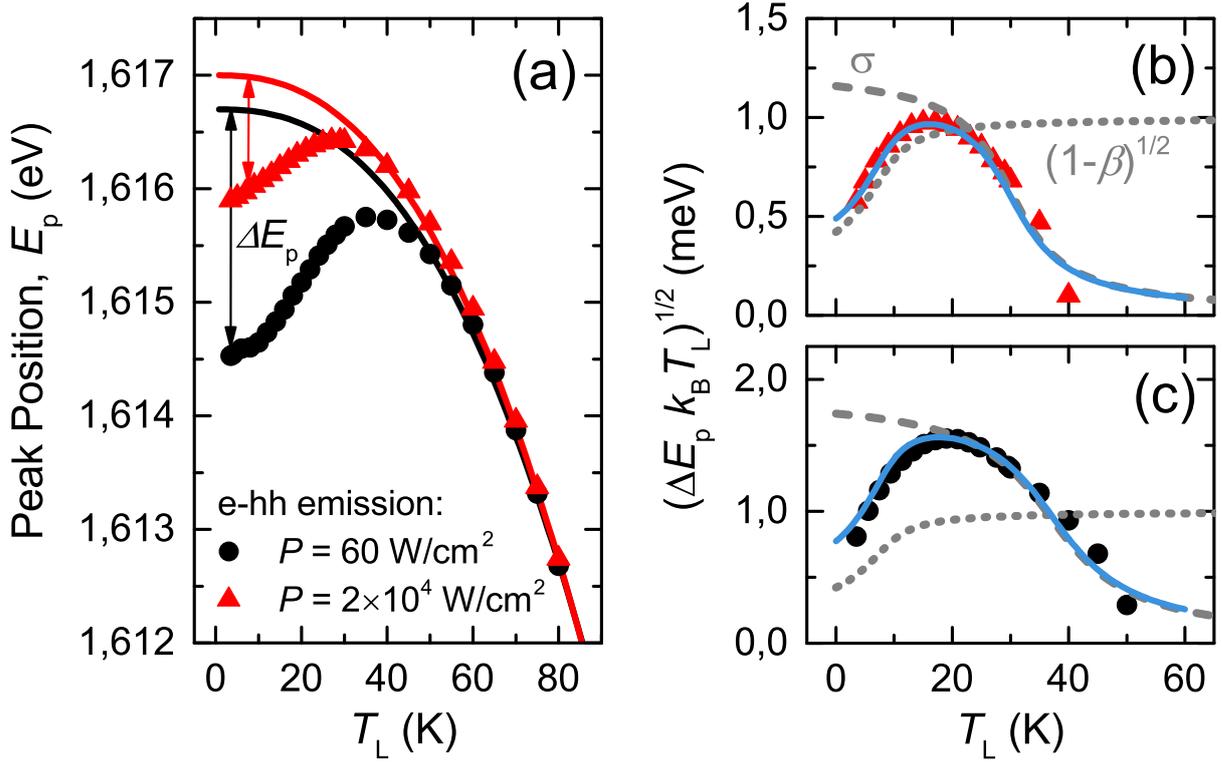


Figura 3.3: (a) Posição do pico de energia da PL (E_p) em função da temperatura para densidade de potência do *laser* de $2 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ e 60 W/cm^2 . As linhas apresentam as simulações baseadas na Eq. 3.7. A dependência com a temperatura de $\sqrt{\Delta E_p k_B T_L} \simeq \sigma \sqrt{1 - \beta}$ para (b) $P = 2 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ e (c) $P = 60 \text{ W/cm}^2$. São apresentadas as simulações em linhas azuis obtidas usando as funções degrais σ (linha espessa pontilhada) e $(1 - \beta)^{1/2}$ (linha fina pontilhada).

ΔE_p dos resultados experimentais e teóricos é relacionado as flutuações de potenciais provocada pela rugosidade na interface. [55] Em baixas temperaturas, os éxcitons podem ser aprisionados nessas flutuações e, aumentando T_L , difundem e recombinam radiativamente a partir de estados de mais alta energia. [56] Aumentando a densidade de potência do *laser*, [55] as flutuações de potencial são blindadas pelo preenchimento eletrônico, diminuindo assim ΔE_p , como mostrado na Fig. 3.3 a, b e c. Esses efeitos podem ser analisados utilizando o modelo proposto na Ref.[57], o qual descreve a intensidade da emissão como função da energia do fóton E , como

$$\phi(E) = \text{erfc} \left(\frac{E_g - E + \beta \sigma^2 / k_B T_L}{\sqrt{2} \sigma} \right) E^2 \exp \left(-\frac{E - \mu_0 - \beta E_g}{k_B T_L} + \frac{\beta^2 \sigma^2}{2(k_B T_L)^2} \right), \quad (3.8)$$

onde σ é o desvio padrão das flutuações de potencial local [55, 58], e $\beta = [1 + (\lambda_\mu / \lambda_g)^2]^{-1/2} \in (0, 1]$, depende da razão entre comprimento característico do transporte dos portadores λ_μ , em relação a escala de comprimento das flutuações de potencial λ_g , e indica a eficiência do aprisionamento dos portadores. $\beta \rightarrow 0$ corresponde à

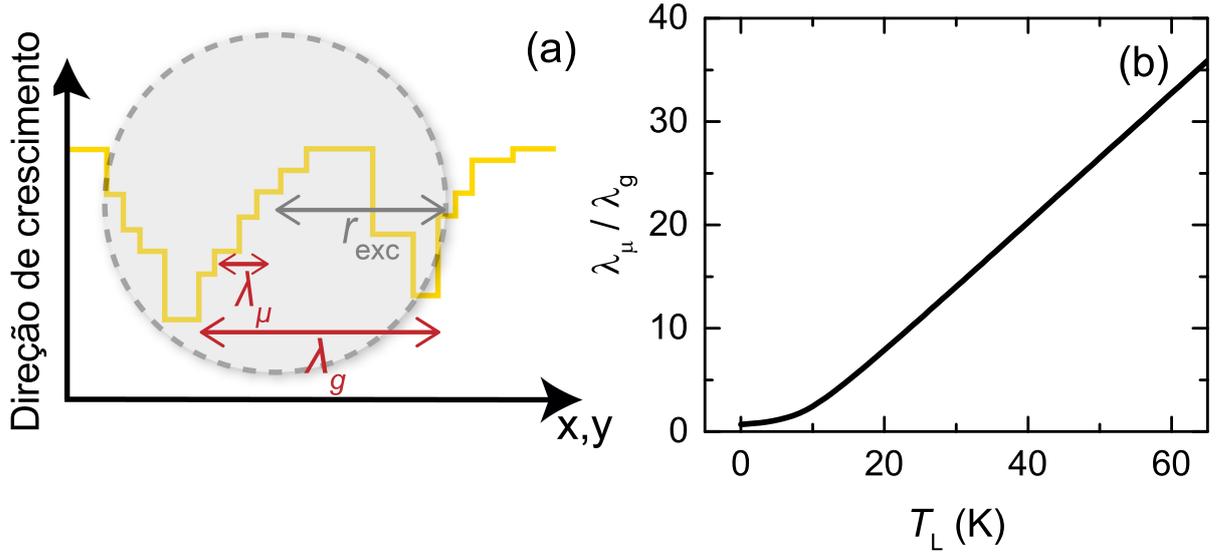


Figura 3.4: a) Representação esquemática das larguras características das flutuações de potencial, λ_μ e λ_g comparada com o raio excitônico r_{exc} . b) Dependência da temperatura com a razão calculada λ_μ / λ_g obtidas para Fig.3.3.

pequenas flutuações de potencial (aprisionamento ineficiente) e $\beta = 1$ grandes flutuações (aprisionamento eficiente). Isso é esquematicamente demonstrado na Fig.3.4a.

Para altos valores da função de erro complementar simplificada, $\text{erfc}(\xi) \approx \exp(-\xi^2) / \sqrt{\pi}\xi$, [59], a intensidade da emissão descrita pela 3.8 tornam-se proporcional a

$$\phi(E) \propto \exp\left(-\frac{E_g - \frac{\sigma^2}{k_B T_L}(1 - \beta) - E}{2\sigma^2}\right). \quad (3.9)$$

Portanto, em baixas temperaturas a contribuição para a FWHM é determinada pelo desvio padrão das flutuações de potencial como $W_\sigma = 2\sqrt{2 \ln 2} \cdot \sigma$, enquanto ΔE_p pode ser aproximado como

$$\Delta E_p(T_L) \simeq \frac{\sigma^2}{k_B T_L}(1 - \beta). \quad (3.10)$$

Após extrair a diferença entre a Eq. 3.7 e os dados experimentais, o valor de $\sqrt{\Delta E_p(T_L) k_B T_L} = \sigma \sqrt{1 - \beta}$ é apresentado na Fig.3.3b,c para potências de $P = 2 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ e $P = 60 \text{ W/cm}^2$, respectivamente, mostrando um comportamento não monotônico entre 4 e 50 K. O valor experimental da FWHM foi obtido através de um ajuste gaussiano do espectro de emissão e-hh como função da T_L , para a potência aplicada de $P = 60 \text{ W/cm}^2$. Neste caso, uma projeção no intervalo de temperatura onde os efeitos das flutuações de potencial são mais evidentes. Como a densidade de potência e a temperatura afetam a maneira como as flutuações são rastreadas, ambas podem ser ajustadas também com os valores efetivos de σ e β . O aumento da potência ou da temperatura resulta em uma aparente homogeneização das flutuações de potencial,

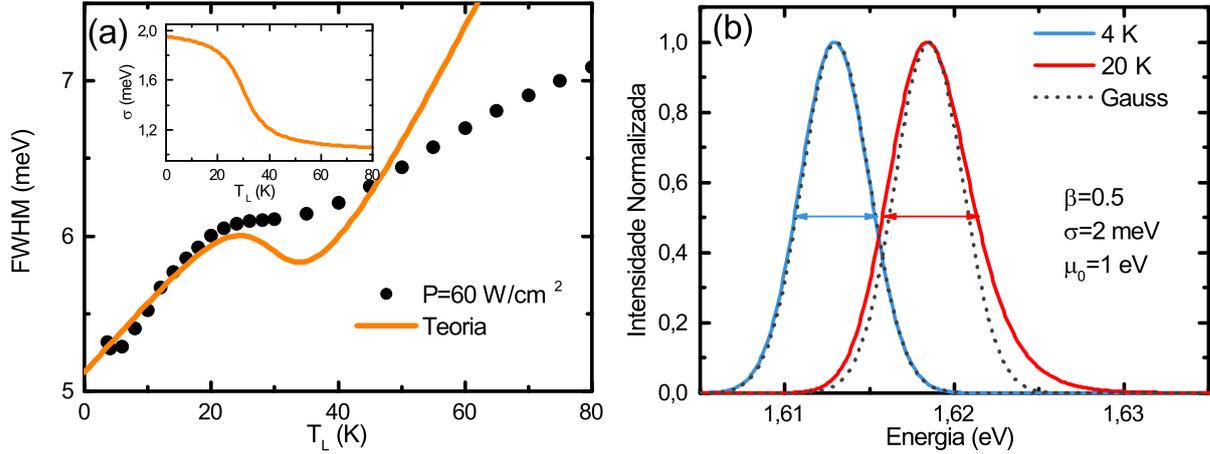


Figura 3.5: a) FWHM em função da temperatura da rede cristalina para a transição e-hh e $P = 60 \text{ W/cm}^2$ (pontos). A simulação apresentada da FWHM considera as contribuições homogênea e não homogênea (linha laranja). A função usada $\sigma(T_L)$ na simulação está no inset da Fig.3.5a. b) O espectro simulado da PL com o mesmo σ e β para $T_L = 4 \text{ K}$ (linha azul) e $T_L = 20 \text{ K}$ (linha vermelha), obtida usando a Eq. 3.8 e função Gaussiana (linhas tracejadas) de acordo com Eq. 3.9.

reduzindo σ enquanto favorece a difusão dos éxcitons resultando em uma diminuição de β . Portanto, assumindo σ e β como funções degrais suaves com o máximo σ e β para $T_L \rightarrow 0$, logo σ (linhas tracejadas) diminuem com um aumento de T_L , enquanto que $\sqrt{1 - \beta}$ (linhas pontilhadas) aumenta, como ilustrada na Fig.3.3b,c. O produto $\sigma\sqrt{1 - \beta}$ é representado (linha azul) reproduzindo o comportamento não monotônico $\sqrt{\Delta E_p(T_L)k_B T_L}$ até próximo de temperatura entre 40 K e 50 K. A função para simular β com dependência da temperatura é a mesma utilizada nas Fig.3.3b,c e isso permite extrair a razão λ_μ/λ_g descrita na Fig.3.4b, sugerindo, então, uma diminuição do aprisionamento com o aumento da temperatura, como esperado.

No caso da FWHM apresentada na Fig.3.5, a análise da modulação da temperatura deve incluir o ajuste provocado pelo alargamento homogêneo do tempo de vida. Com isso, assumindo este alargamento como homogêneo, uma função de Lorentz com largura W_h e as flutuações de potencial não homogêneas caracterizadas por uma Gaussiana com largura $W_\sigma = 2\sqrt{2\ln 2} \cdot \sigma$. A contribuição relativa para FWHM pode ser aproximada da função Voigt, [60, 61]

$$\text{FWHM} = \frac{W_H}{2} + \sqrt{\frac{W_H^2}{4} + W_\sigma^2}. \quad (3.11)$$

o alargamento homogêneo pode ser simulado considerando mecanismos independentes e aditivos, [52] que para baixas temperaturas podem ser reduzidos a dois,

$$W_H = \Gamma_0 + \Gamma_{LA}, \quad (3.12)$$

onde Γ_0 representa a largura de linha excitônica intrínseca em duas dimensões, associada com os espalhamentos éxciton-éxciton e defeitos [50, 52] e $\Gamma_{LA} = 2\gamma_\alpha T_L$ surge do espalhamento da emissão de um fônon acústico(LA). Usando a função σ inserida na Fig.3.5, a melhor simulação para FWHM em baixas temperatura foi obtida com os valores $\Gamma_0 = 1,0$ meV e $\gamma_\alpha = 0,045$ meV/K, como observado na Fig.3.5a. Observe que a simulação e os dados experimentais em temperaturas mais altas não convergem. Como mostrado na Fig.3.5b, comparando com o resultado da Eq. 3.8 e com a aproximação da Eq. 3.9, este último não considera a caracterização completa da modulação da largura de linha com a temperatura. Como previsto na Ref. [62], o espalhamento através de emissão de fônon (LO) e interações com impurezas ionizadas não contribuem significativamente para o aumento da largura de linha no intervalo de temperatura analisado. Para $T_L < 40$ K, as flutuações de potencial dominam o alargamento e respondem pelo desvio observado que pode ser descrito como um efeito da homogeneização do σ com a diminuição de T_L .

3.6 Efeitos do campo magnético

Em temperaturas criogênicas, os mecanismos de decoerência assistindo por fônons são reduzidos. Isso abre a oportunidade para estudar os processos de espalhamento na presença de campo magnético que ajustam o tamanho do éxciton [63–65] e a relaxação de *spin* do éxciton [41, 66] permitindo uma modulação adicional para a coerência do éxciton. A figura 3.6 apresenta, respectivamente, a intensidade integrada e FWHM associadas aos espectros de PL obtidos a partir da recombinação do par e-hh para as componentes de polarização ópticas σ^+ e σ^- a $T_L = 3,6$ K, para $P = 60$ W/cm² (painel superior) e $P = 6 \times 10^2$ W/cm² (painel inferior). A componente σ^+ apresenta uma dependência monotônica com o campo magnético para ambas as propriedades ópticas. Aumentando o campo magnético, a componente σ^+ apresenta uma diminuição da população excitônica, como mostrado na Fig.3.6a, enquanto a FWHM aumenta, (Fig.3.6b). Este aumento da FWHM é descrito pelo modelo de interação de curto alcance, $\Gamma \propto \sqrt{B}$. [67]. Em contraste, a componente σ^- na Fig.3.6a exibe uma resposta de pico na intensidade integrada e apresenta uma queda na FWHM próximo a $B = 1,8$ T. O pico na população de éxciton para a componente σ^- desaparece para $T_L \geq 20$ K, como apresentado no inset da Fig.3.6a $P = 60$ W/cm².

O campo magnético aplicado induz um confinamento no plano dos éxcitons, o que leva a um encolhimento das suas funções de onda e reduz a sobreposição das desordens no plano, como esquematizado nas Fig.3.7a,b para $B = 0$ T e $B \neq 0$ T, respectivamente. As escalas das flutuações na interface podem atingir larguras de 300 Å e 2,8 Å de profundidade, [51] enquanto que o raio excitônico de Bohr no bulk varia entre 160

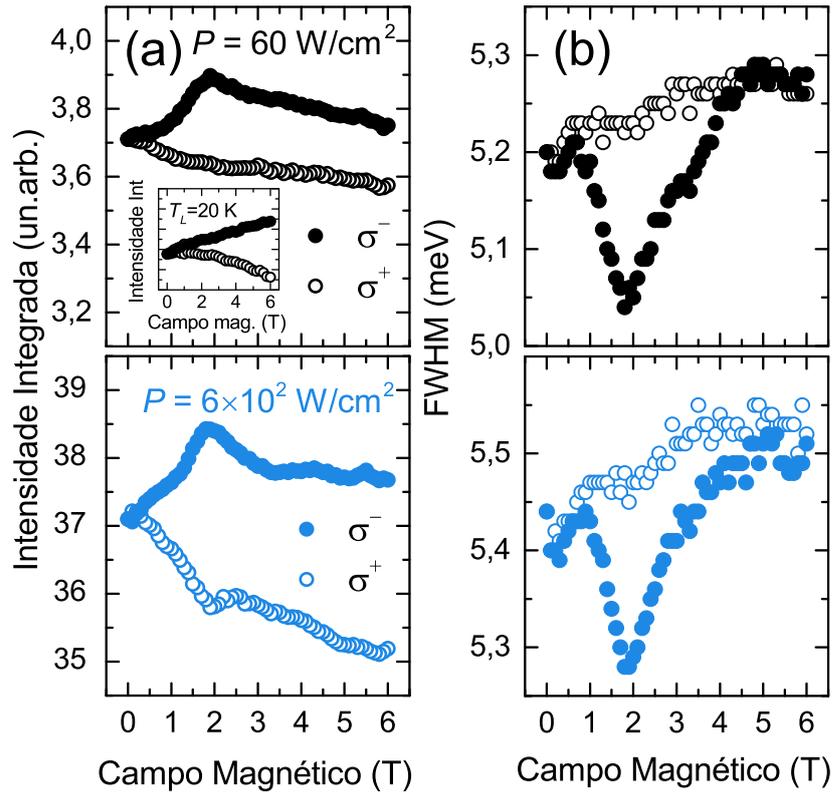


Figura 3.6: Dependência do campo magnético com: a) intensidade integrada e b) FWHM da transição e-hh a $T_L = 3,6 \text{ K}$, obtidos com $P = 60 \text{ W/cm}^2$ (painel superior) e $P = 6 \times 10^2 \text{ W/cm}^2$ (painel inferior). Círculos fechados e abertos representam as componentes ópticas da emissão medida σ^- e σ^+ , respectivamente. A figura inserida em a) apresenta a intensidade integrada em $T_L = 20 \text{ K}$.

e 92 \AA para campos magnéticos entre zero e 10T. [68, 69] Alguns estudos descrevem a modulação da largura de linha como um efeito não homogêneo onde as flutuações da interface entre duas escalas contrastantes são calculadas através do encolhimento do raio do éxciton. [64, 70] Embora plausíveis, estes estudos não explicam a modulação de *spin* resolvidas em nossos experimentos, uma vez que a contribuição homogênea de *spin* com campo magnético foram negligenciados.

Em 1991, assumindo que as flutuações provocadas por desordem são as contribuições dominantes para o aumento da largura de linha, Mena *et al.* desenvolveram um modelo [71] que é uma extensão de estudos prévios na ausência de campo magnético [72–75] para modulação com campo magnético. Por fim, concluíram que a aplicação do campo magnético aumenta a largura de linha medida, que o raio do éxciton é reduzido e a média da desordem encolhe (como ilustrado na 3.7). Contudo, esse resultado entra em contradição com medidas anteriores [76, 77] e com observações experimentais [64], onde a largura de linha diminui em função do campo magnético para QW com larguras entre 5 e 10 nm. Embora nenhum modelo foi proposto para explicar os dados experimentais nas Ref. [76, 77], os modelos não impedem que o ajuste do alargamento homogêneo com campo magnético afetem a FWHM. Em 1995, Aksenov *et*

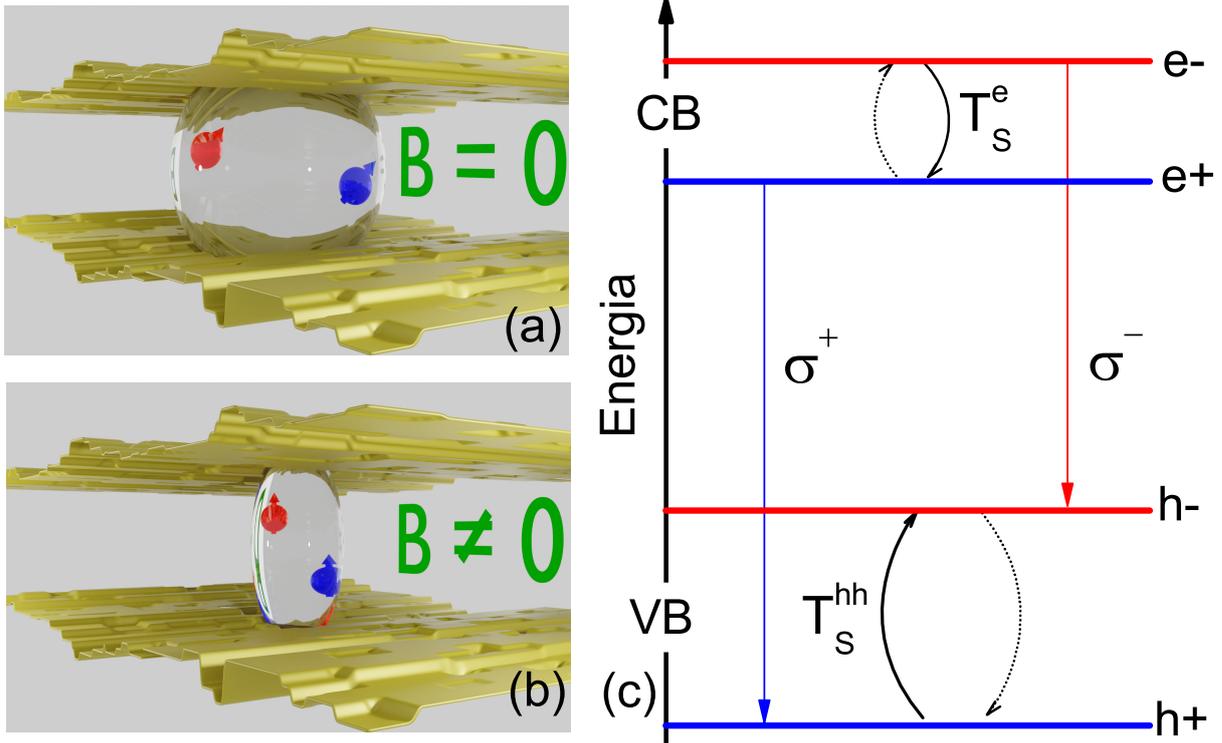


Figura 3.7: Ilustração das flutuações de potencial provocadas pela rugosidade ao longo da interface GaAs/AlGaAs e do par elétron-buraco confinado no QW, com elipsóides simbolizando o tamanho do éxciton em a) $B = 0$ e b) $B \neq 0$. C) Representação da dinâmica de relaxação de *spin* e regras de seleção ópticas na presença de campo magnético.

al., reportaram na Ref. [63] uma tentativa de deconvoluir a parte homogênea da parte não homogênea da modulação com campo magnético da FWHM, observada na emissão da PL em QW de GaAs. Neste estudo, os autores concluíram, baseado em um modelo fenomenológico, que os efeitos homogêneos podem ser dominantes em baixos campos. Deve-se considerar que as previsões feitas da teoria apresentada na Ref. [71] foram utilizadas para explicar o crescimento monotônico da FWHM com campo magnético (observados na Ref. [78]) de valores de até 12 T, e, também na Ref. [79], para campos até 42 T. Ainda assim, esses dois artigos negligenciaram, a princípio, qualquer contribuição da modulação homogênea com o tempo de vida em altos campos. Posteriormente, na Ref. [64], uma possível explicação para o mecanismo de modulação não homogênea com o campo magnético foi introduzido, considerando a existência de duas escalas de comprimentos contrastantes. De acordo com os autores, é esperado que a largura de linha não homogênea, resultante das flutuações de larga escala, diminuam para campos magnéticos de até 15 T e largura de QW entre 5-10 nm, seguindo a seguinte lei,

$$\sigma(B) = \sigma_0 \frac{1 - \exp[-R(B)/r_f]}{1 - \exp[-R_0/r_f]}, \quad (3.13)$$

onde $R(B)$ e R_0 são o raio excitônico com e sem campo magnético, respectivamente, r_f é o raio efetivo das flutuações de larga escala no plano do QW e σ_0 é largura de linha em campo magnético zero. Aqui, $R(B)$ pode ser estimado, de acordo com Ref. [80] como,

$$R(B) = \frac{\sqrt{2}R_0}{\left\{ 1 + \left[1 + \frac{3}{2} \left(\frac{e^2 R_0^4 B^2}{\hbar^2} \right) \right]^{\frac{1}{2}} \right\}^{\frac{1}{2}}}. \quad (3.14)$$

Observe que, como esperado, a modulação com campo magnético resulta em uma diminuição monotônica de $\sigma(B)$ quando o campo magnético aumenta, escolhendo $R(B)$ independentemente da polarização de *spin*. Neste caso, o encolhimento do tamanho do éxciton com campo magnético representado na Fig.3.7a,b reduz o contato com flutuações da interface de larga escala. [64] Contudo, isso contradiz a modulação da FWHM com o campo magnético observadas em nossos experimentos, o que indica a necessidade de introduzir um termo adicional dos efeitos com dependência de *spin* relacionados a contribuição homogênea da largura de linha.

A fim de explicar a modulação da polarização da FWHM, deve-se considerar o desdobramento de *spin* tanto para o elétron como para o buraco de acordo com as regras de seleção óptica, como representado na Fig.3.7c. Observe que na figura, a coerência de *spin* é considerada como quebrada independentemente para a banda de condução e para a banda de valência no estado fundamental determinados a taxa de $1/T_S^e$ e $1/T_S^h$, respectivamente. Nesse caso, com o par elétron buraco desacoplado, pode-se aproximar o alargamento homogêneo devido ao tempo de vida W_H como uma soma de cada componente,

$$W_H^\pm = W_e^\pm + W_h^\pm, \quad (3.15)$$

onde o alargamento homogêneo para cada componente pode ser escrito como,

$$W_i^\pm = \sqrt{\frac{2}{\pi} \hbar \omega_c^i \frac{\hbar}{\tau_p^i}} + \frac{\Gamma_0^i}{1 + \left(\frac{\hbar \omega_L^i - \hbar \omega_c^i}{\hbar / \tau_p^i} \right)^2} \eta_i^\pm, \quad (3.16)$$

com $\hbar \omega_c^i = \hbar e B / m_i c$, $\hbar \omega_L^i = g_i \hbar e B / 2 m_i c$, e $i = e (h)$ os parâmetros elétrons (buracos); m_i massa efetiva ciclôtrônica, g_i o fator de Landé, e τ_p^i o tempo de relaxação do momento. O primeiro termo da Eq. 3.16 corresponde a contribuição do espalhamento de curto alcance [67], enquanto que o segundo termo considera-se a relaxação de *spin* [66, 81] inversamente proporcional ao tempo de *spin-flip*, T_S^i , apresentado na Fig. 3.7c. A taxa de *spin-flip* ponderada pelo fator térmico $\eta_i^\pm = F(E_i^\pm - E_i^\mp)$ onde

$$F(x) = \begin{cases} \exp\left(-\frac{x}{k_B T}\right), & x \geq 0 \\ 1, & x < 0 \end{cases} \quad (3.17)$$

ao qual considera a energia de separação do *spin* e o sinal do fator-g. Dentro da configuração do par elétron-buraco desacoplado, a dinâmica do éxciton pode ser simplificada como

$$0 = P - \frac{n^\pm W_H^\pm}{2\hbar} - \frac{n^\pm}{\tau_0}, \quad (3.18)$$

onde P é a taxa de geração do par elétron-buraco devido a iluminação, n^\pm é a densidade do éxcitons, e τ_0 representa o tempo de recombinação óptica que resulta em

$$n^\pm = \frac{2\hbar P}{2\hbar + \tau_0 W_h^\pm}. \quad (3.19)$$

Portanto, o grau de polarização circular (DCP), $DCP = (n^+ - n^-)/(n^+ + n^-)$ tonar-se,

$$DCP = \frac{W_H^- - W_H^+}{\frac{4\hbar}{\tau_0} + W_H^- + W_H^+}. \quad (3.20)$$

Para uma análise quantitativa, os valores do fator-g, massa efetiva, o tamanho lateral e localização lateral do movimento foram simulados usando a aproximação parabólica de banda e a massa efetiva da Hamiltoniana, [82],

$$H_\pm^i = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_i} + a_1 \rho^2 \pm \frac{1}{2} g_i^* \mu_B B, \quad (3.21)$$

para ambos elétrons (e) e buracos (h). Aqui, $\rho^2 = x^2 + y^2$, μ_B é o magnéton de Bohr, e $\mathbf{k} = -i\nabla + \mathbf{A}e/\hbar$, com $\mathbf{A} = B/(2\rho\hat{\phi})$. O parâmetro a_1 define o peso do confinamento no plano da função de onda dentro de um raio $r_f^2 = \hbar/\sqrt{2a_1 m_0}$, onde m_0 é a massa do elétron. A auto-energia do estado fundamental, nesse caso, é dada por [82],

$$E_\pm^i = \sqrt{\frac{\hbar^4}{m_i r_f^4} + \left(\frac{\hbar\omega_c^i}{2}\right)^2} \pm \frac{1}{2} g_i^* \mu_B B. \quad (3.22)$$

A modulação experimental do pico de energia do par elétron-buraco com campo magnético, relativo ao valor de campo zero é apresentado na Fig.3.8a para σ^+ (círculo azul) e σ^- (ponto vermelho). Os dados experimentais foram comparados com o modelo teórico do par elétron-buraco usando a Eq. 3.22 como $E_\pm^e + E_\pm^h$. Utilizando os parâmetros reportados para a estrutura eletrônica para QWs de GaAs detalhado na

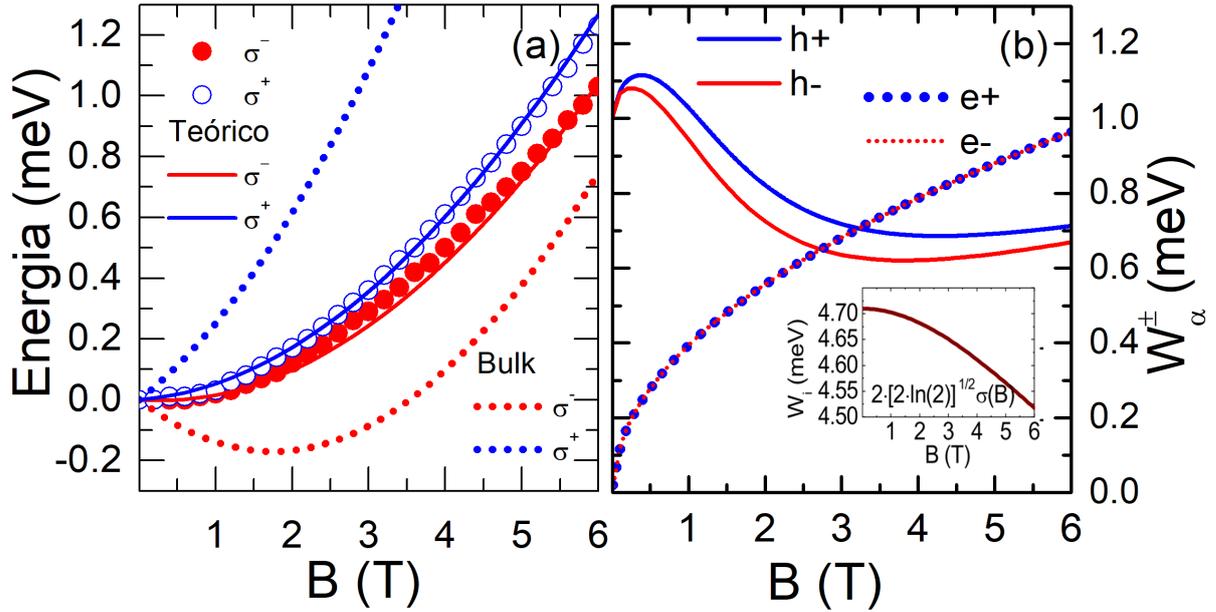


Figura 3.8: a) Deslocamento experimental da posição do pico em função do campo magnético para as polarizações σ^+ (círculo azul) e σ^- (pontos vermelhos). b) Alargamento homogêneo calculado para elétrons e buracos e sua dependência com o campo magnético. A contribuição não homogênea também é apresentada. A figura apresenta a simulação com os valores da massa efetiva para QW de GaAs (linhas contínuas), enquanto que para o GaAs bulk são representados por linhas pontilhadas.

Tabela 3.1, os valores do fator-g para elétron e buraco foram confirmados. Isso permite acessar o tamanho do confinamento do raio efetivo lateral provocado pelas flutuações na interface como sendo $r_f = 5,5$ nm, o qual foi utilizado para calcular a modulação do alargamento não homogêneo com campo magnético de acordo com as Eqs. 3.15 e 3.16, e destacado dentro da Fig. 3.7b. A posição de pico calculada obtida utilizando apenas os parâmetros de banda do GaAs bulk (inclusive na Tabela 3.1) foram adicionados na Fig. 3.8a como referência (linhas pontilhadas) indicando a relevância de considerar a modulação dos parâmetros efetivo da banda com confinamento.

Os valores correspondentes a largura homogênea para cada componente de *spin* é apresentada na Fig. 3.8b. Vale ressaltar que dado o valor do fator-g do elétron e a pequena massa ciclôtrônica serem pequenos, a contribuição do termo de relaxação de *spin* foi negligenciado e por essa razão podemos assumir $\Gamma_0^e = 0$. Os restantes dos parâmetros foram modificados de modo a obter um bom ajuste com DCP calculado, de acordo com a Eq. 3.20 com os valores experimentais mostrado na Fig. 3.9a.

Uma vez determinado todos os parâmetros, a simulação para cada componente de *spin* da FWHM pode ser calculada introduzindo a contribuição homogênea a partir das Eqs. 3.15 e 3.16 junto com o termo não homogêneo, definido por Eqs. 3.13 e 3.14, dentro da Eq. 3.11. Um bom ajuste foi obtido com clara assimetria de *spin* para a largura de linha ilustrada na Fig. 3.9b. Levando em conta a simplicidade da aproximação parabólica para o modelo da estrutura eletrônica com significativos efeitos da banda de

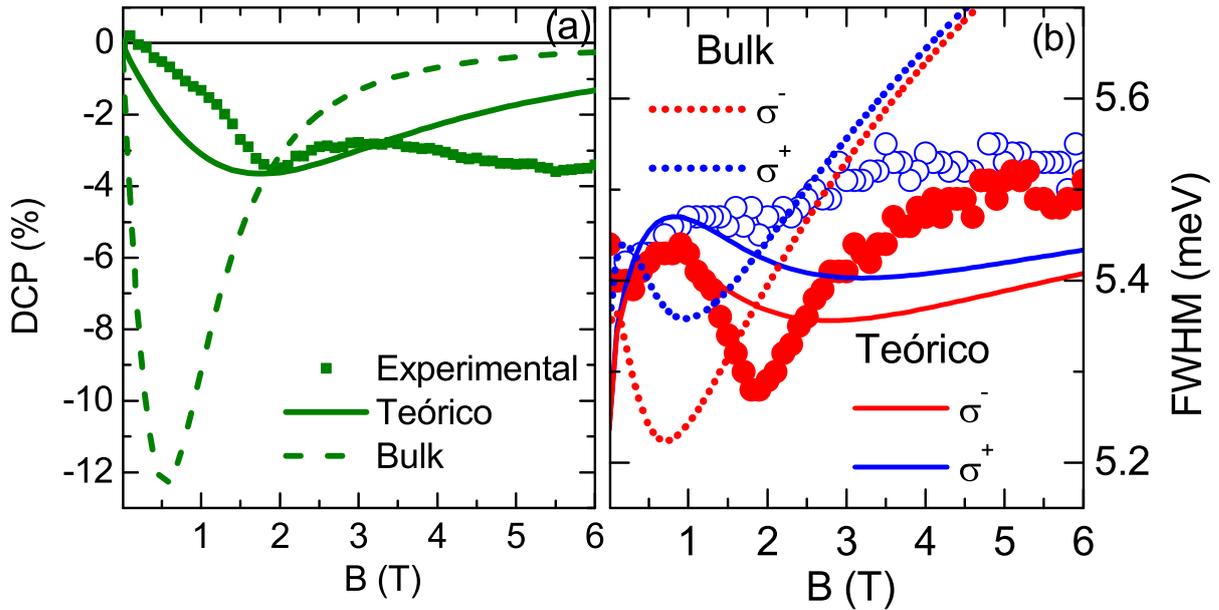


Figura 3.9: a) Dados experimentais do grau de polarização circular (quadrados verdes). b) Valores experimentais da FWHM extraídos para as duas componentes ópticas em função do campo magnético. A figura apresenta a simulação com os valores da massa efetiva para o QW de GaAs (linhas contínuas), enquanto que para o GaAs bulk são representados por linhas pontilhadas.

valência, o ajuste não monotônico da FWHM com campo magnético foi extraído. Em contraste, os resultados apresentados na Fig.3.9b, usando os parâmetros do Bulk destaca a sensível resposta para a modulação da estrutura de bandas com confinamento e campo magnético. Observe que, além da auto energia, nenhum dos parâmetros da estrutura eletrônica foi considerado dependente de *spin*. Isso levaria a uma assimetria adicional no alargamento homogêneo dependendo do tempo de vida. Portanto, a queda da FWHM observada σ^- é uma manifestação de aumento da coerência com respeito à σ^+ determinado pela baixa taxa de *spin-flip* descrito na Eq. 3.16.

3.7 Conclusões Parciais

Um estudo teórico experimental foi usado para investigar os mecanismos de decoerência excitônica em poços quânticos de GaAs. Para temperaturas inferiores a 40 K e baixa densidade de potência, a relaxação de portadores fora de equilíbrio térmico é afetada pela flutuação de potencial na interface GaAs/AlGaAs. Essas flutuações favorecem as interações portadores-portadores que estabiliza a temperatura efetiva. A largura de linha da PL foi utilizada para caracterizar a coerência do éxciton. Tanto a interação com fônon LA quanto as flutuações de potencial afetam esse parâmetro em

Tabela 3.1: Valores dos parâmetros usados no modelo proposto. Aqueles retirados da literatura foram devidamente citados.

Parâmetros	5,5 nm GaAs QW	GaAs Bulk
m_e/m_0	0,0760[83]	0,0664[84]
m_h/m_0	0,45[85]	$(\gamma_1 + \gamma_2)^{-1} = 0,112[84]$
g_e	0[86]	-0,44[84]
g_h	0,7	$6.\kappa = 7,2[84]$
σ_0	2,0 meV	2,0 meV
R_0	10 nm	10 nm
Γ_0^e	0	0
Γ_0^h	1,0 meV	1,0 meV
\hbar/τ_p^e	0,16 meV	0,16 meV
\hbar/τ_p^h	0,4 meV	0,4 meV
τ_0	250 ps[87]	250 ps

temperatura criogênica. Nossos resultados demonstram a forte modulação desses efeitos com temperatura e potência de excitação, que permite a deconvolução da contribuição da flutuação de potencial na largura de linha do mecanismo atual de decoerência. Para manipular a coerência do éxciton, foi utilizado um campo magnético aplicado. Em baixas densidades de potência e temperatura da rede cristalina, observou-se que o campo magnético revela outros mecanismos de decoerência tais como espalhamento *spin-flip* e interações de curto alcance e tornam-se os principais mecanismos de contribuição para a modulação da coerência de *spin* do éxciton. Foi possível avaliar quantitativamente a contribuição homogênea e não homogênea da FWHM e sua dependência com campo magnético. Os resultados mostram que o alargamento homogêneo é resultante da interação de curto alcance e dos processos de relaxação de *spin*, enquanto que a contribuição não homogênea depende das flutuações de potencial. Embora o último mecanismo seja responsável por 90% da FWHM, foi demonstrado que a fração homogênea induz a uma assimetria e grande parte da modulação não monotônica com campo magnético.

Capítulo 4

Magneto-absorção e o controle da inversão da polarização de spin em poços quânticos

4.1 Resumo

Neste capítulo será investigado a influência da orientação cristalina na relaxação de *spin* de éxcitons que recombinam em poços quânticos e sua dependência com a potência de excitação e temperatura. Oscilações periódicas na intensidade integrada de emissão foram observadas em altos campos magnéticos a temperaturas de até 60 K, as quais foram atribuídas ao processo de relaxação através dos níveis de Landau das sub-bandas dos elétrons e buracos. Tais oscilações são altamente dependentes da energia de excitação e podem ser suprimidas para altos valores de potência de excitação. Na segunda parte deste capítulo, demonstra-se a inversão da polarização de *spin* para a orientação cristalina do poço quântico crescido na superfície de GaAs (311)A, cuja modulação ocorre tanto com a variação da potência de excitação quanto para a variação da temperatura. Através do modelo foi possível explicar a inversão para as duas condições sem a necessidade da proposta de uma Conjectura, como anteriormente reportado por Terent'ev et.al [Phys. Rev. B 87, 045315 (2013)]

4.2 Introdução

A manipulação de *spin* em semicondutores tem atraído a atenção nos últimos anos devido às diversas aplicações em spintrônica e informação quântica. Sendo assim, a habilidade de controlar precisamente o *spin* é fundamental para estas aplicações. [88–90] Uma forma de caracterizar o *spin* é através de técnicas espectroscópicas como a magneto-fotoluminescência (MPL), na qual a abertura Zeeman e o grau de polarização circular (DCP) são as principais informações extraídas. [91, 92] Diversos trabalhos têm demonstrado a manipulação do *spin* através de parâmetros externos como campo

elétrico, [93, 94] potência de excitação [95] e tratamento térmico após o crescimento das nanoestruturas. [96]

Dependendo dos semicondutores que compõem a heteroestrutura, o descasamento dos parâmetros de rede pode modificar o *spin* e a estrutura eletrônica. Para o *bulk*, o *strain* reduz a simetria do cristal e a degenerescência é quebrada.[97, 98] Para heteroestruturas quânticas como ponto quântico,[99] nanofios[100, 101] e poços quânticos,[102, 103] o *strain* altera fortemente a estrutura eletrônica e as correspondentes propriedades ópticas. Embora o substrato mais utilizado para crescimento das heteroestruturas III-V seja o de orientação [100], substratos com orientação cristalina não convencional podem ter propriedades ópticas diferenciadas, sendo uma alternativa para a interface *spin*-fóton, por exemplo.[104, 105] Enquanto que para as heteroestruturas baseadas em GaAs/AlGaAs a influência do *strain* é praticamente negligenciada (<1%), os substratos não convencionais possuem uma complexa banda de valência e baixa massa efetiva.[106, 107] Desta forma, um mínimo valor no *strain* pode alterar significativamente as propriedades ópticas, eletrônicas e de *spin*, como será demonstrado nesse capítulo.

4.3 Setup experimental

Duas amostras de múltiplos poços quânticos (MQW) de 5,5 nm de GaAs/Al_{0,36}Ga_{0,64}As e 5,2 nm de GaAs/Al_{0,33}Ga_{0,67}As foram crescidas, simultaneamente por epitaxia por feixe molecular (MBE) em substratos com orientação [100] e [311]A, respectivamente. As medidas de magneto-fotoluminescência foram realizadas na geometria Faraday em temperaturas entre 3,6 e 60 K. As amostras foram analisadas opticamente através de um microscópio confocal, com um *laser* de excitação emitindo em 1,698 eV (PicoQuant-LDH-730) e com diferentes potências de excitação com *spot* de aproximadamente 1 μ m. Um conjunto de polarizadores foi utilizado para a excitação da amostra com polarização linear e detecção circular nas componentes polarização circular a direita σ^+ e polarização circular à esquerda σ^- , com a dispersão da luz ocorrendo por um espectrômetro de 75 cm e detecção feita por uma CCD de Silício (Andor/Shamrock-Idus).

4.4 Propriedade ópticas gerais

Os espectros de fotoluminescência da Fig. 4.1 foram obtidos em temperatura de 3,6 K sem a aplicação de campo magnético. Utilizando um ajuste Gaussiano obteve-se a posição do pico com valores de 1,615 eV e 1,608 eV para as orientações [100] e [311]A e largura de linha à meia altura (FWHM) de 5,2 e 5,6 meV, respectivamente. Observa-se que há um deslocamento para menores energias em relação a orientação [100] devido ao efeito piezoelétrico e a quebra de simetria provocada pela orientação

[311]A, o que modifica as massas efetivas e as bandas de valência da amostra. Além disso, a orientação cristalina dos substratos (11n) reduz o *strain*, como foi confirmado pelo estudo de raio-x (não apresentado nesta tese).

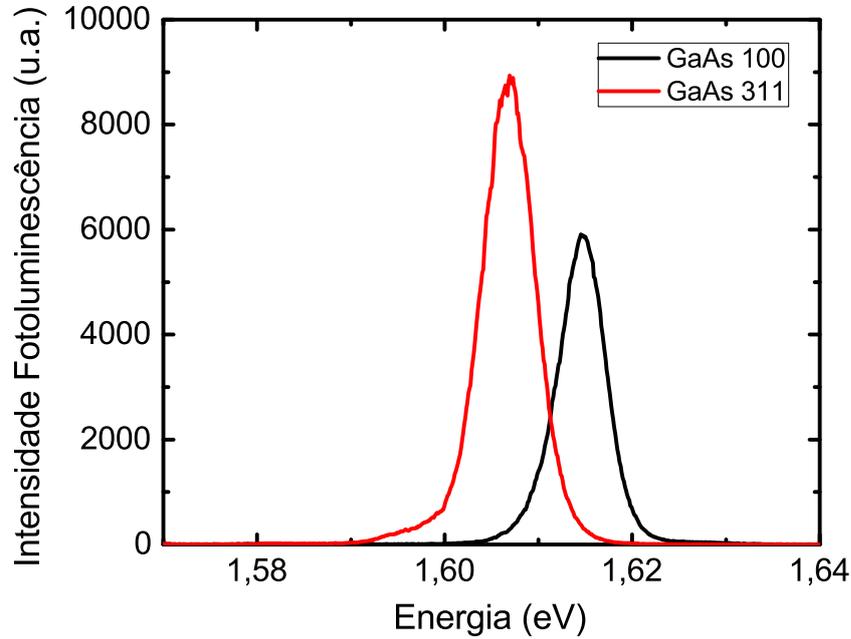


Figura 4.1: Espectros de fotoluminescência para ambas as amostras em temperatura de 3,6 K com a mesma potência de excitação ($0.5 \mu\text{W}$).

Com base nessas diferenças cristalográficas, neste capítulo discutiremos o efeito da orientação cristalina e sua anisotropia nos processos de relaxação de *spin* a partir de poços quânticos de GaAs.

4.5 Dependência com a potência de excitação

Para compreender as propriedades de *spin* dos MQWs, a análise será focada na intensidade integrada e no grau de polarização circular obtidos a partir da área sob as curvas de fotoluminescência. Na Figura 4.2 são apresentadas as intensidades integradas em função do campo magnético para diferentes potências de excitação a uma temperatura fixa de 3,6 K. Para a menor potência de excitação ($0,005 \mu\text{W}$) observam-se algumas características identificadas anteriormente no capítulo (3.7). Em altos campos magnéticos (a partir de 6 T) nota-se o aparecimento de oscilações periódicas na intensidade integrada para as duas componentes da polarização de *spin* excitônica. Outro ponto de destaque é a intensidade da componente σ^- , a qual é predominante em todo o intervalo experimental. Simultaneamente, a intensidade da componente σ^+ diminui com o aumento do campo magnético.

De forma geral, as oscilações apresentadas na Figura 4.2 (b-e) têm uma dependência com a potência, tornando-se mais nítidas para os maiores valores de potência, como

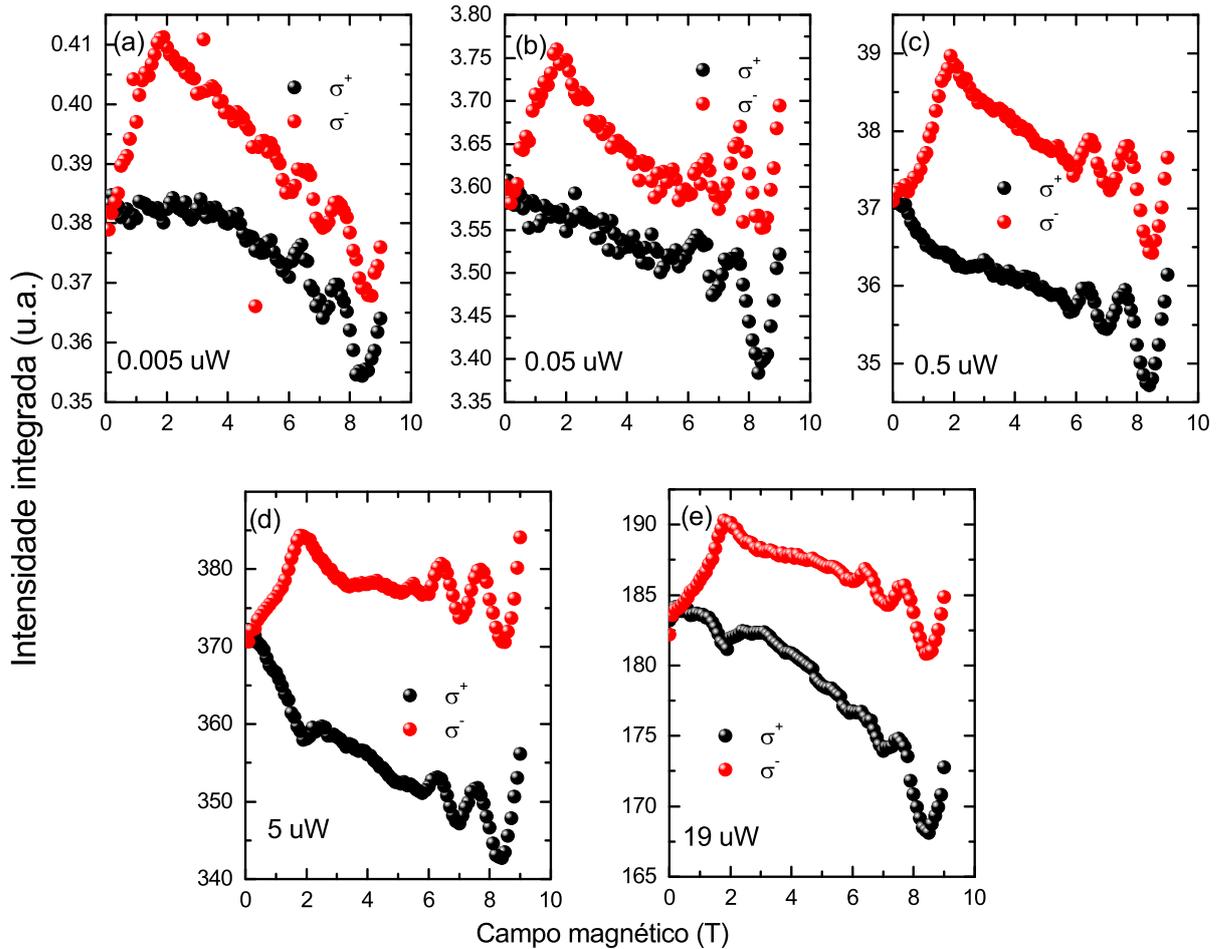


Figura 4.2: Gráficos da intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (100), para as seguintes potências de excitação: (a) 0,005 μW , (b) 0,05 μW , (c) 0,5 μW , (d) 5 μW e (e) 19 μW .

apresentado nas Figuras 4.2 (c-d). Por outro lado, para a maior potência de excitação (Fig. 4.2(e)) é observada uma nítida redução na amplitude das oscilações e da intensidade integrada devido à renormalização do *gap*.

Com o intuito de fazer uma comparação direta das propriedades de relaxação de *spin*, as mesmas condições de estudo desta amostra foram aplicadas sobre a amostra com superfície cristalina (311)A, como mostrado na Figura 4.3.

A Figura 4.3(a) apresenta a intensidade integrada em função do campo magnético em uma temperatura de 3,6 K. As esferas em preto e vermelho indicam a componente de polarização σ^+ e σ^- , respectivamente. Para a potência de excitação de 0,005 μW , as intensidades integradas para as duas polarizações diminuem com o aumento do campo magnético. Em elevados campos (6 T) as oscilações também se fazem presente. Novamente, com o aumento da potência de excitação as oscilações em alto campo magnético tornam-se mais evidentes, como observado na Fig.4.3 (b)-(d). Contudo, para a maior potência estudada Fig. 4.3(e), as oscilações em alto campo magnético tem uma diminuição em sua amplitude, levando inclusive a uma atenuação para a componente

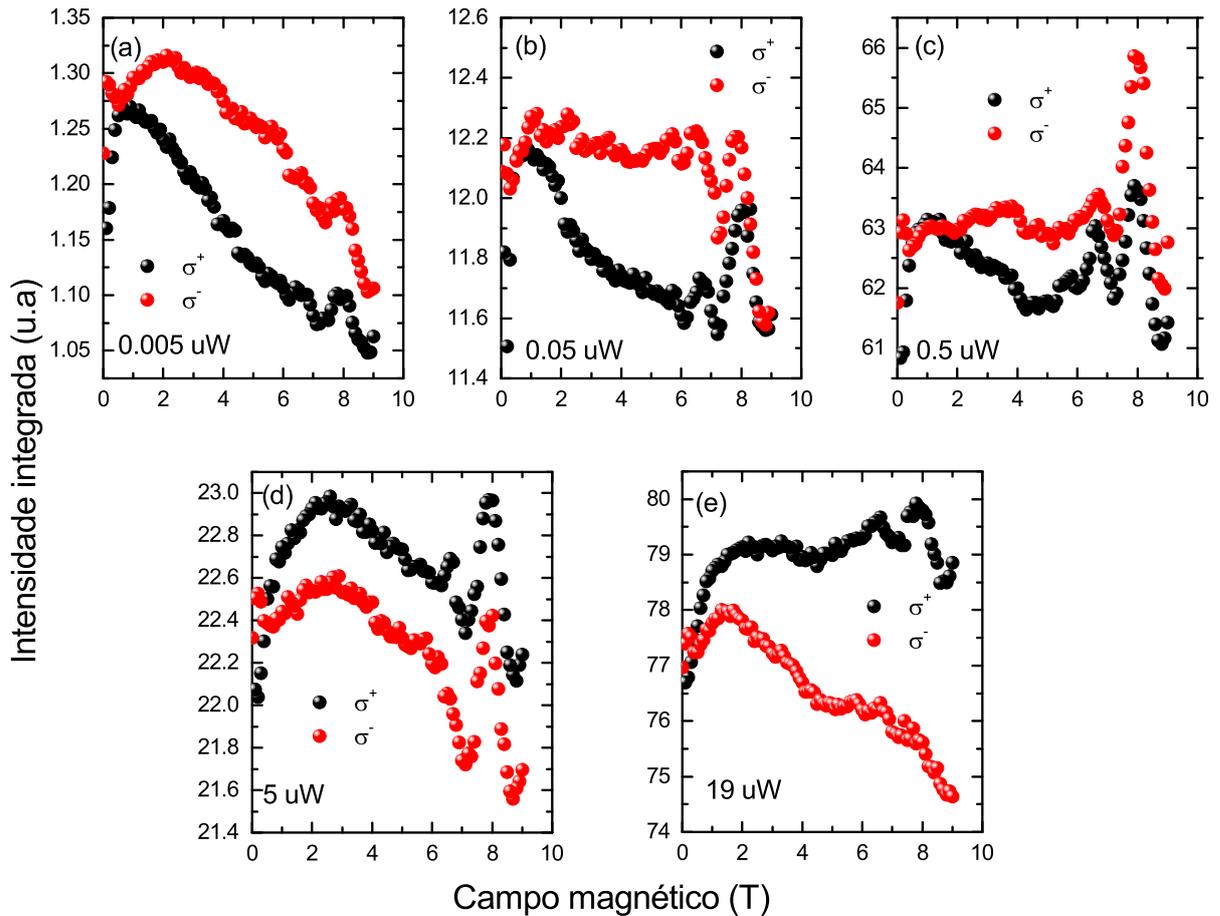


Figura 4.3: Gráficos da intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (311)A, para as potências de excitação de (a) $0,005\mu W$, (b) $0,05\mu W$, (c) $0,5\mu W$, (d) $5\mu W$ e (e) $19\mu W$.

σ^- . Nota-se ainda, que para esta amostra, a intensidade integrada para a maior potência de excitação é maior do que as demais, não havendo a redução como observado para a amostra (100). O efeito de renormalização do gap não é observado aqui devido ao fato da densidade de estados da amostra (311)A ser três vezes maior do que na (100).[55]

Adicionalmente, a Figura 4.3 apresenta outra característica interessante, com a inversão entre as componentes de polarização com a potência de excitação. Nota-se que para potência de até $0,5\mu W$ apresentada na Fig. 4.3(c), a componente de polarização com maior intensidade é a σ^- (esferas vermelhas), enquanto que para as potências maiores há uma inversão das componentes e a intensidade de σ^+ (esferas pretas) torna-se dominante.

Para melhor observar a característica de inversão das componentes de *spin* e comparar diretamente com a amostra de orientação cristalina (100), avaliou-se o grau de polarização circular (DCP) para ambas as amostras, que é obtido a partir da equação 2.1. Nessa equação as intensidades I^{σ^+} e I^{σ^-} correspondem, respectivamente, às intensidades das polarizações σ^+ e σ^- apresentadas nas Figuras 4.2 e 4.3. Na Figura

4.4 apresenta-se o resultado da DCP em função do campo magnético para as duas orientações cristalinas. Nota-se que para a amostra com orientação cristalina [100] (Fig.

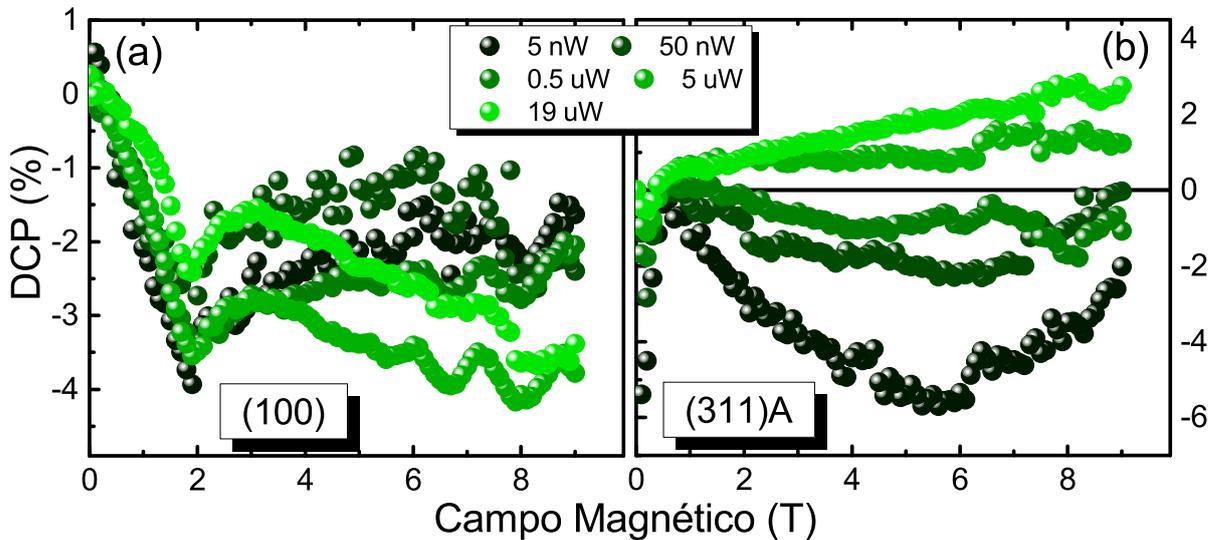


Figura 4.4: Dependência da DCP em função do campo magnético, em diferentes potências de excitação para os (a) MQWs de GaAs (100) e (b) MQWs GaAs (311)A.

4.4(a)), nenhum sinal de inversão de *spin* é observado. Adicionalmente, algumas características podem ser notadas como uma DCP com intensidade equivalente em 1.8 e 9 T, cujo efeito e sua causa já foram abordados no capítulo anterior (3.7). A potência de excitação também diminui os efeitos da modulação da coerência de *spin* do éxciton. Outro ponto a se destacar é referente às oscilações em alto campo magnético, onde em baixa potência $< 0,05 \mu\text{W}$ nenhuma oscilação é observada, enquanto que para maiores potências claramente observam-se oscilações periódicas, sendo suprimidas para a maior potência. Por outro lado, a amostra com orientação cristalina (311)A apresenta uma DCP totalmente distinta, como pode ser observado na Fig. 3.4(b). Claramente uma inversão de *spin* é observada. Para potências menores que $0,5 \mu\text{W}$ o DCP é negativo, enquanto que para maiores valores a DCP torna-se positiva. Além disso, para essa amostra nenhuma oscilação foi observada, mesmo com a intensidade integrada nestas oscilações estando presentes, indicando que são praticamente coincidentes entre as respectivas componentes de polarização.

As observações experimentais levantam algumas questões: Qual a origem das oscilações na intensidade integrada e na DCP? Qual mecanismo de relaxação provoca a inversão de *spin*? Para complementar essas análises, a dependência da temperatura foi investigada.

4.6 Dependência do *spin* com a temperatura

Para as medidas com variação da temperatura da rede cristalina foi escolhido uma potência na qual as oscilações são bem definidas para ambas as amostras ($0,5 \mu\text{W}$). Desta forma, as medidas foram iniciadas pela amostra com orientação [100] e as Figuras 4.5(a), (b) e (c) apresentam a intensidade integrada e sua dependência com o campo magnético para 3 diferentes temperaturas. A Figura 4.5(a) apresenta a intensidade integrada para a menor temperatura (3,6 K) já apresentada na seção anterior. Na Fig. 4.5(b) é mostrada a dependência da intensidade integrada com o campo magnético para $T = 20 \text{ K}$, em que são observadas oscilações com menores amplitudes em relação à 3,6 K, porém, ainda presentes. Além disso, há uma abertura da polarização para ambas as componentes de *spin*, onde a componente σ^- é predominante. Para a maior temperatura ($T = 60 \text{ K}$) apresentada na Fig. 4.5(c), observa-se ainda traços de oscilações com pequenas amplitudes para ambas as componentes de *spin*.

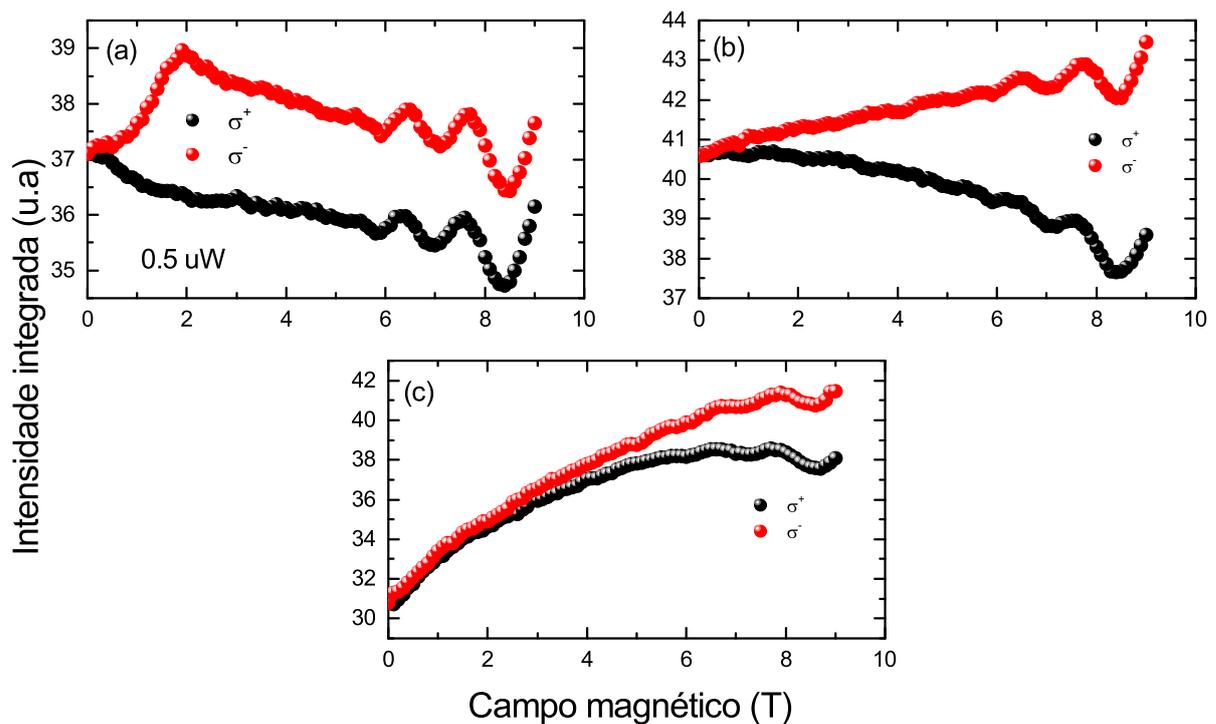


Figura 4.5: Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (100), para temperaturas de (a) 3,6 K, (b) 20 K e (c) 60 K.

A Figura 4.6 apresenta a intensidade integrada para diferentes temperaturas em função do campo magnético para a amostra com orientação [311]A. Nesta amostra foi realizado um estudo mais detalhado, onde foram escolhidas no total sete valores de temperaturas, em que são apresentados seis dos sete gráficos referentes à essas temperaturas, pois a menor temperatura já foi anteriormente demonstrada. Na Fig. 4.6(a) é mostrada a intensidade integrada para uma temperatura da rede cristalina de 7 K, onde observa-se que a intensidade da componente σ^- é predominante. Aumentando

a temperatura para 10 K (Fig. 4.6(b)) as intensidades das duas componentes tornam-se equivalentes e observa-se que ambas as componentes de *spin* (Fig. 4.6(c)) sofrem uma inversão da polarização com a temperatura de 20 K, onde a componente σ^+ (esferas em preto), torna-se dominante. Ainda, na Fig. 4.6(d) e (e) nota-se que a a intensidade da componente σ^+ permanece dominante para as temperaturas de 30 e 40 K. Este efeito de inversão de *spin* é finalmente suprimido em $T = 60$ K, como mostrado na Fig. 4.6(f). Destaca-se ainda que as oscilações em alto campo magnético estão presentes na amos-

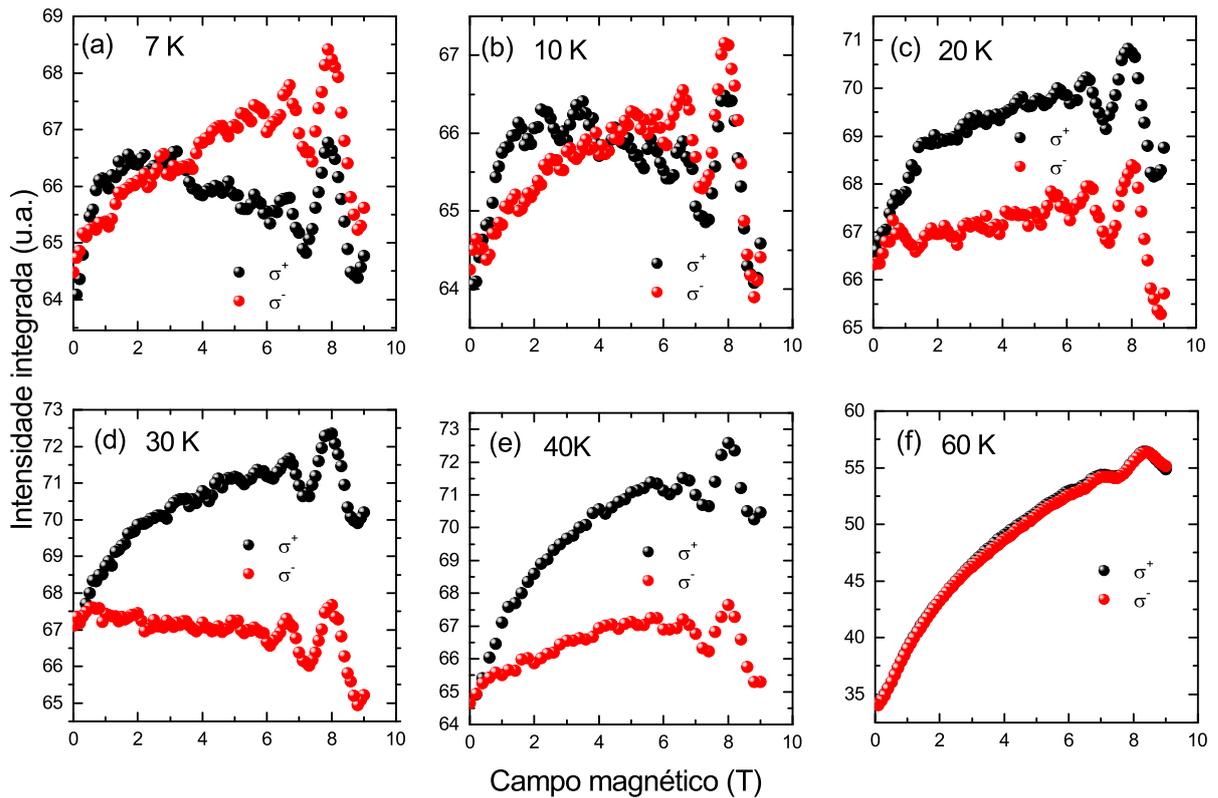


Figura 4.6: Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (311)A, para temperaturas de (a) 7 K, (b) 10 K, (c) 20 K, (d) 30 K, (e) 40 K e 60 K.

tra (311)A até 60 K.

A Figura 4.7(a) e (b) mostra o DCP versus campo magnético para diferentes temperaturas e para as duas amostras. Os resultados para o QW com orientação [100] mostrados na Fig. 4.7(a) indicam que a temperatura suprime as oscilações observadas na DCP a 3,6 K. Em uma temperatura de 20 K (quadrados azuis) não se identifica oscilação e a DCP máxima é encontrada em 9 T, enquanto que para 60 K uma leve atenuação da DCP é observada.

Para o outro QW com orientação (311)A (Fig. 4.7(b)), observou-se de fato a inversão de *spin* com a temperatura. Vale destacar que a inversão ocorre próximo de 10 K (esferas roxas) e em 60 K (círculo azul) a depolarização do *spin* é observada. Com o objetivo de complementar os estudos da dependência com a temperatura, utilizou-se

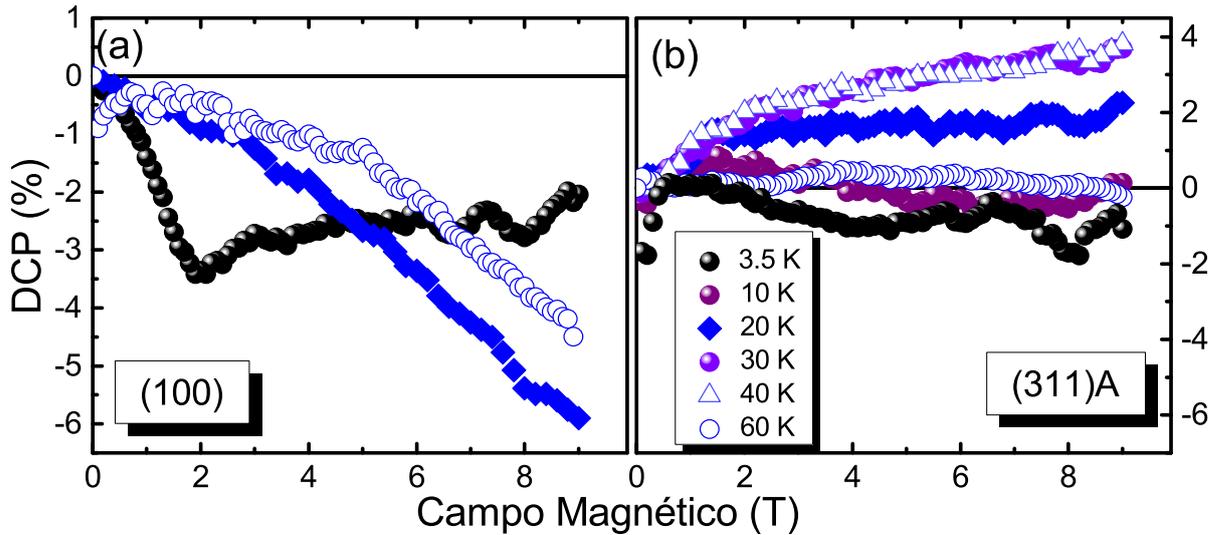


Figura 4.7: Grau de polarização circular e sua dependência com campo magnético para diferentes temperaturas a uma potência de excitação constante para as amostras (a) GaAs (100) e (b) GaAs (311)A.

um *laser* mais energético (660 nm) para contrastar com o *laser* padrão (730 nm) e com uma mesma potência de excitação ($0,5 \mu\text{W}$).

Os resultados da intensidade integrada são apresentados na Figuras 4.8(a) e (b) para diferentes temperaturas. Para a menor temperatura da rede cristalina, a intensidade integrada de σ^- apresenta a mesma característica previamente reportada em 1,8 T, indicando que o efeito independe da energia do fóton de excitação. Além disso, a temperatura de 20 K (Fig. 4.8(b)) suprime o efeito e há uma abertura da polarização de *spin*, como o esperado. Adicionalmente, com esse *laser* mais energético as oscilações em alto campo magnético são extintas.

Os resultados da intensidade integrada em função do campo magnético para diferentes temperaturas são apresentados na Figura 4.9. Para a menor temperatura 3,6 K (Fig. 4.9(a)), a componente de polarização dominante é σ^- (esferas em vermelho). Aumentando ligeiramente a temperatura para 7,5 K (Fig. 4.9(b)) e para campos magnéticos aplicados maiores que 4 T, as duas componentes tem praticamente a mesma intensidade. Elevando ainda mais a temperatura para 10 e 20 K (Fig. 4.9(c) e (d)), observa-se a inversão da polarização e σ^+ torna-se dominante.

Finalmente, os resultados experimentais obtidos permitem expandir as questões levantadas anteriormente. Primeiramente, o que provoca as oscilações em alto campo magnético e sua dependência com a energia do *laser*? E por fim, qual mecanismo provoca a inversão de *spin* e por que apenas para uma das orientações cristalinas?

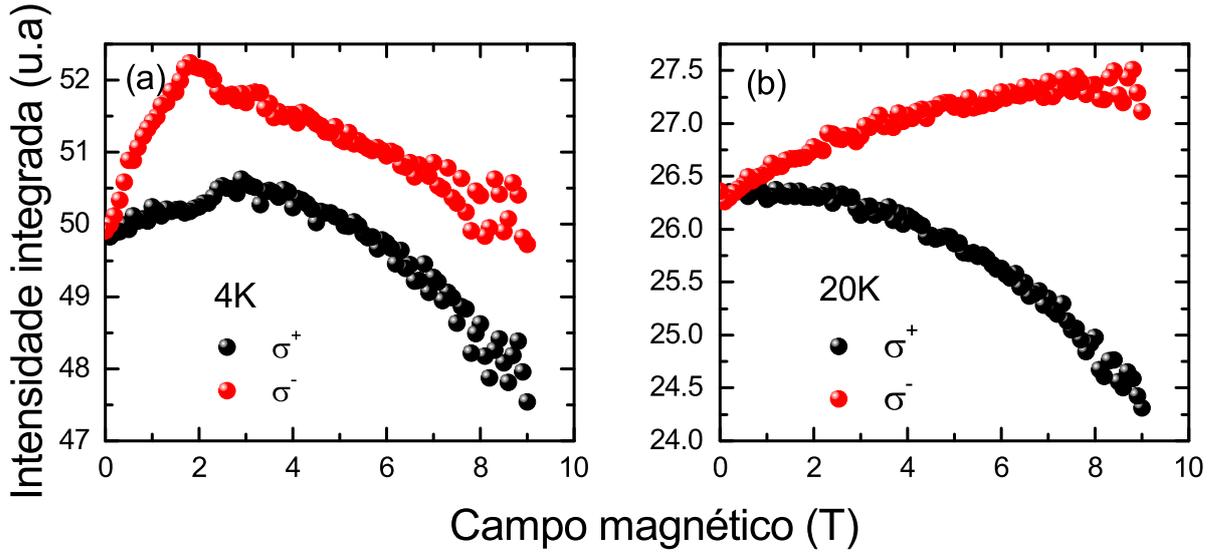


Figura 4.8: Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (100) com excitação usando um *laser* com emissão em 660 nm, para temperaturas de (a) 3,6 K e (b) 20 K.

4.7 Magneto-absorção

As oscilações observadas em alto campo magnético são resultantes da transição interbanda para os níveis de Landau (LLs). Com a aplicação de um campo magnético na direção de crescimento (geometria Faraday), elétrons e buracos sofrem a ação da força de Lorentz que induz um movimento circular do éxciton no plano x - y , resultando em uma quantização dos níveis de Landau para a banda de valência e condução. Essas oscilações ocorrem quando a energia de excitação do fóton ($\hbar\omega$) é igual a energia das sub-bandas dos LLS, o que ocasiona uma máxima absorção. A Figura 4.10 apresenta o resultado do modelo de magneto-absorção, onde o número de portadores foto gerados α é dado por:[108]

$$\alpha(\hbar\omega, B) \propto \frac{|ep_{cv}^{\pm}|^2 B}{\hbar\omega} \sum_N \frac{\sqrt{\sqrt{F^{\pm}(N, B)^2 + \delta^2} + F^{\pm}(N, B)}}{\sqrt{F^{\pm}(N, B)^2 + \delta^2}}, \quad (4.1)$$

onde $|ep_{cv}^{\pm}|$ é a matrix de transição óptica, δ e $F^{\pm}(N, B) = \hbar\omega - (E_c^{\pm}(N, B) - E_v^{\pm}(N, B))$ onde $E_c^{\pm}(N, B) - E_v^{\pm}(N, B)$ é a diferença de energia entre os níveis de Landau (N) na banda de valência e condução para um *spin* sob a influência de campo magnético externo. A simulação foi realizada com $\delta = 3.5$ meV. Para calcular o valor da energia da banda de valência e condução para as duas amostras, foi utilizado os parâmetros da massa efetiva no plano para o buraco, e o fator-g para o elétron e buraco, sendo $m_h^* = 0.11m_0$, $g_e = 0.44$ e $g_h = -2.6$, respectivamente. [109] A massa efetiva do elétron para as orientações cristalina (100) e (311)A são $m_e^* = 0.077m_0$ e $0.071m_0$, respectivamente.

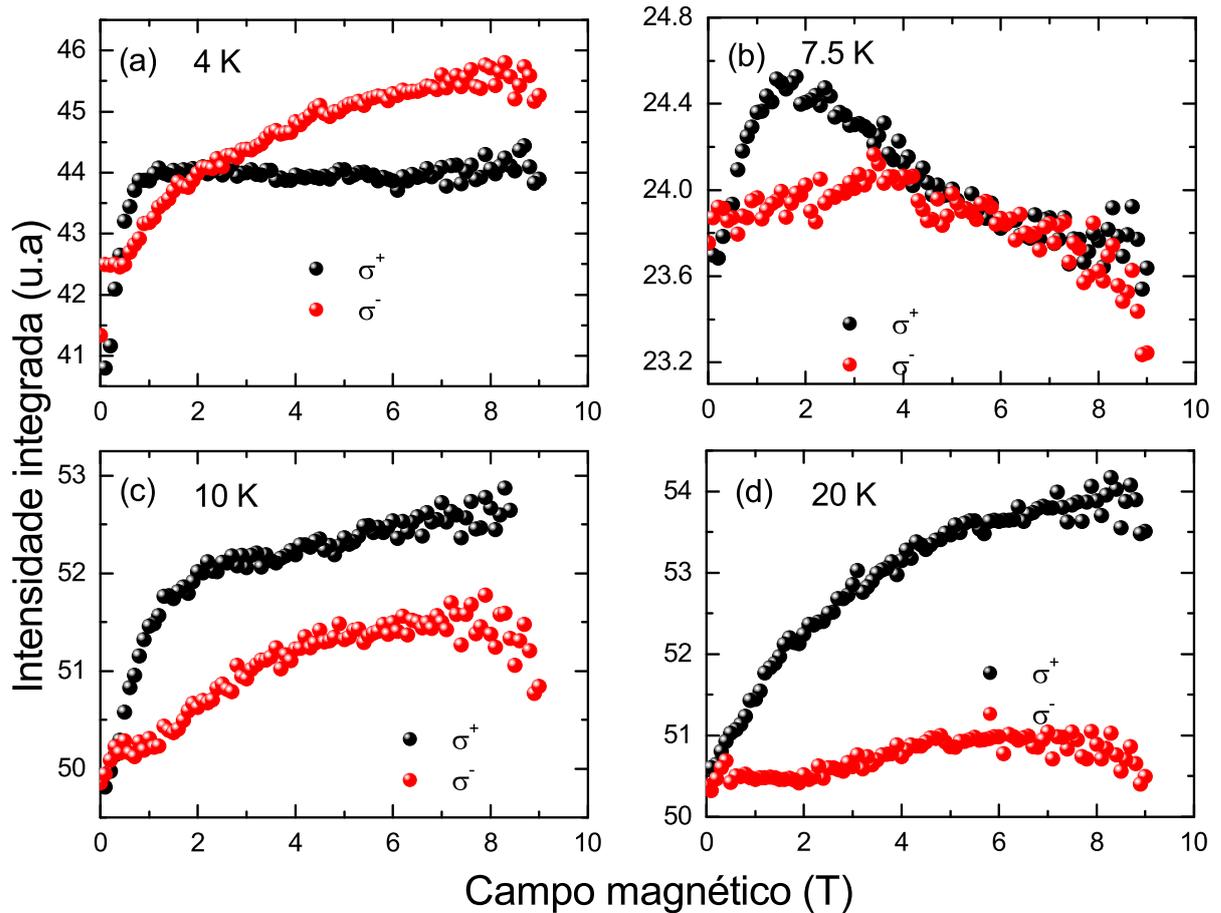


Figura 4.9: Intensidade integrada em função do campo magnético da amostra MQW GaAs (311)A com excitação em 660 nm, para temperaturas de (a) 3,6 K, (b) 7,5 K, (c) 10 K e (d) 20 K.

Na Figura 4.10, no lado esquerdo é apresentado a intensidade integrada e no lado direito o coeficiente de absorção e sua dependência com o campo magnético para as duas amostras. Observa-se que os dados experimentais e os dados teóricos do coeficiente de absorção tem uma boa concordância em altos campos magnéticos, apesar de não apresentar aqui o modelo de absorção para ambas as componentes de *spin*, claramente a origem das oscilações em alto campo são dependentes da energia do fóton, como demonstrado utilizando um *laser* com energia maior que as transições das sub-bandas essas oscilações são extintas.

4.8 Modelo para inversão da polarização de *spin*

A inversão do grau de polarização com a temperatura e potência de excitação observados aqui foram reportados também em amostras de InAs/InSb do tipo II.[110] Neste caso, o efeito é explicado através do termo de não equilíbrio térmico das populações de *spin* dos subníveis dos elétrons e/ou dos buracos. O modelo utilizado para tal é um

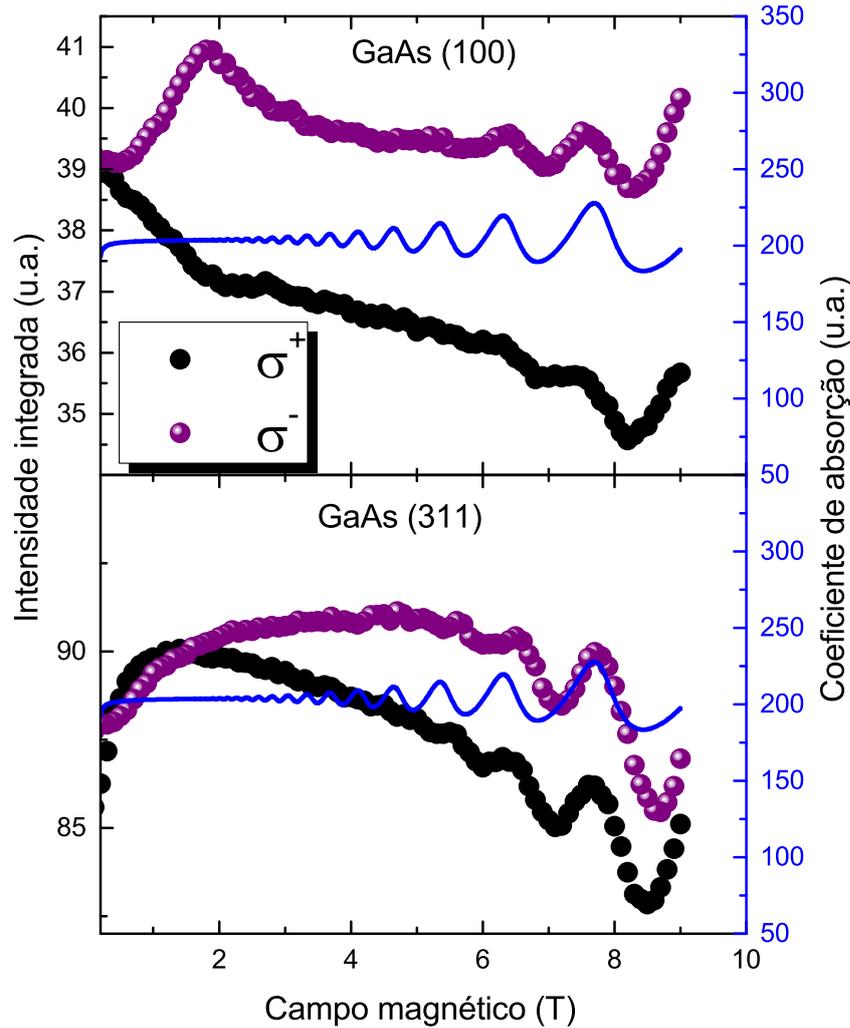


Figura 4.10: Intensidade integrada em função do campo magnético (lado esquerdo), e cálculo do coeficiente de absorção e sua dependência com campo magnético (lado direito) para (a) MQW GaAs (100) e (b) MQW GaAs (311)A.

sistema de 4 níveis como mostrado na Figura 4.11, onde as transições ópticas permitidas sob a influência de campo magnético aplicado são mostradas. As linhas tracejadas correspondem aos níveis do buraco (BV) e as linhas contínuas são os níveis do elétrons (BC). A flecha em vermelho corresponde a transição óptica com polarização circular de elétrons com momento $m_j = +1/2$ e para buracos com momento $m_j = +3/2$, que por sua vez corresponde aos dados experimentais de menor energia (σ^-), enquanto que a flecha azul demonstra a transição de elétrons $m_j = -1/2$ para buracos com a transição $m_j = -3/2$ (σ^+) com um determinado tempo de vida (τ_0). A flecha tracejada em verde corresponde a transição entre os elétrons ($m_j = +1/2$ e $m_j = -1/2$ e o equivalente para os níveis de buracos em um determinado tempo, conhecido como *spin-flip* (τ_s^e ou τ_s^h)). Por fim, as flechas em laranja são o termos de escape dos portadores ou que decaem por processos não radiativos.

O modelo de 4-níveis pode ser descrito por quatro equações:

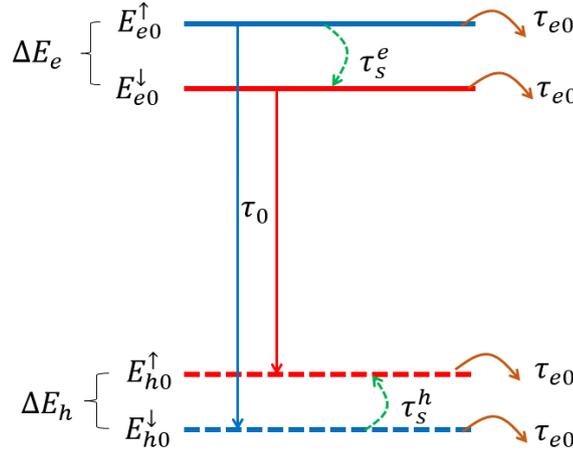


Figura 4.11: Representação esquemática do modelo de 4-níveis para as transições ópticas permitidas no GaAs sob aplicação de campo magnético. As linhas pontilhadas indicam a banda de valência enquanto que as linhas contínuas a banda de condução. $\Delta E_{h,e}$ a abertura Zeeman para os buracos ou elétrons, τ_0 o tempo de vida, $\tau_s^{h,e}$ tempo de relaxação de *spin* dos buracos ou elétrons e τ_{e0} termo referente aos portadores que não contribuem nas transição ópticas.

$$Eq1 = W - \frac{n_0^{\uparrow}}{\tau_s^e} f(\Delta E_e, t) + \frac{n_0^{\downarrow}}{\tau_s^e} f(-\Delta E_e, t) - \frac{n_0^{\uparrow}}{\tau_0^e} - \frac{n_0^{\uparrow} \cdot p_0^{\uparrow}}{\tau_0} = 0 \quad (4.2)$$

$$Eq2 = W + \frac{n_0^{\uparrow}}{\tau_s^e} f(\Delta E_e, t) - \frac{n_0^{\downarrow}}{\tau_s^e} f(-\Delta E_e, t) - \frac{n_0^{\downarrow}}{\tau_0^e} - \frac{n_0^{\downarrow} \cdot p_0^{\downarrow}}{\tau_0} = 0 \quad (4.3)$$

$$Eq3 = W - \frac{p_0^{\uparrow}}{\tau_s^h} f(\Delta E_h, t) + \frac{p_0^{\downarrow}}{\tau_s^h} f(-\Delta E_h, t) - \frac{p_0^{\uparrow}}{\tau_0^e} - \frac{n_0^{\uparrow} \cdot p_0^{\uparrow}}{\tau_0} = 0 \quad (4.4)$$

$$Eq4 = W + \frac{p_0^{\uparrow}}{\tau_s^h} f(\Delta E_h, t) - \frac{p_0^{\downarrow}}{\tau_s^h} f(-\Delta E_h, t) - \frac{p_0^{\downarrow}}{\tau_0^e} - \frac{n_0^{\downarrow} \cdot p_0^{\downarrow}}{\tau_0} = 0 \quad (4.5)$$

onde W é o termo referente a potência de excitação, τ_s^e e τ_s^h os tempos de relaxação do elétron e buraco, respectivamente, τ_0 o tempo de recombinação, τ_{e0} o tempo de escape dos portadores $\Delta E_{e,h}$ a abertura Zeeman entre elétrons ou buracos, n_0 e p_0 a densidade de cargas de elétrons ou buracos, respectivamente. Os símbolos \uparrow (*spin-up*) e \downarrow (*spin-down*) acompanham as densidades de portadores. Com a equação de Boltzmann $f(\Delta E_{e,h}, t)$:

$$f(\Delta E_{e,h}, t) = \begin{cases} e^{-\frac{\Delta E_{e,h}}{kt(t)}}, & E \geq 0 \\ 1, & E < 0, \end{cases} \quad (4.6)$$

sendo k a constante de Boltzmann, t a temperatura e $\Delta E_{e,h}$ é a variação de energia entre os níveis dos elétrons e buracos.

Os resultados das simulações com o modelo de 4-níveis estão apresentados na Figura 4.12. Esta figura apresenta as simulações em que foi considerado o tempo de relaxação do *spin* do elétron e do buraco como sendo assimétricos, bem como as energias do split do elétron e buraco. Foi considerado ainda uma potência arbitrária de (1 μ W), $\tau_s^e = 0,1\tau_0$ e $\tau_s^h = \alpha\tau_s^e$ e com energia de $\Delta_e = 1,0meV$, $\Delta_h = -0,5meV$ e α é a razão entre o tempo de relaxação de *spin* do buraco e o tempo de relaxação de *spin* do elétron, ou seja, $\alpha = \tau_s^h / \tau_s^e$. A dependência da polarização com a temperatura pode ser observada na Fig. 4.12(a), onde uma inversão da DCP com temperatura é observada para $\alpha = 0,5$. Neste caso a linha vermelha representa a polarização inicial e o valor predominante é de -0,2. Com o aumento da temperatura observa-se uma inversão da DCP próximo de 50 K, chegando a um valor máximo em, aproximadamente 100 K. Após esse valor há uma diminuição do valor da polarização com a temperatura. Aumentando o tempo de relaxação de *spin* do buraco, para o caso simétrico dos tempos de relaxação, há um deslocamento vertical da polarização em baixas temperaturas. Neste caso específico, a DCP até, aproximadamente 25 K é nula. Desta forma, não se observa inversão. Por fim, para tempos de relaxação de *spin* do buraco maior que do elétron a DCP tem seu mínimo valor em 0 K no intervalo simulado (0-300 K). Invertendo os valores do split $\Delta_e = -1,0meV$ e $\Delta_h = 0,5meV$, a um espelhamento das DCPs.

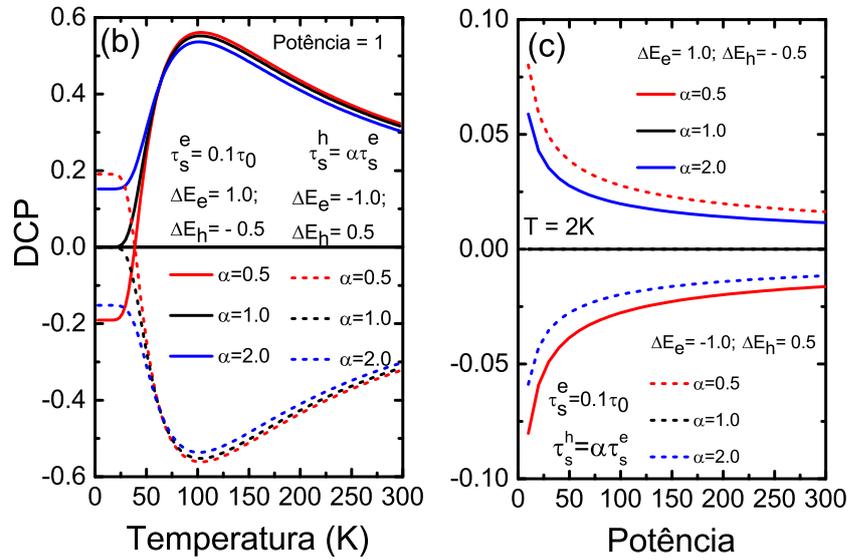


Figura 4.12: Cálculo do grau de polarização circular usando o modelo de 4-níveis e sua dependência com (a) Temperatura e (b) Potência. Para um determinado campo magnético finito e diferentes tempos de relaxação *spin* do buraco e elétron.

As simulações com a dependência da potência de excitação são mostradas na Fig. 4.12(b), onde foram utilizados os mesmos parâmetros da simulação anterior com dependência com a temperatura, para uma temperatura constante de 2 K. Nesta situação, em nenhum dos casos observa-se a inversão da DCP com a potência de excitação.

A não inversão com a potência é um indicativo que o modelo de quatro níveis não é suficiente para descrever os resultados experimentais. Desta forma, foi empregado aqui um modelo mais complexo considerando 8-níveis. Este modelo está representado na Figura 4.13. Neste modelo, as linhas contínuas em azul e vermelho correspondem aos estados da banda de condução (BC), enquanto que as linhas tracejadas a banda de valência (BV). Os dois primeiros níveis da BC e os dois da BV é a simplificação do modelo anterior, onde as flechas em vermelho e azul indicam o tempo de decaimento do éxciton e a abertura Zeeman do elétron (buraco) ΔE_e (ΔE_h) é apresentada. Se as transições forem intrabandas, ou seja, de um spin para outro (*spin-flip*), as transições são indicadas com a flecha verde por um determinado tempo de relaxação (τ_s^e ou τ_s^h). Com a introdução do primeiro estado excitado, novos termos devem ser considerados. Se o processo de decaimento intrabanda ocorre entre elétrons ou buracos de mesmo *spin*, como por exemplo ($E_{h0}^\uparrow \rightarrow E_{hx}^\uparrow$), o processo é identificado como coerente por um determinado tempo (τ_{cop}), pois ocorre entre níveis do mesmo *spin*. Caso contrário, o processo intrabanda dá-se por um decaimento incoerente ($\Delta E_{h0}^\uparrow \rightarrow \Delta E_{hx}^\downarrow$). Finalmente cada nível contém uma probabilidade dos portadores não participarem do processo de decaimento e que identificamos anteriormente para o modelo de 4-níveis como escape de portadores ou processos não radioativos que também apresentam tempo de vida τ_{e0} ou τ_{ex} para os estados fundamentais e o primeiro estado excitado, respectivamente.

O modelo de 8-níveis pode ser descrito pelas seguintes equações:

$$Eq1 = W - n_x^\uparrow \cdot \left(\frac{1}{\tau_{co}} + \frac{1}{\tau_{inco}} \right) - \frac{n_x^\uparrow}{\tau_s^e} f(\Delta E_e^x, t) + \frac{n_x^\downarrow}{\tau_s^e} f(-\Delta E_e^x, t) - \frac{n_x^\uparrow}{\tau_{ex}} = 0 \quad (4.7)$$

$$Eq2 = W - n_x^\downarrow \cdot \left(\frac{1}{\tau_{co}} + \frac{1}{\tau_{inco}} \right) - \frac{n_x^\downarrow}{\tau_s^e} f(-\Delta E_e^x, t) + \frac{n_x^\uparrow}{\tau_s^e} f(\Delta E_e^x, t) - \frac{n_x^\downarrow}{\tau_{ex}} = 0 \quad (4.8)$$

$$Eq3 = n_x^\uparrow \cdot \tau_{co} + \frac{n_x^\downarrow}{\tau_{inco}} - \frac{n_0^\uparrow}{\tau_s^e} f(\Delta E_e, t) + \frac{n_0^\downarrow}{\tau_s^e} f(-\Delta E_e, t) - \frac{n_0^\uparrow}{\tau_{e0}} - \frac{n_0^\uparrow \cdot p_0^\uparrow}{\tau_0} = 0 \quad (4.9)$$

$$Eq4 = n_x^\downarrow \cdot \tau_{co} + \frac{n_x^\uparrow}{\tau_{inco}} + \frac{n_0^\uparrow}{\tau_s^e} f(\Delta E_e, t) - \frac{n_0^\downarrow}{\tau_s^e} f(-\Delta E_e, t) - \frac{n_0^\downarrow}{\tau_{e0}} - \frac{n_0^\downarrow \cdot p_0^\downarrow}{\tau_0} = 0 \quad (4.10)$$

$$Eq5 = W - p_x^\uparrow \cdot \left(\frac{1}{\tau_{cop}} + \frac{1}{\tau_{incop}} \right) - \frac{p_x^\uparrow}{\tau_s^h} f(\Delta E_h^x, t) + \frac{p_x^\downarrow}{\tau_s^h} f(-\Delta E_h^x, t) - \frac{p_x^\uparrow}{\tau_{ex}} = 0 \quad (4.11)$$

$$Eq6 = W - p_x^\downarrow \cdot \left(\frac{1}{\tau_{cop}} + \frac{1}{\tau_{incop}} \right) - \frac{p_x^\downarrow}{\tau_s^h} f(-\Delta E_h^x, t) + \frac{p_x^\uparrow}{\tau_s^h} f(\Delta E_h^x, t) - \frac{p_x^\downarrow}{\tau_{ex}} = 0 \quad (4.12)$$

$$Eq7 = p_x^\uparrow \cdot \tau_{cop} + \frac{p_x^\downarrow}{\tau_{incop}} - \frac{p_0^\uparrow}{\tau_s^h} f(\Delta E_h, t) + \frac{p_0^\downarrow}{\tau_s^h} f(-\Delta E_h, t) - \frac{p_0^\uparrow}{\tau_{e0}} - \frac{n_0^\uparrow \cdot p_0^\uparrow}{\tau_0} = 0 \quad (4.13)$$

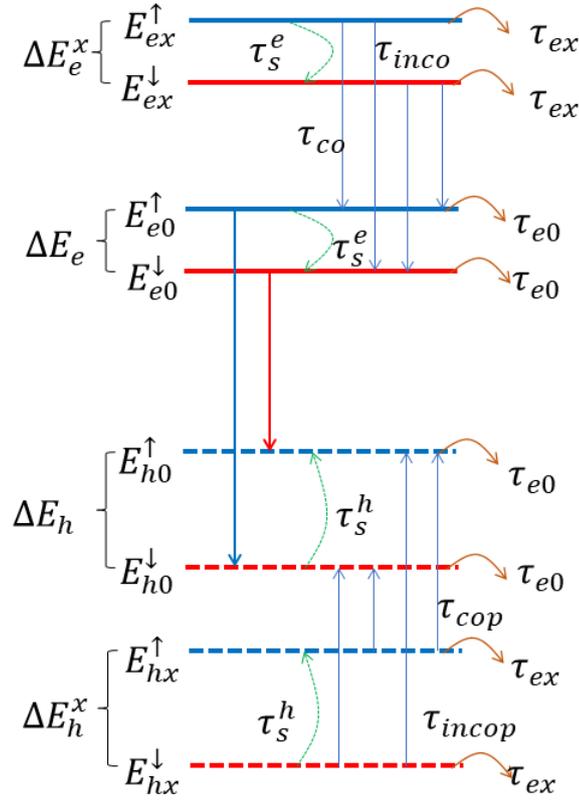


Figura 4.13: Representação esquemática do modelo de 8-níveis e suas transições ópticas permitidas considerando o estado fundamental e um estado excitado sob a aplicação de campo magnético. As linhas pontilhadas correspondem a banda de valência sendo ΔE_h e ΔE_h^x o estado fundamental e primeiro excitado dos buracos pesados, respectivamente. As linhas contínuas indicam a banda de condução com o ΔE_e e ΔE_e^x o estado fundamental e primeiro excitado dos elétrons, respectivamente. $\tau_{co,cop}$ tempo de relaxação de *spin* coerente dos elétrons e buracos, $\tau_{inco,incop}$ tempo de relaxação de *spin* incoerente dos elétrons e buracos. $\tau_{e0,ex}$ termo referente aos portadores que não contribuem nas transições ópticas.

$$Eq8 = p_x^\downarrow \cdot \tau_{cop} + \frac{p_x^\uparrow}{\tau_{incop}} + \frac{p_0^\uparrow}{\tau_s^h} f(\Delta E_h, t) - \frac{p_0^\downarrow}{\tau_s^h} f(-\Delta E_h, t) - \frac{p_0^\downarrow}{\tau_{e0}} - \frac{n_0^\downarrow \cdot p_0^\downarrow}{\tau_0} = 0 \quad (4.14)$$

onde, τ_s^e é o tempo de relaxação do elétron, τ_s^h o tempo de relaxação do buraco, W a potência de excitação, ΔE_e a variação de energia entre os níveis de *spin up* e *spin down* do estado fundamental da banda de condução, ΔE_h a variação de energia entre os níveis de *spin up* e *spin down* do estado fundamental da banda de valência, ΔE_e^x (ΔE_h^x) é a abertura Zeeman do primeiro estado excitado para a BC (BV), τ_0 o tempo de recombinação excitônico, τ_{co} o tempo de relaxação coerente, τ_{inco} o tempo de relaxação incoerente. Os termos n_0 (n_x) e p_0 (p_x) são a densidade de portadores dos elétrons e buracos do estado fundamental (excitado). os símbolos \uparrow (\downarrow) indicam o *spin-up* (*spin-down*) correspondentes com a densidade de portadores. $A f(x,t)$ é função de Boltzmann que pode ser descrita como:

$$f(x, t) = \begin{cases} e^{-\frac{\Delta E_{e,h}}{kt(t)}}, & x \geq 0 \\ 1, & x < 0, \end{cases} \quad (4.15)$$

sendo k a constante de Boltzmann, t a temperatura e $\Delta E_{e,h}$ é a variação de energia entre os níveis do elétrons e buracos

A partir do modelo de 8-níveis obtém-se a simulação da DCP para a dependência com a temperatura e a potência de excitação, cujos os resultados são apresentados na Fig. 4.14(a)(b) e Fig. 4.14(c)(d), respectivamente. O termo α é a razão entre o tempo de relaxação de *spin* do buraco e o tempo de relaxação de *spin* do elétron $\alpha = \tau_s^h / \tau_s^e$. Na Figura 4.14(a) a evolução da DCP com a variação da temperatura é simulada utilizando uma potência de excitação fixa ($1 \mu W$), em que observamos que a inversão do sinal da DCP ocorre apenas para $\tau_s^e > \tau_s^h$ e para valores de $\alpha < 0,5$. Para o menor valor de α , o DCP tem o maior valor absoluto e a inversão ocorre próximo de 150 K, no entanto, com o aumento da temperatura a DCP se mantém próxima a 0. Mudando o valor do parâmetro α , a DCP inicial diminui e a inversão da DCP se desloca para menores temperaturas. Para o maior valor de $\alpha = 2$ o valor absoluto inverte o sinal, mas nenhuma inversão com a temperatura é observada.

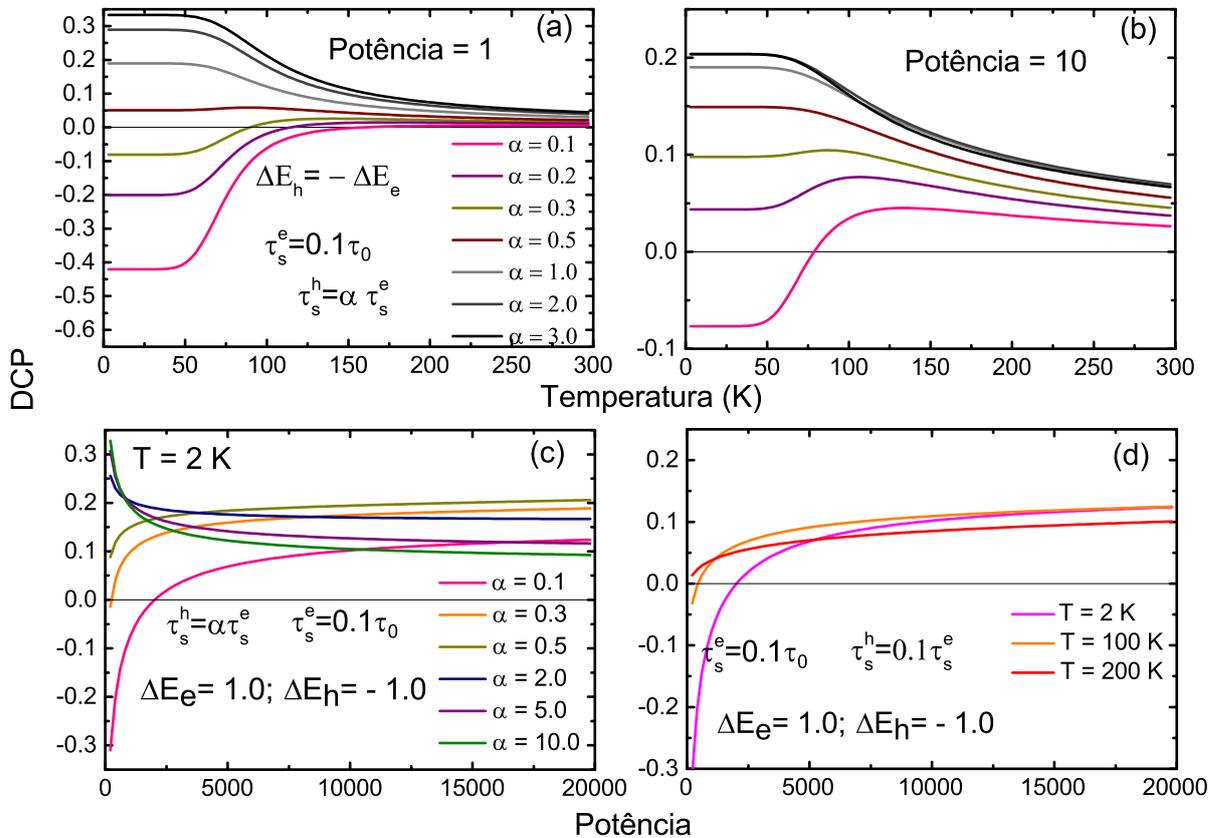


Figura 4.14: Cálculo da DCP em função da temperatura para (a) $1 \mu W$, (b) $10 \mu W$ e em função da temperatura. (c) DCP a temperatura fixa de $T = 2 K$ com diferentes valores de α e (d) para 3 diferentes valores de temperatura. Para um determinado campo magnético finito.

Aumentando a potência de excitação (Fig 4.14(b)), há um deslocamento vertical de todas as curvas, e, para o menor valor de α quando comparado com a outra potência simulada, um deslocamento na temperatura de inversão é observada. Além disso, a DCP atinge valores absolutos mais altos após a inversão se aproximando dos dados experimentais.

Simulando da dependência com a potência de excitação, um valor fixo de temperatura ($T = 2$ K) foi escolhido, com os resultados apresentados na Fig. 4.14(c) e (d). Novamente, para o menor valor de $\alpha = 0,1$ observa-se claramente uma inversão com a potência de excitação. A variação do parâmetro α desloca verticalmente a DCP tirando da condição ideal para a inversão da polarização. O modelo ainda prevê que a inversão da polarização com dependência com a potência de excitação pode acontecer em altas temperaturas.

Após identificar as condições nas quais ocorre a inversão de *spin* para o sistema de 8-níveis, foram ajustados o modelo teórico com os dados experimentais. A variação da DCP com a potência de excitação e temperatura são apresentados na Figura 4.15(a) e (b).

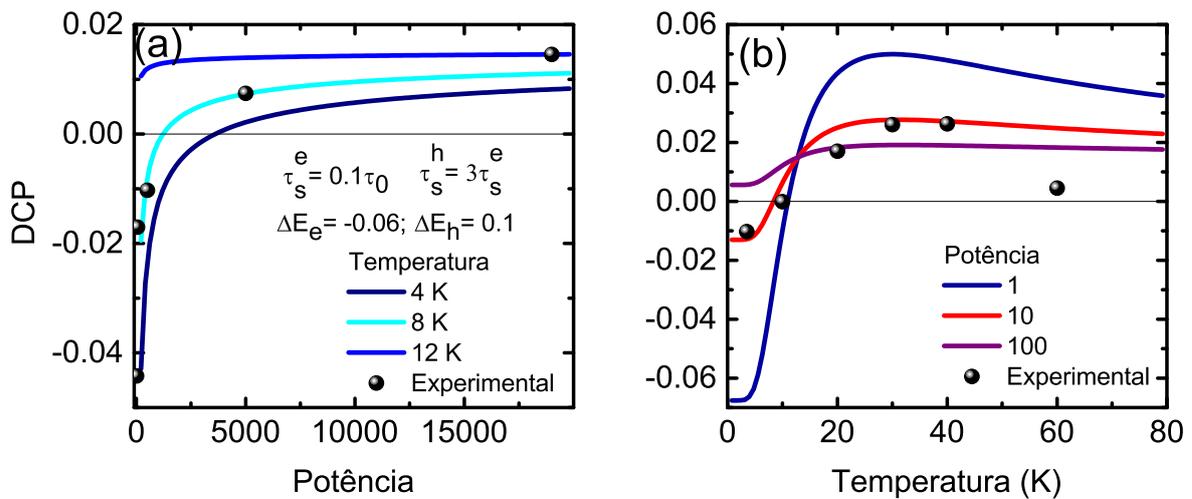


Figura 4.15: Dados experimentais da DCP (círculos pretos) em função da (a) Potência e (b) Temperatura. As linhas sólidas são os ajustes do modelo de 8-níveis. Os dados experimentais foram extraídos a campo magnético de 4 Tesla.

A inversão da polarização com a potência (Fig.4.15(a)) demonstra claramente como o modelo de 8-níveis pode ser adequado para explicar a inversão do sinal da DCP. Embora o valor que melhor ajusta os dados experimentais é $t = 8$ K, essa pequena discrepância pode estar relacionada a temperatura efetiva dos portadores que não atingem o equilíbrio térmico. Por fim, na dependência da DCP com a temperatura (Fig. 4.14(b)), o modelo demonstra ser altamente capaz de explicar a inversão do sinal da DCP, apesar de não ajustar o último ponto. Nossas simulações com o modelo de 8-níveis provaram ser uma ferramenta importante para explicar a inversão da DCP sem a necessidade de

fazer uma conjectura como foi proposto anteriormente por Terent'ev et.al.[110] anteriormente. Contrastando ambas as amostras a orientação cristalina favorece as condições de abertura Zeeman e tempos de relaxação de *spin* (elétron e buraco) necessária para que ocorra a inversão de *spin*.

4.9 Conclusões Parciais

Neste capítulo investigamos a influência da orientação cristalina nas propriedades de *spin*. O capítulo pode ser dividido em duas partes: na primeira parte, verificou-se a origem das oscilações na intensidade integrada e a segunda na inversão de *spin* com dependência com a temperatura e potência de excitação. Na primeira parte utilizamos o modelo de magneto-absorção para explicar as oscilações em alto campo magnético. Além disso, utilizando um laser mais energético as oscilações desaparecem. Vale ressaltar que essas oscilações independem da orientação cristalina e foram observados vestígios dessas oscilações à temperaturas de até 60 K. Para a segunda parte, analisamos a DCP das duas amostras onde foi verificado uma inversão de sinal para a amostra com orientação cristalina (311)A em função da potência de excitação e da temperatura, quando um campo magnético é aplicado. Para explicar esse fenômeno, utilizamos um modelo de 8-níveis o qual descreve a inversão de sinal de forma satisfatória para a dependência com a temperatura e com a potência de excitação sem a necessidade de fazer uma conjectura como foi proposto anteriormente.

Capítulo 5

Controle Magnético da transferência de excíton na nanoestrutura híbrida de ponto quântico (QD)- Poço quântico (QW)

Adaptado de:

V. Laurindo, Jr., Yu. I. Mazur, E. R. Cardozo de Oliveira, B. Alén, M. E. Ware, E. Marega, Jr., Z. Ya. Zhuchenko, G. G. Tarasov, G. E. Marques, M. D. Teodoro, and G. J. Salamo

"Magnetically controlled exciton transfer in hybrid quantum-dot–quantum-well nanostructures"

Phys. Rev. B **100**, 035309 (2019)

5.1 Resumo

Neste capítulo estudou-se através da técnica magneto-fotoluminescência (PL) a transferência de portadores na estrutura híbrida de ponto quântico InAs/GaAs – poço quântico InGaAs/GaAs com diferentes valores de espessura de separação das estruturas (camada de GaAs) onde observou-se uma dependência incomum da fotoluminescência com a espessura da barreira de GaAs em altos campos magnéticos e alta densidade de potência. Para o caso de uma barreira fina, observou-se que a intensidade da PL do poço quântico (QW) aumenta a medida que há uma diminuição da intensidade da PL do ponto quântico (QD). Esta observação é atribuída a uma mudança da dinâmica dos portadores no plano do QW e da *wetting layer* (WL), resultante do aumento do campo magnético combinado com a mudança no acoplamento entre os estados excitados do QD com os estados do QW e da WL.

5.2 Introdução

As nanoestruturas combinadas de ponto e poço-quântico representam uma classe de estruturas híbridas no qual o comprimento de onda da fotoluminescência (PL) depende do tamanho dos pontos, da largura do poço e da barreira crescida entre o ponto-poço que define a força do acoplamento. A variação destes parâmetros proporciona uma ampla capacidade na engenharia destes sistemas para aplicações optoeletrônicas, incluindo *lasers* de alto desempenho, processadores para informação quântica, ou transistores de um único elétron [111–114]. A fim de utilizá-los em dispositivos de tunelamento de injeção de alta velocidade em pontos quânticos (QDs), os portadores gerados são primeiro coletados pelo poço quântico (QW) e em seguida, através do tunelamento, decaem para os QDs com subsequente relaxação até o estado fundamental. Através do tunelamento, os portadores energeticamente frios (elétrons) do QW tunelam para os estados do QD sem aquecer outros portadores ou emitindo fônons, reduzindo assim a perda de portadores da região ativa, e, portanto, aumentando o ganho na eficiência de lasers [115–117] que operam com este princípio. Desta forma, as propriedades ópticas das estruturas de ponto-poço de InAs/GaAs-InGaAs/GaAs têm sido extensivamente estudados por meio da técnica PL em ondas pulsadas e contínuas (CW), esclarecendo muitas questões referentes a dinâmica de excítons. [118–122].

Sob o ponto de vista de física fundamental, a aplicação de um campo magnético nessas estruturas permite a coleta de informações adicionais, pois introduz uma forte e previsível mudança nas correspondentes estruturas eletrônicas do sistema [123, 124]. Em altos campos magnéticos, onde a energia ciclotrônica é maior que a energia de confinamento lateral e a energia de ligação do excíton, o confinamento magnético domina e uma estrutura de nível de Landau é esperada que se desenvolva. O campo magnético também remove a degenerescência de *spin* dando origem a uma dependência com o campo magnético qualitativamente diferente da emissão do estado fundamental e dos estados excitados, o que é especialmente importante no caso do ponto-poço onde estados excitados do QD entrarão em ressonância com o estado fundamental do QW ou os estados excitados do excíton. Devido ao forte acoplamento QD-QW em combinação com as propriedades de *spin*, a dinâmica de injeção de *spin* dessas estruturas híbridas tem atraído grande interesse no campo da spintrônica [10, 125–127]. Além disso, a estrutura do nível de energia pode ser projetada a fim de melhorar a intensidade da emissão em temperatura ambiente e em comprimentos de onda de telecomunicação [128]. Recentemente, muitos resultados foram publicados para as estruturas de QD-QW [129–135] esboçando outras perspectivas para a aplicação de tais estruturas híbridas. Ademais, também foi revelado a existência de ilhas enriquecidas de In nos QW de InGaAs resultando em um excíton espacialmente indireto (tipo II). Estes excítons dentro de um QW se movem em uma órbita em forma de anel. Como resultado, a

intensidade PL em QWs de InGaAs/GaAs oscila com campo magnético aplicado perpendicular ao plano do QW em baixas temperaturas resultando no efeito Aharonov Bohm associado a excítons espacialmente indiretos que são formados nas proximidades das ilhas de índio dentro o QW [136].

Neste capítulo são investigados o mecanismo de acoplamento dos portadores em baixa temperatura induzidos por um campo magnético em sistemas híbridos InAs/GaAs-QD-InGaAs-QW com diferentes espessuras de GaAs entre as nanoestruturas. A potência de excitação foi intencionalmente alta para observar o terceiro estado excitado do QD, que está em ressonância com o estado fundamental do excíton do QW. Os resultados dos estudos de fotoluminescência mostram que a estrutura híbrida com uma barreira mais espessa se comporta como as estruturas de referência QD e QW, indicando que elas estão desacopladas. Por outro lado, a nanoestrutura de barreira mais fina induz diferentes magnitudes de acoplamento: em baixos campos magnéticos o acoplamento é preservado, enquanto o aumento do confinamento no plano do QW devido a um alto campo magnético aplicado reduz o acoplamento e a luminescência das nanoestruturas se comportam como dois sistemas independentes.

5.3 *Setup* experimental e amostras

Um conjunto de amostras híbridas de InAs-QD – In_{0.13}Ga_{0.87}As-QW foram crescidas em substratos semi-isolantes de GaAs (001) em um sistema de epitaxia de feixe molecular. Detalhes sobre o crescimento são apresentados na Ref. [120]. Cada amostra consiste de uma camada *buffer* de 0,3 μm de espessura de GaAs, um QW de InGaAs de 14nm de espessura, uma barreira de GaAs com espessura de 2 e 20 nm, uma camada de QDs e por fim um *cap layer* de 50 nm de GaAs. Duas amostras de referência foram crescidas nas mesmas condições de crescimento que as estruturas ponto-poço. Uma delas contendo apenas os QDs de InAs e a outra contendo apenas um QW de In_{0.13}Ga_{0.87}As. A análise estrutural (não mostrada aqui) por microscopia eletrônica de transmissão revelou que os QDs de InAs têm a forma de plaquetas de aproximadamente 5 nm de altura e 20 nm de diâmetro em média, com uma densidade de 10^{10} cm^{-2} . A medida da largura do QW foi de $14,0 \pm 0,5$ nm em todas as amostras e a espessura da barreira de GaAs estava em bom acordo com o parâmetros estabelecidos durante o crescimento no MBE.

As medidas de Magneto-Fotoluminescência (MPL) foram realizadas em temperaturas de 4 K e com campos magnéticos aplicados na geometria Faraday de até 9 T utilizando um criostato de hélio de ciclo fechado livre de vibrações (Attocube/Attodry1000) e usando um microscópio confocal desenvolvido no próprio laboratório. Uma fibra óptica monomodo com núcleo de 5 μm foi acoplada ao *laser* Toptica/Ibeam de 660 nm

para um foco de $1 \mu\text{m}$ e uma potência de excitação de $90 \mu\text{W}$ na amostra. A luminescência da amostra foi então coletada por uma fibra óptica multimodo de $50 \mu\text{m}$ antes de ser dispersada por um espectrômetro de $0,5 \text{ m}$ e detectada por um detector de diodo de InGaAs (Andor/Shamrock/Idus). Polarizadores lineares e placas de meia-onda ou quarto de onda foram devidamente posicionados para identificar as componentes de emissão ópticas sigma mais (σ^+) e menos (σ^-) de todas as amostras.

5.4 Caracterização Magneto-óptica dos pontos quânticos

Inicialmente, a amostra de QD de referência foi medida usando uma baixa potência de excitação e baixa temperatura. Na Figura 5.1(a) são apresentados os espectros de Magneto-Fotoluminescência a 0 e 9 T à temperatura de 4 K , em que uma emissão gaussiana com a posição de pico centrada em $E = 1,135 \text{ eV}$ e com uma largura de linha a meia altura (FWHM) de 34 meV foi observada. Para a alta potência de excitação apresentada na Figura 5.1(b), o QD de referência se transforma em uma distribuição espectral multi-banda, sendo a linha azul o espectro em campo magnético zero. Em contraste com o espectro de baixa potência o estado fundamental sofre um deslocamento para menores energias (6 meV) devido à interação de muitos corpos.[137] As bandas adicionais que surgem no lado de maior energia do estado fundamental são atribuídas aos estados excitados provocados pelo preenchimento dos níveis de energia dos estados do QDs. Como observado na Figura 5.1(b), na amostra de QD-ref, a potência utilizada é suficiente para preencher até o terceiro estado excitado próximo a $1,335 \text{ eV}$, com um quarto estado manifestando-se através de um ombro no lado de mais alta energia. Os estados estão separados por 66 meV e a FWHM varia entre 34 a 47 meV , extraído de um ajuste gaussiano com múltiplos picos. Em outras palavras, o primeiro, segundo e terceiro estado excitado ficam a 66 meV , 132 meV e 198 meV acima do estado fundamental, respectivamente.

Com a aplicação de campo magnético de até 9 T , observa-se um desvio para o azul do estado fundamental de $1,2 \text{ meV}$, valor esperado para pontos quânticos como estes, enquanto que a intensidade e o formato dos estados excitados também são modificados. A assimetria e o alargamento dos espectros de PL podem ser ajustados utilizando múltiplas gaussianas. O campo magnético quebra a degenerescência do momento angular e os estados excitados sob influência do campo aplicado se dividem em 2 , 3 e 4 picos, devido aos estados excitados que podem conter até 4 , 6 e 8 portadores, respectivamente. [138] Levando-se em conta a quebra de degenerescência, em 9 T , o primeiro estado excitado se separa por 28.7 meV .

As Figuras 5.2 (a) e (b) mostram o comportamento da intensidade integrada em função do campo magnético aplicado para as duas potências estudadas. Para a baixa potência, a intensidade da polarização circular σ^+ é quase constante até próximo de

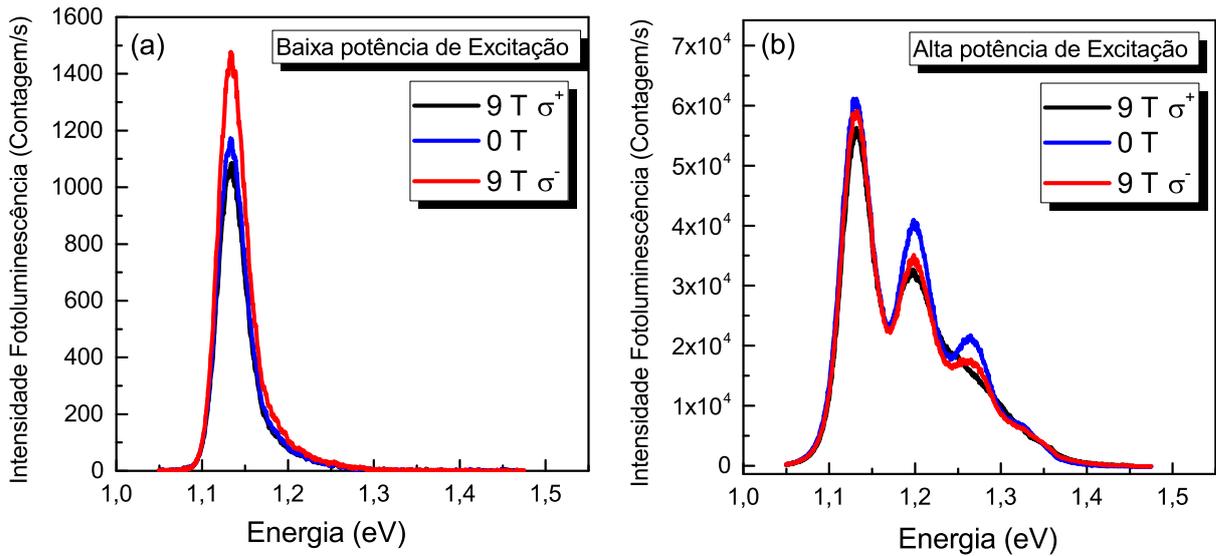


Figura 5.1: Espectros de fotoluminescência à 4 K do estado fundamental do ponto quântico a 0 e a 9 T para ambas as polarizações para (a) baixa e alta (b) potência de excitação, respectivamente. Em azul sem aplicação de campo magnético e em preto a polarização (σ^+) e em vermelho (σ^-) sob campo magnético de 9 Tesla.

6 T, em seguida, há uma queda linear da intensidade. Para a orientação σ^- a intensidade aumenta aproximadamente 25% em 9 T quando comparado a campo zero. Para a maior potência a intensidade integrada de ambas as polarizações diminui com o aumento do campo magnético. Contudo, para a orientação σ^- a intensidade se estabiliza a partir de 5 T e para a polarização σ^+ não apresenta sinal de estabilização. Como observado na Figura 4.1(b), o aumento do campo magnético sob alta potência de excitação induz um aumento da intensidade integrada dos estados excitados, demonstrando que o campo magnético provoca a transferência de carga do estado menos para o mais energético.

5.5 Caracterização Magneto-Óptica do poço quântico

A seguir, são apresentados os dados da amostra de poço quântico de referência. A emissão fotoluminescente para diferentes potências é apresentada na Figura 5.3. As principais diferenças são observadas na largura de linha do pico principal e o aparecimento de novos picos acima da emissão do estado fundamental do QW quando uma alta potência de excitação é usada em altos campos magnéticos.

Em baixa potência de excitação e baixas temperaturas ($T = 4$ K), Figura 5.3 (a), o espectro de fotoluminescência apresenta o máximo de contagens em $E = 1.349$ eV e largura de linha de 2.95 meV em campo nulo. Essa transição corresponde a transição entre buraco pesado e o primeiro nível dos elétrons, $e_1 - hh_1$ no QW. Com o aumento

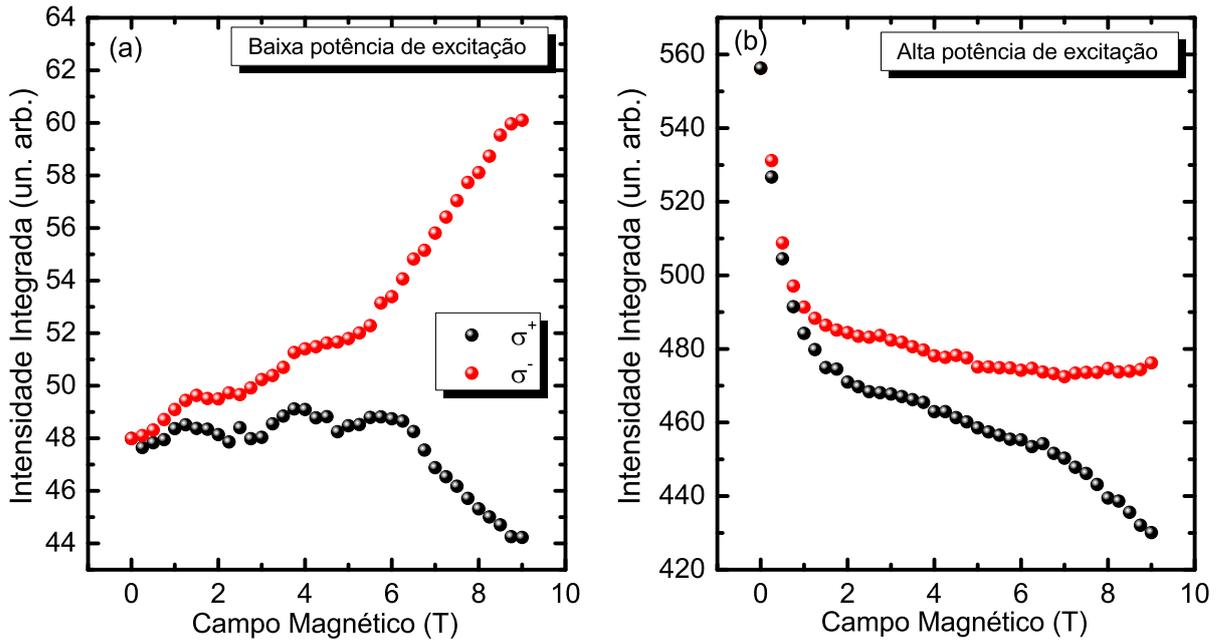


Figura 5.2: Intensidade integrada do estado fundamental do QD e sua dependência com o campo magnético para (a) baixa potência de excitação e (b) para alta potência de excitação em função do campo magnético. As esferas vermelhas representam a polarização circular σ^- e as em preto a componente σ^+ .

do campo magnético, o espectro de PL sofre um desvio para o azul bem como uma assimetria no lado de menor energia é observada.

Para a alta potência de excitação em 0T, aparece a emissão de 4 picos, que estão identificados na Figura 5.4. Em 9 T, há o aparecimento de um número grande de picos, que são decorrentes da quantização dos níveis de Landau. Em um primeiro momento, observa-se que o pico de maior intensidade sofre um estreitamento e as duas componentes circulares tem intensidade menor que em campo zero. Além disso, o deslocamento total da emissão do estado fundamental atinge 6 meV em 9 T, enquanto que a abertura de *spin* entre as componentes de polarização σ^+ e σ^- em 9 T é de 1,5 meV.

A Figura 5.4, apresenta a evolução das 4 emissões com o campo magnético. A primeira emissão em 1,354 eV corresponde a transição do $e_1 - hh_1$, a transição em 1,405 eV a transição do $e_2 - hh_2$ e as transições de 1,493 e 1,513 eV são, respectivamente, o nível de defeitos do GaAs e o excíton do GaAs bulk. A potência utilizada para essa medida foi intencionalmente maior que a do QD de referência. Desta forma, observam-se todas as emissões mencionadas, o que é possível apenas com o preenchimento dos dois níveis do poço quântico. Além disso, com a aplicação de campo magnético, observa-se o desdobramento dos níveis de Landau do $e_1 - hh_1$ na forma de leque. Adicionalmente, é possível resolver os níveis de Landau para $e_2 - hh_2$ também na forma de leque com praticamente a mesma abertura entre os níveis. Entretanto, diferente do $e_1 - hh_1$ foram observados 2 níveis a menos. Outro ponto interessante é o cruzamento dos níveis e um aumento relativo da contagem da PL - vide a emissão em

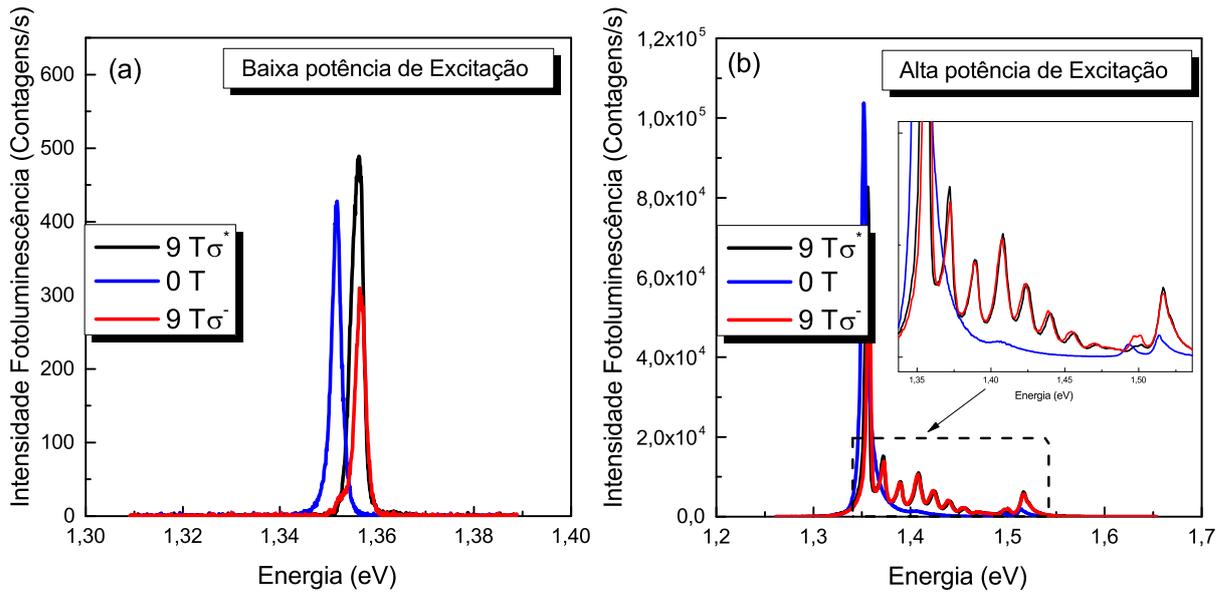


Figura 5.3: Espectros de fotoluminescência da transição $e1-hh1$ sem campo magnético (azul) e para as duas polarizações circulares σ^- (vermelho) e σ^+ (preto) para (a) baixa e (b) alta potência de excitação.

1.405eV da Figura 5.3b. Para compreender as propriedades de *spin* do QW, foi avaliado a intensidade integrada para as duas componentes de polarização circular.

A Figura 5.5 apresenta a intensidade integrada em função do campo magnético para as duas potências estudadas. Para a menor potência de excitação (Fig. 5.5a), em campos de até 4 T as intensidades integradas são aproximadamente iguais, e, a partir deste campo, uma componente da população de spin sofre um aumento com a redução proporcional na outra componente, como o esperado. Para a maior potência as duas componentes sofrem um leve aumento da população de excítons para ambas as polarizações até 2T, quando então os LLs começam a ficar aparente somados a uma diminuição da largura de linha para o estado fundamental, e, como consequência, a intensidade integrada do estado $e_1 - hh_1$ sofre uma redução sendo que a componente de polarização σ^+ é dominante em todo o aumento do campo magnético, como observado para o caso em baixa potência de excitação.

5.6 Estruturas híbridas InAs QD- InGaAs QW

Usando o conhecimento adquirido sobre o comportamento das amostras de referências sob aplicação de campo magnético, investigou-se então as estruturas híbridas de ponto-poço onde as camadas de QD e QW são separadas por uma barreira de GaAs com diferentes espessuras. A Figura 5.6(a) apresenta o espectro de PL da amostra QD-QW com separação $d_{sp} = 20\text{ nm}$ sob campo magnético ($B = 0$ e 9 T) com a mesma potência de excitação que foi medida a amostra de QD-ref. A barreira de 20-nm é

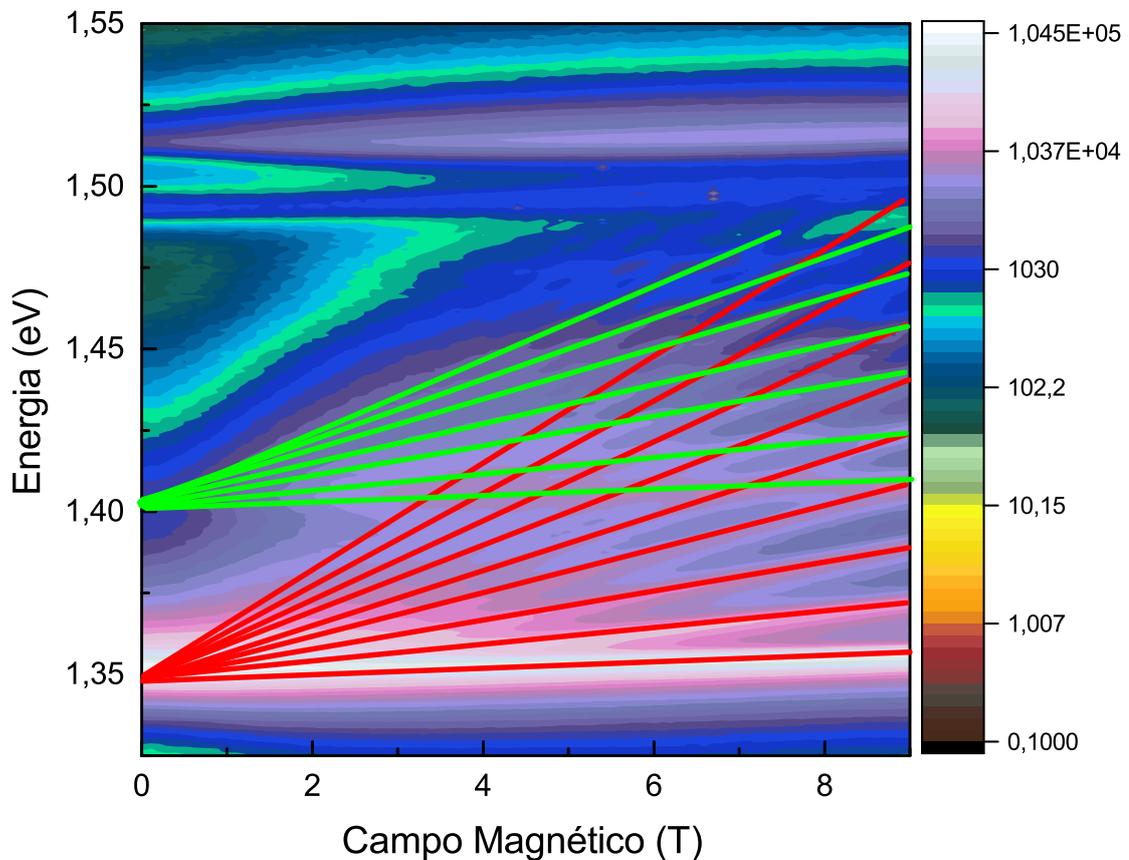


Figura 5.4: Gráfico em forma de mapa de cores da Fotoluminescência em função do campo magnético. As linhas vermelhas e verdes são guias para os olhos dos níveis de Landau da transição $e_1 - hh_1$ e da transição $e_2 - hh_2$, respectivamente.

espessa o suficiente para que as funções de onda associadas às partículas contida no poço e ponto quântico não se sobreponham. Assim, o QD-QW-20nm apresenta um fraco acoplamento, desta forma, o QD e QW podem ser considerados independentes. Como observado no espectros de PL Fig. 5.6(a), as posições do pico e o formato são similares às amostras de referência. No entanto, notavelmente, as amostras de referência apresentam uma intensidade de emissão significativamente maior tanto para o QD quanto para o QW. Isso é um indicativo de que a barreira de GaAs (20 nm) atenua a excitação na estrutura híbrida. Como resultado observou-se distintamente apenas o primeiro estado excitado do QD e uma emissão mais fraca do $e_1 - hh_1$ quando comparada a amostra de QW-ref. Além disso, o comportamento do campo magnético se torna menos pronunciado para a amostra híbrida QD-QW-20nm. Os espectros de PL do QW em 9 apresentam três emissões referente aos níveis de Landau, o que implica uma alta densidade de excítons no QW (Fig.5.6(a)).

Na Figura 5.6b observa-se a intensidade integrada e sua dependência com o campo

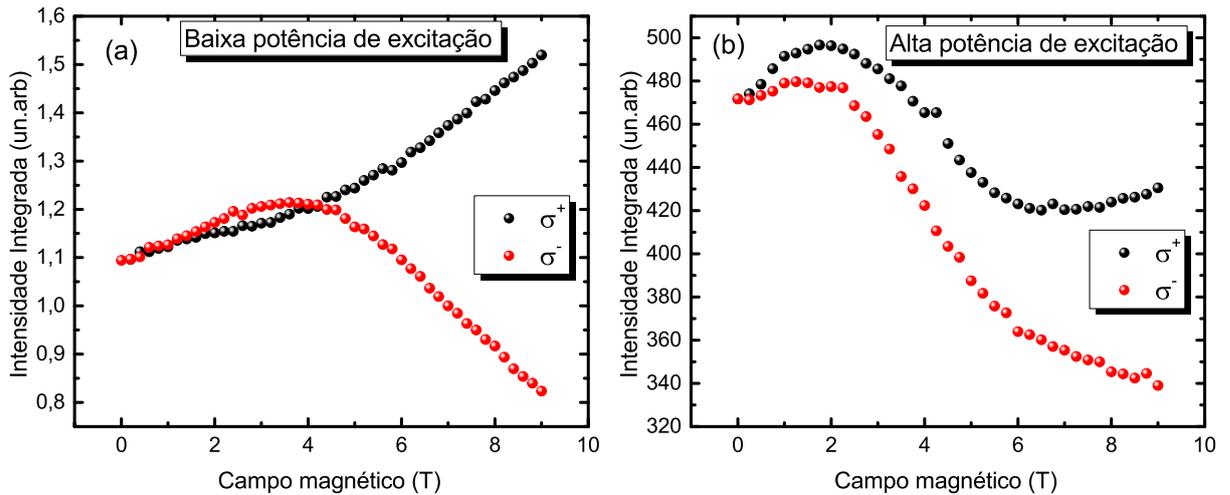


Figura 5.5: Intensidade integrada em função do campo magnético para a transição e1-hh1 (a) baixa potência de excitação e (b) alta potência de excitação. As esferas vermelhas e pretas representam a componente de polarização circular σ^- e σ^+ , respectivamente.

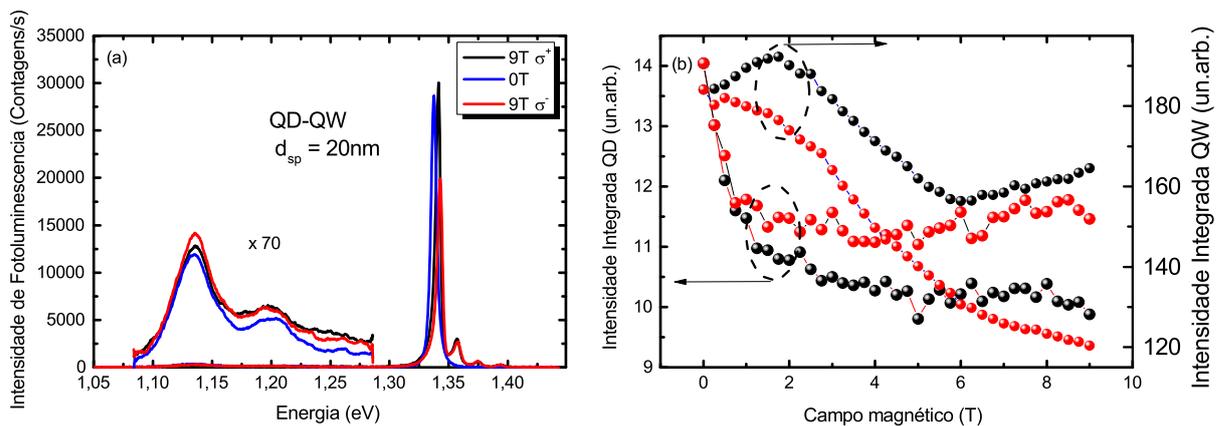


Figura 5.6: (a) Espectros de fotoluminescência da estrutura híbrida QD-QW-20 nm sem campo (azul) e a 9 T para σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). (b) Intensidade integrada em função do campo magnético aplicado para as duas componentes de polarização circular σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). Lado direito intensidade do QW e lado esquerdo intensidade do QD.

magnético. Claramente a intensidade é menor quando comparada às amostras de referência. Isso implica que a camada entre as duas heteroestruturas atenua a excitação da estrutura híbrida, como já discutido. No entanto, a intensidade integrada tem o mesmo comportamento que as amostras de referência quando analisadas individualmente, implicando que para esta amostra a espessura de 20 nm de GaAs entre as nanoestruturas é grande o suficiente para que ambos QD e QW apresentem resposta magneto-óptica independente.

Para a estrutura híbrida QD-QW-2nm os processos se alteram drasticamente. Esta estrutura pertence a uma classe de nanoestruturas com forte acoplamento eletrônico, o que resulta na hibridização dos estados excitônicos do QW e QD. [118–122] A partir das Figuras 5.1(b) e 5.3(a) é possível estimar que o terceiro estado excitado do QD e

o estado fundamental do QW se sobrepõem.[120, 122] Como a barreira entre as duas nanoestruturas é fina, os portadores podem tunelar de forma ressonante do QW para o QD através da sobreposição dos estados, relaxando para o estado fundamental do QD e emitindo em diferente região espectral que o QW. A Figura 5.7(a) apresenta os espectros de PL da estrutura híbrida com 2 nm de espaçamento e mesma potência de excitação da amostra do QD de referência com multibandas, sem a aplicação de campo magnético (azul) e com aplicado de 9 T para as duas polarizações σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). Comparando com a estrutura híbrida QD-QW-20nm em campo zero, o espectro de PL exibe até o terceiro estado excitado indicando uma forte excitação da camada de QD e que resulta em uma maior intensidade da PL do que a observada na estrutura híbrida QD-QW-20nm. Simultaneamente, a emissão do QW em campo zero é claramente mais fraca e desaparece em potências mais baixas. Este comportamento indica que a transferência de portadores do QW para o QD é extremamente eficiente e depleta completamente a população do QW em baixa potência de excitação. Contudo, tal observação muda drasticamente com a aplicação de campo magnético. Em 9 T, nota-se que a emissão do QD diminui gradualmente, enquanto que para o QW a intensidade da PL aumenta, em que até o primeiro LL 5.7(a) é observado.

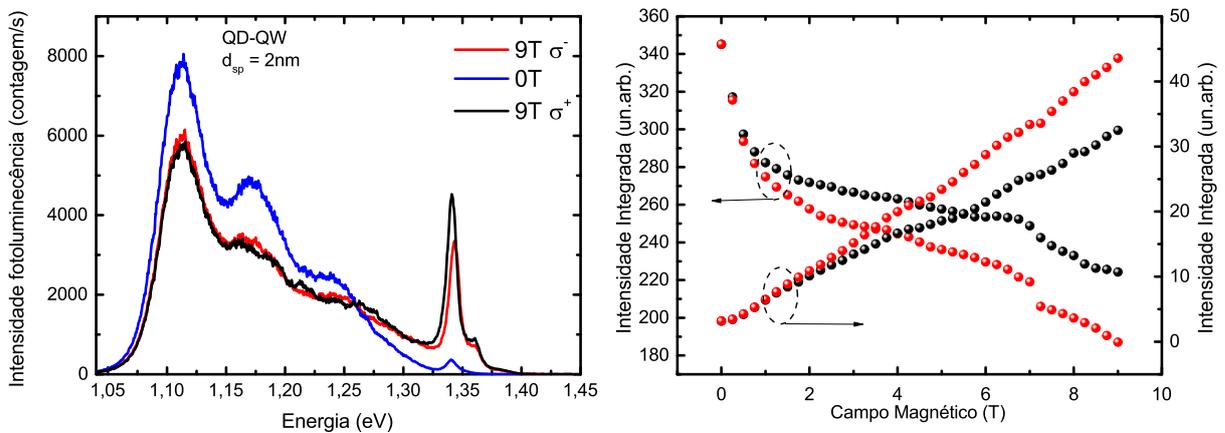


Figura 5.7: (a) Espectros de fotoluminescência da estrutura híbrida QD-QW-2nm sem campo magnético aplicado (azul) e a 9 T para σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). (b) Intensidade integrada em função do campo magnético aplicado para as duas componentes de polarização circular σ^+ (preto) e σ^- (vermelho). Lado direito intensidade do QW e lado esquerdo intensidade do QD.

A Figura 5.7(b) apresenta a intensidade integrada para o QD e QW e sua dependência com o campo magnético para a estrutura QD-QW-2nm. Em contraste com as amostras de referência, a emissão do QD apresenta queda comparável na intensidade. Por outro lado, na emissão referente ao QW é observada um aumento da intensidade, o que é o oposto do QW de referência. Assumimos que essa mudança na intensidade integrada indica uma redução no acoplamento entre ponto-poço manipulável com campo magnético, ao qual bloqueia o tunelamento dos portadores do QW para o

QD e assim aumenta a intensidade da PL do QW através do aumento da densidade de excítons, enquanto que a queda da intensidade do QD é proveniente do corte da fonte de excíton.

5.7 Acoplamento entre QD-QW e controle da transferência de excíton

De acordo com os resultados do desdobramento Zeeman, para o QDs apenas alguns décimos de meV em 9 T são observados, enquanto que para o QW uma magnitude de 5 meV é atingida. Assumindo que essa diferença se reflita no movimento entre os estados bi-dimensionais do QW e aqueles confinados no QD, uma forte quebra de sintonia é induzida entre o terceiro estado excitado do QD e o estado fundamental do QW. Como consequência, o tunelamento se torna não-ressonante, o que aumenta significativamente o tempo de transferência de portadores entre poço e ponto quântico, e, assim, enfraquecendo o acoplamento eletrônico.

Para validar essa hipótese, estudou-se o deslocamento diamagnético das nanoestruturas com o campo magnético, cujos resultados são mostrados na Figura 5.9, com diamagnetismo vs campo aplicado para o QW de referência e das estruturas híbridas com diferentes espessuras. É conhecido que estruturas com forte localização eletrônica apresentam um diamagnetismo menor que as com menor grau de localização.[139] O QW de referência e o QW da estrutura híbrida QD-QW-20nm apresentam excítons 2D livres e com similar diamagnetismo. Contudo, para a nanoestrutura com barreira de 2 nm, o diamagnetismo mostra o aparecimento do acoplamento entre o QD-QW e com duas regiões: a primeira abaixo de 6T onde o diamagnetismo pouco varia, indicando um regime de forte acoplamento e um aumento da localização do excíton. Acima de 6 T, onde o diamagnetismo varia rapidamente indicando um regime de queda da localização levando ao desacoplamento eletrônico entre o ponto e o poço quântico.

A queda observada da intensidade integrada da PL com um aumento do campo magnético paralelo a direção de crescimento para QDs de InAs QD já foi observada anteriormente na Ref [140], em que foi demonstrado que o campo magnético na geometria Faraday reduz o transporte lateral para os pontos através da localização dos portadores nas flutuações de potencial da WL com profundidade de alguns meV. Isso significa que o estado da população de excítons dos QDs a uma mesma potência de excitação é menor com campo magnético aplicado, enquanto que a população da WL aumenta.[140] Não se pode excluir esse mecanismo de extinção da emissão dos QDs com campo magnético observado aqui. Contudo, no máximo, não é dominante. De fato, não se observou nenhuma emissão na energia característica da transição da WL

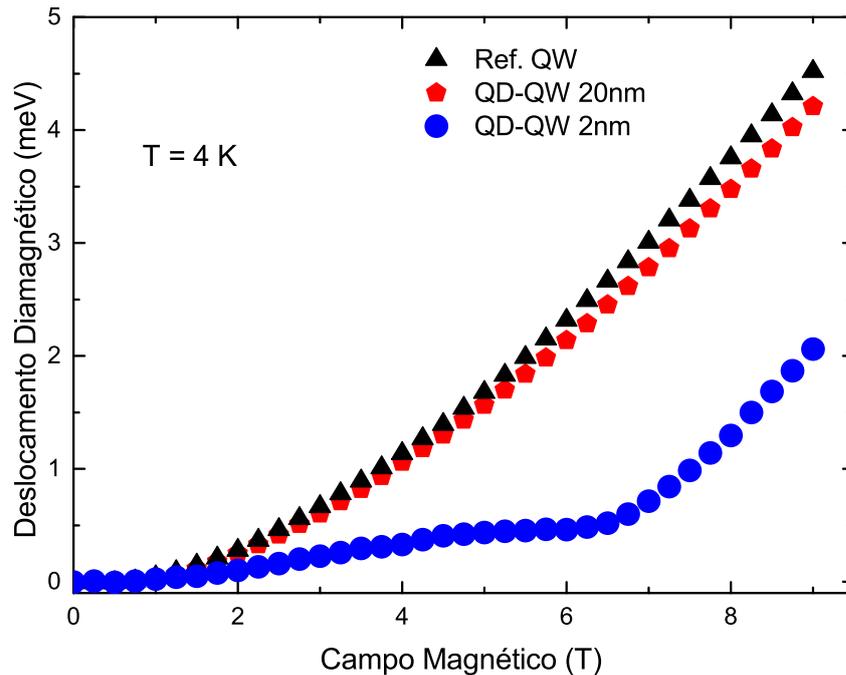


Figura 5.8: Deslocamento diamagnético das nanoestruturas em função do campo magnético aplicado.

em 1,45eV. Além disso, o campo magnético pode aumentar a localização de portadores em mínimos de potencial mais profundos do QD quando comparado às flutuações da WL favorecendo o aumento da intensidade com campo magnético aplicado paralelo à direção de crescimento. Adicionalmente, o campo magnético diminui o tempo de vida, resultando em um aumento da intensidade da fotoluminescência do QD.

O aumento da intensidade do QW com o campo magnético já foi observado anteriormente tendo sido atribuído ao campo magnético induzindo a compressão da função de onda com o respectivo aumento da força osciladora.[141] Como resultado, a PL aumentou aproximadamente 1.5x na estrutura de InGaAs/InP com campo magnético de 7T. A compressão da função de onda dos portadores no plano foi revelada também via medidas de TRPL.[142] Esse mecanismo de aumento da intensidade da PL não pode ser ignorado, contudo, não explica o aumento de 8 a 10x da intensidade integrada da estrutura híbrida de QD-QW-2nm, como mostrado na (Fig. 5.7b).

Existem várias possibilidades para a redução do acoplamento induzido magneticamente como observado nesta estrutura híbrida de QD-QW-2nm. Diversos efeitos devem ser considerados atuando em conjunto, como de tensão, confinamento e campo magnético na banda de valência que contribui para o estado de magneto-excíton na estrutura híbrida. Este mecanismo também deve reproduzir a proporção observada experimentalmente na intensidade da PL da WL sob a intensidade integrada da PL dos QDs que não aumenta linearmente com o campo magnético, bem como as propriedades de transporte que afetam a captura de portador pelos QDs.[143] De particular importância é a representação dos estados excitados dos QDs de InAs e sua

dependência com campo magnético. De fato, foi demonstrado que o padrão geral da evolução das linhas espectrais com o campo magnético se assemelha a um diagrama Fock-Darwin (FD) de partícula única.[144]

De acordo com Ref. [145] a estrutura dos orbitais de energia excitônica dos pontos quânticos de InAs/GaAs pode ser encontrada como uma soma de elétrons e buracos. Para transições de dipolo permitidas, onde somente os elétrons e buracos com o mesmo número quântico recombinaem, a aproximação de partícula única é bem reproduzida pelo espectro excitônico FD como se segue:[145]

$$E_{(n_+,n_-)} = E_0 + \hbar\Omega_+(B)(n_+ + \frac{1}{2}) + \hbar\Omega_-(B)(n_- + \frac{1}{2}), \quad (5.1)$$

onde E_0 consiste na energia de confinamento vertical e o gap de energia, e $\Omega_{\pm}(B) = \Omega_{\pm}^e(B) + \Omega_{\pm}^h(B)$ é dado por

$$\Omega_{\pm}(B) = \sqrt{(\omega^2 + \omega_c^2/4) \pm |\omega_c/2|}, \quad (5.2)$$

com $n_{\pm} = 0, 1, 2, 3, \dots$, $\omega_c = eB/m^*$ é a frequência ciclotrônica e ω é a frequência harmônica, que descreve a força do confinamento parabólico no plano. Para a amostra híbrida QD-QW-20nm e o QD de referência, o desdobramento e a abertura dos níveis, bem como cruzamento das linhas espectrais podem ser descritos qualitativamente por este modelo. A inclusão do efeito de muitos corpos diminui as energias dos orbitais em 20 meV e esta diminuição é maior para estados excitados mais altos.[145] O problema surge com o terceiro estado excitado do QD que se torna fortemente hibridizado devido ao acoplamento ponto-poço para a amostra híbrida QD-QW-2nm. Levando-se em conta os vários mecanismos que podem contribuir para a redução do acoplamento entre o ponto e o poço sob a aplicação de um campo magnético, considerou-se somente a interpretação de transferência de portadores nas estruturas híbridas.[119] Os resultados das medidas de tunelamento coerente entre o poço quântico de InGaAs e os pontos quânticos de InAs por espectroscopia de fotoluminescência podem ser analisados em termos da aproximação semiclássica Wentzel-Kramers-Brillouin (WKB). Os dados foram plotados em função do tunelamento dos portadores através da barreira como:

$$T(E) \propto \exp \left\{ - \int_0^d [V(x) - E]^{1/2} dx \right\}, \quad (5.3)$$

onde $V(x)$ é a barreira de potencial e $E = E^{exc}$.

Recentemente, tal aproximação tem sido amplamente utilizada para a análise de tunelamento entre poços duplos assimétricos genéricos.[146–148] No presente estudo, a energia de transição do estado $e_1 - hh_1$ do QW evolui quadraticamente com campo magnético, B . Por isso, foi utilizado a seguinte aproximação para o tunelamento:

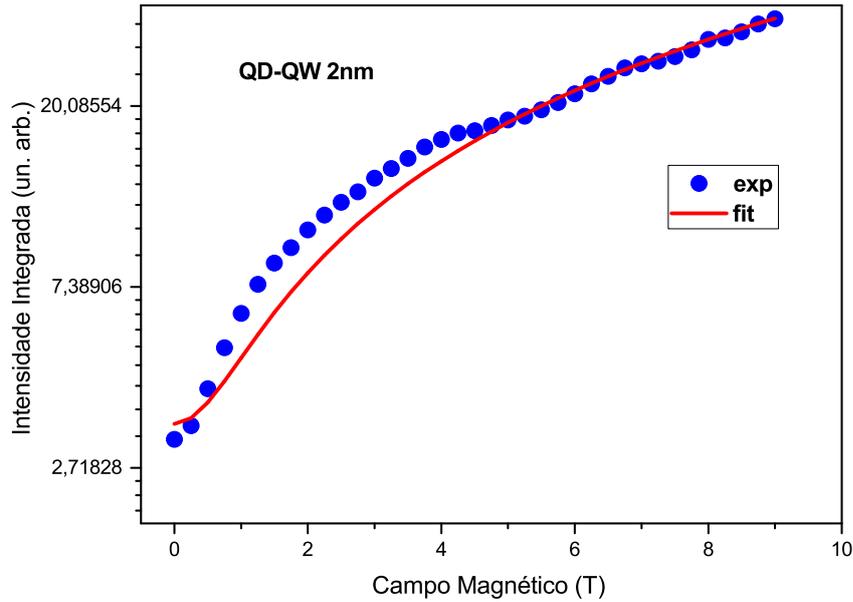


Figura 5.9: Escala semilogarítmica da Intensidade Integrada da emissão do QW contido na estrutura híbrida QD-QW-2nm em função do campo magnético aplicado. A linha em vermelho é o ajuste semiclássico do modelo WKB para tunelamento^{5.4}.

$$T(B) \propto \exp(\sqrt{\alpha + \beta B^2}) \quad (5.4)$$

A Figura 5.9 apresenta a intensidade integrada da PL do QW na estrutura híbrida QD-QW-2nm em função do campo magnético B em escala semilogarítmica. O ajuste usando a Eq.5.4 é plotado em vermelho. O bom ajuste entre os dados experimentais e a aproximação WKB é um indicativo que o deslocamento diamagnético do QW é uma contribuição fundamental para a redução do acoplamento entre o poço e ponto quântico da estrutura híbrida, sendo o campo magnético um parâmetro fundamental para o controle da transferência de excíton.

5.8 Conclusões

Em resumo, neste capítulo, foi realizado um estudo de MPL da transferência de portadores na estrutura híbrida de InAs QD-InGaAs QW com diferentes espessuras de barreira. As medidas foram realizadas com campo magnético paralelo a direção de crescimento (geometria Faraday) até 9 T e em baixa temperatura (4 K). Em potência de excitação suficientemente alta para observar a emissão da PL do QW, foi observado uma forte dependência da intensidade da PL do QW para ambas as estruturas híbridas com fraco e forte acoplamento entre o ponto quântico e o poço quântico. A inversão na intensidade da PL dos QDs para o QW com campo magnético aplicado é atribuída a quebra do acoplamento ressonante. Isso é o resultado da mudança da dinâmica dos portadores no plano da WL e QW. O aparecimento dos níveis de Landau e a mudança

no acoplamento entre o terceiro estado excitado do QD e o estado excitônico do QW e WL devido aos diferentes deslocamento diamagnético leva a um estado fora da ressonância.

Capítulo 6

Considerações Finais

Neste trabalho foram investigados dois conjuntos de amostras, um composto por múltiplos poços quânticos de GaAs/AlGaAs e um constituído por estruturas híbridas de GaAs/InAs QD - InGaAs QW/GaAs, utilizando a técnica de magneto fotoluminescência, com o objetivo de identificar os mecanismos de relaxação de portadores, bem como contrastar a influência da orientação cristalina na relaxação de *spin* e compreender a influência do campo magnético nas estruturas híbridas.

Neste sentido, para os MQWs de GaAs/AlGaAs crescidos no substrato de GaAs (100), analisamos os espectros de fotoluminescência e sua dependência com a potência de excitação, temperatura da rede cristalina e campo magnético aplicado. Através dessas medidas foi possível extrair a temperatura efetiva dos portadores, além de avaliar o papel das flutuações de potencial e com isso caracterizar os principais mecanismos de relaxação dos portadores eletrônicos. Com a aplicação do campo magnético identificamos uma modulação da coerência de *spin* de uma das componentes ópticas. Este fenômeno foi associado a competição entre as interações de curto alcance e o espalhamento via *spin-flip* e podem ser modulados pela relaxação do momento.

Investigamos também o conjunto de amostras híbridas de QD-QW através da magneto-fotoluminescência e contrastamos com as amostras de referência. A amostra híbrida com o maior espaçamento entre o QD e QW apresenta o mesmo comportamento magneto-óptico das amostras de referência indicando um fraco acoplamento entre as nanoestruturas. Por outro lado, para a amostra híbrida de menor espaçamento, observamos duas regiões onde, na primeira o deslocamento diamagnético é quase nulo indicando um forte acoplamento entre o QD e QW, e a segunda região na qual o acoplamento é reduzido observado através do aumento do deslocamento diamagnético. Além disso, foi possível demonstrar o controle da transferência de portadores do QW para o QD via a presença do campo magnético externo.

6.1 Artigos publicados em revistas internacionais durante o Doutorado

- V. Laurindo Jr., Yu. I. Mazur, E. R. Cardozo de Oliveira, B. Alén, M. E. Ware, E. Marega Jr., Z. Ya. Zhuchenko, G. G. Tarasov, G. E. Marques, M. D. Teodoro, and G. J. Salamo. Magnetically controlled exciton transfer in hybrid quantum dot-quantum well nanostructures. *Physical Review B* 100 (3), 035309. (2019).
- V Laurindo Jr, ED Guarin Castro, GM Jacobsen, ERC de Oliveira, JFM Domenequeti, B Alén, Yu I Mazur, GJ Salamo, GE Marques, E Marega Jr, MD Teodoro, V Lopez-Richard Spin-dependent analysis of homogeneous and inhomogeneous exciton decoherence in magnetic fields. *Physical Review B*, 105(4), 045414.(2022)
- Yu A Pusep, MD Teodoro, V Laurindo Jr, ER Cardozo de Oliveira, GM Gusev, AK Bakarov. Diffusion of Photoexcited Holes in a Viscous Electron Fluid. *Physical Review Letters*, 128(13), 136801.(2022)

6.2 Artigos em preparação

- V Laurindo Jr, V Lopes-Oliveira JFM Domenegueti GE Marques, E Marega Jr, V Lopez-Richard, MD Teodoro. Magneto absorption and control of spin polarization inversion in Quantum Well. A ser submetido.
- V Laurindo Jr, GE Marques, E Marega Jr, V Lopez-Richard, MD Teodoro. Nonlinear to linear Zeeman splitting. Em preparação.

Bibliografia

- ¹M. Grundmann, *Physics of semiconductors*, vol. 11 (Springer, 2010).
- ²D. I. Pikulin, B. van Heck, T. Karzig, E. A. Martinez, B. Nijholt, T. Laeven, G. W. Winkler, J. D. Watson, S. Heedt, M. Temurhan et al., «Protocol to identify a topological superconducting phase in a three-terminal device», arXiv preprint arXiv:2103.12217 (2021).
- ³A. M. Bagher, «Quantum dots applications», *Sensors & Transducers* **198**, 37 (2016).
- ⁴W. W. Chow e F. Jahnke, «On the physics of semiconductor quantum dots for applications in lasers and quantum optics», *Progress in quantum electronics* **37**, 109–184 (2013).
- ⁵S Amasha, K MacLean, I. P. Radu, D. Zumbühl, M. Kastner, M. Hanson e A. Gossard, «Electrical control of spin relaxation in a quantum dot», *Physical review letters* **100**, 046803 (2008).
- ⁶L. Esaki e R. Tsu, «Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors», *IBM Journal of Research and Development* **14**, 61–65 (1970).
- ⁷D. Neilson, A. Perali e M. Zarenia, «Many-body electron correlations in graphene», em *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 702, 1 (IOP Publishing, 2016), p. 012008.
- ⁸J. Singh, *Electronic and optoelectronic properties of semiconductor structures* (Cambridge University Press, 2007).
- ⁹V. Dorogan, *Optical study of coupling mechanisms in quantum dot-quantum well hybrid nanostructure* (University of Arkansas, 2011).
- ¹⁰X.-J. Yang, T. Kiba, T. Yamamura, J. Takayama, A. Subagyo, K. Sueoka e A. Murayama, «Ultrafast spin tunneling and injection in coupled nanostructures of InGaAs quantum dots and quantum well», *Applied Physics Letters* **104**, 012406 (2014).
- ¹¹A Marent, T Nowozin, M Geller e D Bimberg, «The QD-Flash: a quantum dot-based memory device», *Semiconductor Science and Technology* **26**, 014026 (2010).
- ¹²G Cerulo, L Nevou, V Liverini, F Castellano e J. Faist, «Tuning the dynamic properties of electrons between a quantum well and quantum dots», *Journal of Applied Physics* **112**, 043702 (2012).

- ¹³G. L. Paravicini-Bagliani, V. Liverini, F. Valmorra, G. Scalari, F. Gramm e J. Faist, «Enhanced current injection from a quantum well to a quantum dash in magnetic field», *New Journal of Physics* **16**, 083029 (2014).
- ¹⁴S.-W. Chang, S.-L. Chuang e N. Holonyak Jr, «Phonon-and Auger-assisted tunneling from a quantum well to a quantum dot», *Physical Review B* **70**, 125312 (2004).
- ¹⁵S. Chuang e N Holonyak Jr, «Efficient quantum well to quantum dot tunneling: Analytical solutions», *Applied physics letters* **80**, 1270–1272 (2002).
- ¹⁶O Brandt, K Kanamoto, Y Tokuda, N Tsukada, O Wada e J Tanimura, «Optical properties of a high-quality (311)-oriented GaAs/Al_{0.33}Ga_{0.67}As single quantum well», *Physical Review B* **48**, 17599 (1993).
- ¹⁷D. F. Cesar, M. D. Teodoro, H. Tsuzuki, V. Lopez-Richard, G. E. Marques, J. P. Rino, E. Marega, I. F. L. Dias, J. L. Duarte, P. P. González-Borrero e G. J. Salamo, «Contrasting LH-HH subband splitting of strained quantum wells grown along [001] and [113] directions», *Phys. Rev. B* **81**, 233301 (2010).
- ¹⁸Y Takagaki, C Herrmann, B Jenichen e O Brandt, «Epitaxial orientation of MnAs layers grown on GaAs surfaces by means of solid-state crystallization», *Physical Review B* **78**, 064115 (2008).
- ¹⁹M. D. Teodoro, *Transições Ópticas em Poços Quânticos Múltiplos com Diferentes Orientações Cristalográficas*, vol. 81 (Universidade Estadual de Londrina, Londrina, 2008), p. 233301.
- ²⁰Y. Peter e M. Cardona, *Fundamentals of semiconductors: physics and materials properties*, vol. 81 (Springer Science & Business Media, 2010), p. 233301.
- ²¹S. Ullah, «Optical control and detection of spin coherence in multilayer systems.», tese de doutoramento (Universidade de Sao Paulo, 2017), p. 233301.
- ²²J. Fabian e S. Das Sarma, «Spintronics: Fundamentals and applications», *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323–410 (2004).
- ²³G. Bastard, *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*, vol. 76 (les éditions de physique, Paris, 1990), pp. 323–410.
- ²⁴M. Hayne e B. Bansal, «High-field magneto-photoluminescence of semiconductor nanostructures», *Luminescence* **27**, 179–196 (2012).
- ²⁵M. Cardona e Y. Y. Peter, *Fundamentals of semiconductors*, vol. 619 (Springer, 2005), pp. 323–410.
- ²⁶S. Walck e T. Reinecke, «Exciton diamagnetic shift in semiconductor nanostructures», *Physical Review B* **57**, 9088 (1998).
- ²⁷M. Hayne e B. Bansal, «High-field magneto-photoluminescence of semiconductor nanostructures», *Luminescence* **27**, 179–196 (2012).

- ²⁸G. J. Brakenhoff, P. Blom e P. Barends, «Confocal scanning light microscopy with high aperture immersion lenses», *Journal of Microscopy* **117**, 219–232 (1979).
- ²⁹T. Wilson e C. Sheppard, *Theory and practice of scanning optical microscopy*, vol. 180 (Academic press London, 1984), pp. 323–410.
- ³⁰<https://ibidi.com/content/216-confocal-microscopy>, *Confocal Microscopy*, vol. 76 (Ibidi, 2004), pp. 323–410.
- ³¹S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova e D. M. Treger, «Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future», *Science* **294**, 1488–1495 (2001).
- ³²A. Imamoglu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin e A. Small, «Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED», *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4204–4207 (1999).
- ³³Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura e H. Ohno, «Spin Relaxation in GaAs(110) Quantum Wells», *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4196–4199 (1999).
- ³⁴A. Greilich, R. Oulton, E. A. Zhukov, I. A. Yugova, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. Shabaev, A. L. Efros, I. A. Merkulov, V. Stavarache, D. Reuter e A. Wieck, «Optical Control of Spin Coherence in Singly Charged (In,Ga)As/GaAs Quantum Dots», *Phys. Rev. Lett.* **96**, 227401 (2006).
- ³⁵X. Xu, W. Yao, D. Xiao e T. F. Heinz, «Spin and pseudospins in layered transition metal dichalcogenides», *Nat. Phys.* **10**, 343–350 (2014).
- ³⁶K. Hao, G. Moody, F. Wu, C. K. Dass, L. Xu, C.-H. Chen, L. Sun, M.-Y. Li, L.-J. Li, A. H. MacDonald et al., «Direct measurement of exciton valley coherence in monolayer WSe₂», *Nat. Phys.* **12**, 677–682 (2016).
- ³⁷M. Sypererek, D. R. Yakovlev, A. Greilich, J. Misiewicz, M. Bayer, D. Reuter e A. D. Wieck, «Spin Coherence of Holes in GaAs/(Al,Ga)As Quantum Wells», *Phys. Rev. Lett.* **99**, 187401 (2007).
- ³⁸S. Ullah, G. M. Gusev, A. K. Bakarov e F. G. G. Hernandez, «Long-lived nanosecond spin coherence in high-mobility 2DEGs confined in double and triple quantum wells», *J. Appl. Phys.* **119**, 215701 (2016).
- ³⁹R. Stockill, C. Le Gall, C. Matthiesen, L. Huthmacher, E. Clarke, M. Hugues e M. Atatüre, «Quantum dot spin coherence governed by a strained nuclear environment», *Nat. Commun.* **7**, 1–7 (2016).
- ⁴⁰G. Moody, C. K. Dass, K. Hao, C.-H. Chen, L.-J. Li, A. Singh, K. Tran, G. Clark, X. Xu, G. Berghäuser et al., «Intrinsic homogeneous linewidth and broadening mechanisms of excitons in monolayer transition metal dichalcogenides», *Nat. Commun.* **6**, 1–6 (2015).

- ⁴¹G Wang, A Balocchi, A. V. Poshakinskiy, C. R. Zhu, S. A. Tarasenko, T Amand, B. L. Liu e X Marie, «Magnetic field effect on electron spin dynamics in (110) GaAs quantum wells», *New J. Phys.* **16**, 045008 (2014).
- ⁴²A. A. High, J. R. Leonard, A. T. Hammack, M. M. Fogler, L. V. Butov, A. V. Kavokin, K. L. Campman e A. C. Gossard, «Spontaneous coherence in a cold exciton gas», *Nature* **483**, 584–588 (2012).
- ⁴³N. S. Voronova, I. L. Kurbakov e Y. E. Lozovik, «Bose Condensation of Long-Living Direct Excitons in an Off-Resonant Cavity», *Phys. Rev. Lett.* **121**, 235702 (2018).
- ⁴⁴L. Butov, C. Lai, A. Ivanov, A. Gossard e D. Chemla, «Towards Bose–Einstein condensation of excitons in potential traps», *Nature* **417**, 47–52 (2002).
- ⁴⁵A. A. High, E. E. Novitskaya, L. V. Butov, M. Hanson e A. C. Gossard, «Control of Exciton Fluxes in an Excitonic Integrated Circuit», *Science* **321**, 229–231 (2008).
- ⁴⁶L. W. Molenkamp, G. E. W. Bauer, R. Eppenga e C. T. Foxon, «Exciton binding energy in (Al,Ga)As quantum wells: Effects of crystal orientation and envelope-function symmetry», *Phys. Rev. B* **38**, 6147–6150 (1988).
- ⁴⁷Y. Kajikawa, «Comparison of 1s-2s exciton-energy splittings between (001) and (111) GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells», *Phys. Rev. B* **48**, 7935–7939 (1993).
- ⁴⁸E. D. Guarin Castro, A. Pfenning, F. Hartmann, G. Knebl, M. Daldin Teodoro, G. E. Marques, S. Höfling, G. Bastard e V. Lopez-Richard, «Optical Mapping of Nonequilibrium Charge Carriers», *The Journal of Physical Chemistry C* **125**, 14741–14750 (2021).
- ⁴⁹J. Shah e R. C. C. Leite, «Radiative Recombination from Photoexcited Hot Carriers in GaAs», *Phys. Rev. Lett.* **22**, 1304–1307 (1969).
- ⁵⁰R. Hellmann, M. Koch, J. Feldmann, S. Cundiff, E. Göbel, D. Yakovlev, A. Waag e G. Landwehr, «Dephasing of excitons in a CdTe/Cd_{0.86}Mn_{0.14}Te multiple quantum well», *J. Cryst. Growth* **138**, 791–795 (1994).
- ⁵¹J. Behrend, M. Wassermeier, W. Braun, P. Krispin e K. H. Ploog, «Formation of GaAs/AlAs(001) interfaces studied by scanning tunneling microscopy», *Phys. Rev. B* **53**, 9907–9912 (1996).
- ⁵²V. Srinivas, J. Hryniewicz, Y. J. Chen e C. E. C. Wood, «Intrinsic linewidths and radiative lifetimes of free excitons in GaAs quantum wells», *Phys. Rev. B* **46**, 10193–10196 (1992).
- ⁵³R. Pässler, «Basic Model Relations for Temperature Dependencies of Fundamental Energy Gaps in Semiconductors», *Phys. Status Solidi B* **200**, 155–172 (1997).
- ⁵⁴O. Madelung, *Semiconductors: Data handbook (CD-ROM)*, 3^a ed., vol. 76 (Springer, 2004), pp. 323–410.

- ⁵⁵M. D. Teodoro, I. F. L. Dias, E. Laureto, J. L. Duarte, P. P. González-Borrero, S. A. Lourenço, I. Mazzaro, E. Marega e G. J. Salamo, «Substrate orientation effect on potential fluctuations in multiquantum wells of GaAs/AlGaAs», *J. Appl. Phys.* **103**, 093508 (2008).
- ⁵⁶E. Runge, «Excitons in Semiconductor Nanostructures», em , vol. 57, ed. por H. EHRENREICH e F. SPAEPEN, *Solid State Physics* (Academic Press, 2003), pp. 149–305.
- ⁵⁷J. Mattheis, U. Rau e J. H. Werner, «Light absorption and emission in semiconductors with band gap fluctuations—A study on Cu(In,Ga)Se₂ thin films», *J. Appl. Phys.* **101**, 113519 (2007).
- ⁵⁸J. Christen e D. Bimberg, «Line shapes of intersubband and excitonic recombination in quantum wells: Influence of final-state interaction, statistical broadening, and momentum conservation», *Phys. Rev. B* **42**, 7213–7219 (1990).
- ⁵⁹L. Andrews e S. of Photo-optical Instrumentation Engineers, *Special Functions of Mathematics for Engineers*, 2^a ed., vol. 76, Online access with subscription: SPIE Digital Library (SPIE Optical Engineering Press, Washington, 1998), pp. 323–410.
- ⁶⁰E. Whiting, «An empirical approximation to the Voigt profile», *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **8**, 1379–1384 (1968).
- ⁶¹J. Olivero e R. Longbothum, «Empirical fits to the Voigt line width: A brief review», *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **17**, 233–236 (1977).
- ⁶²J. Lee, E. S. Koteles e M. O. Vassell, «Luminescence linewidths of excitons in GaAs quantum wells below 150 K», *Phys. Rev. B* **33**, 5512–5516 (1986).
- ⁶³I. Aksenov, J. Kusano, Y. Aoyagi, T. Sugano, T. Yasuda e Y. Segawa, «Effect of a magnetic field on the excitonic luminescence line shape in a quantum well», *Phys. Rev. B* **51**, 4278–4284 (1995).
- ⁶⁴B. Bansal, M. Hayne, B. M. Arora e V. V. Moshchalkov, «Magnetic field-dependent photoluminescence linewidths as a probe of disorder length scales in quantum wells», *Appl. Phys. Lett.* **91**, 251108 (2007).
- ⁶⁵X. Chen, Z. Xu, Y. Zhou, L. Zhu, J. Chen e J. Shao, «Evaluating interface roughness and micro-fluctuation potential of InAs/GaSb superlattices by mid-infrared magnetophotoluminescence», *Appl. Phys. Lett.* **117**, 081104 (2020).
- ⁶⁶M. M. Glazov, «Magnetic field effects on spin relaxation in heterostructures», *Phys. Rev. B* **70**, 195314 (2004).
- ⁶⁷T. Ando e Y. Uemura, «Theory of Quantum Transport in a Two-Dimensional Electron System under Magnetic Fields. I. Characteristics of Level Broadening and Transport under Strong Fields», *J. Phys. Soc. Jpn.* **36**, 959–967 (1974).

- ⁶⁸P. Harrison et al., *Quantum wells, wires and dots*, 4^a ed., vol. 76 (Wiley Online Library, 2001), pp. 323–410.
- ⁶⁹F. m. c. Morier-Genoud, B. Deveaud e M. Matuszewski, «Analytical method for determining quantum well exciton properties in a magnetic field», *Phys. Rev. B* **91**, 195302 (2015).
- ⁷⁰S. Harrison, M. P. Young, P. D. Hodgson, R. J. Young, M. Hayne, L. Danos, A. Schliwa, A. Strittmatter, A. Lenz, H. Eisele, U. W. Pohl e D. Bimberg, «Heterodimensional charge-carrier confinement in stacked submonolayer InAs in GaAs», *Phys. Rev. B* **93**, 085302 (2016).
- ⁷¹R. A. Mena, G. D. Sanders, K. K. Bajaj e S. C. Dudley, «Theory of the effect of magnetic field on the excitonic photoluminescence linewidth in semiconductor alloys», *Journal of Applied Physics* **70**, 1866–1868 (1991).
- ⁷²O. Goede, L. John e D. Hennig, «Compositional Disorder-Induced Broadening for Free Excitons in II-VI Semiconducting Mixed Crystals», *physica status solidi (b)* **89**, K183–K186 (1978).
- ⁷³J. Singh e K. K. Bajaj, «Theory of excitonic photoluminescence linewidth in semiconductor alloys», *Applied Physics Letters* **44**, 1075–1077 (1984).
- ⁷⁴E. F. Schubert, E. O. Göbel, Y. Horikoshi, K. Ploog e H. J. Queisser, «Alloy broadening in photoluminescence spectra of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ », *Phys. Rev. B* **30**, 813–820 (1984).
- ⁷⁵J. Singh e K. K. Bajaj, «Quantum mechanical theory of linewidths of localized radiative transitions in semiconductor alloys», *Applied Physics Letters* **48**, 1077–1079 (1986).
- ⁷⁶H. Sakaki, Y. Arakawa, M. Nishioka, J. Yoshino, H. Okamoto e N. Miura, «Light emission from zero-dimensional excitons—Photoluminescence from quantum wells in strong magnetic fields», *Applied Physics Letters* **46**, 83–85 (1985).
- ⁷⁷K. Vahala, Y. Arakawa e A. Yariv, «Reduction of the field spectrum linewidth of a multiple quantum well laser in a high magnetic field—spectral properties of quantum dot lasers», *Applied Physics Letters* **50**, 365–367 (1987).
- ⁷⁸J. B. B. d. Oliveira, E. A. Meneses e E. C. F. d. Silva, «Magneto-optical studies of the correlation between interface microroughness parameters and the photoluminescence line shape in GaAs/Ga_{0.7}Al_{0.3}As quantum wells», *Phys. Rev. B* **60**, 1519–1522 (1999).
- ⁷⁹A Polimeni, A Patanè, R. Hayden, L Eaves, M Henini, P. Main, K Uchida, N Miura, J Main e G Wunner, «Linewidth broadening of excitonic luminescence from quantum wells in pulsed magnetic fields», *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **13**, 349–352 (2002).

- ⁸⁰F. m. c. Morier-Genoud, B. Deveaud e M. Matuszewski, «Analytical method for determining quantum well exciton properties in a magnetic field», *Phys. Rev. B* **91**, 195302 (2015).
- ⁸¹Z. Wilamowski e W. Jantsch, «Suppression of spin relaxation of conduction electrons by cyclotron motion», *Phys. Rev. B* **69**, 035328 (2004).
- ⁸²J. Llorens, V. Lopes-Oliveira, V. López-Richard, E. C. de Oliveira, L. Wewiór, J. Ulloa, M. Teodoro, G. Marques, A. García-Cristóbal, G.-Q. Hai e B. Alén, «Topology Driven g -Factor Tuning in Type-II Quantum Dots», *Phys. Rev. Applied* **11**, 044011 (2019).
- ⁸³S. Huan, A. Mandray e B. Etienne, «Nonparabolicity effects on cyclotron mass in GaAs quantum wells», *Phys. Rev. B* **46**, 2613–2616 (1992).
- ⁸⁴R Winkler, S Papadakis, E De Poortere e M Shayegan, *Spin-Orbit Coupling in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*, vol. 41 (Springer, 2003), p. 195302.
- ⁸⁵M. S. Skolnick, A. K. Jain, R. A. Stradling, J Leotin e J. C. Ousset, «An investigation of the anisotropy of the valence band of GaAs by cyclotron resonance», *Journal of Physics C: Solid State Physics* **9**, 2809–2821 (1976).
- ⁸⁶M. J. Snelling, G. P. Flinn, A. S. Plaut, R. T. Harley, A. C. Tropper, R. Eccleston e C. C. Phillips, «Magnetic g factor of electrons in GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum wells», *Phys. Rev. B* **44**, 11345–11352 (1991).
- ⁸⁷M Colocci, M Gurioli, A Vinattieri, F Fermi, C Deparis, J Massies e G Neu, «Temperature Dependence of Exciton Lifetimes in GaAs/AlGaAs Quantum Well Structures», *Europhysics Letters (EPL)* **12**, 417–422 (1990).
- ⁸⁸S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova e D. M. Treger, «Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future», *Science* **294**, 1488–1495 (2001).
- ⁸⁹A. Hernández-Mínguez, K. Biermann, R. Hey e P. V. Santos, «Spin transport and spin manipulation in GaAs (110) and (111) quantum wells», *physica status solidi (b)* **251**, 1736–1752 (2014).
- ⁹⁰S. Ullah, G. M. Gusev, A. K. Bakarov e F. G. G. Hernandez, «Tailoring multilayer quantum wells for spin devices», *Pramana - J. Phys.* **91**, 34 (2018).
- ⁹¹L. K. Castelano, D. F. Cesar, V. Lopez-Richard, G. E. Marques, O. D. D. Couto, F. Iikawa, R. Hey e P. V. Santos, «Zeeman splitting and spin dynamics tuning by exciton charging in two-dimensional systems», *Phys. Rev. B* **84**, 205332 (2011).
- ⁹²C. Aku-Leh, F. Perez, B. Jusserand, D. Richards e G. Karczewski, «Measuring the Zeeman energy and the spin polarization of a 2DEG in quantum wells», *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **40**, 1865–1866 (2008).

- ⁹³G. Liu, Y. Chen, Y. Liu, C. Jia e Z. Wang, «Spin-dependent transport and spin polarization in coupled quantum wells», *Journal of Applied Physics* **104**, 064321 (2008).
- ⁹⁴A. Hernández-Mínguez, K. Biermann, R. Hey e P. V. Santos, «Electric control of spin transport in GaAs (111) quantum wells», *Phys. Rev. B* **94**, 125311 (2016).
- ⁹⁵S. L. Chen, T. Kiba, X. J. Yang, J. Takayama e A. Murayama, «Power-dependent spin amplification in (In, Ga)As/GaAs quantum well via Pauli blocking by tunnel-coupled quantum dot ensembles», *Applied Physics Letters* **108**, 152103 (2016).
- ⁹⁶E. Margapoti, F. M. Alves, S. Mahapatra, T. Schmidt, V. Lopez-Richard, C. Destefani, E. Menéndez-Proupin, F. Qu, C. Bougerol, K. Brunner, A. Forchel, G. E. Marques e L. Worschech, «Characterization of spin-state tuning in thermally annealed semiconductor quantum dots», *Phys. Rev. B* **82**, 205318 (2010).
- ⁹⁷P. Dhez, C. Weisbuch et al., «Physics, fabrication, and applications of multilayered structures», *Phys. Rev. B* **91**, 195302 (1988).
- ⁹⁸Y. Sun, S. E. Thompson e T. Nishida, *Strain effect in semiconductors: theory and device applications*, vol. 91 (Springer Science Business Media, 2009), p. 195302.
- ⁹⁹K. Moratis, J. Cibert, D. Ferrand e Y.-M. Niquet, «Light hole states in a strained quantum dot: Numerical calculation and phenomenological models», *Phys. Rev. B* **103**, 245304 (2021).
- ¹⁰⁰L. Balaghi, G. Bussone, R. Grifone, R. Hübner, J. Grenzer, M. Ghorbani-Asl, A. V. Krasheninnikov, H. Schneider, M. Helm e E. Dimakis, «Widely tunable GaAs band-gap via strain engineering in core/shell nanowires with large lattice mismatch», *Nature communications* **10**, 1–10 (2019).
- ¹⁰¹M. Jeannin, A. Artioli, P. Rueda-Fonseca, E. Bellet-Amalric, K. Kheng, R. André, S. Tatarenko, J. Cibert, D. Ferrand e G. Nogues, «Light-hole exciton in a nanowire quantum dot», *Phys. Rev. B* **95**, 035305 (2017).
- ¹⁰²T. Taliercio, A. Gassenq, E. Luna, A. Trampert e E. Tournié, «Highly tensile-strained, type-II, Ga_{1-x}In_xAs/GaSb quantum wells», *Applied Physics Letters* **96**, 062109 (2010).
- ¹⁰³S. D. Singh, S. Porwal, T. K. Sharma e S. M. Oak, «Signature of optical absorption in highly strained and partially relaxed InP/GaAs type-II quantum well superlattice structures», *Journal of Applied Physics* **112**, 093505 (2012).
- ¹⁰⁴J. Ibáñez, R. Kudrawiec, J. Misiewicz, M. Schmidbauer, M. Henini e M. Hopkinson, «Nitrogen incorporation into strained (In, Ga) (As, N) thin films grown on (100), (511), (411), (311), and (111) GaAs substrates studied by photoreflectance spectroscopy and high-resolution x-ray diffraction», *Journal of Applied Physics* **100**, 093522 (2006).

- ¹⁰⁵J. A. Steele, R. A. Lewis, M. Henini, O. M. Lemine e A. Alkaoud, «Raman scattering studies of strain effects in (100) and (311)B GaAs_{1-x}Bix epitaxial layers», *Journal of Applied Physics* **114**, 193516 (2013).
- ¹⁰⁶C. Mailhiot e D. L. Smith, «Electronic structure of [001]- and [111]-growth-axis semiconductor superlattices», *Phys. Rev. B* **35**, 1242–1259 (1987).
- ¹⁰⁷M. Houn, Y. Chang e W. I. Wang, «Orientation dependence of valence-subband structures in GaAs-Ga_{1-x}Al_xAs quantum-well structures», *Journal of Applied Physics* **64**, 4609–4613 (1988).
- ¹⁰⁸D. M. Meneses Gustin, «Electronic and optical properties of Quasi-2D nanostructures and exfoliated systems», *Phys. Rev. B* **91**, 195302 (2017).
- ¹⁰⁹R. Winkler, S. J. Papadakis, E. P. De Poortere e M. Shayegan, «Spin-Orbit Coupling in Two-Dimensional Electron and Hole Systems», em *Advances in Solid State Physics*, vol. 91, ed. por B. Kramer (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2001), pp. 211–223.
- ¹¹⁰Y. V. Terent'ev, M. S. Mukhin, A. A. Toropov, M. O. Nestoklon, B. Y. Meltser, A. N. Semenov, V. A. Solov'ev e S. V. Ivanov, «Photoluminescence studies of Zeeman effect in type-II InSb/InAs nanostructures», *Phys. Rev. B* **87**, 045315 (2013).
- ¹¹¹D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin e D. G. Deppe, «1.3 m room-temperature GaAs-based quantum-dot laser», *Applied Physics Letters* **73**, 2564–2566 (1998).
- ¹¹²D. Bimberg, *Semiconductor nanostructures*, vol. 91 (Springer Science & Business Media, 2008), p. 195302.
- ¹¹³D. Awschalom e D Loss, *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, 2002.
- ¹¹⁴K. K. Likharev, «Single-electron devices and their applications», *Proceedings of the IEEE* **87**, 606–632 (1999).
- ¹¹⁵G. Walter, N. Holonyak, J. H. Ryou e R. D. Dupuis, «Coupled InP quantum-dot InGaP quantum well InP–InGaP–In(AlGa)P–InAlP heterostructure diode laser operation», *Applied Physics Letters* **79**, 3215–3217 (2001).
- ¹¹⁶P. Bhattacharya, S. Ghosh, S. Pradhan, J. Singh, Z.-K. Wu, J Urayama, K. Kim e T. B. Norris, «Carrier dynamics and high-speed modulation properties of tunnel injection InGaAs-GaAs quantum-dot lasers», *IEEE Journal of Quantum Electronics* **39**, 952–962 (2003).
- ¹¹⁷Z. Mi, P. Bhattacharya e S. Fathpour, «High-speed 1.3m tunnel injection quantum-dot lasers», *Applied Physics Letters* **86**, 153109 (2005).
- ¹¹⁸Y. I. Mazur, B. L. Liang, Z. M. Wang, D. Guzun, G. J. Salamo, Z. Y. Zhuchenko e G. G. Tarasov, «Excitonic transfer in coupled InGaAsGaAs quantum well to InAs quantum dots», *Applied Physics Letters* **89**, 151914 (2006).

- ¹¹⁹Y. I. Mazur, V. G. Dorogan, D. Guzun, E. Marega, G. J. Salamo, G. G. Tarasov, A. O. Govorov, P. Vasa e C. Lienau, «Measurement of coherent tunneling between InGaAs quantum wells and InAs quantum dots using photoluminescence spectroscopy», *Phys. Rev. B* **82**, 155413 (2010).
- ¹²⁰Y. I. Mazur, V. G. Dorogan, M. E. Ware, E. Marega Jr, M. Benamara, Z. Y. Zhuchenko, G. G. Tarasov, C. Lienau e G. J. Salamo, «State filling dependent luminescence in hybrid tunnel coupled dot–well structures», *Nanoscale* **4**, 7509–7516 (2012).
- ¹²¹Y. I. Mazur, V. G. Dorogan, E. Marega, D. Guzun, M. E. Ware, Z. Y. Zhuchenko, G. G. Tarasov, C. Lienau e G. J. Salamo, «Effect of tunneling transfer on thermal redistribution of carriers in hybrid dot-well nanostructures», *Journal of Applied Physics* **113**, 034309 (2013).
- ¹²²D. Guzun, Y. I. Mazur, V. G. Dorogan, M. E. Ware, E. Marega, G. G. Tarasov, C. Lienau e G. J. Salamo, «Effect of resonant tunneling on exciton dynamics in coupled dot-well nanostructures», *Journal of Applied Physics* **113**, 154304 (2013).
- ¹²³P. P. Paskov, P. O. Holtz, B. Monemar, J. M. Garcia, W. V. Schoenfeld e P. M. Petroff, «Magnetoluminescence of highly excited InAs/GaAs self-assembled quantum dots», *Phys. Rev. B* **62**, 7344–7349 (2000).
- ¹²⁴R. A. Child, R. J. Nicholas e N. J. Mason, «Magneto-photoluminescence studies of a novel quantum dot–quantum well coupled system», *physica status solidi (b)* **238**, 281–284 (2003).
- ¹²⁵Y. Q. Huang, I. A. Buyanova, X. J. Yang, A. Murayama e W. M. Chen, «Effect of a Phonon Bottleneck on Exciton and Spin Generation in Self-Assembled In_{1-x}Ga_xAs Quantum Dots», *Phys. Rev. Applied* **9**, 044037 (2018).
- ¹²⁶K. Takeishi, S. Hiura, J. Takayama, K. Itabashi, M. Urabe, A. Washida, T. Kiba e A. Murayama, «Persistent High Polarization of Excited Spin Ensembles During Light Emission in Semiconductor Quantum-Dot-Well Hybrid Nanosystems», *Phys. Rev. Applied* **10**, 034015 (2018).
- ¹²⁷H. Chen, S. Hiura, J. Takayama, S. Park, K. Sueoka e A. Murayama, «Electric field control of spin polarity in spin injection into InGaAs quantum dots from a tunnel-coupled quantum well», *Applied Physics Letters* **114**, 133101 (2019).
- ¹²⁸W. Rudno-Rudziński, M. Syperek, J. Andrzejewski, E. Rogowicz, G. Eisenstein, S. Bauer, V. I. Sichkovskiy, J. P. Reithmaier e G. Sęk, «Carrier transfer efficiency and its influence on emission properties of telecom wavelength InP-based quantum dot–quantum well structures», *Scientific reports* **8**, 12317 (2018).

- ¹²⁹S. Bauer, V. Sichkovskiy, F. Schnabel, A. Sengül e J. P. Reithmaier, «Comparison between InP-based quantum dot lasers with and without tunnel injection quantum well and the impact of rapid thermal annealing», *Journal of Crystal Growth* **516**, 34–39 (2019).
- ¹³⁰S. L. Chen, T. Kiba, X. J. Yang, J. Takayama e A. Murayama, «Temperature-dependent spin injection dynamics in InGaAs/GaAs quantum well-dot tunnel-coupled nanostructures», *Journal of Applied Physics* **119**, 115701 (2016).
- ¹³¹S. L. Chen, T. Kiba, X. J. Yang, J. Takayama e A. Murayama, «Power-dependent spin amplification in (In, Ga)As/GaAs quantum well via Pauli blocking by tunnel-coupled quantum dot ensembles», *Applied Physics Letters* **108**, 152103 (2016).
- ¹³²K. Połczyńska, E. Janik, P. Kossacki e W. Pacuski, «Coupling of Quantum Dots with Quantum Wells in a System Based on (Cd, Zn, Mg) Te», *Acta Physica Polonica A* **132**, 369–371 (2017).
- ¹³³M. Pieczarka, M. Syperek, D. Biegańska, C. Gilfert, E. M. Pavelescu, J. P. Reithmaier, J. Misiewicz e G. Sęk, «Lateral carrier diffusion in InGaAs/GaAs coupled quantum dot-quantum well system», *Applied Physics Letters* **110**, 221104 (2017).
- ¹³⁴M. Syperek, J. Andrzejewski, E. Rogowicz, J. Misiewicz, S. Bauer, V. I. Sichkovskiy, J. P. Reithmaier e G. Sęk, «Carrier relaxation bottleneck in type-II InAs/InGaAlAs/InP(001) coupled quantum dots-quantum well structure emitting at 1.55 μm », *Applied Physics Letters* **112**, 221901 (2018).
- ¹³⁵I. Khanonkin, G. Eisenstein, M. Lorke, S. Michael, F. Jahnke, A. K. Mishra e J. P. Reithmaier, «Carrier dynamics in a tunneling injection quantum dot semiconductor optical amplifier», *Phys. Rev. B* **98**, 125307 (2018).
- ¹³⁶L. Schweidenback, T. Ali, A. H. Russ, J. R. Murphy, A. N. Cartwright, A. Petrou, C. H. Li, M. K. Yakes, G. Kioseoglou, B. T. Jonker e A. Govorov, «Optical Aharonov-Bohm oscillations in InGaAs quantum wells», *Phys. Rev. B* **85**, 245310 (2012).
- ¹³⁷R. Heitz, F. Guffarth, I. Mukhametzhanov, M. Grundmann, A. Madhukar e D. Bimberg, «Many-body effects on the optical spectra of InAs/GaAs quantum dots», *Phys. Rev. B* **62**, 16881–16885 (2000).
- ¹³⁸P. P. Paskov, P. O. Holtz, B. Monemar, J. M. Garcia, W. V. Schoenfeld e P. M. Petroff, «Magnetoluminescence of highly excited InAs/GaAs self-assembled quantum dots», *Phys. Rev. B* **62**, 7344–7349 (2000).
- ¹³⁹C. Schulhauser, D. Haft, R. J. Warburton, K. Karrai, A. O. Govorov, A. V. Kalameitsev, A. Chaplik, W. Schoenfeld, J. M. Garcia e P. M. Petroff, «Magneto-optical properties of charged excitons in quantum dots», *Phys. Rev. B* **66**, 193303 (2002).

- ¹⁴⁰M. Larsson, E. S. Moskalenko, L. A. Larsson, P. O. Holtz, C. Verdozzi, C.-O. Almbladh, W. V. Schoenfeld e P. M. Petroff, «Magnetic field effects on optical and transport properties in InAsGaAs quantum dots», *Phys. Rev. B* **74**, 245312 (2006).
- ¹⁴¹M. Sugawara, N. Okazaki, T. Fujii e S. Yamazaki, «Diamagnetic shift and oscillator strength of two-dimensional excitons under a magnetic field in $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ quantum wells», *Phys. Rev. B* **48**, 8848–8856 (1993).
- ¹⁴²I. Aksenov, Y. Aoyagi, J. Kusano, T. Sugano, T. Yasuda e Y. Segawa, «Temporal dynamics of a magnetoexciton in a quantum well», *Phys. Rev. B* **52**, 17430–17434 (1995).
- ¹⁴³S. Ménard, J. Beerens, D. Morris, V. Aimez, J. Beauvais e S. Fafard, «Magneto photoluminescence study of intermixed self-assembled InAs/GaAs quantum dots», *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* **20**, 1501–1507 (2002).
- ¹⁴⁴A. Babinski, M. Potemski, S. Raymond, J. Lapointe e Z. R. Wasilewski, «Emission from a highly excited single InAs–GaAs quantum dot in magnetic fields: An excitonic Fock-Darwin diagram», *Phys. Rev. B* **74**, 155301 (2006).
- ¹⁴⁵S. Raymond, S. Studenikin, A. Sachrajda, Z. Wasilewski, S. J. Cheng, W. Sheng, P. Hawrylak, A. Babinski, M. Potemski, G. Ortner e M. Bayer, «Excitonic Energy Shell Structure of Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots», *Phys. Rev. Lett.* **92**, 187402 (2004).
- ¹⁴⁶G. Rastelli, «Semiclassical formula for quantum tunneling in asymmetric double-well potentials», *Phys. Rev. A* **86**, 012106 (2012).
- ¹⁴⁷V. Benderskii, E. Vetoshkin e H. Trommsdorff, «Tunneling splittings in vibrational spectra of non-rigid molecules: VI. Asymmetric double-well potentials», *Chemical physics* **244**, 299–317 (1999).
- ¹⁴⁸A. Garg, «Tunnel splittings for one-dimensional potential wells revisited», *American Journal of Physics* **68**, 430–437 (2000).