

**Universidade de Brasília  
Instituto de Física**

**Propriedades Ópticas Anômalas de Poços e Fios  
Quânticos de InGaAs/InP Vicinais**

**Juliana Bernardes Borges da Cunha**

**Orientador:** Prof. Dr. Sebastião William da Silva

Tese apresentada ao Programa de  
Pós-Graduação em Física como  
parte dos requisitos à obtenção do  
título de Doutora em Física.

Brasília - DF  
Agosto, 2007

Ao meu marido Jalles

“A coisa mais bela que podemos experimentar é o mistério. Essa é a fonte de toda arte e ciências verdadeiras.”

**Albert Einstein**

# Agradecimentos

Ao meu orientador Sebastião William pela orientação precisa, pela paciência, pela amizade e pela disposição dedicada ao longo deste trabalho. Pelo seu grande exemplo de pesquisador e profissional, sempre colocando a ética, a determinação, a exigência e a insistência como lema de trabalho.

Aos professores do Instituto de Física da UnB, em especial, aos professores do Núcleo de Física Aplicada, Junio, Paulo César e Maria Aparecida pela agradável convivência ao longo destes anos.

Aos funcionários do Instituto de Física, em especial a Célia Regina, a Amanda, ao pessoal da oficina mecânica e ao pessoal do nitrogênio pela amizade e ajuda no decorrer do trabalho.

Aos meus pais, Antonio Newton e Heliana, aos meus irmãos Lucas e Mariana e aos meus avós Antônio e Alzira por todo o carinho, amor, apoio e incentivo que me deram ao longo dessa jornada.

Aos meus avós Tito e Abadia (*in memoriam*) pelos exemplos de força e determinação.

Ao meu marido Jalles pelo seu amor e dedicação. Pela sua convivência alegre e otimista que me proporcionou um grande incentivo e determinação para a conclusão deste trabalho.

Aos meus sogros Luiza e Tobias, aos meus cunhados Jefferson Adriany, Alysson, Ana Cláudia, Poliana e Ranieri pela nossa valiosa amizade e pela atenção no decorrer destes anos.

Aos meus amigos, colegas, funcionários e alunos da Escola Agrotécnica Federal de Ceres pelo ótimo clima de trabalho e companheirismo.

Aos meus amigos: Priscila, Patrícia, Tiago, João Paulo, Fábio, Rafael, Adamo, Gustavo, Leonardo Luiz, Ricardo Souza e Simone Ramalho pela alegre companhia e amizade. Foram ótimos anos de convivência.

Aos meus familiares e amigos que sempre me apoiaram.

Aos órgãos financiadores CNPq e FINATEC pelo apoio financeiro.

## Resumo

A dinâmica e o transporte lateral de portadores em poços e fios quânticos de InGaAs crescidos sobre substratos de InP vicinais foram investigados pela técnica de fotoluminescência resolvida espectral e espacialmente. Simulações dos resultados de fotoluminescência integrada espectralmente, utilizando equações de taxa, mostraram que os tempos de captura e de vida dos portadores confinados nos fios quânticos são diferentemente influenciados por suas morfologias. Verificou-se que enquanto o tempo de vida depende fortemente da espessura dos fios quânticos, o tempo de captura é praticamente constante para todas as heteroestruturas. A dependência do tempo de vida foi explicada considerando-se a existência de diferentes tipos de recombinação não-radiativa de portadores nas interfaces dos fios quânticos. Propõe-se que o tunelamento de portadores dos fios quânticos para estados eletrônicos na barreira é responsável pelo decréscimo exponencial observado na intensidade da fotoluminescência com o aumento da densidade de excitação. Os perfis assimétricos da distribuição espacial dos portadores fotogerados no poço quântico estudado, obtidos pela técnica de fotoluminescência espacialmente resolvida, foram simulados usando-se uma equação de difusão não-Fickiana descrita pela estatística de Lévy. A assimetria observada ao longo da direção perpendicular aos terraços foi associada à presença do processo de recombinação Auger, intensificado pelas características morfológicas fractais das interfaces.

## Abstract

The dynamic and the lateral transport of carriers in quantum wells and quantum wires of InGaAs grown on vicinal InP substrates were investigated by spectrally and spatially resolved photoluminescence techniques. Simulation of the results of spectrally integrated photoluminescence using rate equations showed that the carrier capture and lifetime of the confined carriers in the quantum wires are differently influenced by the morphology. It was verified that while the lifetime depends strongly on the thickness of quantum wires, the carrier capture is practically constant for all heterostructures. The dependence of lifetime was explained considering the existence of different types of nonradiative recombination of carriers in the quantum wires interfaces. It was also proposed that carriers tunneling from the quantum wires to electronic states in the barrier is responsible for the exponential decrease observed in the intensity of the photoluminescence with the increase of the excitation density. The asymmetric spatially profiles of the photogenerated carriers, observed by spatially resolved photoluminescence on the heterostructures studied, were simulated using a non-Fickian diffusion equation described by the Lévy statistics. The asymmetric observed along the perpendicular direction to the terrace edges was associated with the presence of Auger recombination, improved by the fractal interface morphology.

# Índice

<b>Resumo</b>	<b>v</b>
<b>Abstract</b>	<b>vi</b>
<b>Lista de figuras</b>	<b>ix</b>
<b>Lista de tabelas</b>	<b>xii</b>
<b>Capítulo 1: Introdução</b>	<b>1</b>
<b>Capítulo 2: Aspectos Teóricos</b>	<b>6</b>
2.1 Materiais semicondutores.....	6
2.1.1 Recombinação de portadores em semicondutores.....	7
2.1.2 Dependência da intensidade da PL em função da intensidade de excitação e da temperatura .....	12
2.1.3 Recombinação Auger.....	14
2.2 Espalhamento de portadores em semicondutores.....	17
2.2.1 Espalhamento por vibrações da rede.....	18
2.2.2 Espalhamento por impurezas.....	19
2.2.3 Espalhamento portador–portador.....	20
2.3 Densidade de estados.....	21
2.3.1 Densidade de estados em um material bulk (3D).....	21
2.3.2 Confinamento eletrônico bidimensional (2D).....	23
2.3.3 Confinamento eletrônico unidimensional (1D).....	24
2.4 Fios quânticos.....	25
2.5 Crescimento epitaxial por VLE.....	34
2.6 Sistemas fractais.....	36
2.7 Difusão de portadores em semicondutores.....	40
2.7.1 Difusão normal.....	40
2.7.2 Difusão anômala.....	41
2.7.3 Difusão anômala: resultados da literatura.....	44
<b>Capítulo 3: Caracterização e Amostras</b>	<b>50</b>
3.1 Fotoluminescência resolvida espacialmente.....	51
3.1.1 MSST.....	51
3.2 Fotoluminescência resolvida espectralmente.....	54
3.2.1 Macro-PL.....	54
3.2.2 Micro-PL.....	54
3.3 Amostras.....	55
<b>Capítulo 4: Fotoluminescência em Fios Quânticos de InGaAs/InP Crescidos sobre Substrato Vicinal</b>	<b>57</b>

Conclusão.....	79
<b>Capítulo 5: Assinatura Óptica da Difusão Fractal Assimétrica de Portadores em Poços Quânticos Semicondutores</b>	<b>80</b>
Conclusão.....	100
<b>Capítulo 6: Conclusão Geral</b>	<b>101</b>
<b>Perspectivas de Trabalhos Futuros</b>	<b>103</b>
<b>Apêndice A</b>	<b>104</b>
<b>Referências Bibliográficas</b>	<b>105</b>

# Lista de Figuras

2.1 Esquema dos processos de absorção e recombinação banda a banda em (a) semicondutor de <i>gap</i> direto, (b) e (c) semicondutores de <i>gap</i> indireto. ....	9
2.2 Representação esquemática dos processos de absorção, termalização e recombinação radiativa presentes em experimentos de PL. BC e BV representam as bandas de condução e de valência, respectivamente. D e A representam os eventuais níveis de impurezas doadoras (D) e aceitadoras (A) presentes no material. ....	11
2.3: Diferentes processos possíveis de recombinação Auger banda-banda em um semicondutor de <i>gap</i> direto. ....	15
2.4: (a) Heteroestrutura onde $x$ e $y$ são as direções de locomoção das cargas. (b) Esquema de bandas da heteroestrutura. ....	23
2.5: Esquema do processo de fabricação da estrutura de fio quântico proposta por Petroff [Petroff <i>et al.</i> , 1982]. ....	27
2.6: (a) Esquema da estrutura de fio quântico. (b) Seção reta do fio obtida através de um microscópio de transmissão de elétrons (TEM) [Liu <i>et al.</i> , 1999]. ....	28
2.7: Fios quânticos de InGaAs arranjados ordenadamente sobre conjunto de degraus por MBE assistida por hidrogênio atômico [Da-Yong <i>et al.</i> , 2003]. ....	30
2.8: (a) Modo de crescimento <i>step-flow</i> para o material A (InGaAs) sobre o material B (InP) onde $V_{AB} > V_{AA}$ . (b) Modo de crescimento <i>step-flow</i> para B sobre A onde $V_{BA} < V_{BB}$ . Em (b) $V_{BB}$ cai para $V_{BA}$ onde o crescimento frontal alcança a distância de aproximação mínima para o próximo degrau, correspondendo ao ângulo $\beta$ [Cox <i>et al.</i> , 1990]. ....	33
2.9: (a) Câmara de crescimento com substrato. (b) Duas câmaras de crescimento coplanares sobre uma superfície comum. ....	35
2.10: Duas câmaras de crescimento com esteira de levitação. ....	36
2.11: Perfil da intensidade de fotoluminescência para as amostras de poços quânticos crescidos sobre substrato normal (a) e inclinado de $2^\circ$ fora da direção [001] (b) [Monte <i>et al.</i> , 2000]. ....	44

2.12: Perfil da raiz quadrada da intensidade fotoluminescente para a heteroestrutura crescida na direção [001], nas direções (a) $x//[1-10]$ e (b) $y//[110]$ . [Monte <i>et al.</i> , 2000]. .....	45
2.13: Perfis da raiz quadrada da intensidade fotoluminescente para a heteroestrutura crescida na direção $2^\circ$ fora da direção [001], nas direções (a) $x//[1-10]$ e (b) $y//[110]$ [Monte <i>et al.</i> , 2000]. .....	45
2.14: Comparação entre os casos estudados por Wells e colaboradores. Sistema randômico sem campo elétrico (a) e com campo elétrico (b); Sistema fractal sem campo elétrico (c) e com campo elétrico (d). Surgimento de difusão assimétrica em um sistema com desordem e anisotrópico. A distribuição inicial está representada na figura por pontos [Wells <i>et al.</i> , 2005]. .	48
3.1: Aparato experimental para a técnica de varredura espacial da imagem da microluminescência (MSST). .....	53
3.2: Morfologia das amostras de fios quânticos usadas neste trabalho. ....	56
4.1: Espectros de PL das amostras de QWRs de InGaAs depositados durante os tempos de 0,5, 1,0, 2,0, 3,0 e 10,0 s e obtidos com densidade de excitação de $60 \text{ W/cm}^2$ . As linhas cheias representam o melhor ajuste dos dados experimentais (círculos abertos) usando curvas gaussianas. As linhas pontilhadas representam cada uma das emissões de PL das diferentes estruturas presentes nas amostras. ....	59
4.2: Energia dos picos de PL dos QWRs de InGaAs como função dos tempos de deposição. Os diferentes símbolos representam as espessuras dos fios quânticos medidos em monocamadas, $N = i$ ( $i = 1, 2, 3$ e $4$ ).....	60
4.3: Espectros de PL em função da densidade de excitação dos QWRs de InGaAs depositado com os tempo de: (a) $t = 0,5$ s, (b) 1,0 s, (c) 2,0 s, (d) 3,0 s e (e) 10,0 s. ....	62
4.4: Dependência da intensidade integrada da PL em função da densidade de excitação dos QWRs em escala <i>log-log</i> (obtidas a partir dos ajustes dos espectros da Figura 4.3). Os símbolos representam os dados experimentais e as linhas contínuas os resultados simulados usando os parâmetros listados na Tabela 4.1. ....	63
4.5: (a) Densidade de portadores calculada para as amostras de QWRs em função da densidade de excitação. (b) Dependência do tempo de vida dos portadores confinados nos QWRs em função da largura dos fios quânticos. ....	73

5.1: Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ ao longo de dois eixos ortogonais que se cruzam no centro do <i>spot</i> de excitação, para as heteroestruturas crescidas com o tempo de $t = 0,5, 1,0, 3,0, 10,0$ e $240s$ .....	84
5.2: Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ ao longo de dois eixos ortogonais que se cruzam no centro do <i>spot</i> de excitação. As linhas sólidas representam o melhor ajuste dos dados experimentais, como discutido no texto. ....	85
5.3: Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ ao longo do eixo $y$ para diferentes densidades de excitação. ....	88
5.4: Parte assimétrica da raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ obtidos após subtração do pico central, para diferentes intensidades de excitação. ....	89
5.5: Dependência da raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ do pico central (círculos abertos) e do pico assimétrico (círculos fechados) como função da densidade de excitação.....	90
5.6: Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ ao longo do eixo $y$ para diferentes temperaturas. ....	92
5.7 - Dependência da raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ do pico central (círculos abertos) e do pico assimétrico (círculos fechados) como função da temperatura. As linhas representam o melhor ajuste obtido pela Equação 5.3.....	93
5.8 – Dependência da Difusividade $D_r$ como função da (a) densidade de excitação e (b) da temperatura. A linha sólida representa o melhor ajuste obtido com $D_r \propto T/T^{-a}$ . A linha pontilhada é somente guia para os olhos. ....	95
5.9 – Energia do Pico de PL ao longo de diferentes pontos da imagem de fotoluminescência (lado esquerdo). Raiz quadrada do perfil de intensidade da fotoluminescência $(I_{PL})^{1/2}$ ao longo do eixo $y$ .....	97
5.10 – Espectro de fotoluminescência a $21 \mu m$ do centro do <i>spot</i> de excitação. ....	98

# Lista de Tabelas

3.1: Largura ( $L_x$ ) dos fios quânticos das diferentes amostras estudadas neste trabalho. Dados obtidos a partir do trabalho de Worlock e colaboradores [Worlock <i>et al.</i> , 1991].....	56
4.1: Parâmetros usados nas Equações 4.2 – 4.6 para simular os dados experimentais da Figura 4.3 e 4.4. ....	69
4.2: Valores das componentes não radiativas e radiativas obtidas para a densidade de excitação de $0,03\text{kW/cm}^2$ a partir da Tabela 4.1.....	75
A.1: Parâmetros importantes para o InP e para o $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$ .....	104

# **CAPÍTULO 1**

## **Introdução**

O grande salto tecnológico ocorrido na última metade do século XX esteve intimamente ligado com o desenvolvimento da física de semicondutores. O surgimento dos modernos microcomputadores, um dos exemplos mais evidentes da influência da física de semicondutores na vida moderna, só se tornou possível devido às modernas técnicas de crescimento de cristais. Tais técnicas propiciaram a manufatura de microprocessadores com dispositivos incrivelmente miniaturizados e com isso a aquisição de conhecimentos referentes ao comportamento dos portadores em tais sistemas [Sze, 1981]. Esta última, favorecida pelo enorme avanço na física de estado sólido [Bastard, 1988], pois o conhecimento sobre os fenômenos físicos que envolvem o transporte de portadores de carga em diferentes dimensionalidades é de fundamental importância para a implementação prática de tais dispositivos.

A habilidade de compreender e manipular materiais de dimensões nanométricas foi facilitada por avanços nas suas técnicas de fabricação, incluindo a Epitaxia por Feixes Moleculares (*Molecular Beam Epitaxy*-MBE), a Deposição por Vapores Químicos Organo-Metálicos (*Metal-Organic Chemical Vapor Deposition*-MOCVD) e a Epitaxia por Levitação de Vapor (*Vapor Levitation Epitaxy*-VLE) que se mostra excelente para a obtenção de camadas ultra-finas [Cox *et al.*, 1986]. As técnicas de fabricação incluem, também, processos tais como gravura em máscara e de fotolitografia para criar nanoestruturas modeladas [Kieseling *et al.*, 1995 – b].

Geralmente, as heteroestruturas semicondutoras são crescidas sobre substratos perfeitamente orientados, devido à obtenção de interfaces e camadas epitaxiais de boa qualidade. Entretanto, o grande avanço nas técnicas de epitaxia possibilitou o crescimento das mais diversas heteroestruturas em substratos desorientados ou vicinais, os quais têm sido usados como uma estratégia para melhorar a qualidade dos materiais crescidos [López *et al.*, 1997]. A presença de uma alta densidade de degraus nas superfícies vicinais usualmente muda o modo de crescimento de nucleação, de formação de ilhas para *step-flow* (crescimento a partir da borda do degrau), o que possibilita a obtenção de diferentes heteroestruturas, inclusive a de fios quânticos [Cox *et al.*, 1990; Morais *et al.*, 1989]. Como as propriedades ópticas e de transporte dependem fortemente da direção de crescimento [Popovic *et al.*, 1989], é muito importante o estudo de heteroestruturas crescidas sobre tais orientações. Além do mais, a morfologia das superfícies, interfaces e os mecanismos de crescimento também dependem da direção de crescimento [Nötzel *et al.*, 1992].

Fios quânticos (do inglês *Quantum Wires* - QWRs) semicondutores têm atraído muito interesse dos pesquisadores nos últimos anos, não somente devido às características peculiares de suas propriedades eletrônicas e excitônicas, mas também

devido às aplicações em eletrônica e opto-eletrônica [Weisbuch *et al.*, 1991]. Nestas heteroestruturas, elétrons e éxcitons podem mover-se livremente ao longo de seu comprimento enquanto são confinados nas duas outras dimensões. O resultado desta propriedade é um aumento significativo na energia de ligação e na força de oscilador da transição excitônica. O confinamento reduz a separação entre elétrons e buracos, o que aumenta sua atração coulombiana. Tamaña quantização resulta em um aumento na ligação excitônica de 20 a 30 meV, quando comparado com o material *bulk* [Someya *et al.*, 1996]. Foi verificado que transistores de efeito de campo com canais de 100 nm apresentam boas propriedades elétricas e uma clara resistência diferencial negativa [Sugaya *et al.*, 1998].

Compreender como os portadores interagem-se dentro das heteroestruturas semicondutoras de baixa dimensionalidade é de fundamental importância para o entendimento de suas propriedades físicas fundamentais. Os processos de relaxação e de transferência de portadores entre os diferentes níveis de energia ou mesmo entre as nanoestruturas individuais são aspectos relevantes, principalmente para a aplicação em dispositivos rápidos onde o transporte e a captura de portadores na região ativa são de crucial importância. Um grande número de trabalhos utilizando técnicas resolvidas ou não no tempo tem investigado o transporte e captura de portadores em poços quânticos [Ridley, 1994; Kersting *et al.*, 1992]. Todavía, estruturas de fios quânticos ainda têm sido pouco investigadas [Melgarejo *et al.*, 1998; Kieseling *et al.*, 1995-a].

Outro aspecto ainda pouco explorado é o transporte de portadores em heteroestruturas semicondutores crescidas sobre substratos vicinais. Recentemente, o efeito de difusão anômala e assimétrica de portadores fotogerados tem sido reportado em poços e fios quânticos crescidos sobre substrato 2<sup>o</sup> fora da direção [001] [Monte *et al.*, 2000; Monte *et al.*, 2002; Monte *et al.*, 2003]. A difusão como movimento é

observada em muitos tipos de sistemas determinísticos. Em particular, foi mostrado que em sistemas caóticos determinísticos a difusão pode ser normal [Blackburn *et al.*, 1996] ou anômala [Barkai *et al.*, 1997], cuja dinâmica pode ser descrita em termos da estatística de Lévy. Neste último caso, o processo da difusão não obedece a uma distribuição de probabilidade gaussiana. As distribuições de probabilidade não-gaussianas têm sido aplicadas a descrição de muitos processos físicos, incluindo fluxo turbulento [Shlesinger *et al.*, 1986], difusão em sistemas complexos [Ott *et al.*, 1990], dinâmicas caóticas dos sistemas conservativos clássicos [Shlesinger *et al.*, 1993] entre outros [Solomon *et al.*, 1993]. A difusão assimétrica de portadores em heteroestruturas semicondutoras é um processo de transporte difusivo, o qual leva a uma anisotropia espacial na distribuição dos portadores. A primeira descrição teórica de processos difusivos assimétricos foi realizada em 1998 por Chaves [Chaves, 1998], enquanto a primeira observação experimental em sistemas semicondutores foi obtida em 2000 por Monte e colaboradores [Monte *et al.*, 2000]. Outras tentativas de investigação desse fenômeno incluem as abordagens de cálculo direto da distribuição de portadores sob influência de perturbações [de Dios-Leyva e Oliveira, 1994]. Apesar da difusão anômala e assimétrica em sistemas semicondutores ter sido observada pela primeira vez em 2000 [Monte *et al.*, 2000], uma explicação física para o fenômeno ainda não havia sido dada.

O objetivo deste trabalho é estudar a dinâmica e o transporte de portadores em poços e fios quânticos de InGaAs crescidos sobre substratos vicinais de InP. Neste estudo, investigamos a dependência da largura e espessura de fios quânticos na dinâmica da transferência dos portadores entre as diferentes estruturas. Para isso foi empregada, além das medidas de fotoluminescência (do inglês *photoluminescence* – PL) em função da densidade de excitação, um modelo de equações de taxa acopladas, as

quais descrevem a densidade de portadores nos diferentes fios quânticos [Borges *et.al.*, 2006]. Posteriormente, foi estudado o fenômeno da difusão anômala e assimétrica em poços quânticos de InGaAs crescido sobre substrato vicinal de InP. Neste trabalho foi dada pela primeira vez uma melhor explicação do fenômeno. Esta tese está assim organizada: no Capítulo 2 é apresentada uma revisão sobre os principais conceitos referidos neste trabalho tais como: recombinação e espalhamento de portadores, densidades de estados, crescimento epitaxial por VLE, fios quânticos, sistemas fractais e difusão anômala. A descrição das técnicas experimentais utilizadas para o desenvolvimento do trabalho e os detalhes das amostras investigadas são apresentados no Capítulo 3. No Capítulo 4 são apresentados e discutidos os resultados experimentais obtidos por espectroscopia de fotoluminescência e modelados por equações de taxa, a fim de explicar os processos de recombinação e relaxação de portadores em fios quânticos. A investigação do fenômeno de difusão anômala e assimétrica, observado em poços quânticos crescidos sobre substrato vicinal, é apresentada e discutida no Capítulo 5. Finalmente, no Capítulo 6 têm-se as conclusões gerais e as perspectivas futuras.

## **CAPÍTULO 2**

### **Aspectos Teóricos**

#### **2.1 – Materiais semicondutores**

A principal característica dos materiais semicondutores é a existência de uma faixa de valores proibidos de energia, entre a banda de valência (BV) e a banda de condução (BC), conhecida como *gap* de energia. Em baixas temperaturas, todos os elétrons se encontram no estado de mais baixa energia, ocupando um lugar na chamada banda de valência (BV) e todos os estados dessa banda estarão preenchidos. Uma vez excitado, a tendência natural do semicondutor é retornar ao seu estado de menor energia e assim os processos de recombinação dos portadores se fazem presentes.

### 2.1.1 - Recombinação de portadores em semicondutores

Para se levar um elétron para um estado excitado é necessário que o *gap* de energia do semicondutor seja ultrapassado. Para que isto ocorra, o material deverá absorver um fóton com energia maior que a energia de *gap* do material. Se assim acontecer, o elétron irá para a banda de condução (BC), onde todos os estados estão vazios. Ao ser excitado para a banda de condução o elétron deixará na banda de valência uma lacuna, a qual se comportará, para todos os efeitos, como um portador de carga positiva, essa lacuna recebe o nome de buraco. Uma vez excitado esse elétron tenderá a perder seu excesso de energia por transições internas à banda (emitindo fônons) até atingir o fundo da banda de condução. Fato similar ocorre com seu dual, o buraco, o qual relaxa indo para o topo da banda de valência. O excesso de portadores excitados, deve eventualmente recombinar-se, retornando assim ao seu estado inicial. De fato, sob condições de estado estacionário a taxa em que os portadores são gerados ( $G$ ) deve ser igual à taxa de recombinação ( $R$ ),

$$G = R. \quad (2.1)$$

Os processos de geração e recombinação envolvem transições de portadores através do *gap* de energia e é diferente para semicondutores de *gap* direto e indireto, como pode ser visto na Figura 2.1. Em um semicondutor de *gap* direto o máximo da banda de valência e o mínimo da banda de condução ocorrem no centro da zona de Brillouin ( $\vec{K} = 0$ ) e uma transição de elétrons para cima ou para baixo não requer uma mudança no momento, ou o envolvimento de um fônon. Conseqüentemente, nos semicondutores de *gap* direto tais como o GaAs, o elétron alcança a banda de condução pela absorção de um fóton, e depois de um tempo curto recombina-se com um buraco da

banda de valência, perdendo seu excesso de energia pela emissão de um fóton com energia igual à energia de *gap* do semiconductor. Este tipo de processo é denominado Recombinação Radiativa e é mais provável em semicondutores de *gap* direto.

O processo de recombinação é completamente diferente em um semiconductor de *gap* indireto. Considerando os diagramas de bandas mostrados nas Figuras 2.1 (b) e (c), verifica-se que o mínimo da banda de condução não está em  $\vec{K} = 0$ . Assim, transições de portadores para cima ou para baixo requerem uma mudança no momento, ou o envolvimento de um fônon. Portanto, um elétron situado no mínimo da banda de condução, em  $\vec{K} \neq 0$ , não pode recombinar com um buraco em  $\vec{K} = 0$  até que um fônon com o momento e energia apropriados esteja disponível. Assim, ambos os processos de absorção e emissão de fônons podem assistir a transição. A necessidade da presença de um fônon com energia e momento adequados faz com que o tempo de permanência do elétron na banda de condução aumente. E neste meio tempo, processos de recombinação não radiativa tornam-se importantes, reduzindo assim a probabilidade da recombinação radiativa em materiais de *gap* indireto tal como o Si, Ge ou GaP. Estes semicondutores, geralmente, não são aplicados para a confecção de fontes de luz como diodos emissores de luz e lasers.

Nos processos de recombinação radiativa, a recombinação entre elétrons e buracos, ocorrerá por meio de transição vertical no espaço dos momentos, durante a qual são gerados fótons com energia idêntica ao valor do *gap* do semiconductor. Analisando apropriadamente essa emissão, pode-se fazer um gráfico do número de fótons emitidos pelo material como função de sua energia, o qual é chamado de espectro de fotoluminescência (do inglês *photoluminescence* - PL).

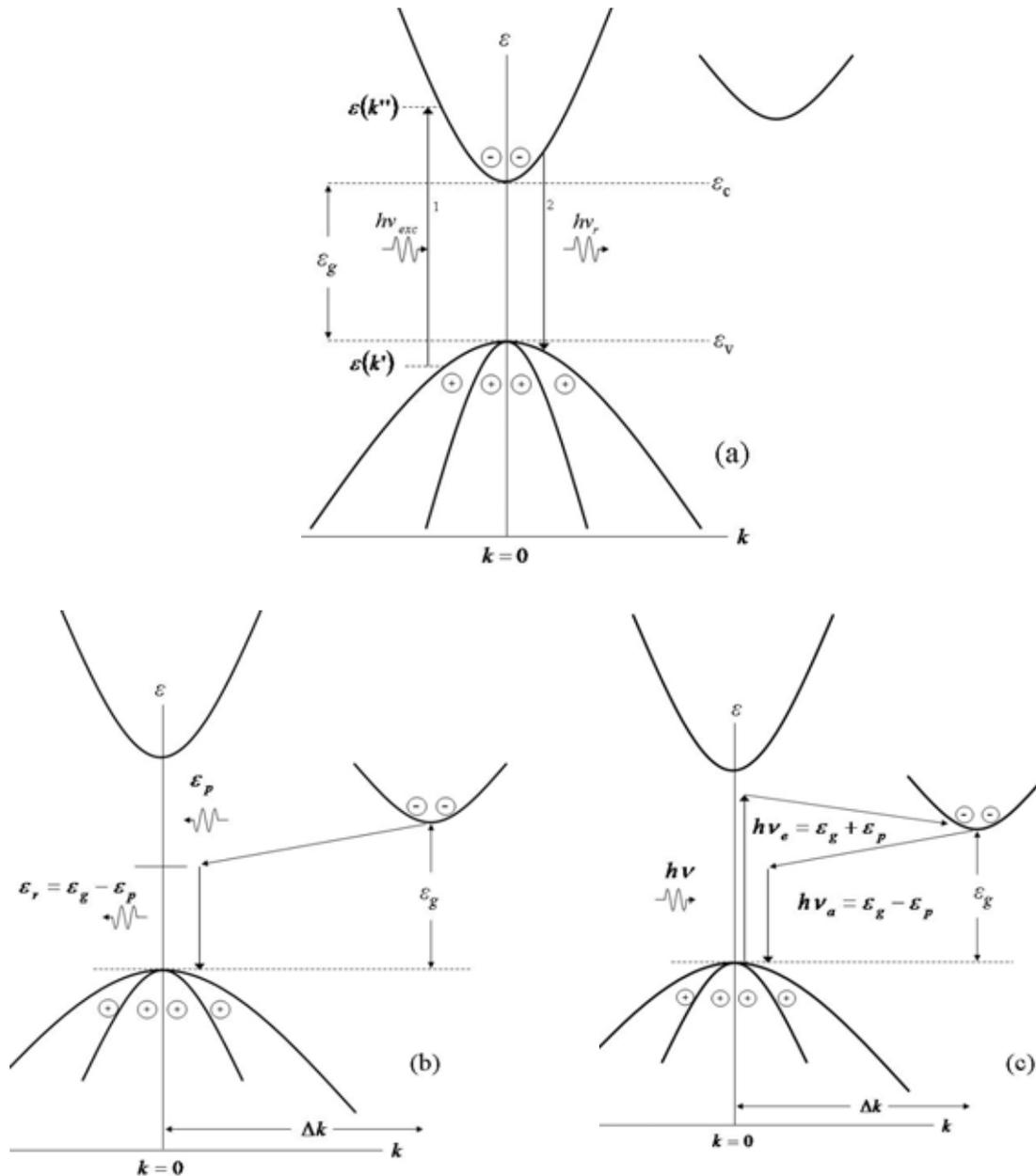


Figura 2.1 – Esquema dos processos de absorção e recombinação banda a banda em (a) semicondutor de *gap* direto, (b) e (c) semicondutores de *gap* indireto.

A emissão destes fótons, com energia  $h\nu$ , envolve a transição eletrônica de um estado inicial  $|i\rangle$  para um estado final  $|f\rangle$ , com energia  $\varepsilon_i > \varepsilon_f$ , onde estes fótons serão observados com energia dada pela diferença entre os dois estados  $\varepsilon_i - \varepsilon_f$ . A transição radiativa ocorre em uma escala de tempo ( $\tau_r$ ) que é inversamente proporcional à probabilidade das transições ópticas ( $P$ ), dada pela equação:

$$P = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle i | \hat{H}(\nu) | f \rangle \right|^2 \delta(\varepsilon_i - \varepsilon_f \pm h\nu). \quad (2.2)$$

Esta equação é conhecida como regra de ouro de Fermi [Sakurai, 1967] e  $\hat{H}(\nu)$  representa o operador Hamiltoniano que descreve a perturbação sofrida pelo sistema.

Uma vez que a recombinação radiativa se dá pela recombinação entre dois portadores (elétron e buraco) ela também é denominada de recombinação bimolecular. Em semicondutores intrínsecos, onde a densidade de elétrons e buracos é igual ( $p = n$ ), a taxa de recombinação radiativa pode ser escrita da forma:

$$R_r = Bn^2, \quad (2.3)$$

na qual  $B$  é o coeficiente de recombinação radiativa. De acordo com Roosbroeck-Shockley [Roosbroeck e Shockley, 1954] a taxa da recombinação radiativa,  $R_r$ , é dada por:

$$R_r = \frac{8\pi}{c^2} \left( \frac{K_B T}{h} \right)^3 \int_0^\infty \alpha_a N_r^2 x^2 e^{-x} dx, \quad (2.4)$$

sendo  $x = hc / \lambda K_B T$ ,  $K_B$  a constante de Boltzmann,  $T$  a temperatura absoluta,  $\alpha_a$  o coeficiente de absorção e  $N_r$  o índice de refração.

Uma medida convencional de PL de uma determinada amostra pode conter emissões relativas a impurezas, defeitos, flutuações de interface entre outros. Essas emissões são diferentes da emissão banda a banda a que nos referimos anteriormente. Com o objetivo de se identificar a origem da emissão observada no espectro de PL, faz-se necessário um conjunto amplo de medidas, nas quais se variam parâmetros como a temperatura da amostra, a intensidade da excitação (bombeio), a energia e o modo de excitação dos portadores, etc. Como exemplo de outros modos de excitação tem-se: a

eletroluminescência, onde elétrons e buracos são injetados eletricamente [Anders S. *et al.*, 2003]; a catodoluminescência, onde para a excitação um feixe de elétrons é usado, neste processo o bombardeio de elétrons cria pares elétron–buraco que se recombinam radiativamente [Tang Y. *et al.*, 1998].

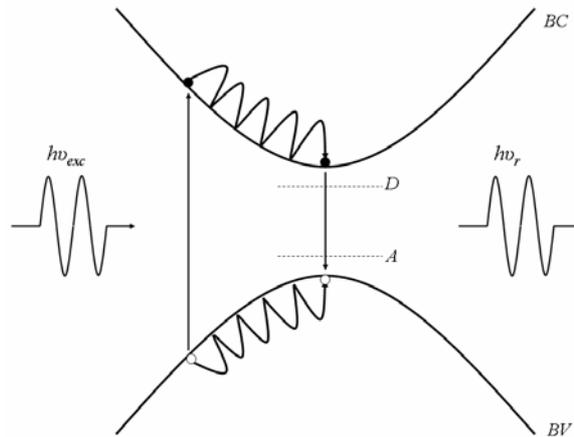


Figura 2.2 - Representação esquemática dos processos de absorção, termalização e recombinação radiativa presentes em experimentos de PL. BC e BV representam as bandas de condução e de valência, respectivamente. D e A representam os eventuais níveis de impurezas doadoras (D) e aceitadoras (A) presentes no material.

Já que nenhum cristal é perfeito, há impurezas e defeitos na rede que se manifestam como armadilhas e centros de recombinação. Átomos de impureza em um semicondutor, exceto alguns tipos de defeitos em cristais, introduzem níveis profundos de energia localizados no *gap*, longe dos extremos das bandas. Dependendo da sua localização no *gap*, um nível profundo pode agir como uma armadilha de elétron, ou de buraco, ou ainda um centro de recombinação. Estes níveis agem como atalhos para os elétrons entre as bandas de condução e valência, aumentando significativamente o processo de recombinação não radiativa.

Uma armadilha de elétron possui uma alta probabilidade de capturar um elétron de condução e soltá-lo após algum tempo. Similarmente, uma armadilha de buraco possui uma alta probabilidade de capturar um buraco e, subseqüentemente, soltá-lo para

a banda de valência. Em um centro de recombinação, as probabilidades de captura de elétrons e buracos são praticamente iguais. Assim, a captura de um elétron é seguida pela captura de um buraco, e isto resulta na eliminação de um par elétron-buraco. A energia potencial do par decresce em dois estágios. Parte da energia é perdida quando o elétron faz uma transição de um estado na banda de condução para o centro de nível profundo, e o resto é perdido quando o elétron armadilhado recombina com um buraco. Em geral, em ambos os passos, a energia é dissipada na forma de fônons, e a recombinação é não-radiativa. O mecanismo de recombinação indireta através dos centros de níveis profundos tem sido investigado por Hall, Shockley e Read [Hall, 1952; Shockley e Read, 1952] e é conhecido como mecanismo HSR.

### **2.1.2 - Dependência da intensidade da PL em função da intensidade de excitação e da temperatura.**

No regime de estado estacionário, ou sob excitação constante, e desprezando-se a difusão convencional, a taxa de geração de portadores ( $G$ ) deve-se igualar à taxa total de recombinação de portadores ( $R$ ). Esta última depende da taxa de recombinação radiativa proporcional a  $n^2$  (que reflete a probabilidade de um elétron encontrar um buraco) e das taxas de recombinação não-radiativas. A equação de taxa para a densidade de portadores  $n$  presentes em um material semiconductor é governada pela equação da continuidade [Olshansky *et al.*, 1984]

$$\frac{dn}{dt} = G - An - Bn^2 - Cn^3, \quad (2.5)$$

na qual  $G$  expressa a taxa em que os pares elétrons-buracos são gerados pela luz incidente e pode ser escrita em termos da densidade de excitação ( $I$ ), da refletividade ( $R$ ) e da energia do fóton absorvido, assim:  $G = (1 - R)I / h\nu$ . O segundo termo do lado direito da Equação 2.5, está relacionado com as perdas não radiativas do sistema, as quais são devidas a impurezas. O terceiro termo expressa a taxa de recombinação radiativa entre elétron e buraco, e  $B$  é o coeficiente de recombinação bimolecular,  $C$  é o coeficiente de recombinação Auger, que será discutido mais detalhadamente na seção 2.1.3.

Considerando que a densidade de excitação ( $I$ ) é constante e que a intensidade da fotoluminescência ( $I_{PL}$ ) é proporcional ao quadrado da densidade de portadores ambipolar ( $I_{PL} \propto n^2$ ) ou, reversamente  $n \propto (I_{PL})^{1/2}$  a relação entre ( $I$ ) e ( $I_{PL}$ ) é dada por  $I = A(I_{PL})^{1/2} + B(I_{PL}) + C(I_{PL})^{3/2}$ . Se cada um desses termos forem separadamente representados em gráficos *log-log* de  $(I_{PL})^{1/2}$  versus ( $I$ ), verifica-se que os termos não-radiativo, radiativo e Auger terão inclinação 1,1/2 e 1/3, respectivamente.

Uma vez que variação da temperatura modifica vários parâmetros físicos importantes no semicondutor e conseqüentemente seu espectro de PL (intensidade da PL, energia de recombinação, largura de linha, etc) é natural usar o efeito da variação da temperatura no estudo destes materiais. Pelo modelo proposto por Varshni [Varshni, 1967], a dependência do *gap* de energia com a temperatura, para estruturas do tipo *bulk* ou poços quânticos, é dada por:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha_1 T^2}{T + \beta_1}, \quad (2.6)$$

na qual os coeficientes  $E_g(0)$ ,  $\alpha_l$  e  $\beta_l$  dependem do material estudado. O comportamento  $\Delta E_g(T) = E_g(T) - E_g(0)$  pode ser separado em dois regimes de temperatura:

$$\text{para } T < T_C, \quad \Delta E_g(T) \propto T$$

$$\text{para } T > T_C, \quad \Delta E_g(T) \propto T^2$$

em que  $T_C$  é a temperatura de Debye.

Outro parâmetro também muito importante nas análises dos dados experimentais de PL é a energia de ativação térmica, que consiste na energia necessária para que os portadores confinados vençam uma barreira de potencial. A energia de ativação é obtida a partir de um gráfico da intensidade da fotoluminescência em função do inverso da temperatura, conhecido como gráfico de *Arrhenius*, através de uma expressão do tipo [Lambkin *et al.*, 1990; Lourenço *et al.*, 2003]:

$$I_{PL}(T) = \frac{I_0}{1 + b \exp(-E_A / K_B T)}, \quad (2.7)$$

na qual  $I_0$  é a intensidade da PL em  $T = 0$  K,  $b$  é a razão entre o tempo de vida do éxciton em um nível confinado e o tempo de fuga do éxciton deste nível para um centro não-radiativo, e  $E_A$  é a energia de ativação térmica do centro não-radiativo.

### 2.1.3 - Recombinação Auger

O processo Auger tem um importante papel em muitos tipos de materiais, tais como átomos, moléculas orgânicas e inorgânicas e semicondutores. Esses processos são baseados na interação de Coulomb de longo alcance, e em materiais semicondutores, eles podem abrir um novo canal para processos não radiativos (recombinação Auger),

no qual elétrons-buracos recombina-se e o excesso de energia liberado pela recombinação é transferido para um terceiro portador (elétron ou buraco) que é re-excitado para estados de mais alta energia. Os vários processos Auger possíveis em semicondutores contêm excesso de elétrons ou buracos, como mostrado na Figura 2.3.

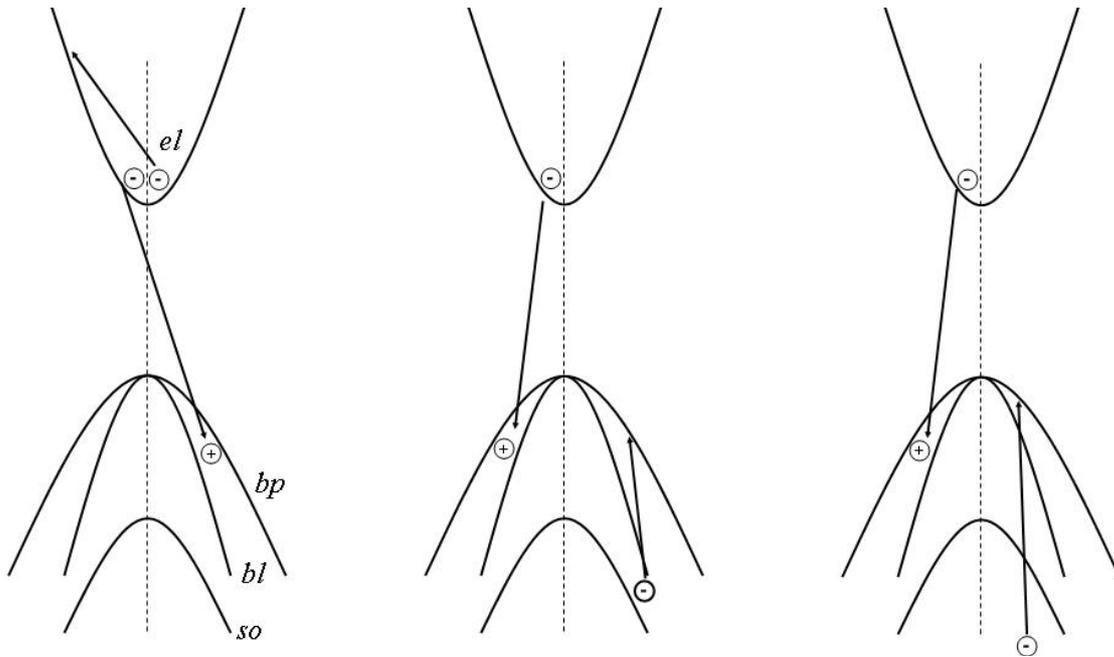


Figura 2.3 - Diferentes processos possíveis de recombinação Auger banda-banda em um semicondutor de *gap* direto.

Como mostrado na Equação 2.5, a taxa de recombinação Auger é dependente da concentração de portadores a terceira potência que é proporcional a  $(K_B T / \varepsilon_g)^{3/2} \exp(-\varepsilon_g / K_B T)$ . Entretanto, esta não é a única dependência da taxa de recombinação Auger. A eficiência deste processo de recombinação também pode depender de muitos outros parâmetros tais como: temperatura [Dutta *et al.*, 1982], *gap* do material semicondutor [Gfroerer *et al.*, 2003], largura do poço quântico [Hausser *et al.*, 1990], grau de confinamento dos portadores [Htoon *et al.*, 2003], entre outros.

É bem conhecido que nos materiais do tipo *bulk* com *gap* estreito (próximo ao infra-vermelho) a taxa de recombinação Auger aumenta fortemente com o aumento da

temperatura [Hausser *et al.*, 1990]. Entretanto, não existe consenso a respeito deste comportamento em poços quânticos. Alguns autores encontraram que a taxa de recombinação Auger praticamente não depende da temperatura [Hausser *et al.*, 1990], enquanto outros verificaram que a taxa de recombinação Auger aumenta fortemente com a temperatura, chegando a dominar os processos de recombinação em temperaturas próximas à temperatura ambiente [Sweeney *et al.*, 1998]. Estas divergências provavelmente podem estar associadas às diferenças entre as heteroestruturas estudadas. A proximidade da banda de energia do *split-off* ( $\Delta_0$ ) com a energia de *gap* ( $E_g$ ) dos materiais como no InAs e suas ligas, pode fornecer estados ressonantes para os processos Auger que envolvem buraco-buraco. Uma vez que, a dependência com a temperatura de  $E_g$  e  $\Delta_0$  é geralmente diferente, a energia de ressonância pode variar com relação à energia do *gap* e, portanto, a taxa de recombinação Auger pode aumentar ou diminuir com a temperatura. Argumentos similares podem ser feitos com respeito às sub-bandas de poços quânticos e super-redes, potencialmente conduzindo a uma dependência inesperada da taxa de recombinação Auger com a temperatura em tais estruturas. Por exemplo, o coeficiente Auger em uma heteroestrutura de InAs/Ga<sub>0,69</sub>In<sub>0,31</sub>Sb/InAs/AlSb, cujo *gap* é de 275 meV, aumenta monotonicamente com a temperatura. Por outro lado, o coeficiente Auger satura com a temperatura em uma super-rede de InAs/GaSb/Ga<sub>0,75</sub>In<sub>0,25</sub>Sb/GaSb cujo *gap* é de 400 meV [Bewley *et al.*, 1998]. Tais variações nos resultados mostram a importância da compreensão da dependência da temperatura no processo Auger em heteroestruturas semicondutoras.

Em um outro trabalho muito interessante [Htoon *et al.*, 2003], foi estudado o efeito da dimensionalidade na recombinação Auger. Neste trabalho, os autores exploraram a capacidade de controlar a forma de nanocristais semicondutores (NC) zero e uni dimensionais (0D – 1D) como um meio de controlar a recombinação Auger, sem

perder a habilidade de ajustar as energias de confinamento e, assim, as energias de emissão. Especificamente, eles estudaram o efeito da mudança gradual no grau do confinamento dos portadores na taxa de recombinação Auger, enquanto o regime de confinamento é ajustado (por alongar um NC) de sistemas de pontos quânticos (0D) para fios quânticos (1D). Eles verificaram que em pontos quânticos menores que 10 nm, as energias de confinamento são significativamente maiores do que as energias das interações excitônicas e, por esta razão, elétrons e buracos podem ser tratados como partículas independentes, não correlacionadas [Efros *et al.*, 1982]. Neste caso, a recombinação Auger pode ser descrita em termos de  $n^3$ , ou seja, processos de três partículas, tal como recentemente observado experimentalmente para NC de CdSe [Klimov *et al.*, 2000]. Quando o NC é alongado, a energia de confinamento na direção do eixo longo pode tornar-se comparável com, ou menor do que a energia de interação do par elétron-buraco conduzindo à formação de éxciton em um sistema unidimensional. Neste caso, a recombinação Auger pode ocorrer como um processo bimolecular ( $n^2$ ), no qual a energia de recombinação de um éxciton é transferida para o outro éxciton. Os autores concluíram que o aumento do comprimento do NC permitiu reduzir a taxa de recombinação não radiativa. Ou seja, NC esféricos (0D) apresentaram taxa de recombinação Auger maior que NC com dimensionalidade 1D.

## **2.2 - Espalhamento de portadores em semicondutores**

Trabalhos experimentais [Pérez-Tomás *et al.*, 2006; Mouillet *et al.*, 2003] verificaram que a mobilidade de portadores em semicondutores depende fortemente de dois parâmetros: temperatura e distribuição e concentração de impurezas no

semicondutor. Portanto, vamos apresentar sucintamente três processos de espalhamento de portadores:

### 2.2.1 - Espalhamento por vibrações da rede

Os átomos estão distribuídos nos vértices de uma rede periódica cristalina. Esses átomos estão vibrando em torno de suas posições de equilíbrio executando movimentos de dilatação e contração em torno destes pontos de equilíbrio. Em cristais puramente covalentes, os portadores (elétrons e buracos) são espalhados por vibrações longitudinais da rede, fazendo com que os átomos ora se aglomerem em certas regiões da rede e ora se afastem. Esse movimento dos átomos faz com que haja uma alteração na periodicidade da rede, causando assim uma mudança no potencial local na vizinhança destas compressões e dilatações. Essa variação no potencial local faz com que surjam campos elétricos que são responsáveis pelo espalhamento do movimento dos portadores livres. O espalhamento de portadores pela rede é mais efetivo a temperaturas mais altas. A mobilidade limitada pelo espalhamento da rede é dada por [Bhattacharya, 1994]:

$$\mu_R = \beta_2 T^{-a}, \quad (2.8)$$

na qual  $\beta_2$  é uma constante de proporcionalidade e o expoente  $a$  varia entre 1,6 e 2,8 [Bhattacharya, 1994].

### 2.2.2 Espalhamento por impurezas

O espalhamento por impurezas se dá tanto por impurezas ionizadas quanto por impurezas neutras. No caso das impurezas ionizadas o espalhamento consiste em um processo mais comum devido a sua maior concentração quando comparado aos devidos às impurezas neutras. No caso das impurezas ionizadas, a carga do íon é responsável por uma mudança no potencial da rede em torno da região onde está localizada a impureza. Devido a essa alteração no potencial, um campo elétrico é criado e este desvia as cargas que se localizam na rede para próximo da impureza, ocorrendo-se assim o espalhamento. Este por sua vez, depende da temperatura, já que a velocidade térmica dos portadores de carga depende da temperatura. Para temperaturas baixas a velocidade térmica dos portadores é menor, fazendo com que estes fiquem mais tempo na região próxima da impureza, aumentando-se assim a intensidade do espalhamento. Assim, a mobilidade limitada pelo espalhamento por impurezas ionizadas ( $\mu_I$ ) é dada por:

$$\mu_I = \beta_3 T^{\frac{3}{2}}, \quad (2.9)$$

na qual  $\beta_3$  é uma constante de proporcionalidade [Bhattacharya, 1994].

O espalhamento por impurezas neutras se dá devido à diferença de tamanho entre os átomos da impureza e os átomos da rede. Essa diferença de tamanho causa uma tensão na rede que por sua vez modifica o potencial em torno da impureza fazendo surgir um campo elétrico que é o responsável pelo espalhamento dos portadores quando estes se aproximam dos átomos da impureza.

### 2.2.3 - Espalhamento portador–portador

Outra forma de espalhamento é o tipo portador–portador, sendo que a colisão de elétrons e buracos em semicondutores é muito comum, mas não é um dos eventos mais importantes. A colisão entre buracos–buracos e elétrons–elétrons também acontece, mas não é importante para a mobilidade eletrônica, uma vez que o momento total permanece inalterado quando um portador colide com outro portador de mesma carga.

Em muitos casos, não temos um único processo de espalhamento presente durante o transporte de um portador. Se vários processos de espalhamento são independentes uns dos outros, a taxa de espalhamento total é a soma das taxas de espalhamentos individuais, conhecida como regra de Mathieson [Bhattacharya, 1994].

Então:

$$\frac{1}{\tau_{tot}} = \sum_i \frac{1}{\tau_i}. \quad (2.10)$$

Se as várias taxas de espalhamento têm a mesma dependência com a energia, então a mobilidade é simplesmente dada por:

$$\frac{1}{\mu_{tot}} = \sum_i \frac{1}{\mu_i}. \quad (2.11)$$

Os processos dominantes para a mobilidade do portador são os espalhamentos por fônons da rede e espalhamento por impurezas. Aplicando a equação para a mobilidade efetiva teremos:

$$\frac{1}{\mu_C} = \frac{1}{\mu_R} + \frac{1}{\mu_I}. \quad (2.12)$$

## 2.3 - Densidade de estados

### 2.3.1 - Densidade de estados em um material *bulk* (3D)

Sejam os elétrons dentro das bandas permitidas como um gás de férmions livres para se difundir no sólido ignorando, em primeira instância, as interações com o potencial do caroço iônico.

Nesta aproximação, a energia total dos elétrons é somente cinética:

$$E = \frac{\mathbf{P}^2}{2m} . \quad (2.13)$$

Usando a relação de De-Broglie, a energia cinética em função do vetor de onda  $\mathbf{k}$  do elétron é dada por:

$$E = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m} = \frac{\hbar^2}{2m} (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) . \quad (2.14)$$

A solução da equação de Schrödinger para um elétron livre dentro de uma caixa cúbica de aresta  $L$  com condições de contorno periódicas, tem a forma:

$$\psi_{l(\mathbf{r})} = A e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} , \quad (2.15)$$

na qual :

$$k_x = \frac{2\pi n_x}{L}; k_y = \frac{2\pi n_y}{L}; k_z = \frac{2\pi n_z}{L} \quad (2.16)$$

e  $n_x, n_y, n_z$  são números inteiros.

Devido à quantização no espaço dos  $\mathbf{k}$  somente certos valores de energia dos elétrons são aceitáveis como soluções das funções de onda. Porém, ao considerar a densidade de estados (a quantidade de estados que podem aparecer por unidade de volume por unidade de energia) deve-se levar em conta a degenerescência energética,

isto é, que existem mais de um tipo de combinação dos estados que levam à mesma energia.

Explicitamente o volume do espaço  $k$  será:

$$V_{3D} = \left( \frac{2\pi}{L} \right)^3. \quad (2.17)$$

O problema de encontrar o número de estados permitidos equivale a encontrar o número de estados permitidos entre duas cascas esféricas de raio  $k$  e  $k + dk$ . Em três dimensões, o volume entre estas duas cascas esféricas é dado por:

$$dV_{c3D} = 4\pi k^2 dk. \quad (2.18)$$

Para obter a densidade de estados, o volume entre estas duas cascas esféricas ( $V_{c3D}$ ) será dividido pelo volume de um simples estado ( $V_{3D}$ ), lembrando que é necessário multiplicar o resultado pelo fator 2 para levar em conta os estados criados pelo spin do elétron. Assim:

$$V_{3D} D(E)_{3D} dE = \frac{L^3 k^2 dk}{\pi^2}. \quad (2.19)$$

A equação 2.14 fornece a relação da energia com o número de onda:

$$k^2 dk = \frac{m}{\hbar^2} \left( \frac{2mE}{\hbar^2} \right)^{\frac{1}{2}} dE. \quad (2.20)$$

Considerando o volume do cubo  $L^3 = V = 1$  e fazendo as devidas substituições, a densidade de estados num sólido intrínseco em termos de energia é dada por:

$$D(E)_{3D} dE = \frac{k^2 dk}{\pi^2} = \frac{1}{2\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot E^{\frac{1}{2}} dE. \quad (2.21)$$

### 2.3.2 - Confinamento eletrônico bidimensional (2D)

Seja um tipo de junção em três camadas, na qual duas barras do mesmo material semiconductor encaixam uma terceira barra de um outro tipo de material semiconductor. Este tipo de junção chama-se *heterojunção*. Considere, agora, que o semiconductor “imprensado” possua um *gap* menor de forma que os portadores que se encontram na sua banda de valência e de condução não consigam (ou com muita dificuldade) ultrapassar a barreira criada nas extremidades pela banda proibida do semiconductor que se encontra nos extremos (Ver Fig 2.4). Denomina-se de *poço quântico* a esta região que confina o elétron restringindo sua mobilidade na direção de crescimento da junção. A dimensionalidade de um material diz respeito à direção em que os portadores podem se locomover livremente no material, portanto este é um material bidimensional (2D).

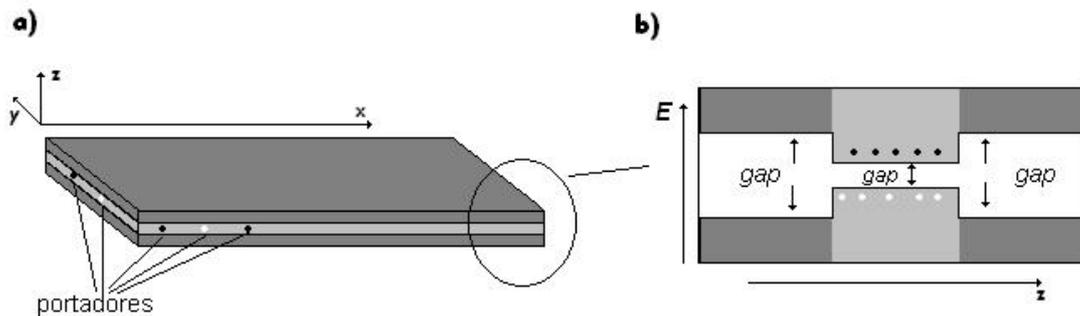


Figura 2.4 – (a) Heteroestrutura onde  $x$  e  $y$  são as direções de locomoção das cargas. (b) Esquema de bandas da heteroestrutura.

Para este tipo de confinamento bidimensional, o número de estados permitidos é reduzido devido à restrição em uma das direções do espaço  $\mathbf{k}$ .

Portanto, nestas condições, o espaço  $\mathbf{k}$  ocupa uma área:

$$V_{2D} = \left( \frac{2\pi}{L} \right)^2. \quad (2.22)$$

A área entre o número de estados permitidos entre dois anéis de raio  $k$  e  $k + dk$  é dada por:

$$dV_{c2D} = 2\pi k dk . \quad (2.23)$$

Seguindo um raciocínio análogo ao caso tridimensional, tem-se que a densidade de estados para o semiconductor intrínseco numa estrutura bidimensional é dada por:

$$V_{2D} D(E)_{2D} dE = \frac{L^2 k dk}{\pi} . \quad (2.24)$$

Fazendo  $L=1$ ,

$$D(E)_{2D} dE = \frac{k dk}{\pi^2} = \frac{m}{\pi \hbar^2} dE . \quad (2.25)$$

A densidade de estados em duas dimensões não depende diretamente da energia. Desta forma, para cada nível de energia  $E$  tem-se uma densidade de estados na forma:

$$D(E)_{2D} dE = \frac{m}{\pi \hbar^2} \sum_i H(E - E_i) dE , \quad (2.26)$$

na qual  $H(E - E_i)$  é a *função de Heaviside* que assume o valor zero quando  $E$  é menor que  $E_i$  e um quando  $E$  é maior ou igual a  $E_i$ .

### 2.3.3 - Confinamento eletrônico unidimensional (1D)

Fios quânticos são heteroestruturas que permitem o movimento dos portadores em apenas uma direção. Conseqüentemente, a densidade de estados permitidos também se alterará.

O espaço  $k$  terá o “volume” de uma linha igual à:

$$V_{1D} = \left( \frac{2\pi}{L} \right), \quad (2.27)$$

$$dV_{c1D} = 2dk. \quad (2.28)$$

Calculando a densidade de estados de forma análoga às outras dimensões, tem-se:

$$V_{1D}D(E)_{1D}dE = 2\frac{Ldk}{\pi}. \quad (2.29)$$

Fazendo  $L=1$ , a densidade de estados em uma dada energia  $E$  é igual a:

$$D(E)_{1D}dE = \frac{2dk}{\pi^2} = \frac{1}{\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{1/2} \cdot \frac{1}{E^{1/2}} dE. \quad (2.30)$$

Generalizando:

$$D(E)_{1D}dE = \frac{2dk}{\pi^2} = \frac{1}{\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{1/2} \cdot \sum_i \left( \frac{n_i H(E - E_i)}{(E - E_i)^{1/2}} \right) dE, \quad (2.31)$$

na qual  $H(E - E_i)$  é a função de *Heaviside* e  $n_i$  é um fator de degenerescência. Para estruturas quânticas com dimensões menores que 2, é possível que o mesmo nível de energia ocorra para mais de um arranjo de estados confinados e para levar isso em conta um fator  $n_i(E)$  é introduzido.

## 2.4 - Fios quânticos

O interesse no estudo das heteroestruturas do tipo fios quânticos (*Quantum Wires*) se deve basicamente a possibilidade de modificação do comportamento dos portadores ante uma restrição nos seus graus de liberdade. Sabe-se que a densidade de estados, por exemplo [ver seção 2.3 e Singh, 1993], possui a característica de sofrer

grandes modificações quando se restringe o grau de liberdade dos portadores. É esperado então que fenômenos adicionais possam se manifestar quando da restrição de graus de liberdade.

A primeira realização bem sucedida do confinamento do gás de elétrons ao movimento unidimensional (os fios quânticos) se deu nos anos 80. Até então esses sistemas eram tratados apenas como possibilidades teóricas. Foi com a utilização da técnica MBE (*Molecular Beam Epitaxy*) [Bhattacharya, 1994] associada à fotolitografia e corrosão química que em 1982 Petroff obteve a primeira estrutura de fio quântico [Petroff *et al.*, 1982]. Nessa primeira obtenção, uma super-rede de poços quânticos de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}/\text{GaAs}$  foi crescida por MBE sobre um substrato semi-isolante de GaAs orientado ao longo da direção [100] (Figura 2.5 (a)). A amostra foi então submetida a uma seqüência de microfotolitografia e corrosão (Figuras 2.5 (b) e 2.5 (c)). Um fotoresistor, consistindo de faixas de  $2\ \mu\text{m}$  de largura, foi aplicado sobre a superfície da estrutura. Essa foi então banhada em uma solução que consistiu de 1 parte de  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$  e 10 partes  $\text{H}_2\text{O}$  a  $24^\circ\text{C}$  que resultou na estrutura mostrada na Figura (2.5 (c)). O fotoresistor foi removido e a estrutura cauterizada foi limpa com um solvente químico. A amostra foi re-introduzida no reator MBE para a deposição de um *cap layer* de  $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$  ( $0,25 \leq x \leq 0,35$ ) sobre toda a estrutura (Figura 2.5 (d)).

Com o passar dos anos, novas técnicas foram desenvolvidas [Bhattacharya, 1994], mas a contribuição original de Petroff foi melhorada e ainda hoje é utilizada.

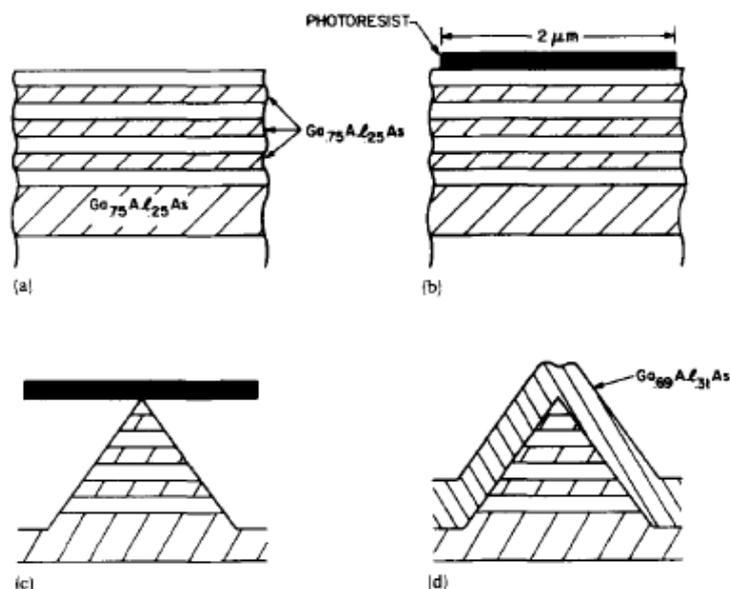


Figura 2.5 - Esquema do processo de fabricação da estrutura de fio quântico proposta por Petroff [Petroff *et al.*, 1982].

A partir dessa primeira realização, o potencial de aplicação de tais heteroestruturas se tornou evidente. Com a utilização de litografia aliada as técnicas de deposição já citadas, uma grande variedade de formas geométricas para as laterais de confinamento desses dispositivos foram desenvolvidas. Um outro caminho seguido foi à limitação do comprimento dos fios e mesmo sua incrustação em fios adjacentes levando às estruturas mistas, como fio em formato “T”, fios em formato “L” (*T-shaped, L-shaped*) [Göni *et al.*, 1992; Exner *et al.*, 1989], o que leva a uma modificação drástica no potencial de confinamento e conseqüentemente a novos fenômenos de transporte advindos disso. Observou-se, também, o surgimento de novos fenômenos quando da modificação do caráter retilíneo do fio. Fios com o formato de “S” [Wu *et al.*, 1991] demonstraram um comportamento da resistividade completamente inesperado, evidenciando surgimento de patamares de condutividade. Seguem alguns trabalhos que envolvem fios retilíneos.

Xingquan Liu e colaboradores [Liu *et al.*, 1999] cresceram fios quânticos empilhados em V (*V-groove*). Para isso um substrato semi-isolante de GaAs na direção [100] foi submetido a uma seqüência de fotolitografia e banho químico. Cinquenta períodos de tiras de largura de  $2\mu\text{m}$  espaçadas de  $2\mu\text{m}$  foram usados para conseguir empilhamentos em V.

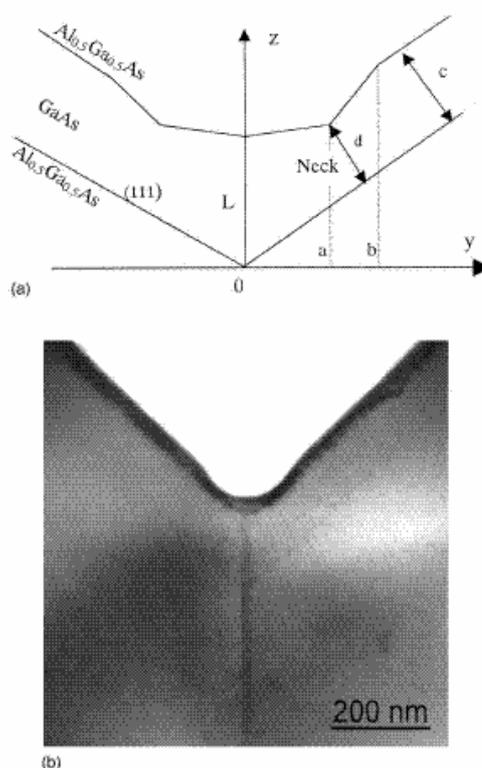


Figura 2.6 - (a) Esquema da estrutura de fio quântico. (b) Seção reta do fio obtida através de um microscópio de transmissão de elétrons (TEM) [Liu *et al.*, 1999].

Dessa forma, uma superfície tipo dente de serra (cerca de  $2,5\mu\text{m}$  de profundidade) foi formada pelo banho químico a  $0^\circ\text{C}$ . O substrato em V foi limpo com acetona, metanol e então tratado com  $\text{H}_2\text{SO}_4:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}$  (=20:1:1) por 20s. Uma seqüência de camadas de GaAs de  $0,1\mu\text{m}$ ,  $\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$  de  $1\mu\text{m}$ , GaAs de  $1\text{nm}$ ,  $\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$  de  $0,1\mu\text{m}$  e GaAs de  $200\text{nm}$  foram crescidas a  $750^\circ\text{C}$ . A Figura 2.6 (a)

mostra o esquema da estrutura obtida. A seção reta do fio quântico foi mostrada na Figura 2.6 (b) através de um microscópio de transmissão de elétrons (TEM).

Recentemente, Da-Yong e colaboradores [Da-Yong *et al.*, 2003] cresceram uma heteroestrutura de fios quânticos utilizando MBE assistido por hidrogênio atômico sobre um substrato de GaAs (311)A. Os autores compararam dois tipos de superfícies. Uma delas preparada pela técnica convencional de MBE e a outra preparada pela técnica de MBE assistida por hidrogênio atômico. As estruturas crescidas são 100 nm de camada de GaAs crescida sobre o substrato de GaAs (311)A a uma temperatura de 620°C. No crescimento, utilizando a MBE convencional, a morfologia da superfície mostra finos degraus ao longo da superfície ao contrário da crescida por MBE assistida por hidrogênio atômico cuja morfologia da superfície mostra arranjos quase-periódicos de conjunto de degraus ao longo da direção [-233]. A periodicidade lateral do conjunto de degraus é cerca de 40 nm, e a altura é cerca de 2 a 3 nm. A explicação dada pelos autores para o surgimento do conjunto de degraus é que o hidrogênio atômico muda a energia de ligação dos átomos de Ga sobre a superfície do substrato. Os átomos de Ga passam a migrar diminuindo a sua energia de ligação tendo assim a sua migração aumentada. Os finos conjuntos de degraus tornam-se maiores e mais altos com a migração dos átomos de Ga entre os conjuntos de degraus.

Na base dos conjuntos de degraus, foram crescidos fios quânticos de InGaAs sobre as estruturas do tipo degrau. A Figura 2.7 mostra a imagem de microscopia de força atômica de arranjos de fios quânticos sobre o conjunto de degraus. O substrato de GaAs (311)A foi limpo com irradiação de hidrogênio atômico a uma temperatura baixa de 300°C e então depositado com 100 nm de GaAs para formar os conjuntos de degraus maiores a temperatura do substrato de 620°C. Seguiu-se com a deposição de 3,5 nm de  $\text{In}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}$  com a taxa de crescimento de As de  $0,1 \mu\text{m.h}^{-1}$  e a taxa de crescimento de

GaAs de  $0,4 \mu\text{m.h}^{-1}$  a uma temperatura de substrato de  $540^\circ\text{C}$ . Arranjos de fios quânticos auto-organizados formaram-se ao longo da direção  $[-233]$ . A altura dos fios quânticos é cerca de 8 nm. O arranjo dos fios quânticos é formado pela auto-organização o que para os autores garante um crescimento de melhor qualidade quando comparado com fios quânticos, obtidos por corrosão e litografia sobre a superfície do substrato. Essa seria uma nova maneira de obter dispositivos quânticos manufacturados uni-dimensionais.

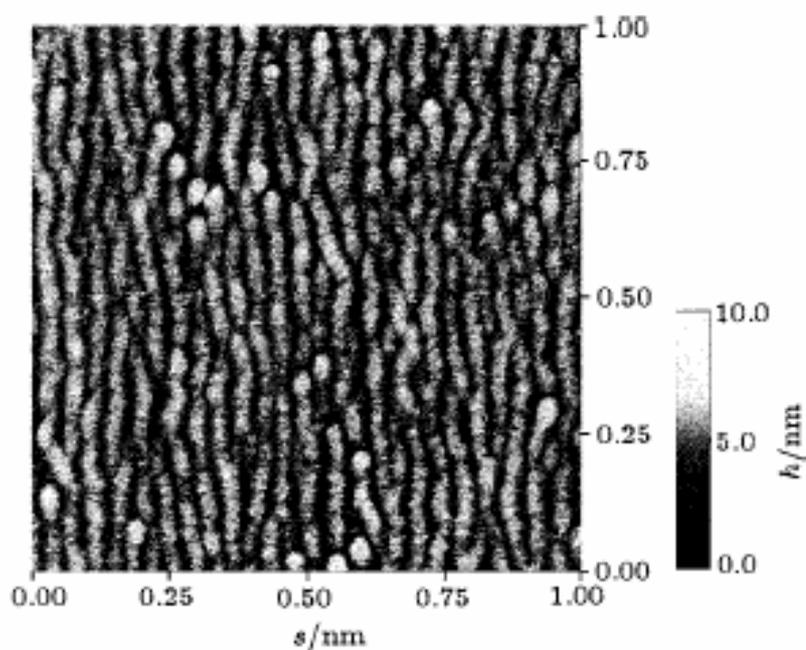


Figura 2.7 - Fios quânticos de InGaAs arranjados ordenadamente sobre conjunto de degraus por MBE assistida por hidrogênio atômico [Da-Yong *et al.*, 2003].

Fios quânticos também podem ser obtidos a partir do uso de substratos vicinais ou desorientados. A superfície dos substratos é constituída de degraus/terraços dispostos regularmente em forma de escada, formando uma rede ordenada. A largura de cada terraço é definida pelo ângulo de desorientação em relação a uma determinada direção perpendicular à direção de crescimento. Quanto maior for o ângulo de desorientação,

menor será a largura dos terraços. Assim quanto mais degraus, menor será a quantidade do novo material depositada em relação a um substrato com menor ângulo de desorientação. A presença de uma alta densidade de terraços nas superfícies vicinais usualmente muda o modo de crescimento de nucleação, com a formação de ilhas, para *step-flow* (crescimento a partir da borda do degrau) o que possibilita a obtenção de diferentes heteroestruturas, inclusive a de fios quânticos [Cox *et al.*, 1990; Morais *et al.*, 1989]. No crescimento por nucleação a primeira camada epitaxial preenche completamente a superfície do substrato antes de crescer a próxima camada. Isto ocorre devida à energia de migração dos átomos que chegam à superfície do substrato. Esta energia é proporcional à temperatura do substrato e assim eles se difundem na superfície do substrato até serem incorporados por um sítio da rede, cuja energia difere de um outro sítio pelo número de ligações disponíveis. Assim, com a chegada do próximo átomo existe a probabilidade deste encontrar o primeiro e ali se ligar. Com o passar do tempo são formadas ilhas que se unem, formando a primeira monocamada. No crescimento epitaxial sobre substratos desorientados ou vicinais, os átomos que incidem sobre a superfície dos terraços podem ter, dependendo da temperatura do substrato, um alcance de difusão maior ou menor que a largura do terraço. Nesta situação, os átomos migram em direção aos degraus e são incorporados nas bordas dos mesmos. Neste caso, o crescimento é por avanço de degraus também denominado *step-flow*. Este modo de crescimento não favorece a formação de ilhas sobre os terraços, o que proporciona superfícies menos rugosas. Entretanto, se o comprimento médio dos terraços for maior que o comprimento de difusão, o crescimento passa a ser por nucleação de ilhas. Uma vez que a interface entre os dois sólidos não é completamente lisa em toda sua extensão lateral, a presença da rugosidade interfacial influencia a qualidade do filme crescido. De

modo que a morfologia da interface torna-se progressivamente mais desigual com o crescimento.

Para descrever o comportamento do crescimento por avanço de degrau Cox e colaboradores [Cox et al., 1990] propuseram um modelo onde o elemento essencial é a existência de duas velocidades de crescimento lateral. Uma velocidade de crescimento para heteroepitaxia e outra para cada homoepitaxia. Análises do deslocamento de energia da fotoluminescência versus o tempo de crescimento para estruturas quânticas de InGaAs de 1 a 4 monocamadas sugeriram que uma primeira monocamada tem velocidades de crescimento lateral cerca de duas vezes mais rápido do que monocamadas sucessivas. No caso de heteroestruturas de InGaAs/InP foi verificado que o InGaAs cresce mais rápido sobre InP do que sobre InGaAs. Assim, para o crescimento de InGaAs (A) sobre InP (B), tem-se que a velocidade de crescimento de A sobre B ( $V_{AB}$ ) é maior que a velocidade de crescimento de A sobre A ( $V_{AA}$ ). As conseqüências para o comportamento *step-flow* neste processo pode ser mostrado esquematicamente na Figura 2.8 (a). Quando a camada superior de InGaAs ultrapassa a posição original do degrau, o crescimento se dá sobre a camada inferior de InGaAs e sua velocidade cai abruptamente para  $V_{AA}$ . Quando o degrau inferior passa pela posição inicial do próximo degrau bem mais baixo (não mostrado), sua velocidade também será reduzida para  $V_{AA}$ . Para o crescimento de InP sobre InGaAs, onde  $V_{BA} < V_{BB}$ , passando o próximo degrau a velocidade de crescimento lateral é aumentada para  $V_{BB}$ . Como mostrado na Figura 2.8 (b). Neste caso o degrau superior pode ultrapassar o degrau inferior, como indicado pela linha pontilhada. Contudo, como os degraus convergem eles mudam a orientação local da superfície, e por sua vez, pode alterar a taxa de crescimento de acordo com a nova energia superficial local. Quando o degrau torna-se suficientemente próximo ao degrau inferior, sua velocidade lateral cairá para a mesma

velocidade deste degrau e torna-se sincronizada com ela. Esta distância de aproximação mínima corresponde ao ângulo macroscópico da borda do degrau,  $\beta$ , como medido na Figura 2.8 (b).

Um programa computacional foi escrito para determinar as predições deste modelo. Uma superfície vicinal foi definida especificando as posições do degrau ao longo do eixo horizontal. O crescimento foi simulado permitindo que cada degrau avance na velocidade apropriada  $V_{AB}$ ,  $V_{AA}$ ,  $V_{BA}$ , ou  $V_{BB}$  de acordo com a composição do degrau e do material subjacente, sujeita à restrição de que nenhum degrau poderia vir com uma distância mínima do degrau em frente dele (corresponde ao ângulo  $\beta$  da Figura 2.8 (b)). Alguns estudos indicam o uso de superfície desorientada para o crescimento de fios quânticos por meio do agrupamento de degraus.

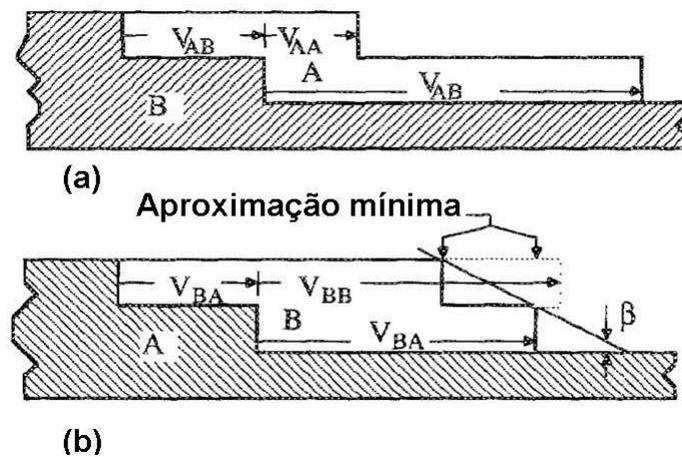


Figura 2.8 - (a) Modo de crescimento *step-flow* para o material A (InGaAs) sobre o material B (InP) onde  $V_{AB} > V_{AA}$ . (b) Modo de crescimento *step-flow* para B sobre A onde  $V_{BA} < V_{BB}$ . Em (b)  $V_{BB}$  cai para  $V_{BA}$  onde o crescimento frontal alcança a distância de aproximação mínima para o próximo degrau, correspondendo ao ângulo  $\beta$  [Cox *et al.*, 1990].

## 2.5 - Crescimento epitaxial por VLE

A técnica de Epitaxia de Levitação de Vapor (VLE) é assim chamada porque o substrato é levitado (suspenso acima do aparato de crescimento sem contato físico) pelos vapores de crescimento durante o processo epitaxial.

Vapores de crescimento carregam gás e dopantes, depois de pré-misturados, são introduzidos dentro de uma câmara com o topo poroso. A mistura gasosa passa através do disco poroso encontrando a superfície inferior do substrato e escapa radialmente para a periferia do substrato como mostrado na Figura 2.9 (a). A pressão criada pelo gás, devido à resistência encontrada por ele ao movimentar radialmente através do pequeno espaço entre o substrato e o disco poroso, levanta o substrato até a pressão total, integrada acima da área do substrato, igualar ao peso do substrato. Para a taxa de fluxo nominal, o substrato é levitado a uma fração de um milímetro acima do poro do disco.

O grande avanço da técnica de crescimento VLE, todavia, foi alcançado com a colocação de uma segunda câmara adjacente à primeira e no mesmo plano comum à superfície como mostra a Figura 2.9 (b). Cada câmara pode receber reagentes, dopantes, gases de transporte independentemente do outro. Uma camada epitaxial pode ser crescida sobre cada câmara enquanto fluxos para a camada de composições diferentes são estabilizados através da outra câmara. Não há perigo de contaminação devido à alta velocidade de escape do gás para o filme periférico prevenindo o gás ambiente em torno do filme de misturar com os vapores de crescimento ativos antes da deposição ou contaminação da camada epitaxial, exceto da extremidade. O substrato pode ser movido rapidamente de uma câmara para a outra através de mudanças composicionais extremamente abruptas entre camadas de estruturas de multi-camadas.

O princípio de levitação pode ser usado para transportar o filme entre as regiões de crescimento e o substrato da área resistente do sistema epitaxial. Um caminho para a levitação com uma superfície plana no mesmo plano que a superfície porosa da câmara de crescimento, como ilustrado na Figura 2.10, segue para a transferência de substrato. O fluxo do gás através de uma série de pequenos buracos localizados no centro do caminho produz uma pressão de levitação de uma maneira similar àquela usada durante o crescimento. O filme pode ser movido suavemente também, entre as câmaras de crescimento enquanto ela está flutuante sobre o gás amortecedor.

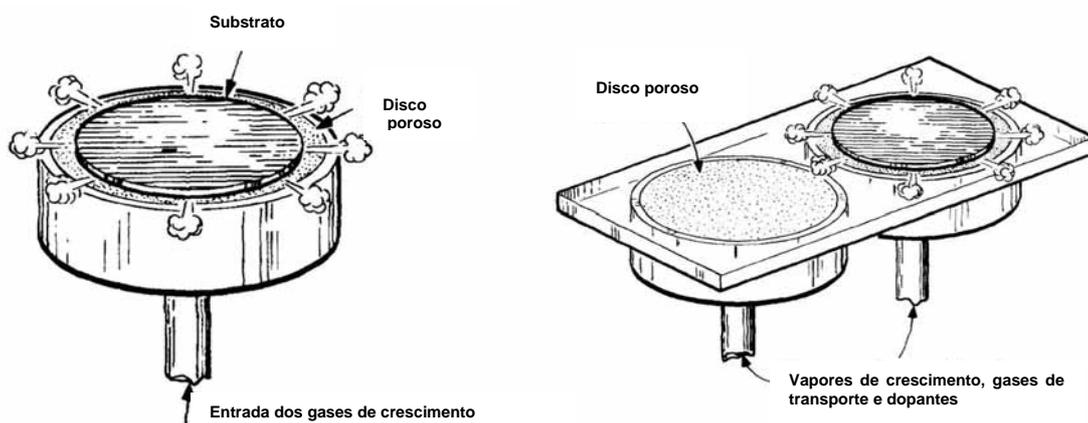


Figura 2.9 - (a) Câmara de crescimento com substrato. (b) Duas câmaras de crescimento coplanares sobre uma superfície comum.

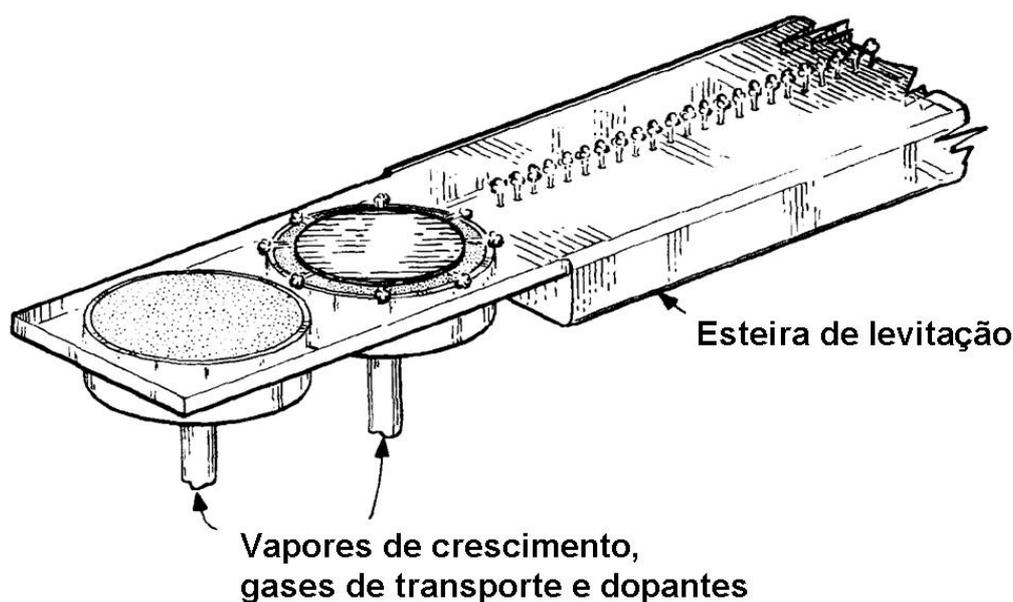


Figura 2.10 - Duas câmaras de crescimento com esteira de levitação.

## 2.6 - Sistemas fractais

Ao observar-se a natureza, verifica-se que o seu aspecto é tão irregular e fragmentado que não poderia ser descrito pela geometria euclidiana. O leito oceânico não possui uma barreira regular, as montanhas não são exatamente piramidais ou cônicas, as estrelas não estão sempre situadas a uma distância uniforme. A natureza exibe um alto grau de complexidade. O número de escalas distintas de comprimento de padrões naturais é, para todos os propósitos práticos, considerado infinito. Foi diante desse quadro que Mandelbrot [Mandelbrot, 1977], na tentativa de dar uma resposta a esse desafio colocado pela natureza, desenvolveu uma nova geometria da natureza, a qual denominou fractal. Os fractais mais proveitosos envolvem probabilidades e tanto as suas regularidades como as irregularidades são estatísticas. Nos fractais, o grau de

irregularidade e/ou fragmentação é idêntico em todas as escalas, ou seja, geometricamente, isto implica a propriedade fractal de que a trajetória, quando vista sob várias resoluções diferentes será auto-similar.

Os sistemas fractais são descritos por processos aleatórios invariantes de escala. Isto significa que a trajetória possuirá várias escalas, mas nenhuma escala será característica e dominará o processo. Exemplos deste tipo de processo são a dinâmica de fluidos turbulentos e do caminho aleatório (do inglês *random-walk* -RW) para uma partícula e o movimento browniano. Nestes processos o valor quadrático médio da distribuição das distâncias dos saltos,  $\langle R^2 \rangle$ , é infinita ( $\langle R^2 \rangle$  representa o segundo momento da distribuição das distâncias de saltos,  $p(R)$ ). Um segundo momento finito estabeleceria uma escala e levaria a um comportamento gaussiano. O RW invariante de escala é equivalente a uma adição de variáveis aleatórias com segundo momento infinito.

Paul Lévy, nas décadas de 1920 e 1930, desenvolveu uma matemática geral para determinar distribuições de probabilidade para a adição de variáveis aleatórias com momentos infinitos [Lévy, 1937]. O estudo de Lévy a respeito dos processos em que  $\langle R^2 \rangle = \infty$  pode ser dado pela relação dependente do tempo da forma [Lévy, 1937]:

$$\langle R^2 \rangle \approx t^\gamma \quad (2.32)$$

onde  $t$  é o tempo e  $\gamma$  é uma constante. No início, as idéias de Lévy não pareciam ter correspondência com tais processos físicos, pois o tempo não entrava explicitamente no tratamento original de Lévy. Para fazer esta conexão, deve ser levado em conta o tempo necessário para completar um salto no RW. Shlesinger e colaboradores [Shlesinger *et al.*, 1993], em um artigo de revisão, mostram como as noções abstratas de espaço e

tempos fractais aparecem naturalmente em sistemas dinâmicos caóticos levando a propriedades de transporte anômalo. Sistemas hamiltonianos caóticos estão fora do domínio do movimento browniano, e sua estatística é refletida por valores de  $\gamma$  entre 1 (movimento browniano) e 2 (movimento balístico). A chamada difusão turbulenta é caracterizada por um valor  $\gamma = 3$ .

Lévy generalizou o teorema do limite central [Lévy, 1937; Reif, 1965] para levar em conta a existência de momentos infinitos. Ele considerou a distribuição de somas de variáveis aleatórias com momentos infinitos. Podem-se somar variáveis aleatórias  $\chi_i$  distribuídas identicamente. O valor de cada variável  $\chi_i$  pode ser pensado como um passo em um RW. Cada comprimento do salto é escolhido a partir de uma distribuição  $p(x)$ . Lévy questionou sob que condições a distribuição da soma de  $n$  passos  $p_n(x)$  (a menos de fatores de escala) seria igual à distribuição de qualquer termo na soma,  $p(x)$ . Este questionamento trata-se basicamente da questão dos fractais, ou seja, quando o todo (a soma) se parece com uma de suas partes. Portanto, se a distribuição dos  $\chi_i$  é dada por:

$$p(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp(-x^2/2), \quad (2.33)$$

a distribuição dos  $p_n(x)$ , a soma apropriadamente escalonada  $(n)^{-1/2} \sum_i \chi_i$ , é dada por:

$$p_n(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi n}} \exp(-x^2/2n). \quad (2.34)$$

Assim,  $p(x)$  e  $p_n(x)$  tem a mesma distribuição a menos do fator de escala  $n$ . No espaço de Fourier  $p_n(k)$  tem a forma:

$$p_n(k) = \int_{-\infty}^{\infty} p_n(x) \exp(ikx) dx = \exp(-nk^2/2). \quad (2.35)$$

O segundo momento de  $p_n(x)$  é dado por  $-\partial^2 p_n(k=0)/\partial k^2 = n$ . Lévy descobriu a existência de outras soluções tais que  $p_n(x)$  e  $p(x)$  teriam a mesma distribuição. Ele descobriu que era o caso quando,

$$p_n(k) = \exp(-Cn|k|^\alpha) \quad (\text{para } 0 < \alpha \leq 2). \quad (2.36)$$

O caso em que  $\alpha = 2$  é o caso gaussiano usual. Para  $\alpha \leq 2$ ,  $\langle x^2 \rangle = -\partial^2 p_n(k=0)/\partial k^2$  diverge. Estes RW's cujos passos têm segundo momento infinito são conhecidos como vôos de Lévy. Assim, torna-se claro que para se ter distribuições invariantes de escala, é necessário somar variáveis aleatórias sem escala. Aplicando uma transformada de Fourier inversa à equação (2.36) obtém-se no limite assintótico ( $x \rightarrow \infty$ ),

$$p_n(x) \approx A/x^{1+\alpha}, \quad (2.37).$$

na qual a cauda da lei de potência da distribuição indica a ausência de uma escala típica, diferentemente do que acontece com a distribuição gaussiana, onde  $\alpha = 2$ . Para  $\alpha < 2$  as somas são dominadas pelos maiores termos, e, portanto por eventos raros e intermitentes. O expoente  $\alpha$  dá a dimensão do conjunto de pontos visitados por um vôo de Lévy. Para vôos de Lévy a dimensão é fractal ( $0 < \alpha < 2$ ).

## 2.7 - Difusão de portadores em semicondutores

### 2.7.1 - Difusão normal

Quando portadores de carga são criados de maneira não uniforme em um material, o gradiente de concentração resultante produz movimento de portadores. Este é denominado difusão e ocorre no sentido da região de maior para a de menor concentração. As propriedades que regem o movimento destes portadores estão intimamente relacionadas às propriedades elétricas, ópticas e/ou estruturais do material estudado. Sendo assim, o estudo da difusão de portadores fornece uma série de informações importantes.

Na difusão convencional de portadores a equação de transporte de elétrons e buracos foto gerados no semicondutor surge a partir da equação de continuidade que tem a seguinte forma:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{j} + \frac{\partial n(\vec{r}, t)}{\partial t} = 0, \quad (2.38)$$

na qual a corrente total de difusão dos portadores é dada pela Lei de Fick:

$$\vec{j} = -D\vec{\nabla}n + \vec{v}n. \quad (2.39)$$

Aqui  $D$  é o coeficiente de difusão de Einstein e é dada por  $D = \mu \left( \frac{KT}{e} \right)$ ,  $\mu$  e  $v$  são, respectivamente, a mobilidade e a velocidade de deriva dos portadores, que no caso deste trabalho é igual a zero.

Combinando as equações (2.38) e (2.39) chega-se à equação da difusão que é dada por:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D\nabla^2 n. \quad (2.40)$$

### 2.7.2 - Difusão anômala

O termo difusão anômala é extremamente geral e pode significar que a anomalia se encontra não no caráter espacial da distribuição do fluido que difunde, mas em como a dinâmica dessa difusão ocorre [Vasconcellos *et al.*, 2006]. Usualmente se identifica a difusão anômala pela não obediência do deslocamento quadrático médio ( $\langle r^2(t) \rangle$ ) à equação de Einstein, dada por:

$$\langle r^2(t) \rangle = 2dDt, \quad (2.41)$$

na qual  $d$  e  $D$  denotam, respectivamente, a dimensionalidade do sistema e o coeficiente de difusão. A característica que pode denunciar o caráter anômalo da difusão tem relação com a morfologia do ambiente onde ocorre o fenômeno. Se a morfologia das barreiras que confinam um gás de portadores for fractal sua difusão poderá também ser anômala. Isso já foi matematicamente demonstrado para redes fractais e para diferentes dimensionalidades [Ben-Avraham e Havlin, 2000].

Em 1998, Chaves propôs uma generalização para a lei de Fick [Chaves, 1998]. Esta proposta se deu, ao observar-se que na natureza existem sistemas físicos que não obedecem a uma distribuição de probabilidade gaussiana. Sendo assim, com a lei de Fick generalizada, foi obtida uma equação de derivada fractal a qual gera a distribuição de Lévy.

A difusão normal é um processo importante descrito por uma distribuição gaussiana. Para sistemas unidimensionais a densidade de probabilidade  $P(x,t)$  de uma

partícula ser encontrada na posição  $x$  num tempo  $t$  inicialmente em  $t=0$  e  $x=0$  é dada por:

$$P(x,t) = (4\pi Dt)^{-1/2} \exp(-x^2/4Dt), \quad (2.42)$$

na qual  $D$  é a constante de difusão de Einstein.

Um aspecto importante do processo de difusão normal é a relação linear entre o deslocamento quadrático e o tempo, isto é,  $\langle x^2 \rangle = 2Dt$ . Na difusão anômala deveria-se encontrar  $\langle x^2 \rangle \propto t^\gamma$ ,  $\gamma \neq 1$  e, além disso,  $\langle x^2 \rangle$  deveria ser uma integral divergente para  $t \neq 0$ .

A difusão normal é gerada da solução da equação Fokker-Planck:

$$\partial_t P(x,t) = -v \partial_x P(x,t) + D \partial_x^2 P(x,t), \quad (2.43)$$

para a condição inicial  $P(x,0) = \delta(x)$ , sendo  $v$  a velocidade de deriva das partículas com valores diferentes de zero.

Sendo assim, Chaves [Chaves, 1998] propôs uma generalização da equação (2.43) usando derivada fractal  $\partial_x^\alpha$ ,  $1 < \alpha \leq 2$ , como um gerador do “vôo” de Lévy em substituição à derivada  $\partial_x^2$ .

Em contraste ao processo de Lévy, a equação da difusão normal é bem compreendida e pode ser deduzida da estatística de Boltzmann-Gibbs.

Na proposta de generalização de Chaves a lei de Fick tem a forma:

$$\vec{j} = \frac{-D}{2} (\vec{\nabla}_r^{\alpha-1} - \vec{\nabla}_{-r}^{\alpha-1}) n + \vec{v}n \quad 1 < \alpha \leq 2. \quad (2.44)$$

Note que para  $\alpha=2$ , obtém-se o fluxo de corrente dado pela equação (2.39). Combinando-se as equações (2.38) e (2.44), obtém-se uma equação para a difusão fractal:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{D}{2} \left( \nabla_r^\alpha + \nabla_{-r}^\alpha \right) n - \vec{v} \cdot \vec{\nabla} n, \quad (2.45)$$

a qual em uma dimensão, torna-se:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{D}{2} \left( \partial_x^\alpha - \partial_{-x}^\alpha \right) n - v \frac{\partial n}{\partial x}. \quad (2.46)$$

A equação (2.46) pode ser resolvida usando a transformada de Fourier:

$$n(x, t) = \int_0^\infty \frac{dK}{\pi} \phi(K, t) e^{iKx} \quad (2.47)$$

cuja solução é:

$$n(x, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx'}{2\pi} n(x', 0) P(x - x', t), \quad (2.48)$$

na qual a densidade de probabilidade  $P(x, t)$  é:

$$P(x, t) = \int \frac{dK}{\pi} \cos K(x - vt) \times \exp \left[ \cos \left( \alpha \frac{\pi}{2} \right) Dt K^\alpha \right]. \quad (2.49)$$

Esta é a distribuição de Lévy. A condição  $\alpha > 1$  na equação (2.44) garante a convergência da integral na equação (2.49). A condição  $\alpha \leq 2$  é necessária para garantir que  $P(x, t) \geq 0$ .

### 2.7.3 - Difusão anômala: resultados da literatura.

Chaves [Chaves, 1998], em seu artigo também demonstrou que a difusão não-fickiana associada aos vãos de Lévy em um meio que não possui simetria de inversão espacial pode ser assimétrica. Com base nesta teoria, no ano 2000, Monte e colaboradores [Monte *et al.*, 2000] obtiveram a primeira evidência experimental de que existe a difusão assimétrica de portadores em poços quânticos (InGaAs/InP). Seus resultados mostraram que a difusão é assimétrica quando o substrato sobre o qual o poço é crescido está ligeiramente inclinado. A Figura 2.11 mostra que a difusão de portadores nas camadas do poço quântico, cuja normal está orientada ao longo da direção [001], é claramente distinta da difusão no poço quântico crescido em substrato inclinado de  $2^\circ$  fora da direção [001], no sentido [111].

No primeiro caso, a difusão de portadores é axialmente simétrica e descrita por uma distribuição gaussiana [Smith *et al.*, 1988]; já no segundo caso a difusão é assimétrica e descrita pela distribuição de Lévy [del-Castilho-Negrete *et al.*, 2003]. A Figura 2.12 mostra o perfil da raiz quadrada da intensidade da fotoluminescência para a heteroestrutura crescida na direção [001], nas direções (a)  $x//[1-10]$  e (b)  $y//[110]$ .

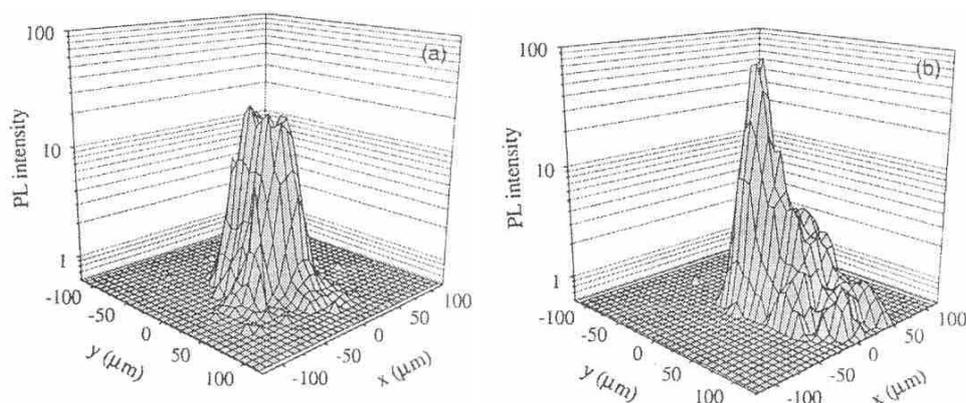


Figura 2.11 - Perfil da intensidade de fotoluminescência para as amostras de poços quânticos crescidos sobre substrato normal (a) e inclinado de  $2^\circ$  fora da direção [001] (b) [Monte *et al.*, 2000].

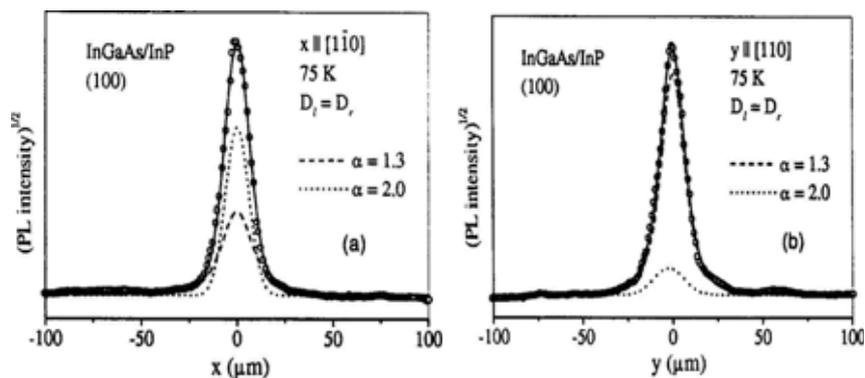


Figura 2.12 - Perfil da raiz quadrada da intensidade fotoluminescente para a heteroestrutura crescida na direção [001], nas direções (a)  $x//[1-10]$  e (b)  $y//[110]$ . [Monte *et al.*, 2000].

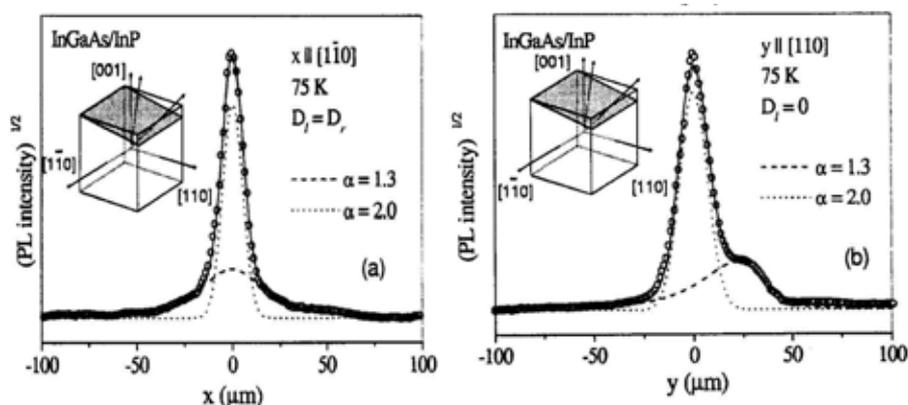


Figura 2.13 - Perfis da raiz quadrada da intensidade fotoluminescente para a heteroestrutura crescida na direção  $2^\circ$  fora da direção [001], nas direções (a)  $x//[1-10]$  e (b)  $y//[110]$ . [Monte *et al.*, 2000].

A Figura 2.13 mostra o perfil da raiz quadrada da intensidade da fotoluminescência para a heteroestrutura crescida em substrato de InP inclinado de  $2^\circ$  fora da direção [001], no sentido [111], nas direções (a)  $x//[1-10]$  e (b)  $y//[110]$ . Observe que para a direção  $y//[110]$  o perfil de PL é composto de duas estruturas, uma simétrica e outra assimétrica.

Considerando que a intensidade da fotoluminescência é proporcional ao quadrado da densidade dos portadores, as curvas mostradas nas Figuras 2.12 e 2.13

representam os perfis da densidade dos portadores. As linhas sólidas, nas Figuras 2.12 e 2.13, mostram os dados ajustados com as duas distribuições de Lévy. Uma das curvas foi ajustada com o expoente de  $\alpha = 2$ , que corresponde à distribuição gaussiana, a outra tem o expoente  $\alpha = 1,3$ , que corresponde à distribuição de Lévy. Na Figura 2.12, as duas distribuições de Lévy são simétricas. Todavia, na Figura 2.13, para a difusão perpendicular a direção [1-10], a distribuição de Lévy é assimétrica, como definido em [Chaves, 1998].

O trabalho experimental de Monte e colaboradores de 2000 serviu como motivação para outros trabalhos experimentais e teóricos [Monte et al., 2002; Wells et al., 2005; Borges et al., 2006]. No campo teórico houve tentativas de buscar explicações alternativas para o fenômeno da difusão assimétrica que explicasse seus mecanismos físicos. Recentemente, Wells e colaboradores [Wells et al., 2005], com intuito de melhor entender o problema, resolveu a estrutura eletrônica do sistema e através de um modelo *tight-binding*, procuraram estudar a distribuição de portadores. A explicação que os autores encontraram para o fenômeno foi a inserção de uma anisotropia adicional no sistema, via aplicação de um campo externo. Concluíram que mesmo realizando o cálculo com a estrutura previamente descrita os resultados obtidos apresentavam sempre um perfil de distribuição simétrico. Resultando disso a necessidade da inclusão da hipótese *ad hoc* da existência de um campo elétrico que quebrasse a simetria de inversão do sistema. Com o intuito de simular a interface rugosa, supostamente fractal, os autores recobriram o poço com um *background* de impurezas para simular o comportamento espalhador. Utilizaram duas distribuições de impurezas uma caótica (desordenada) e outra fractal. A primeira distribuição de impurezas foi dada por uma distribuição geométrica, cujo decaimento é exponencial e por isso também será chamada de randômica (aleatória); no segundo caso a distribuição foi descrita por um

decaimento do tipo lei de potência, também chamada de fractal. Com a diagonalização deste hamiltoniano obtiveram-se os auto-vetores e autovalores necessários para a construção das curvas de difusão, que o autor interpretou como a distribuição de probabilidades de encontrar a partícula em cada sítio da cadeia.

Para obter características mais gerais possíveis, sem depender de realizações específicas, os autores propuseram uma média sobre configurações distintas de desordem. Realizaram o cálculo da difusão para uma dada distribuição, obtendo  $P_N^{(1)}(t)$ , onde  $N$  é o sítio da cadeia. Procederam ao cálculo para outras distribuições obtendo  $P_N^{(1)}(t)$ ,  $P_N^{(2)}(t)$ ...  $P_N^{(l)}(t)$ . Calcularam então a média sobre estas distribuições,

$$\overline{P_N(t)} = C \sum_K P_N^{(K)}(t), \quad (2.50)$$

sendo  $C$  uma constante de normalização. Com este procedimento os autores encontraram um processo difusivo similar à situação experimental [Monte *et al.*, 2000], onde o perfil de difusão é estudado através de medidas de intensidade de fotoluminescência, ver Figura 2.14. Para cada valor de  $N$  fixo, sendo os eventos não coerentes, a média acima pode ser equivalente ao resultado de uma medida de intensidade de fotoluminescência (densidade de partículas).

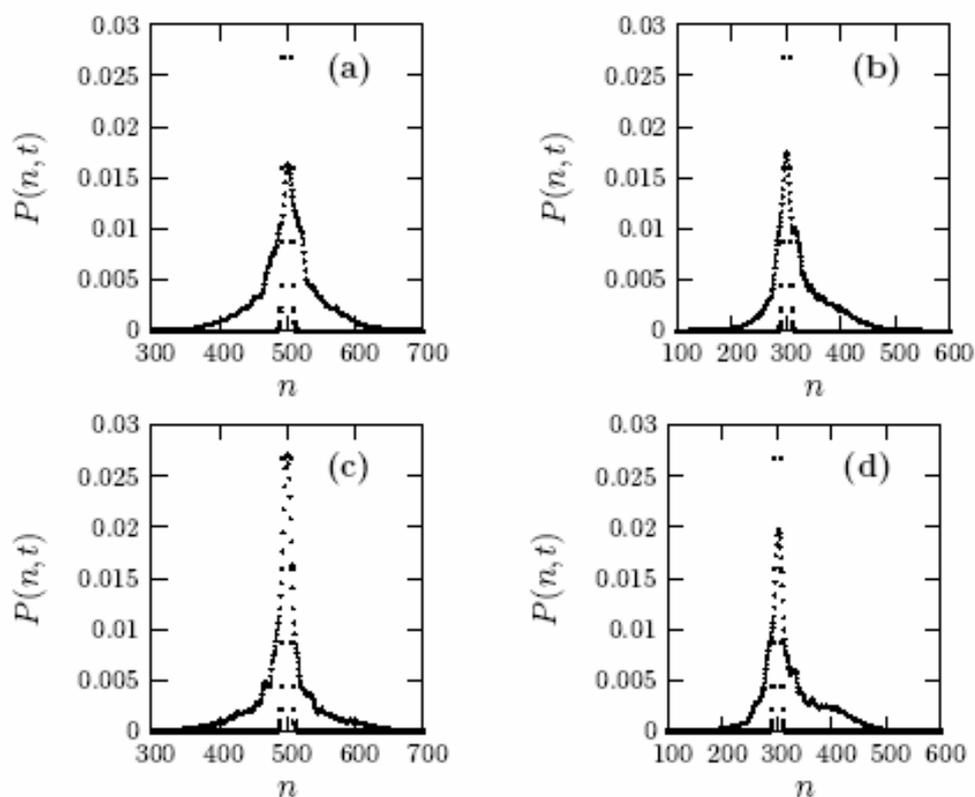


Figura 2.14 - Comparação entre os casos estudados por Wells e colaboradores. Sistema randômico sem campo elétrico (a) e com campo elétrico (b); Sistema fractal sem campo elétrico (c) e com campo elétrico (d). Surgimento de difusão assimétrica em um sistema com desordem e anisotrópico. A distribuição inicial está representada na figura por pontos [Wells *et al.*, 2005].

Vale ressaltar que no trabalho de Wells e colaboradores, o que provoca a anisotropia observada na Figura 2.14 é o campo elétrico aplicado em um meio desordenado. O papel do campo elétrico é quebrar a simetria de inversão espacial o que favoreceu o aparecimento da assimetria. Nesse sentido, a teoria utilizada pelos autores, embora engenhosa, não pode ser utilizada para explicar especificamente a difusão assimétrica no sistema aqui estudado, uma vez que para este sistema não existe um campo elétrico que possa provocar o deslocamento dos portadores.

Portanto, uma das principais motivações deste trabalho é dar uma explicação para o fenômeno físico encontrado pela primeira vez por Monte e colaboradores em 2000 [Monte *et. al.*, 2000].

## CAPÍTULO 3

### Caracterização e Amostras

Os resultados experimentais apresentados neste trabalho foram obtidos por duas técnicas experimentais complementares. A Fotoluminescência (PL) (do inglês *photoluminescence*) resolvida espacialmente e a Fotoluminescência resolvida espectralmente. Neste último caso, serão apresentados alguns resultados onde o *spot* de excitação tem formato gaussiano com dimensões micrométricas (esta configuração será aqui denominada micro-PL) e outros onde o *spot* de excitação foi obtido com o uso de uma lente cilíndrica. Detalhes das técnicas experimentais são descritos na seção 3.1.

Não seção 3.2, serão apresentados os detalhes a respeito do crescimento das heteroestruturas aqui estudadas e suas características principais.

### 3.1 – Fotoluminescência resolvida espacialmente

#### 3.1.1 - MSST

No experimento de Fotoluminescência resolvida espacialmente foi utilizada a técnica de varredura superficial da microluminescência também chamada de MSST- *Microluminescence Surface Scan Technique* - desenvolvida em 1997 por Monte e colaboradores [Monte *et al.*, 1997]. Na MSST, um feixe de laser focalizado na superfície do material, gera um plasma de elétrons e buracos. Como a massa dos elétrons é menor que a dos buracos, os elétrons tendem a mover-se para fora da região de excitação mais rapidamente que os buracos. Entretanto, a polarização resultante deste processo impede este movimento, fazendo com que a população de elétrons-buracos expanda coletivamente, tal como um plasma neutro de dois componentes. Este movimento depende de uma série de fatores, sendo que os principais são: a mobilidade ( $\mu$ ), o tempo de vida ( $\tau$ ) e a densidade dos portadores. Tais fatores por sua vez dependem de outros, como: temperatura, excitação óptica e concentração de impurezas, etc..

Concomitantemente ao processo de difusão, a presença dos pares elétrons-buracos gera um processo de recombinação que pode ser radiativa (com emissão de luz) ou não. Desta maneira, à medida que os portadores difundem-se para fora da região de excitação recombinam-se, diminuindo, portanto a densidade de pares elétrons-buracos e limitando a região de difusão.

A mobilidade está relacionada com o coeficiente de difusão através da relação de Einstein:  $D_{n,p} = \mu_{n,p} (K_B T / e)$  onde  $n$  é a densidade de elétrons e  $p$  a densidade de buracos. Como o produto do tempo de vida ( $\tau$ ) pelo coeficiente de difusão ( $D$ ) é

proporcional ao comprimento de difusão ambipolar ( $L$ ) e este é proporcional ao comprimento da região de difusão, basta apenas medir o comprimento da região de difusão em função de alguns parâmetros (temperatura, excitação óptica) para que possamos ter acesso a importantes informações sobre os sistemas estudados.

A MSST se baseia na análise da expansão da região de luminescência com relação à região de excitação do feixe óptico na superfície da amostra. Para isso um feixe de laser é focalizado sobre a superfície da amostra em um *spot* microscópico ( $\Delta_0 \sim 5 \mu\text{m}$ ) e excita os elétrons dentro da região iluminada para um nível superior da banda de condução. Quando o tempo de vida característico do nível excitado se esgotar, os elétrons retornam para o estado fundamental, emitindo fótons com energia equivalente à energia de transição. Enquanto estão no estado excitado os portadores dentro da camada do semiconductor difundem-se para fora da região de excitação, criando ao seu redor uma área luminescente. A luz proveniente da área luminescente é coletada através da mesma objetiva usada para focalizar o feixe incidente (*backscattering*). Um *beamsplitter* é usado para redirecionar a luz proveniente da amostra para o plano da imagem da objetiva. Esta imagem é ampliada, no caso atual, de 13 vezes. A luz projetada, que inclui tanto a luminescência do cristal quanto à linha do laser, pode ser separada simplesmente usando um espectrômetro ou filtros adequados. No plano onde a imagem é formada se encontra um dispositivo de varredura que consiste de um *pinhole* e outra objetiva, tudo sobre uma plataforma XY acopladas a dois motores de passo. Por meio da técnica convencional de detecção *lock-in* e um detector de Ge resfriado a nitrogênio líquido, mede-se a intensidade da luminescência que atravessa o *pinhole* de varredura. Então, o computador registra a posição do *pinhole* e a intensidade de luz no detector. Este procedimento permite obter a imagem uni ou bidimensional da

luminescência. A precisão espacial de varredura do sistema atual é de 2 micrômetros. A representação esquemática do experimento é mostrada na Figura 3.1.

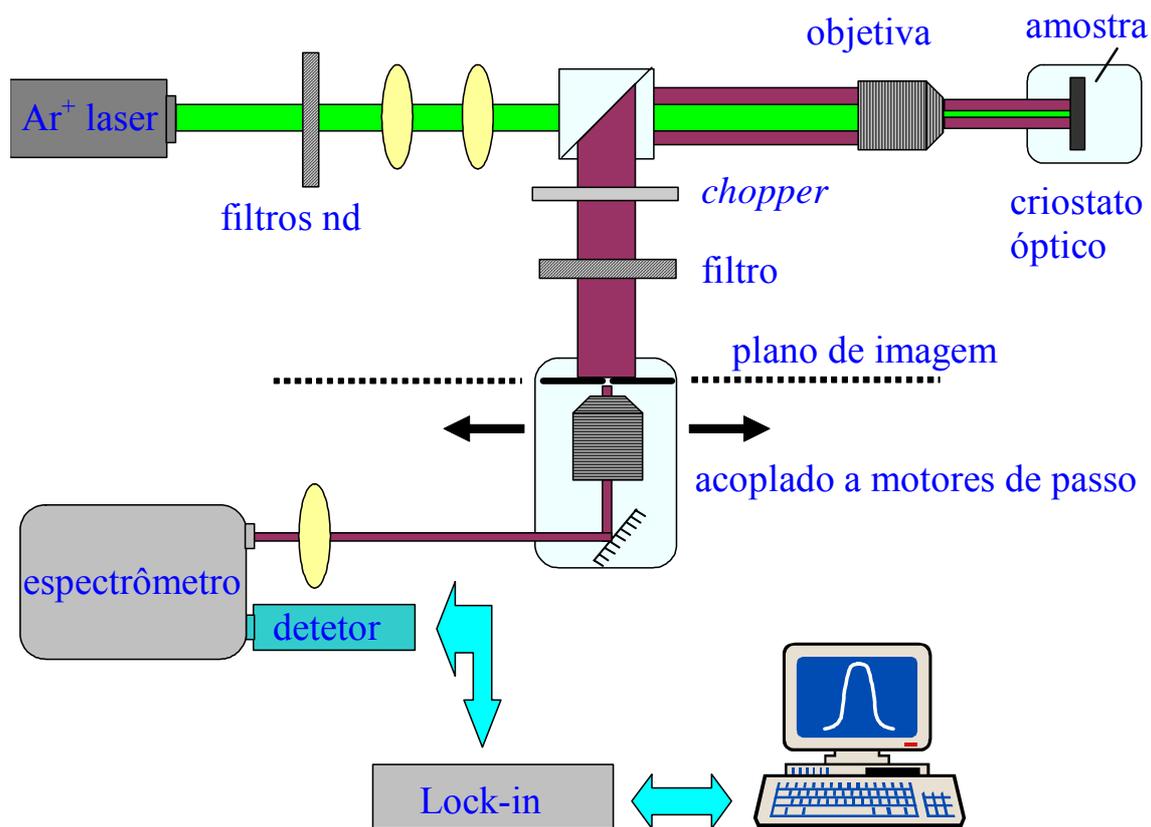


Figura 3.1 - Aparato experimental para a técnica de varredura espacial da imagem da microluminescência (MSST).

## 3.2 - Fotoluminescência resolvida espectralmente

### 3.2.1 - Macro-PL

A característica mais importante dessa técnica é a possibilidade de se realizar medidas sob baixa densidade de excitação. Isso é obtido compensando-se a diminuição da intensidade de excitação pelo conseqüente aumento da área iluminada. Nas medidas de Macro-PL as amostras foram colocadas em um criostato de fluxo de nitrogênio tipo “dedo frio”, o qual foi mantido a temperatura de 77 K. A excitação foi realizada com um feixe de laser focalizado na superfície das amostras com uma lente cilíndrica, gerando um *spot* de dimensões da ordem de 400 x 100  $\mu\text{m}$ . Foi utilizado um laser de  $\text{Ar}^+$  sintonizado na linha 514,5 nm, cuja densidade de excitação foi variada de 4 a 400  $\text{W}/\text{cm}^2$ , usando um conjunto de filtros de densidade neutra. A luminescência gerada foi coletada por um conjunto de lentes e então guiada para um monocromador simples da marca Spex 0,5 m, equipado com grades de 1200 linhas/mm. O sistema de detecção é feito por meio da técnica convencional de detecção *lock-in* e um detector de Ge resfriado a nitrogênio líquido.

### 3.2.2 – Micro-PL

As medidas de micro-PL foram realizadas no mesmo sistema utilizado nas medidas de fotoluminescência resolvida espacialmente. Como anteriormente descrito, neste sistema o feixe de excitação é focalizado por meio de uma objetiva de microscópio que, trabalhando em modo confocal, restringe a área a ser excitada a um

círculo de aproximadamente 5  $\mu\text{m}$  de diâmetro gerando assim uma alta densidade de excitação, a qual foi variada de 0,06 a 60  $\text{kW}/\text{cm}^2$ , usando um conjunto de filtros de densidade neutra.

### 3.3 – Amostras

As heteroestruturas aqui estudadas foram crescidas por epitaxia de levitação por vapor (VLE) [Cox *et al.*, 1986] sobre substratos de InP dopados com Sn, orientados de  $2^\circ$  fora da direção [001] na direção [111]. O processo de crescimento das amostras obedeceu a um protocolo em que foi crescida uma camada *buffer* de InP, seguida da respectiva camada ativa de  $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$  (não tensionada) e um *cap layer* de InP de 600  $\text{\AA}$ . A taxa de crescimento foi de 2 e 0,5  $\text{\AA}/\text{s}$  para as camadas de InGaAs e InP, respectivamente. A temperatura de  $550^\circ\text{C}$  foi usada para imprimir um ritmo mais preciso e minimizar efeitos de transição. Alguns parâmetros importantes do InP e do  $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$  podem ser encontrados no Apêndice A.

Devido à desorientação de  $2^\circ$  da direção [001], o substrato de InP sobre o qual a camada de InGaAs é crescida não é perfeitamente planar, contendo degraus de uma monocamada de altura ( $a_0 = 2,93 \text{\AA}$ ) e 83  $\text{\AA}$  de comprimento (Figura 3.2). Assim o tempo de deposição da camada ativa (InGaAs) define sua largura (no caso dos fios quânticos) e/ou sua espessura. Se o tempo de deposição for suficientemente longo a camada de InGaAs depositado no degrau adjacente se sobreporá ao próximo degrau, possibilitando uma transição de uma heteroestrutura do tipo fio quântico para um poço quântico simplesmente aumentando o tempo de deposição.

As amostras denominadas por: LV844, LV834, LV837, LV835 e LV840, cujos tempos de deposição da camada de InGaAs são: 0,5 s, 1,0 s, 2,0 s, 3,0 s e 10,0

segundos, respectivamente, são fios quânticos com diferentes larguras ( $L_x$ ). A amostra denominada por LV842, cujo tempo de deposição é de 240 s, é um poço quântico de 110 Å de largura.

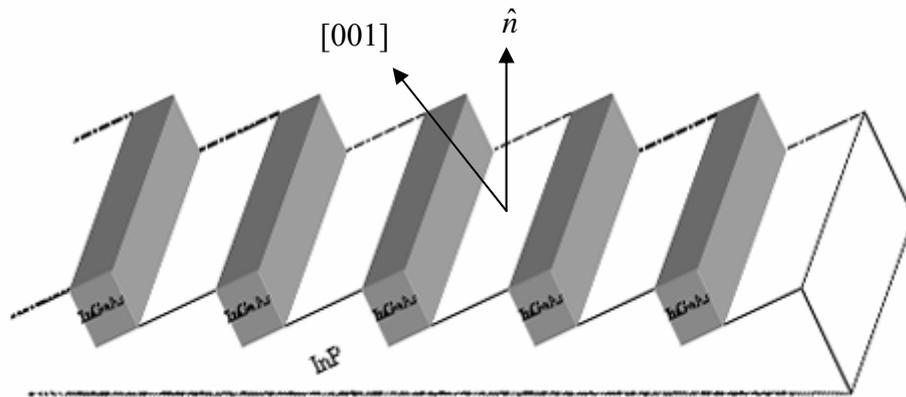


Figura 3.2 - Morfologia das amostras de fios quânticos usadas neste trabalho.

Foi possível determinar as larguras dos fios quânticos em cada uma das amostras a partir do trabalho de Worlock e colaboradores [Worlock *et al.*, 1991]. Estes resultados estão mostrados na Tabela 3.1, onde  $N = i$  ( $i = 1, 2, 3$  e  $4$ ) representa o número de monocamadas.

Tabela 3.1 – Largura ( $L_x$ ) dos fios quânticos das diferentes amostras estudadas neste trabalho. Dados obtidos a partir do trabalho de Worlock e colaboradores [Worlock *et al.*, 1991].

Amostras tempo (s)	$L_x(N=1)$ (Å)	$L_x(N=2)$ (Å)	$L_x(N=3)$ (Å)	$L_x(N=4)$ (Å)
0,5	50	12	6	-
1,0	80	21	12	-
2,0	170	42	25	--
3,0	200	60	36	--
10,0	--	--	200	120

## **CAPÍTULO 4**

### **Fotoluminescência em Fios Quânticos de InGaAs/InP Crescidos sobre Substrato Vicinal**

Neste Capítulo será apresentado e discutido os resultados de fotoluminescência resolvida espectralmente em fios quânticos (QWRs) (do inglês *quantum wires*) de InGaAs crescidos sobre substrato de InP. Detalhes das amostras e do sistema de medida podem ser encontrados no Capítulo 3 .

Tendo em vista que os espectros de PL das amostras de fios quânticos dependem fortemente da potência de excitação do laser incidente, todas as medidas de PL foram realizadas na configuração de macro-PL. Para isso, o feixe de laser foi focalizado na superfície das amostras com uma lente cilíndrica, de modo a obter um máximo de sinal da PL com uma baixa densidade de excitação. As amostras foram excitadas com um laser de  $Ar^+$  cuja densidade de potência foi variada de 0,004 a 0,4 kW/cm<sup>2</sup>, usando um conjunto de filtros de densidade neutra. As medidas foram realizadas a temperatura 77 K.

Os espectros de fotoluminescência, obtidos com densidade de excitação de  $60 \text{ W/cm}^2$ , das amostras de fios quânticos de InGaAs crescidos durante os tempos de 0,5, 1,0, 2,0, 3,0 e 10,0 segundos são mostrados na Figura 4.1. As linhas cheias representam o melhor ajuste dos dados experimentais (círculos abertos) usando curvas gaussianas, enquanto as linhas pontilhadas representam cada uma das emissões de PL das diferentes estruturas presentes nas amostras. O pico intenso e estreito localizado em 1,413 eV são emissões de PL relacionadas a níveis aceitadores da camada de InP [Heim *et al.*, 1969; Morais *et al.*, 1989]. Os demais picos estão relacionados às emissões de PL provenientes das camadas de InGaAs com diferentes larguras e espessuras ( $N = 1, 2, 3$  e 4 monocamadas). Note que, enquanto as amostras com tempo de crescimento de 0,5 s e 1,0 s apresentam apenas 3 emissões distintas, as amostras crescidas com  $t = 2,0$  s e 3,0 s apresentam até cinco emissões de PL.

As energias dos picos de PL dos espectros mostrados na Figura 4.1 são apresentadas na Figura 4.2 como função do tempo de crescimento. Observe que a energia dos picos de PL decresce com o aumento do tempo de deposição. O decréscimo contínuo da energia está associado com o aumento da largura do fio quântico que cresce com o aumento do tempo de deposição até se sobrepor a camada de InGaAs depositada no degrau adjacente. Como resultado desta sobreposição, fios quânticos com mais de uma monocamada são formados, provocando assim, um decréscimo descontínuo na energia de recombinação. Assim, as amostras crescidas com  $t = 0,5$  s e 1,0 s apresentam fios quânticos com espessuras de uma e duas monocamadas com diferentes dimensões laterais ( $L_x$ ). Já as amostras com  $t = 2,0$  s e 3,0 s possuem fios quânticos com 1, 2, 3 e 4 monocamadas. A largura de cada um dos fios quânticos aqui estudados pode ser encontrada na Tabela 3.1.

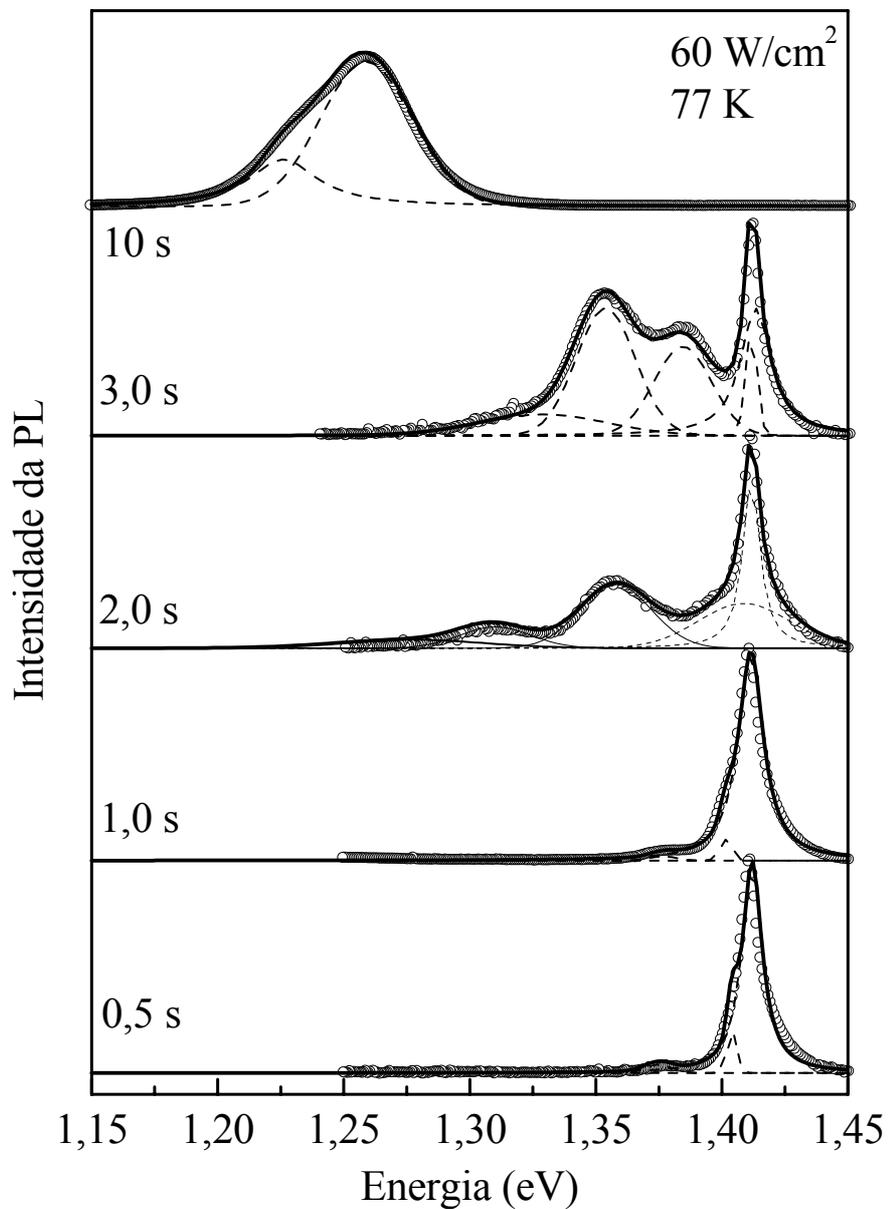


Figura 4.1 - Espectros de PL das amostras de QWRs de InGaAs depositados durante os tempos de 0,5, 1,0, 2,0, 3,0 e 10,0 s e obtidos com densidade de excitação de  $60 \text{ W/cm}^2$ . As linhas cheias representam o melhor ajuste dos dados experimentais (círculos abertos) usando curvas gaussianas. As linhas pontilhadas representam cada uma das emissões de PL das diferentes estruturas presentes nas amostras.

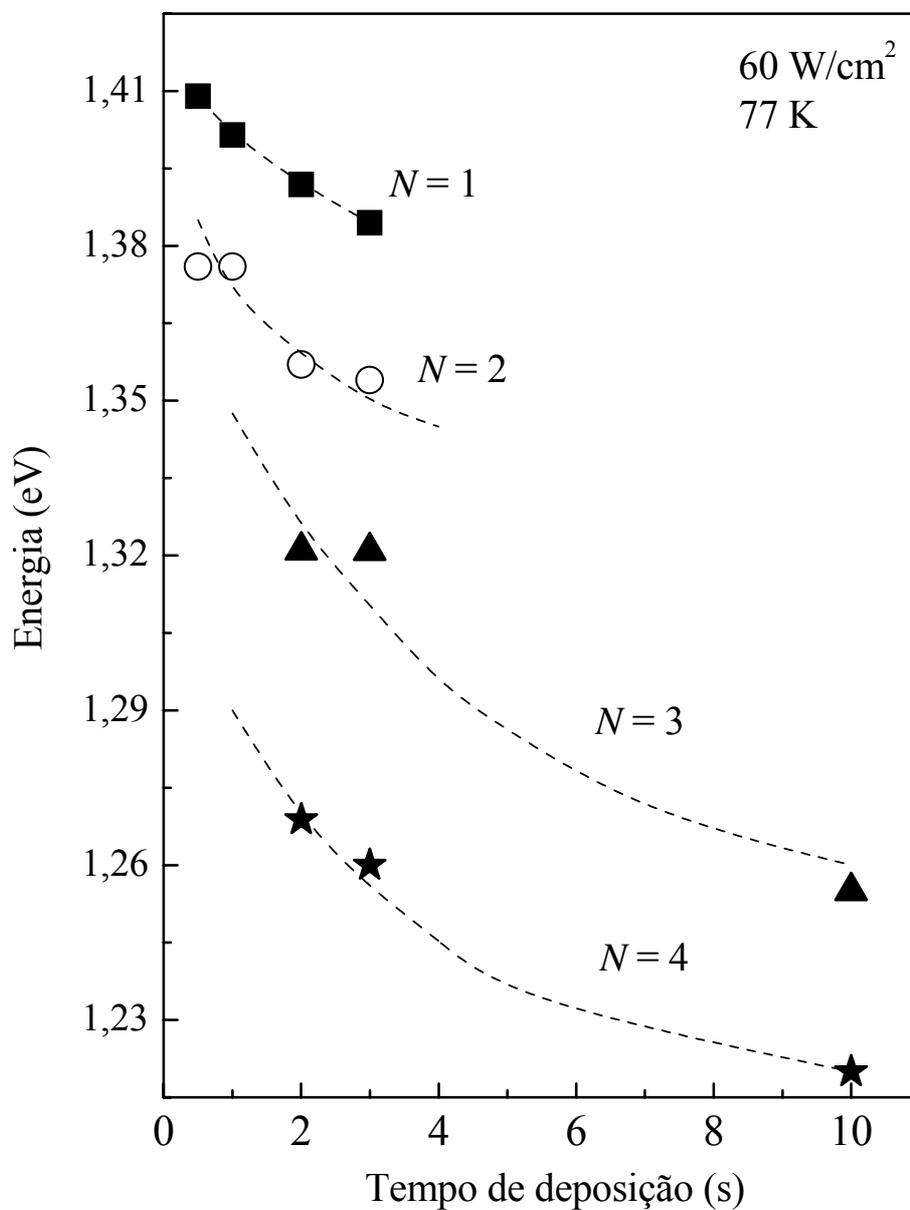


Figura 4.2 – Energia dos picos de PL dos QWRs de InGaAs como função dos tempos de deposição. Os diferentes símbolos representam as espessuras dos fios quânticos medidos em monocamadas,  $N = i$  ( $i = 1, 2, 3$  e  $4$ ).

Os espectros de fotoluminescência em função da densidade de excitação das amostras crescidas com  $t = 0,5, 1,0, 2,0, 3,0$  e  $10,0$  segundos são mostrados nas Figuras 4.3 (a), (b), (c), (d) e (e), respectivamente. O efeito mais evidente nos espectros de PL é o deslocamento, para baixas energias, do pico de luminescência atribuído à recombinação dos níveis aceitadores com a banda de valência da camada de InP. Foi verificado que a energia desta transição decresce exponencialmente com a densidade de excitação. Em média, a energia do pico do InP decresce de  $8 \text{ meV}$ , no intervalo de densidade de excitação investigado. Também pode ser observado nas Figuras 4.3, que enquanto a intensidade do pico de PL do InP sempre aumenta com a intensidade de excitação, os picos de PL de algumas das estruturas (QWRs com diferentes larguras e espessuras) aparentemente diminuem de intensidade a partir de uma certa densidade de excitação. Para investigar com mais detalhe estes comportamentos, todas as curvas de PL foram ajustadas usando o mesmo procedimento usado para obter a Figura 4.1. Deste modo, foi possível analisar separadamente o comportamento das diferentes estruturas. Os resultados deste procedimento são mostrados nas Figuras 4.4 (a), (b), (c), (d) e (e). Nestas Figuras são apresentadas, em escala *log-log*, as áreas integradas sob as curvas de PL (obtidas a partir dos ajustes dos espectros – ver Figura 4.1) em função da densidade de excitação. Cada uma das estruturas presentes nas amostras está representada por símbolos próprios, designados nas figuras. De posse dos ajustes, foi possível verificar que, de modo geral, a energia de quase todos os picos de PL das diferentes camadas de InGaAs têm comportamento semelhante aos da barreira (InP), ou seja, decresce exponencialmente com o aumento da densidade de excitação. Estes deslocamentos para baixas energias (*redshift*) são da ordem de  $8 \text{ meV}$ . Exceções são os picos para  $N = 1$  da amostra crescida com  $t = 2,0 \text{ s}$  e  $N = 3$  para  $t = 10,0 \text{ s}$ . Estas transições apresentam um *blueshift* de  $8$  e  $26 \text{ meV}$ , respectivamente.

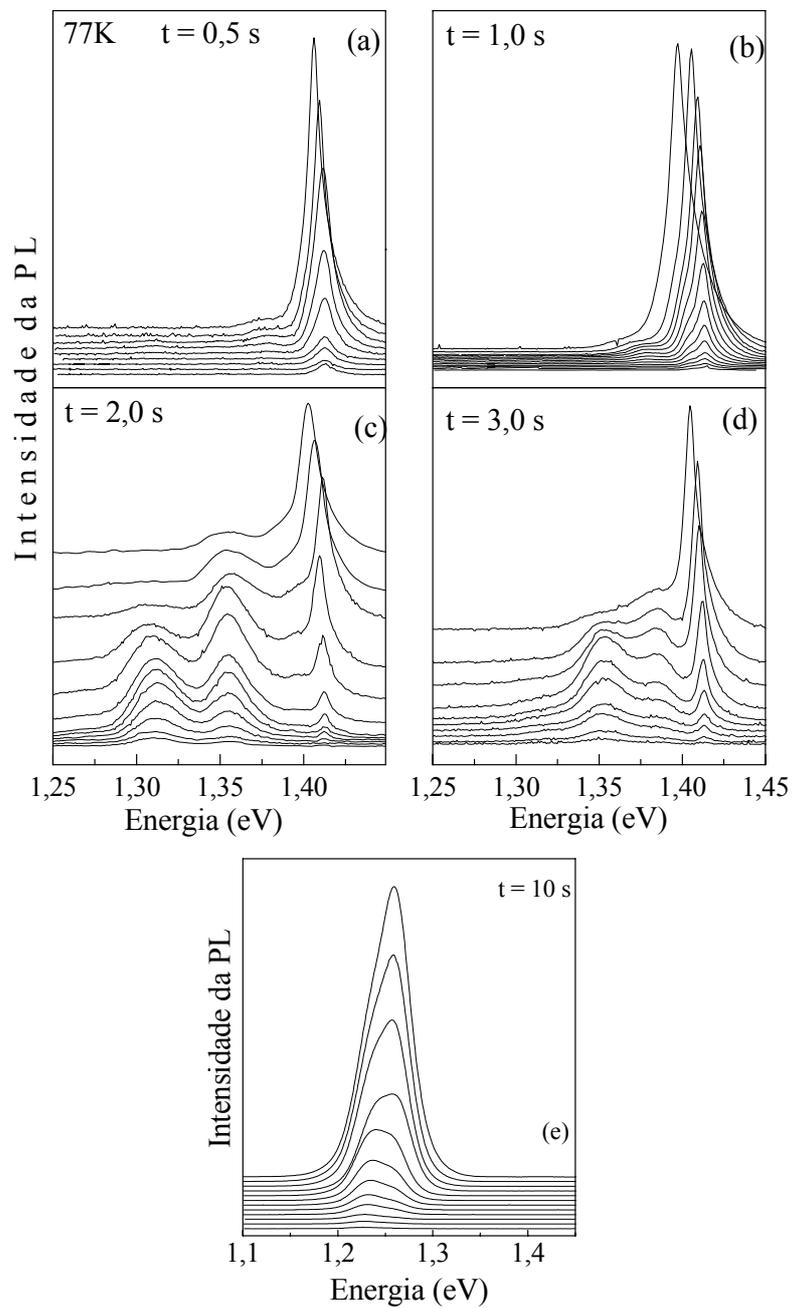


Figura 4.3 – Espectros de PL em função da densidade de excitação dos QWRs de InGaAs depositado com os tempo de: (a)  $t = 0,5$  s, (b)  $1,0$  s, (c)  $2,0$  s, (d)  $3,0$  s e (e)  $10,0$  s

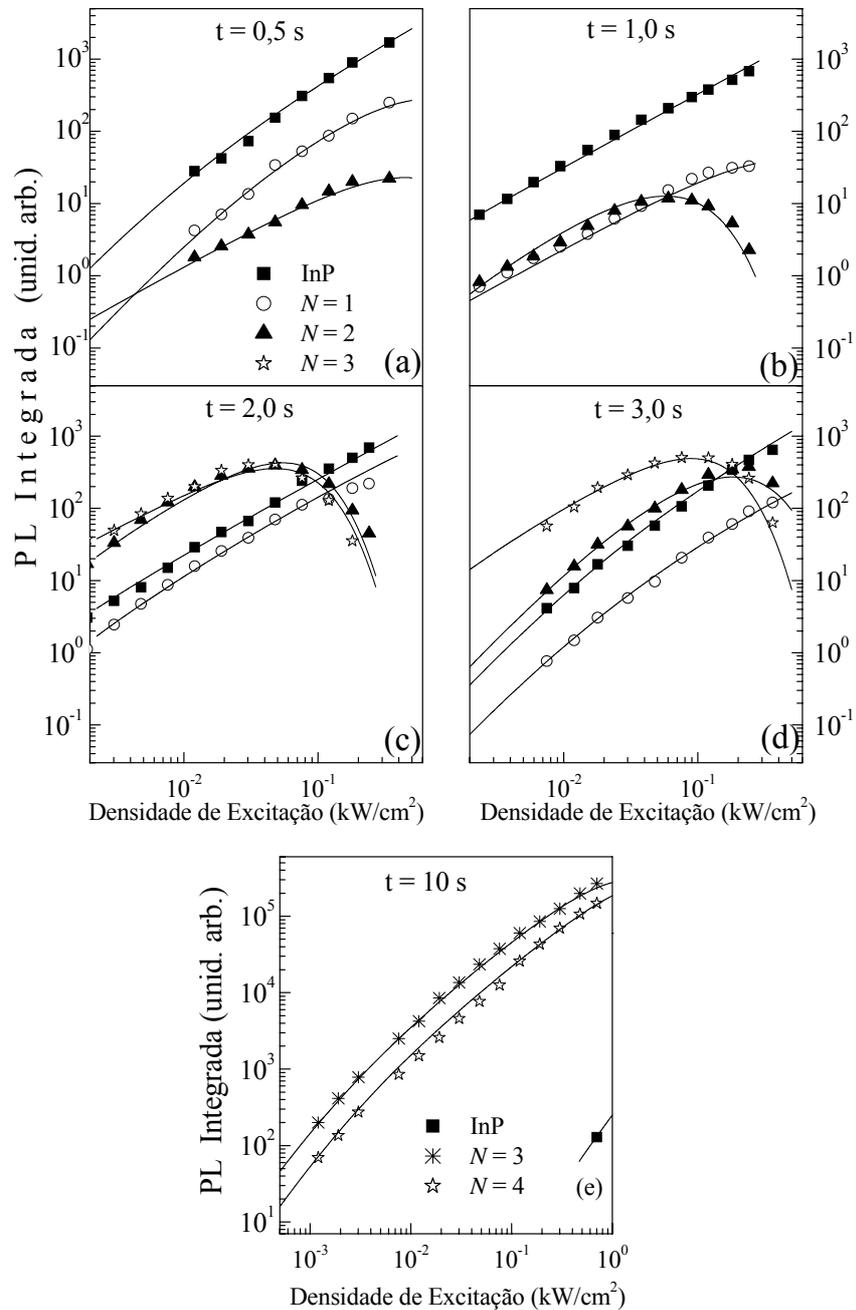


Figura 4.4 – Dependência da intensidade integrada da PL em função da densidade de excitação dos QWRs em escala *log-log* (obtidas a partir dos ajustes dos espectros da Figura 4.3). Os símbolos representam os dados experimentais e as linhas contínuas os resultados simulados usando os parâmetros listados na Tabela 4.1.

Um comportamento anômalo ocorre com a intensidade integrada de PL de algumas transições eletrônicas dos QWRs. Como pode ser verificado nas Figuras 4.4, as emissões de PL provenientes dos QWRs com  $N > 1$  apresentam um claro decréscimo de intensidade a partir de uma determinada densidade de excitação (diferente para cada QWR e para cada amostra). Outra observação importante é que apenas as emissões de PL localizadas no intervalo de energia compreendido entre 1,27 – 1,37 eV apresentaram o decréscimo da intensidade da fotoluminescência com o aumento da densidade de excitação.

A fim de tentar descrever a essência da dinâmica dos portadores do sistema de QWRs, os quais determinam o comportamento da PL integrada em função da densidade de excitação das várias amostras, foram usadas quatro (amostras com  $t = 0,5, 1,0$  e  $10,0$  s) ou cinco ( $t = 2,0$  s,  $3,0$  s) equações de taxa não-lineares e acopladas, uma para cada reservatório de portadores. Admitiu-se que os portadores são capturados por estes reservatórios em pares de elétrons e buracos (captura correlacionada) e, portanto, o modelo não leva em conta a presença de estruturas carregadas. Apesar das amostras com  $t = 2,0$  s e  $3,0$  s apresentarem um terceiro estado com  $N = 4$ , a baixa intensidade do sinal de PL obtido em densidades de excitações menores impossibilitou sua descrição.

Levando-se em conta que a absorção do InP é de aproximadamente 100 nm, para o comprimento de onda do laser incidente (514,5 nm), praticamente toda a energia é absorvida na barreira de InP, onde os portadores (elétrons-buracos) são gerados a uma taxa  $G$  por  $\text{cm}^3$ . Assim, a taxa de geração pode ser expressa em termos da densidade de potência incidente  $I$ , da refletividade  $R$  e da energia do fóton, como:

$$G = \frac{(1-R)I}{h\nu}. \quad (4.1)$$

Foi admitido que o acoplamento entre as diferentes estruturas se dá devido à transferência de portadores gerados na barreira que posteriormente são capturados no nível aceitador do InP ou são transferidos por difusão em diferentes frações para os fios quânticos com diferentes níveis de energia, onde são capturados e eventualmente recombinam-se. Transferência de portadores entre fios quânticos, embora possível, não foi considerada. A simplicidade das equações de taxa não permitiu distinguir entre as transições da barreira para os fios quânticos e as transições entre fios quânticos. Para descrever o comportamento anômalo verificado nos gráficos de PL versus densidade de excitação foi introduzido um termo de perda, nas equações que descrevem os QWRs, proporcional à exponencial da densidade de excitação.

O conjunto de equações propostas para descrever a densidade de portadores no sistema aqui estudado é:

$$\frac{dn_b}{dt} = G - (\gamma_{ba} + \gamma_{b1} + \gamma_{b2} + \gamma_{b3})n_b - B_b n_b^2 - \gamma_b n_b \quad (4.2)$$

$$\frac{dn_a}{dt} = \gamma_{ba} n_b - B_a n_a^2 - \gamma_a n_a \quad (4.3)$$

$$\frac{dn_1}{dt} = \gamma_{b1} n_b - B_1 n_1^2 - \beta_1 n_1^2 \exp(G/g_1) - \gamma_1 n_1 \quad (4.4)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = \gamma_{b2} n_b - B_2 n_2^2 - \beta_2 n_2^2 \exp(G/g_2) - \gamma_2 n_2 \quad (4.5)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = \gamma_{b3} n_b - B_3 n_3^2 - \beta_3 n_3^2 \exp(G/g_3) - \gamma_3 n_3 \quad (4.6)$$

A Equação 4.2 representa os portadores gerados na barreira a uma taxa  $G$ , que são transferidos para o nível aceitador do InP, para os fios quânticos com uma, duas e três monocamadas de espessuras. Nestas estruturas os portadores são capturados a taxas de  $\gamma_{ba}, \gamma_{b1}, \gamma_{b2}, \gamma_{b3}$ , respectivamente. Os termos  $n_b, n_a, n_1, n_2, n_3$ , correspondem à densidade de portadores nos diferentes reservatórios ( $j$ ) descritos acima. Os termos  $(B_b n_b^2, B_a n_a^2, B_1 n_1^2, \dots)$  e  $(\gamma_b n_b, \gamma_a n_a, \gamma_1 n_1, \dots)$  das equações 4.2 – 4.6 representam, respectivamente, as taxas de recombinação radiativa e não radiativa da barreira de InP, do nível aceitador do InP e dos fios quânticos com 1, 2 e 3 monocamadas. Finalmente, os termos que envolvem exponenciais nas Equações 4.4 a 4.6, descrevem recombinações não radiativas dependentes da densidade de excitação nos diferentes fios quânticos. O fato de que estes termos venham acompanhados do quadrado de densidade de portadores implica que as perdas destes portadores são correlacionadas, ou seja, os portadores são perdidos aos pares. Perdas não correlacionadas foram consideradas, entretanto, não descreveram adequadamente os resultados experimentais.

O conjunto de equações foi resolvido para o estado estacionário em função da densidade de excitação e a fotoluminescência emergida de cada camada é dada por:

$$\begin{aligned}
 I_{PL}^b &= cB_b n_b^2 \\
 I_{PL}^a &= cB_a n_a^2 \\
 I_{PL}^1 &= cB_1 n_1^2 \\
 I_{PL}^2 &= cB_2 n_2^2 \\
 I_{PL}^3 &= cB_3 n_3^2,
 \end{aligned} \tag{4.7}$$

onde  $c$  é uma constante usada para converter as taxas de recombinação radiativa calculada em valores medidos. O número  $c$  incorpora os fatores experimentais como geometria das lentes, resposta espectral do detector, saída do espectrômetro, eletrônica, etc. Em todo intervalo de comprimento de onda do experimento estes valores não

variaram apreciavelmente para as diferentes estruturas e, portanto, foi tomado o mesmo valor de  $k$  para todas as equações acima e para todas as amostras.

Uma vez que o conjunto de equações não-lineares acopladas possibilita inúmeras soluções, é essencial a escolha de alguns parâmetros a fim de limitar o número de soluções possíveis e, assim encontrar uma solução fisicamente aceitável.

Infelizmente, não existem na literatura muitas informações para este tipo de estrutura. De modo que só foram encontrados os valores para os coeficientes de recombinação da barreira de InP e das camadas de InGaAs. O coeficiente de recombinação da barreira de InP,  $B_b = 3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 / \text{s}$ , expresso em termos da densidade superficial, levando-se em conta o comprimento de absorção do InP para o comprimento de onda da luz incidente (514,5nm) mais a correção com a temperatura dada por  $2 \times 10^{-11} (300/T)^{3/2}$  a 77 K, foi obtido a partir do trabalho de Rosenwaks e colaboradores para o *bulk* do InP a 300 K ( $2 \times 10^{11} \text{ cm}^3 / \text{s}$ ) [Rosenwaks *et al.*, 2003]. Por falta de dados da literatura o valor de  $B_a$  foi obtido a partir dos ajustes das curvas experimentais. O valor encontrado foi de  $B_a = 2 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 / \text{s}$ , próximo ao valor do *bulk* do InP. Os valores bidimensionais de  $B_1$ ,  $B_2$  e  $B_3$ , iguais, respectivamente, a 0,038, 0,025 e 0,012  $\text{ cm}^2/\text{s}$  correspondem ao valor do *bulk* do InGaAs ( $9,4 \times 10^{10} \text{ cm}^3 / \text{s}$  a 75 K) obtido do modelo de Dunke [Dunke *et al.*, 1956]. Na obtenção desses valores foram consideradas as espessuras dos fios quânticos de 1, 2 e 3 monocamadas. Para a amostra crescida com o tempo de deposição de 10,0 s, o valor de  $B_4$  foi de 0,009  $\text{ cm}^2/\text{s}$ .

De posse destes parâmetros as Equações de 4.2 a 4.6 foram resolvidas para todo intervalo de excitação usado. As intensidades da fotoluminescência foram calculadas com as Equações 4.7 e comparadas com os dados experimentais. O espaço dos

parâmetros remanescentes foi explorado de modo a encontrar soluções que satisfaçam os dados experimentais. A Tabela 4.1 mostra os parâmetros usados na simulação.

A Figura 4.4 mostra a intensidade de fotoluminescência espectralmente integrada relacionada aos níveis aceitadores do InP, e as camadas de InGaAs, com  $N = 1, 2, 3$  e 4 monocamadas de espessura, como função da densidade de excitação para todas as amostras aqui estudadas. As linhas sólidas representam as simulações usando os parâmetros apresentados na Tabela 4.1. Todos os dados de PL estão na mesma escala absoluta de intensidade. É observado que a intensidade de PL proveniente da camada de InP para a amostra com  $t = 0,5$  s (Figura 4.4 (a)) supera a intensidade de PL das demais estruturas. Contudo este comportamento é alterado com o aumento do tempo de deposição do InGaAs, principalmente no intervalo de baixa densidade de excitação. Este efeito pode ser explicado levando-se em conta que com o surgimento dos QWRs mais portadores são transferidos para estes últimos, o que diminui a quantidade de portadores disponíveis para ocupar os níveis aceitadores do InP, resultando assim em uma diminuição da taxa de transferência para os níveis aceitadores do InP ( $\gamma_{ba}$ ). A diminuição de  $\gamma_{ba}$  com o aumento do tempo de deposição poder ser vista na primeira linha da Tabela 4.1. Como consequência desta competição, a intensidade de PL proveniente dos níveis aceitadores do InP diminui enquanto, a intensidade de PL dos QWRs cresce com o aumento do tempo de deposição do InGaAs.

Tabela 4.1 - Parâmetros usados nas Equações 4.2 – 4.6 para simular os dados experimentais da Figura 4.3 e 4.4.

		Amostras				
<i>Camada</i>		0,5 s	1 s	2 s	3 s	10 s
$\gamma_{ba} (\times 10^{10} s^{-1})$	<i>InP</i>	2,0	1,4	0,7	0,6	0,2
$\gamma_{bj} (\times 10^{10} s^{-1})$	<i>N=1</i>					
	<i>N=2</i>					
	<i>N=3</i>			~ 5,0		
	<i>N=4</i>					
$B_j$ ( $\times 10^{-2} cm^2/s$ )	<i>N=1</i>			3,8		
	<i>N=2</i>			2,5		
	<i>N=3</i>			1,2		
	<i>N=4</i>			0,9		
$\beta_j$ ( $\times 10^{-2} cm^2/s$ )	<i>N=1</i>	150	100	100	20	
	<i>N=2</i>	20	18	2,2	1,5	
	<i>N=3</i>			1,5	3,8	3,8
	<i>N=4</i>					0,9
$g_j$ ( $\times 10^6 cm^2/kW$ )	<i>N=1</i>	10,0	9,0	50,0	50,0	
	<i>N=2</i>	8	0,7	0,7	2,5	
	<i>N=3</i>			0,7	1,2	25
	<i>N=4</i>					25
$\gamma_j$ ( $\times 10^9 s^{-1}$ )	<i>N=1</i>	8,0	8,0	5,0	8,0	
	<i>N=2</i>	0,5	0,5	0,5	0,5	
	<i>N=3</i>			0,01	0,1	0,1
	<i>N=4</i>					0,1

Em princípio a taxa de transferência da barreira de InP para as camadas de InGaAs ( $\gamma_{bj}$ ) poderia ser estimada considerando que devido às pequenas espessuras das camadas de InGaAs e ao grande coeficiente de absorção do InP para a linha 514,5 nm do laser, toda luz incidente é absorvida no *cap layer* de InP de espessura  $d = 60$  nm, gerando assim pares elétrons-buracos que se difundem para o interior das amostras. Como no transporte ambipolar de portadores a velocidade térmica média dos portadores na camada de InP a 77 K é dada por  $v_T = [8k_B T / \pi(m_e + m_{hh})]^{1/2} = 9 \times 10^6$  cm/s (onde  $m_e = 0,047m_o$  e  $m_{hh} = 0,3199m_o$  são as massas efetivas de elétrons e buracos pesados, respectivamente e  $m_o$  é a massa do elétron livre) [Kieseling *et al.*, 1995-a], pode-se estimar o tempo médio necessário para que os portadores gerados na barreira atinjam a camada de InGaAs e conseqüentemente sejam capturados. Desta forma, o tempo de captura  $\tau_c \approx d / v_T = 7$  ps, forneceria uma taxa de transferência  $\gamma_{bj} = 1/\tau_c = 1,4 \times 10^{11}$  s<sup>-1</sup>. Contudo, como pode ser verificado na segunda linha da Tabela 4.1, foi encontrado que  $\gamma_{bj}$  para os diferentes QWRs (todos os  $N$ ) é de aproximadamente  $5 \times 10^{10}$  s<sup>-1</sup>, o que resultaria em um  $\tau_c = 20$  ps, portanto, superior a estimativa anterior. Entretanto, este valor é mais próximo dos 35 ps encontrado por Kieseling e colaboradores ao estudar fios quânticos de InGaAs/InP fabricados por *etching* químico [Kieseling *et al.*, 1995-b]. Neste estudo, os autores verificaram que  $\tau_c$  é aproximadamente independente da largura do fio quântico quando a polarização da luz incidente está ao longo do comprimento do fio quântico. Por outro lado, também foi verificado que quando a luz incidente está polarizada perpendicularmente ao comprimento do fio quântico,  $\tau_c$  cresce com a diminuição da largura do fio quântico.

Existem na literatura estudos referentes ao tempo de vida de portadores confinados em fios quânticos. Em alguns destes trabalhos, os quais estudaram QWRs com 5 nm de espessura e larguras ( $L_x$ ) variando de 21 – 200 nm, submetidos a temperatura de 40 K, foi verificado que o tempo de vida dos portadores cresce rapidamente com  $L_x$  até 100 nm e depois se estabiliza em torno de 2,0 ns [Kieseling *et al.*, 1995-a; Melgarejo *et al.*, 1998]. De acordo com os autores o decréscimo do tempo de vida com o decréscimo de  $L_x$  está relacionado com o aumento da taxa de recombinação não radiativa nas interfaces dos QWRs, as quais se tornam mais importantes a medida que  $L_x$  diminui. Em um outro trabalho, agora realizado a 9 K (onde os processos não radiativos são menos importantes), os autores reportaram um comportamento inverso ao anteriormente descrito [Kono *et al.*, 1994]. Neste trabalho foi verificado que o tempo de vida cai rapidamente com a largura do fio até  $L_x = 20$  nm e depois se estabiliza em torno de 0,2 ns. De acordo com os autores o aumento do tempo de vida com o decréscimo de  $L_x$  está associado com o aumento do efeito de coerência dos éxcitons quando  $L_x$  diminui.

Como pode ser observado na Figura 4.4, no intervalo de mais baixa densidade de excitação ( $< 50$  W/cm<sup>2</sup>) a intensidade da PL de todas as transições eletrônicas observadas escala superlinearmente com a densidade de excitação em um gráfico *log-log* e com inclinação de aproximadamente 1,3. Mostrando, portanto que existe uma componente não radiativa nos processos de recombinação dos portadores. Para este tipo de recombinação o tempo de vida efetivo é dado pela adição dos recíprocos, ou seja, [Ahrenkiel *et al.*, 1998]

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{nr}} + \frac{1}{\tau_r}, \quad (4.8)$$

no qual,  $\tau_{nr}$  é o tempo de vida não radiativo e  $\tau_r$  é o tempo de vida radiativo que é proporcional ao recíproco da densidade de portadores,  $\tau_r = 1/Bn_j$ , onde  $B$  é o coeficiente de recombinação bimolecular e  $n$  a densidade de portadores em cada reservatório  $j$ . De acordo com as Equações 4.2 - 4.6, as componentes não radiativas são dadas pelos termos  $1/\gamma_j$  e  $1/[(\beta_j n_j) \exp(G/g_j)]$  (os valores dos parâmetros  $\gamma_j$ ,  $\beta_j$  e  $g_j$  podem ser encontrados na Tabela 4.1). Por esta razão, conhecendo-se a densidade de portadores ( $n$ ) em cada reservatório para uma determinada densidade de excitação é possível estimar o tempo de vida  $\tau$  e conseqüentemente o seu comportamento como função da largura ou da espessura do QWR e assim comparar os resultados deste trabalho com os da literatura.

As Figuras 4.5 (a) mostram as densidades de portadores  $n_a, n_1, n_2, n_3$ , obtidas a partir da solução do conjunto de equações com os parâmetros apresentados na Tabela 4.1, para as amostras crescidas com  $t = 0,5, 1,0, 2,0$  e  $3,0$  s. Observe que para uma determinada densidade de excitação tem-se um determinado valor de  $n$ . Assim, se for tomada a densidade de excitação de  $0,03 \text{ kW/cm}^2$  (antes do comportamento anômalo da PL) para todas as amostras pode-se determinar o tempo de vida de cada transição, para esta densidade de excitação. De acordo com a Tabela 3.1, cada uma das amostras de QWR é formada por fios quânticos com diferentes larguras e espessuras. Por exemplo, a amostra crescida com  $t = 3$  s apresenta fios quânticos com  $N = 1, 2$  e  $3$  monocamadas, com larguras ( $L_x$ ) de  $20, 6$  e  $3,6$  nm, respectivamente. Isto é, quanto maior a espessura menor a largura lateral dos fios quânticos. Para se fazer uma comparação dos resultados aqui obtidos com os da literatura ( $\tau \times L_x$ ), seria necessário desprezar o efeito da variação da espessura, o que de fato foi feito na Figura 4.5 (b). Entretanto, para ser mais rigoroso deve-se notar que para as amostras com  $t = 2$  s e  $3$  s o primeiro símbolo das Figuras 4.5

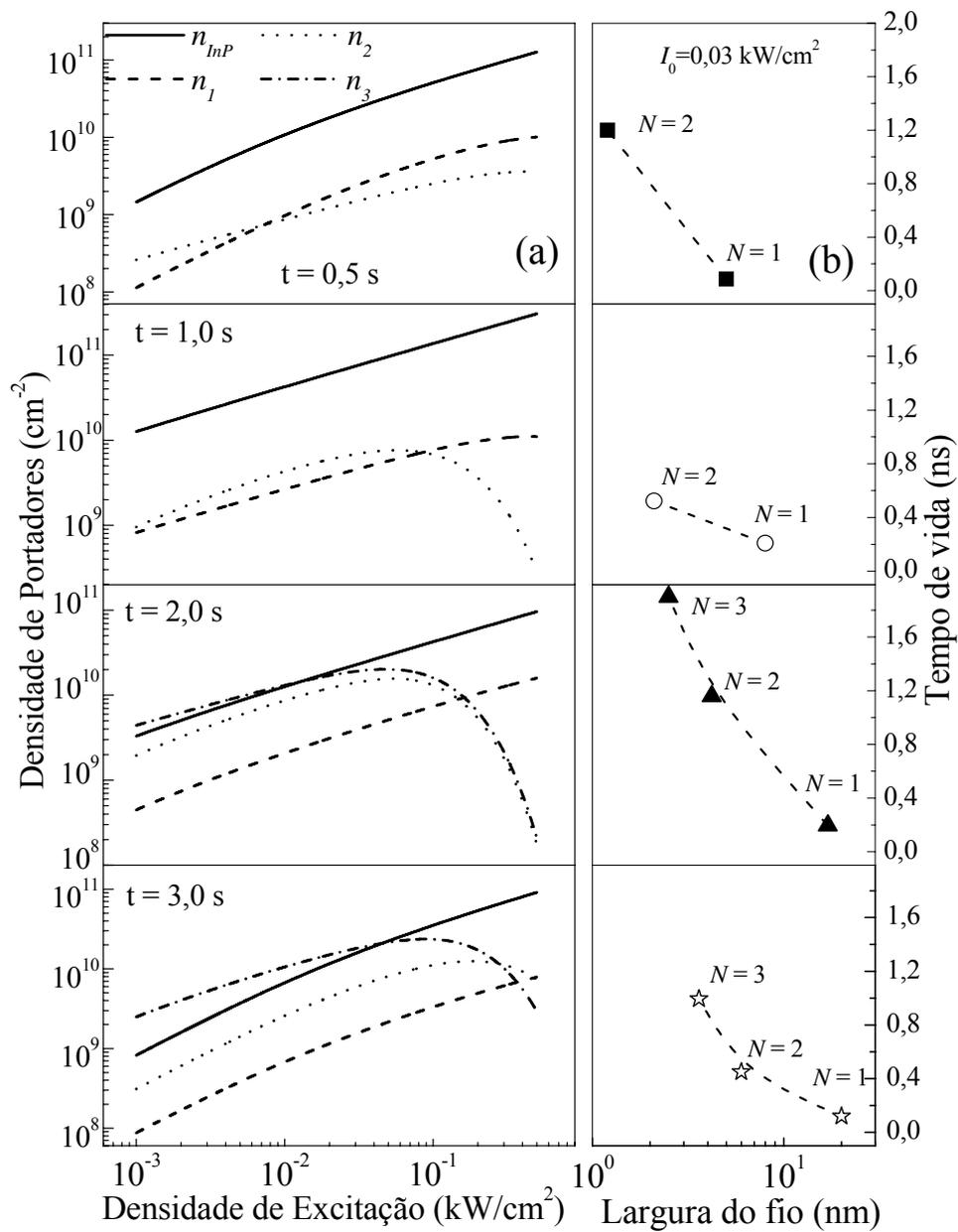


Figura 4.5 – (a) Densidade de portadores calculada para as amostras de QWRs em função da densidade de excitação. (b) Dependência do tempo de vida dos portadores confinados nos QWRs em função da largura dos fios quânticos.

(b) representa o fio quântico com espessura de  $N = 3$ , o segundo com espessura de  $N = 2$  e o terceiro com  $N = 1$ . O comportamento mostrado na Figura 4.5 (b) concorda com o resultado de Kono e colaboradores [Kono *et al.*, 1994]. Entretanto, a explicação para tal comportamento não pode ser a mesma, uma vez que na temperatura de 77 K o efeito de coerência é desprezível.

O comportamento mostrado na Figura 4.5 (b) pode ser compreendido se for levado em conta a relação entre as taxa de recombinação radiativa e não radiativa. De fato, como pode ser verificado na Tabela 4.2, a taxa de recombinação não radiativa para a densidade de excitação de  $0,03 \text{ kW/cm}^2$  é uma ordem de grandeza maior que a taxa de recombinação radiativa e decresce com o aumento da espessura (e conseqüentemente com a redução da largura dos fios quânticos). Este efeito está associado com o fato de que a função de onda eletrônica, devido às pequenas dimensões dos fios quânticos, não está inteiramente confinada no interior dos fios quânticos, penetrando na barreira de InP. Existindo, portanto, a probabilidade dos portadores se recombinarem tanto no interior dos fios quânticos de forma radiativa como na barreira de forma não radiativa. Ou seja, quanto mais estreito o QWR maior será a penetração da função de onda na barreira e conseqüentemente maior será a recombinação não radiativa. Como resultado deste processo o tempo de vida efetivo das amostras aqui estudadas cresce com a espessura do fio quântico e conseqüentemente com a diminuição de  $L_x$ , como mostrado na Figura 4.5 (b).

Tabela 4.2 – Valores das componentes não radiativas e radiativas obtidas para a densidade de excitação de  $0,03\text{kW/cm}^2$  a partir da Tabela 4.1.

		Amostras			
		0,5 s	1 s	2 s	3 s
$I/\tau_{nr}$ ( $\times 10^9 \text{ s}^{-1}$ )	Camada				
	$N=1$	11,0	4,6	4,9	8,3
	$N=2$	0,8	1,7	0,5	2,1
	$N=3$			0,3	0,8
$I/\tau_r$ ( $\times 10^8 \text{ s}^{-1}$ )	$N=1$	0,9	1,7	1,5	0,6
	$N=2$	0,4	1,7	3,5	1,5
	$N=3$			2,2	2,2

Como dito anteriormente, o processo de recombinação não radiativa é composto por duas componentes. Contudo, a origem deste efeito pode ser a mesma e provavelmente está associada à pequena espessura das camadas de InGaAs, uma vez que, para estes casos a função de onda dos portadores ali confinados penetra na barreira de InP. Em primeira aproximação pode-se dividir o perfil da distribuição da função de onda em duas regiões. A primeira como sendo a região do caroço dos fios quânticos, na qual a recombinação dos portadores com taxas  $I/\tau_{2D}$  tem características bidimensionais e, portanto, podem ser caracterizadas pelos termos de recombinação radiativa ( $B_j n_j^2$ ) do conjunto de Equações 4.2 – 4.6. A segunda região, caracterizada por uma largura  $L_I$ , é definida pela penetração da função de onda na barreira de InP. Com isso, um canal de recombinação adicional, devido a estados de interfaces, dá origem à recombinação na interface com taxa de recombinação  $I/\tau_I$  a qual pode ser caracterizada pelos termos de recombinação não radiativa  $\gamma_j$ . Observe da Tabela 4.1 que  $\gamma_j$  decresce com aumento da espessura da camada, mostrando que quanto maior a penetração da função de onda na barreira maior será taxa de recombinação não radiativa.

Além do mais, a penetração da função de onda na barreira pode dar origem a recombinações não radiativas de portadores, as quais envolvem a probabilidade de um elétron encontrar um buraco para se recombinar, explicando assim a dependência quadrática da densidade de portadores nos termos  $\beta_j \exp(G/g_j)n_j^2$  das Equações 4.2 - 4.6. Recombinações bimoleculares não radiativas entre níveis aceitadores e doadores é comum no InP, como reportados por diversos autores [Heim *et al.*, 1969; Rosenwaks *et al.*, 2003-a e b]. Entretanto, o fato desta taxa de recombinação depender da exponencial da densidade de excitação ainda não é claro.

Em um trabalho recente, envolvendo o estudo da redução da eficiência de recombinação de portadores em poços quânticos devido a estados de superfícies, Chang e colaboradores [Chang *et al.*, 1993] desenvolveram um modelo, no qual foi verificado que o tempo de tunelamento entre os portadores confinados no poço quântico e os estados de superfície é dado por:

$$\tau_t \approx \frac{h}{4V_i} \frac{(\alpha_i^2 + k_i^2)(1/\alpha_i + W/2)}{\alpha_i} \exp(\alpha_i d), \quad (4.9)$$

no qual  $\alpha_i = \sqrt{2m_i^*(V_i - E_{oi})/\hbar^2}$  e  $k_i = \sqrt{2m_i^*E_{oi}/\hbar^2}$  são os números de onda do portador na barreira e no poço quântico, respectivamente, sendo  $i \equiv e$  para a banda de condução e  $h$  para a banda de valência.  $W$  é a largura do poço e  $d$  a espessura da barreira. Observe que para uma determinada largura de poço e de barreira o tempo de tunelamento  $\tau_t$  só depende dos níveis de energia  $E_{oi}$  dos portadores e da altura de barreira  $(V_i - E_{oi})$ . Uma análise mais detalhada da Equação 4.9 mostra que quando  $V_i > E_{oi}$  a exponencial domina sobre a equação e o tempo de tunelamento cai

exponencialmente quando  $E_{oi}$  se aproxima de  $V_i$  e, conseqüentemente, a taxa de tunelamento cresce exponencialmente na mesma razão, já que  $\gamma_t = 1/\tau_t$ .

Ressalta-se que, como exposto no início deste capítulo, a energia de recombinação das transições eletrônicas provenientes das amostras aqui estudadas decresce com o aumento da densidade de excitação. Este efeito é semelhante ao relatado por Heim e colaboradores [Heim *et al.*, 1969] que observaram um decréscimo de 7,5 meV na energia de recombinação do InP em função da densidade de excitação. De acordo com os autores este efeito pode ser qualitativamente explicado pela interação entre portadores livres (efeito de muitos corpos de elétrons e buracos com a rede), levando a uma redução efetiva do *gap* do InP. A redução da energia das transições proveniente dos QWRs quando a densidade de excitação é aumentada sugere que o efeito de muitos corpos também é o responsável pelo *redshift* aqui observado. Além do mais, o fato de que apenas as transições com energias compreendidas entre 1,27 – 1,37 eV apresentaram o decréscimo da intensidade da PL com o aumento da densidade de excitação, aliado ao fato de que tal decréscimo de intensidade ocorre em densidades de excitações menores para os níveis de energia mais baixos (QWRs mais espessos) indica que existem níveis de energia doador/aceitador na barreira de InP com energia menor/maior que o nível de energia do elétron/buraco confinado no QWR.

Fazendo um paralelo entre os efeitos aqui observados com o modelo proposto por Chang e colaboradores [Chang *et al.*, 1993] é possível supor que com o aumento da densidade de excitação os níveis de energia dos QWRs são reduzidos de modo a diminuir a altura da barreira entre estes níveis e os níveis aceitador/doador na camada de InP, resultando em um aumento exponencial da taxa de tunelamento dos portadores

confinados nos fios quânticos. Explicando assim o termo  $\beta_j \exp(G/g_j)$ . No entanto, para se chegar a uma comprovação desta hipótese é necessário mais estudos.

## Conclusão

Neste capítulo foi investigado a dinâmica de portadores em amostras de fios quânticos de InGaAs/InP com diferentes larguras e espessuras, crescidos sobre substrato vicinal de InP. Para isso foram empregadas medidas de fotoluminescência resolvida espectralmente em função da densidade de excitação. Foi observado que alguns dos fios quânticos estudados apresentam um decréscimo inesperado da intensidade da fotoluminescência integrada assim como um *redshift* de sua energia de recombinação com o aumento da densidade de excitação. Os resultados de PL foram modelados por um conjunto de equações de taxa acopladas representando cada um dos diferentes reservatórios de portadores. No modelo foi considerado que os portadores são fotogerados na barreira de InP que posteriormente são transferidos para os diferentes fios quânticos. Para simular os dados experimentais alguns parâmetros foram retirados da literatura, enquanto outros foram obtidos da própria simulação. Como resultado da simulação foi encontrado que o tempo de captura dos portadores é de aproximadamente 20 ps para todos os QWRs e que o tempo de vida dos portadores ali confinados cresce com suas larguras e conseqüentemente com a diminuição de suas espessuras. Este efeito pode estar associado com os processos de recombinação não radiativas devido à função de onda eletrônica não estar inteiramente confinada no interior do fio quântico, penetrando na barreira de InP. Existindo, portanto, a probabilidade dos portadores se recombinarem tanto nos fios quânticos de forma radiativa como na barreira de forma não radiativa. A queda da intensidade de PL com o aumento da densidade de excitação foi explicada considerando que os portadores confinados nos QWRs podem tunelar para níveis de energia aceitador/doador presentes na barreira de InP.

## CAPÍTULO 5

### **Assinatura Óptica da Difusão Fractal Assimétrica de Portadores em Poços Quânticos Semicondutores**

Foi mostrado por Monte e colaboradores que a difusão lateral de portadores em heteroestruturas semicondutoras de  $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}/\text{InP}$  crescidas sobre substrato de InP orientado na direção [001] é claramente distinta da difusão em heteroestruturas crescidas em substratos orientados na direção de  $2^\circ$  fora da direção [001] (inclinada na direção [111]) [Monte *et al.*, 2000; Monte *et al.*, 2002; Monte *et al.*, 2003]. Como detalhado no Capítulo 3, a superfície inclinada do substrato de InP, no qual o poço quântico de InGaAs é crescido, não é perfeitamente plana, mas apresenta degraus de uma monocamada de altura ( $a_0 = 2,93 \text{ \AA}$ ) e  $84 \text{ \AA}$  de largura. Desvios da planaridade do substrato são acomodados pelo filme depositado por meio da variação de seu espaçamento e curvatura nas bordas das camadas nominalmente planas. Na prática, é esperado que o InGaAs nucleie na borda de um degrau e avance em direção ao degrau

adjacente da camada de InP (crescimento tipo *step-flow*), resultando em uma variação local da espessura de InGaAs [Cox *et al.*, 1986]. Conseqüentemente, as interfaces dos poços quânticos são formadas por terraços que supostamente apresentam morfologia fractal e, portanto, a camada de InGaAs também supostamente tem uma morfologia fractal [Mello *et al.*, 2001].

Como sugerido por Monte e colaboradores [Monte *et al.*, 2000; Monte *et al.*, 2002], a difusão em tais sistemas fractais é não-*Fickiana* e se o sistema não apresentar simetria de inversão espacial, a difusão pode ser assimétrica. Isto é o que acontece com o movimento de portadores ao longo da direção [110] ( $\perp$  aos degraus). Para o movimento ao longo da direção [1-10] ( $\parallel$  aos degraus), é esperado uma difusão não-*Fickiana* simétrica. Neste trabalho, foi levada adiante a compreensão dos resultados prévios de Monte e colaboradores [Monte *et al.*, 2000; Monte *et al.*, 2002]. Para isso são apresentados dados de fotoluminescência resolvida espacialmente (MSST) de um poço quântico de InGaAs como função da densidade de excitação e da temperatura [Borges *et al.*, 2006]. Detalhes do experimento podem ser encontrados no Capítulo 3.

Considerando que a recombinação de portadores envolve um processo bimolecular, a luminescência espacialmente integrada ( $I_{PL}$ ) é proporcional ao produto da densidade de portadores ( $I_{PL} = Bnp$ ), onde  $B$  é o coeficiente de recombinação bimolecular,  $n$  e  $p$  são as densidades de elétrons e buracos, respectivamente. Uma vez que,  $n = p$  para um sistema não dopado,  $I_{PL}$  escala com  $n^2$ . Portanto,  $(I_{PL})^{1/2}$  é proporcional à densidade local de portadores ( $n$ ) ao longo da linha que cruza o *spot* de excitação do laser. Assim, medindo-se  $(I_{PL})^{1/2}$  como função da distância radial do centro do *spot* de excitação (ou seja, a largura espacial do perfil de luminescência ( $\Delta$ )), obtém-se a largura lateral da distribuição de portadores que por sua vez é proporcional ao comprimento de difusão.

Chaves propôs, em 1998, uma generalização da lei de Fick, na qual foi obtida uma equação de difusão envolvendo derivadas fracionárias que aplicada a um meio assimétrico leva a uma distribuição de partículas, a qual pode ser usada para descrever o perfil da densidade de portadores [Chaves, 1998]. Em uma dimensão a distribuição de portadores é descrita por:

$$n(x) = N \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk}{2\pi} p(k,t) e^{ikx}, \quad (5.1)$$

na qual a função  $p(k,t)$  é dada por:

$$p(k,t) = \exp\left[|k|^\alpha \left| \frac{D_l + D_r}{2} \cos\left(\alpha \frac{\pi}{2}\right) t \right.\right] \times \exp\left[|k|^\alpha \left| \frac{D_l - D_r}{2} \operatorname{sen}\left(\alpha \frac{\pi}{2}\right) t \right.\right]. \quad (5.2)$$

Na equação 5.1,  $N$  é o número total de portadores fotografados e  $t$  é um tempo de vida médio. O parâmetro  $\alpha$  ( $1 < \alpha < 2$ ) está relacionado ao grau de assimetria ou fractalidade do meio onde a difusão ocorre.  $D_l$  e  $D_r$  é a difusividade para o lado esquerdo e direito, respectivamente. Como apontado por Chaves [Chaves, 1998], a difusividade à esquerda e à direita podem ser distintas se o meio não apresentar simetria de inversão espacial. Em contraste, a distribuição que corresponde a  $\alpha = 2$  é do tipo Gaussiana, e é sempre simétrica, até mesmo para valores de  $D_l$  e  $D_r$  diferentes. Assim, a assimetria espacial da densidade de portador ambipolar, observada na heteroestrutura inclinada, torna-se uma evidência direta de que o processo de difusão observado obedece a equação de difusão com derivada fracionária.

A intenção inicial deste trabalho era investigar a difusão assimétrica de portadores em todas as heteroestruturas crescidas sobre substrato inclinado descritas no Capítulo 3. A Figura 5.1 é um prova desta tentativa. Na Figura 5.1 é mostrado o perfil espacial da raiz quadrada da intensidade da PL  $((I_{PL})^{1/2})$  ao longo de dois eixos ortogonais que cruzam o centro de *spot* de excitação das heteroestruturas de InGaAs crescidas com diferentes tempos de deposição,  $t = 0,5, 1,0, 3,0, 10,0$  e  $240$  segundos.

Infelizmente, a intensidade do sinal de PL das amostras mais estreitas não permitiu uma variação adequada dos parâmetros experimentais, o que impossibilitou uma investigação completa do problema. Conseqüentemente, o estudo da difusão assimétrica de portadores se concentrou apenas na amostra mais espessa, ou seja, no poço quântico crescido no tempo de  $240$  s ( $110\text{Å}$ ).

Assim como na Figura 5.1, a Figura 5.2 mostra o perfil espacial da raiz quadrada da intensidade de fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$ , ao longo de dois eixos ortogonais que cruzam o centro de *spot* de excitação, o qual é proporcional à densidade de portadores ambipolares na área iluminada. A densidade de excitação usada no experimento mostrado na Figura 5.2 é 1000 vezes menor que a usado na Figura 5.1. De acordo com a Figura 5.2(a) o perfil espacial da PL na direção  $x // [1-10]$  é simétrico e composto por duas estruturas, as quais podem ser muito bem descritas pela Equação 5.1. O pico principal na Figura 5.2 (a) foi ajustado com  $\alpha = 2,0$  e  $D_l = D_r = 18$ . Para ajustar o pico de intensidade menor foi usado  $\alpha = 1,3$  e  $D_l = D_r = 8$ .

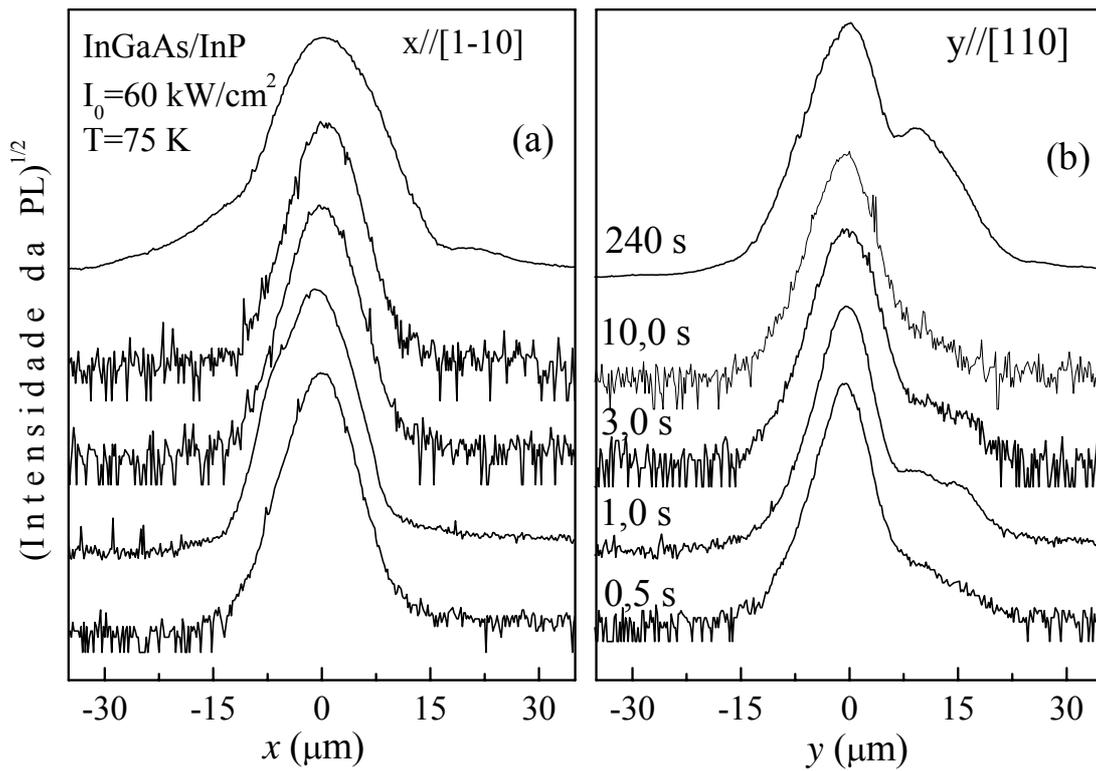


Figura 5.1 - Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$  ao longo de dois eixos ortogonais que se cruzam no centro do *spot* de excitação, para as heteroestruturas crescidas com o tempo de  $t = 0,5, 1,0, 3,0, 10,0$  e  $240 \text{ s}$ .

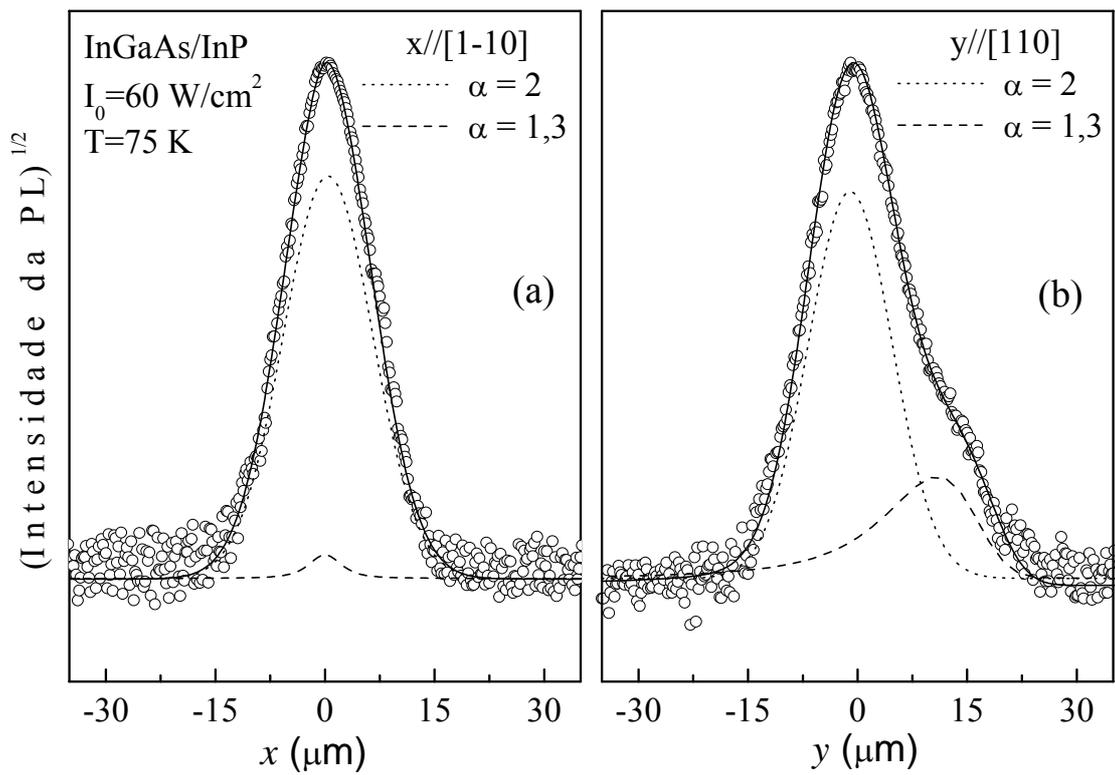


Figura 5.2 - Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$  ao longo de dois eixos ortogonais que se cruzam no centro do *spot* de excitação. As linhas sólidas representam o melhor ajuste dos dados experimentais, como discutido no texto.

Igualmente, o perfil espacial para a direção  $y//[110]$  (Figura 5.2 (b)) é também composto por duas estruturas bem definidas e descritas pela Equação 5.1. Todavia, diferentemente do que ocorreu previamente na direção  $x$ , uma destas estruturas é assimétrica com o pico deslocado para longe do centro da difusão. Os valores  $\alpha$ ,  $D_l$  e  $D_r$  nesta direção são: 2,0, 16 e 16, para o pico central e 1,3, 0,0 e 38, para o pico assimétrico, respectivamente.

O efeito da variação da densidade de excitação nos perfis da densidade de portadores ambipolar, ao longo da direção  $y$ , pode ser observado na Figura 5.3. Para uma melhor comparação, as curvas foram normalizadas com relação à intensidade do pico central. Como pode ser claramente notado, o efeito da densidade de excitação no pico lateral, aqui denominado de pico assimétrico, é diferente do verificado para o pico central. Para investigar esta dependência, um estudo mais cuidadoso foi feito. Todas as curvas foram ajustadas usando a Equação 5.1 e o comportamento das duas estruturas foram analisadas separadamente. O conjunto de curvas apresentados na Figura 5.4 mostra o pico assimétrico para algumas densidades de excitação, obtido após subtração do pico central ajustado. A raiz quadrada da intensidade da fotoluminescência espacialmente integrada  $(I_{PL})^{1/2}$  de cada uma das duas estruturas, pico central (círculos abertos) e pico assimétrico (círculos fechados), em função da densidade de excitação são mostradas na Figura 5.5. As linhas sólidas são resultados de regressões lineares. Como discutido no Capítulo 2, o coeficiente de inclinação  $m$  destas linhas, quando representadas graficamente em escala *log-log*, está relacionado aos diferentes processos de recombinação. Ou seja, inclinações 1, 1/2, 1/3 representam processos de recombinação do tipo não radiativo ( $(I_{PL})^{1/2} \propto n$ ), radiativo ( $(I_{PL})^{1/2} \propto n^2$ ) e Auger ( $(I_{PL})^{1/2} \propto n^3$ ), respectivamente. Assim,  $m = 0,49$  encontrado para o pico central mostra que o

processo de recombinação no centro do *spot* de excitação envolve dois portadores e, portanto, é predominantemente radiativa. Por outro lado, foi encontrado que o processo de recombinação responsável pelo pico assimétrico é do tipo Auger, uma vez que envolve três portadores, apresentando assim inclinação de  $m = 0,33$ .

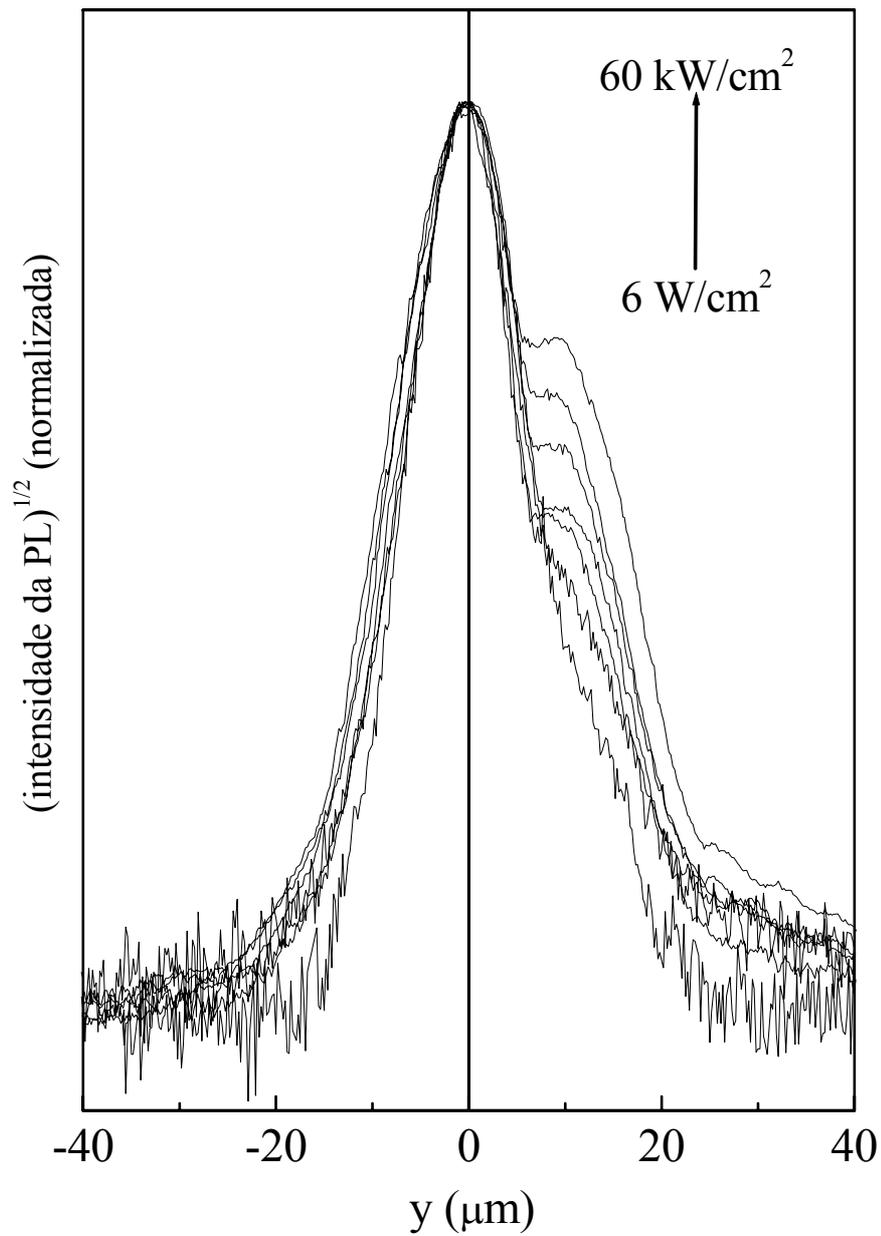


Figura 5.3 - Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$  ao longo do eixo  $y$  para diferentes densidades de excitação.

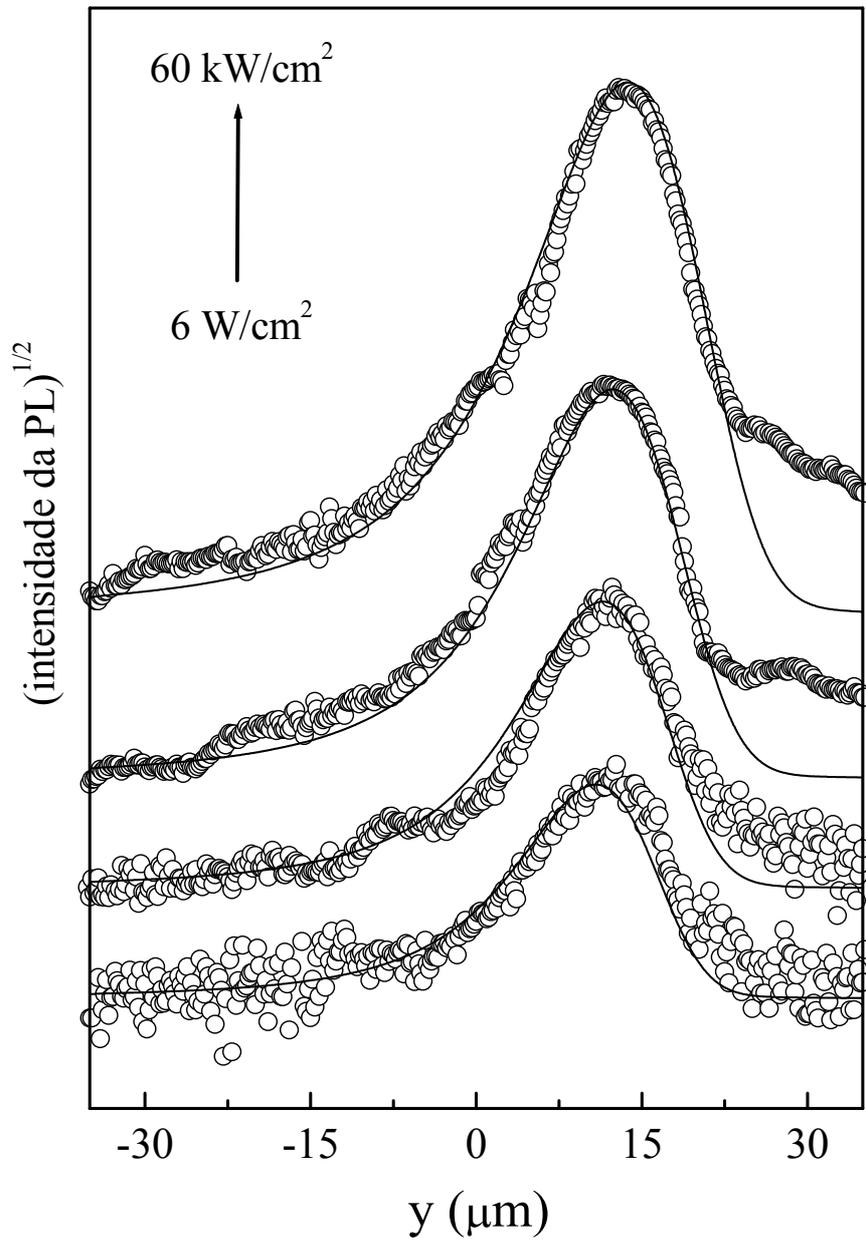


Figura 5.4 – Parte assimétrica da raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência ( $I_{PL}$ )<sup>1/2</sup> obtidos após subtração do pico central, para diferentes intensidades de excitação.

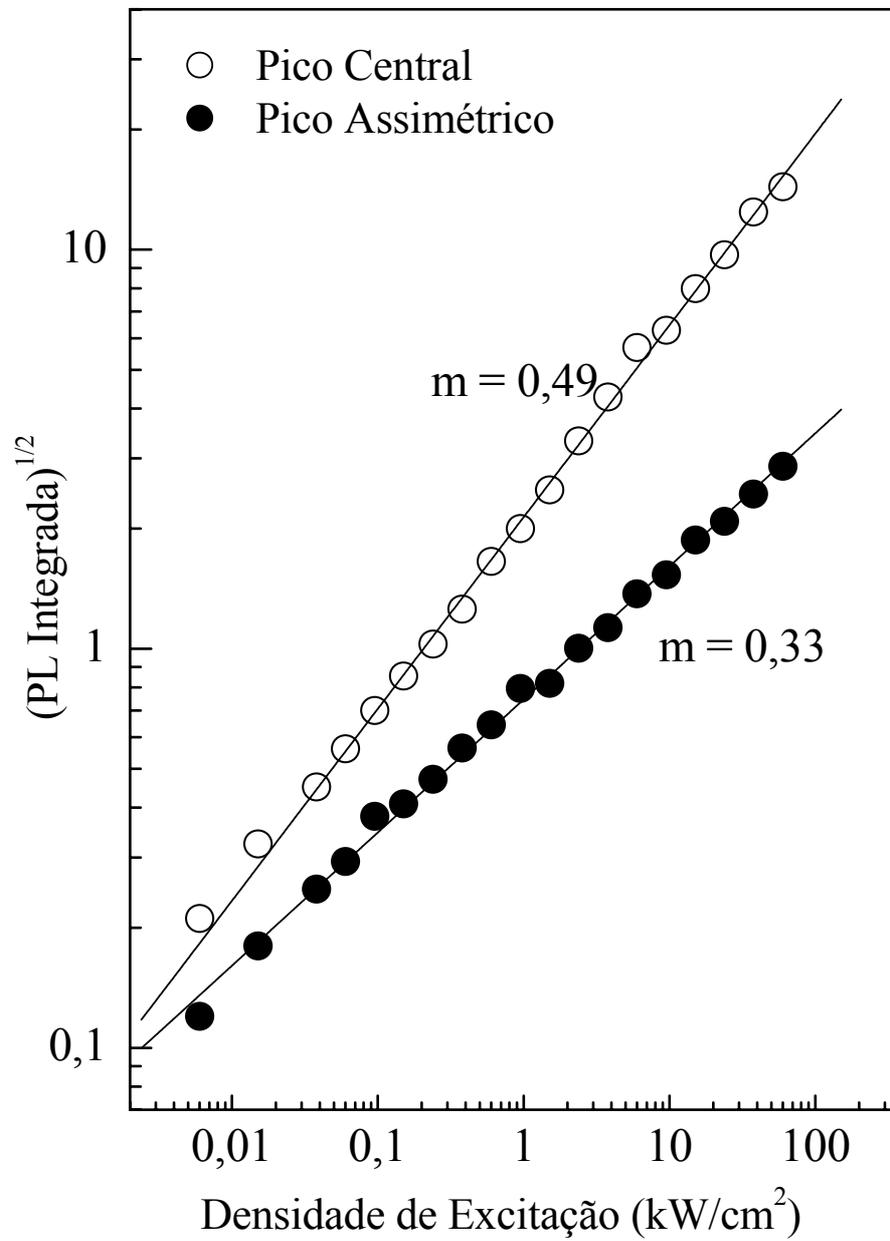


Figura 5.5 – Dependência da raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$  do pico central (círculos abertos) e do pico assimétrico (círculos fechados) como função da densidade de excitação.

A Figura 5.6 mostra a evolução dos perfis de densidade de portadores ambipolar ao longo da direção  $y$  em função da temperatura no intervalo 75 – 300 K. Novamente, para uma melhor comparação, as curvas foram normalizadas com relação à intensidade do pico central. A Figura 5.7 mostra a variação da raiz quadrada da intensidade da fotoluminescência integrada  $(I_{PL})^{1/2}$  do pico central (círculos abertos) e do pico assimétrico (círculos fechados) como uma função da temperatura. A dependência da intensidade da PL com a temperatura em heteroestruturas de poços quânticos III-V com baixa densidade de defeitos é usualmente descrita pela expressão fenomenológica [Lambkin *et al.*, 1990; Lourenço *et al.*, 2003]:

$$I_{PL}(T) = \frac{I_0}{1 + b \exp(-E_A / K_B T)}, \quad (5.3)$$

na qual  $I_0$  é a intensidade em  $T = 0$  K,  $b$  é a razão entre o tempo de vida do éxciton no poço quântico e o tempo de vida de fuga do éxciton do poço quântico para um centro não-radiativo e  $E_A$  é a energia de ativação térmica para o centro não – radiativo. As linhas sólidas na Fig. 5.7 representam o melhor ajuste obtido pela Equação 5.3. As energias de ativação térmica obtidas do ajuste foram:  $E_A = 78$  meV para o pico central e  $E_A = 38$  meV para o pico assimétrico.

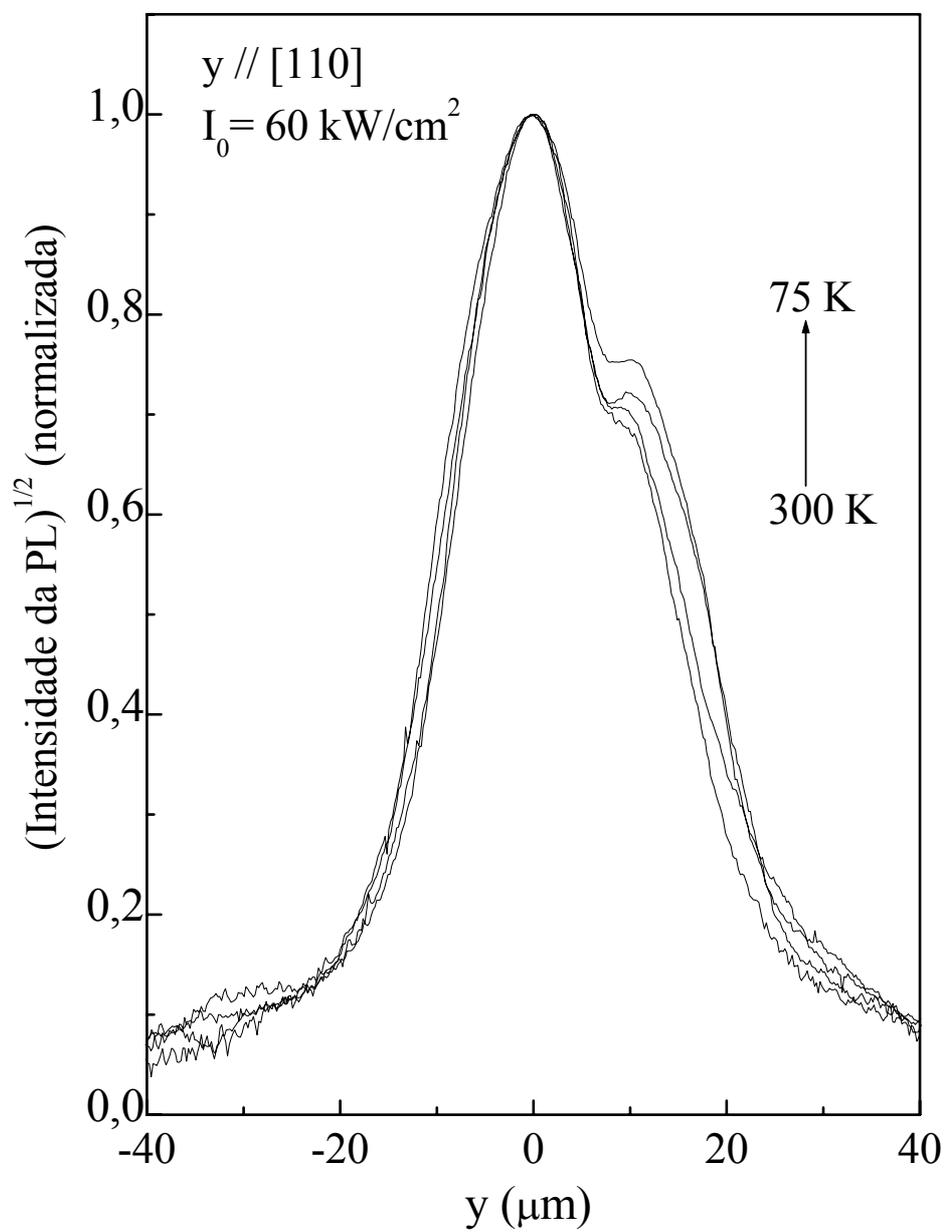


Figura 5.6 – Raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$  ao longo do eixo  $y$  para diferentes temperaturas.

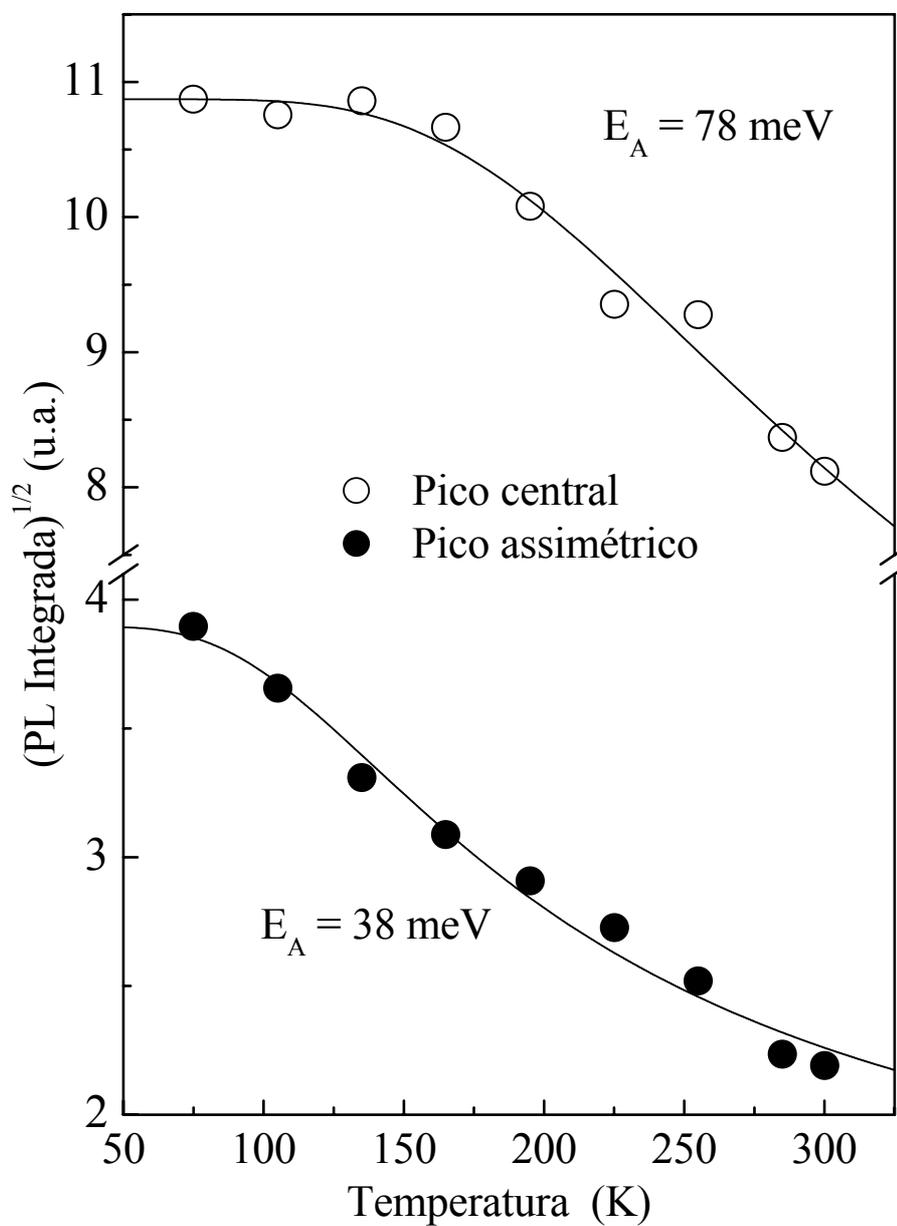


Figura 5.7 - Dependência da raiz quadrada dos perfis de intensidade da fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$  do pico central (círculos abertos) e do pico assimétrico (círculos fechados) como função da temperatura. As linhas representam o melhor ajuste obtido pela Equação 5.3.

Como resultado dos ajustes dos perfis de difusão (Figura 5.3) com a Equação 5.1, foi possível calcular a dependência da  $D_r$  em função da densidade de excitação e da temperatura. A Figura 5.8 mostra que  $D_r$  cresce sublinearmente com a densidade de excitação (a) e que  $D_r$  decresce com o aumento da temperatura (b). A dependência com a temperatura pode ser explicada levando-se em conta que ao se difundirem, portadores podem ser espalhados pela rede. Como  $D = \mu K_B T / q$  e a mobilidade  $\mu$  é proporcional ao inverso da temperatura ( $\mu \propto T^{-a}$ ) para este caso de espalhamento pela rede, tem-se que  $D_r \propto T / T^{-a}$ . O melhor ajuste com os dados experimentais da Figura 5.8(b) dá um valor de  $a = 1,2$ , concordando com valores encontrados na literatura para semicondutores III-V [Sze, 1981]. A dependência de  $D_r$  com a densidade de excitação é mais difícil de explicar. Uma possibilidade para o comportamento observado na Figura 5.8(a) é admitir que  $D_r$  cresce com a densidade de portadores e esta é proporcional à densidade de excitação ( $n \propto I$ ). Esta hipótese está em concordância com Sze, [Sze, 1981], que diz que no equilíbrio térmico a relação mais geral de  $D$  e  $\mu$  é dada por:

$$D = \frac{\mu K T}{q} \left[ 1 + 0.35355 \left( \frac{n}{N_c} \right) - 9.9 \times 10^{-3} \left( \frac{n}{N_c} \right)^2 + 4.45 \times 10^{-4} \left( \frac{n}{N_c} \right)^3 + \dots \right], \quad (5.4)$$

na qual  $n$  é a concentração de portadores e  $N_c$  a densidade efetiva de estados na banda de condução.

A diferença observada na energia de ativação térmica entre os picos central e assimétrico pode ser explicada considerando que o processo de recombinação radiativa, dominante na região do pico central, praticamente não transfere energia para a rede.

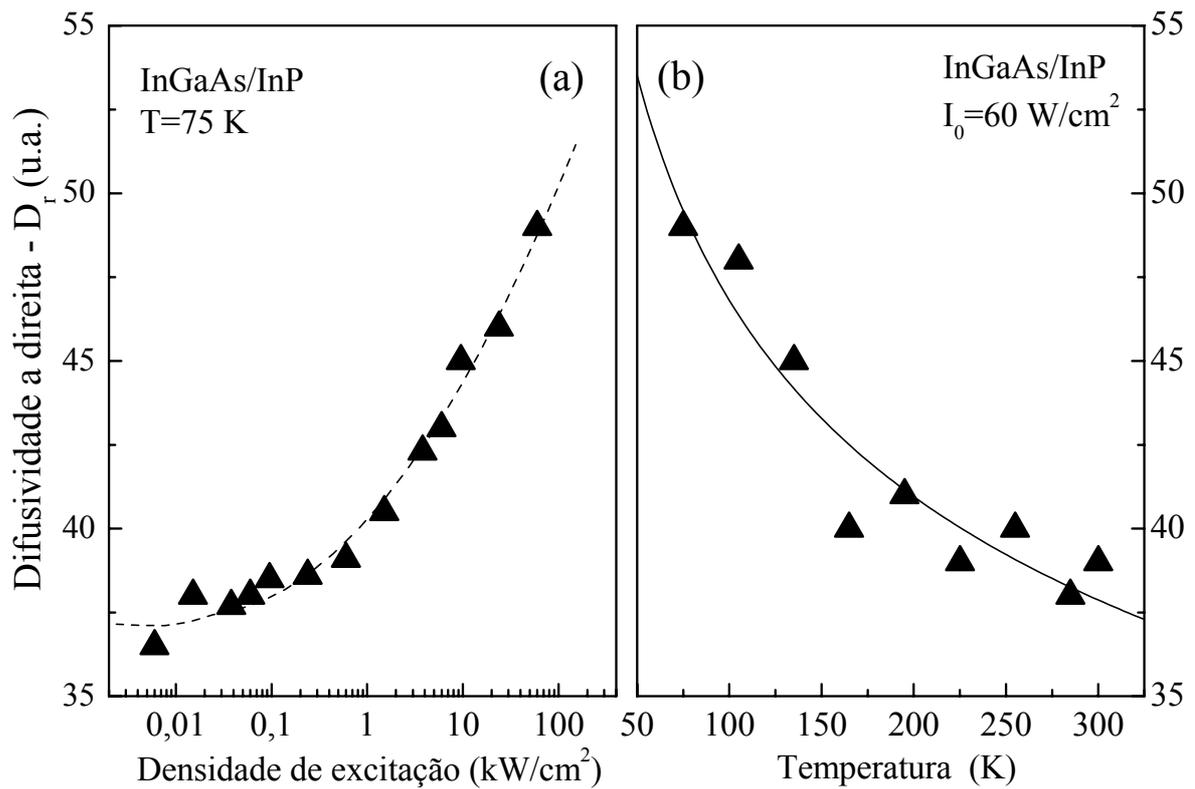


Figura 5.8 – Dependência da Difusividade  $D_r$  como função da (a) densidade de excitação e (b) da temperatura. A linha sólida representa o melhor ajuste obtido com  $D_r \propto T/T^{-a}$ . A linha pontilhada é somente guia para os olhos.

Contudo o processo de recombinação dominante na região do pico assimétrico envolvendo três portadores ( $Cn^3$ ): um elétron de condução e um buraco pesado recombina e transferem sua energia e momento para um segundo elétron (ou buraco pesado) que é então jogado para o alto da banda de condução (ou para a banda *split off*). Depois da interação, o terceiro portador normalmente perde seu excesso de energia para a rede, na forma de fônons. O acúmulo destes fônons de não-equilíbrio fora do centro do spot do laser de excitação conduz ao aumento da temperatura local da rede. Este aumento de temperatura reduz o *gap* na região aquecida, confinando assim os portadores. Além do mais, a redução do *gap* conduz a uma redução dos níveis de energia dos centros não radiativos presentes na barreira. Conseqüentemente, os portadores confinados na região fora do centro do *spot*, associada ao pico assimétrico, necessitarão de uma energia menor para escapar para o centro não radiativo (baixa energia de ativação). Resumindo, o confinamento local seria responsável pelo aparecimento do pico assimétrico.

A redução do *gap* foi confirmada por medidas de fotoluminescência ao longo da direção *y*, realizadas em diferentes pontos dentro da imagem de PL. Os dados são mostrados na Figura 5.9 (estrelas fechadas). Para ilustração, o perfil da raiz quadrada da PL ao longo da mesma direção é também mostrado. Como pode ser verificado na figura (lado esquerdo) a energia da fotoluminescência PL diminui de 36 meV quando medido no centro do *spot* de excitação e a 21  $\mu\text{m}$  distante deste ponto. Este valor é próximo da diferença encontrada entre a energia de ativação do pico central e do pico assimétrico (40 meV). Finalmente, foi observado que o espectro de PL realizado a 21  $\mu\text{m}$  distante do centro de excitação óptico apresenta múltiplos picos separados de 20 meV, como pode ser verificado na Figura 5.10. Evidenciando a presença de réplicas de fônons devido provavelmente ao processo de relaxação térmica.

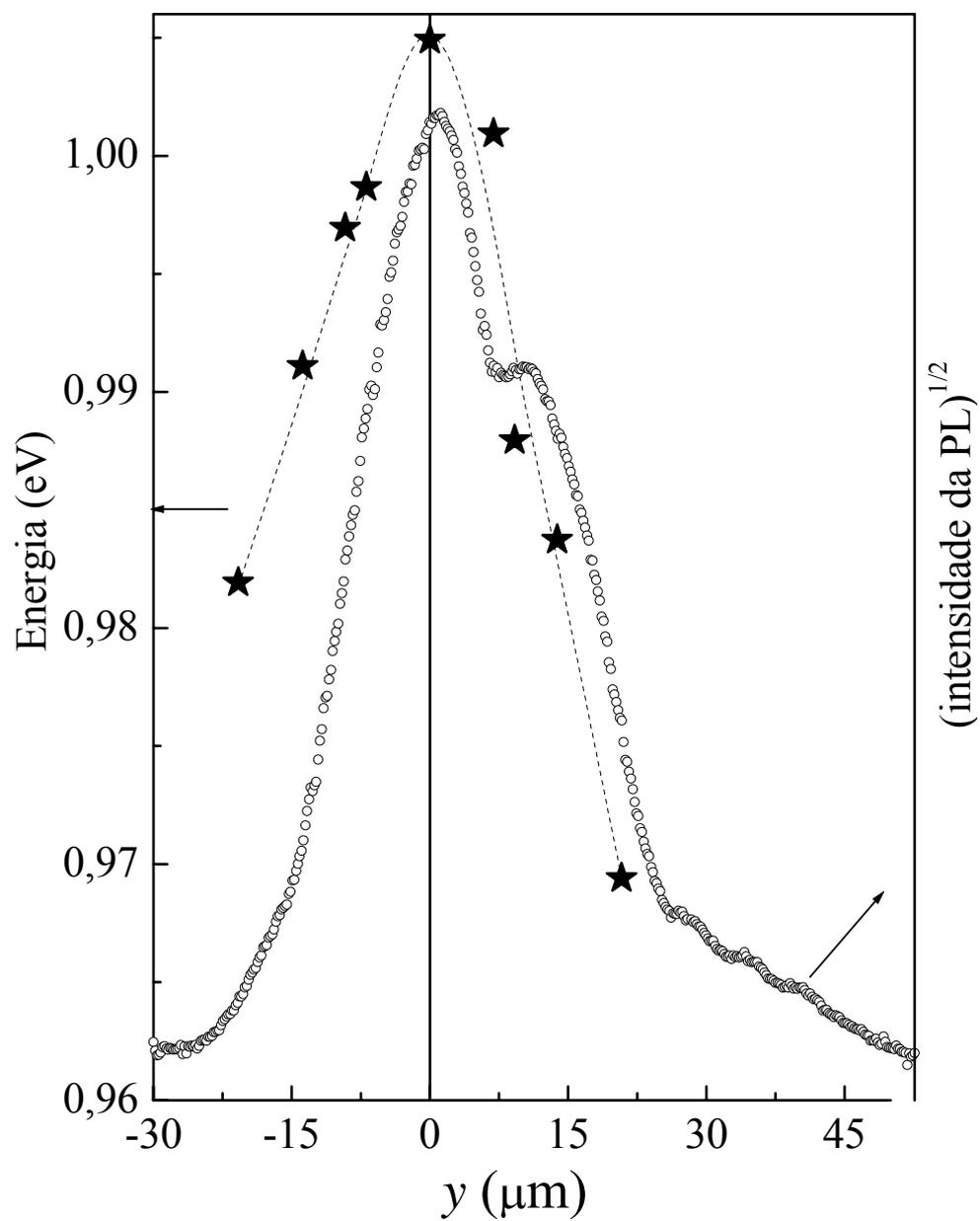


Figura 5.9 – Energia do Pico de PL ao longo de diferentes pontos da imagem de fotoluminescência (lado esquerdo). Raiz quadrada do perfil de intensidade da fotoluminescência  $(I_{PL})^{1/2}$  ao longo do eixo  $y$ .

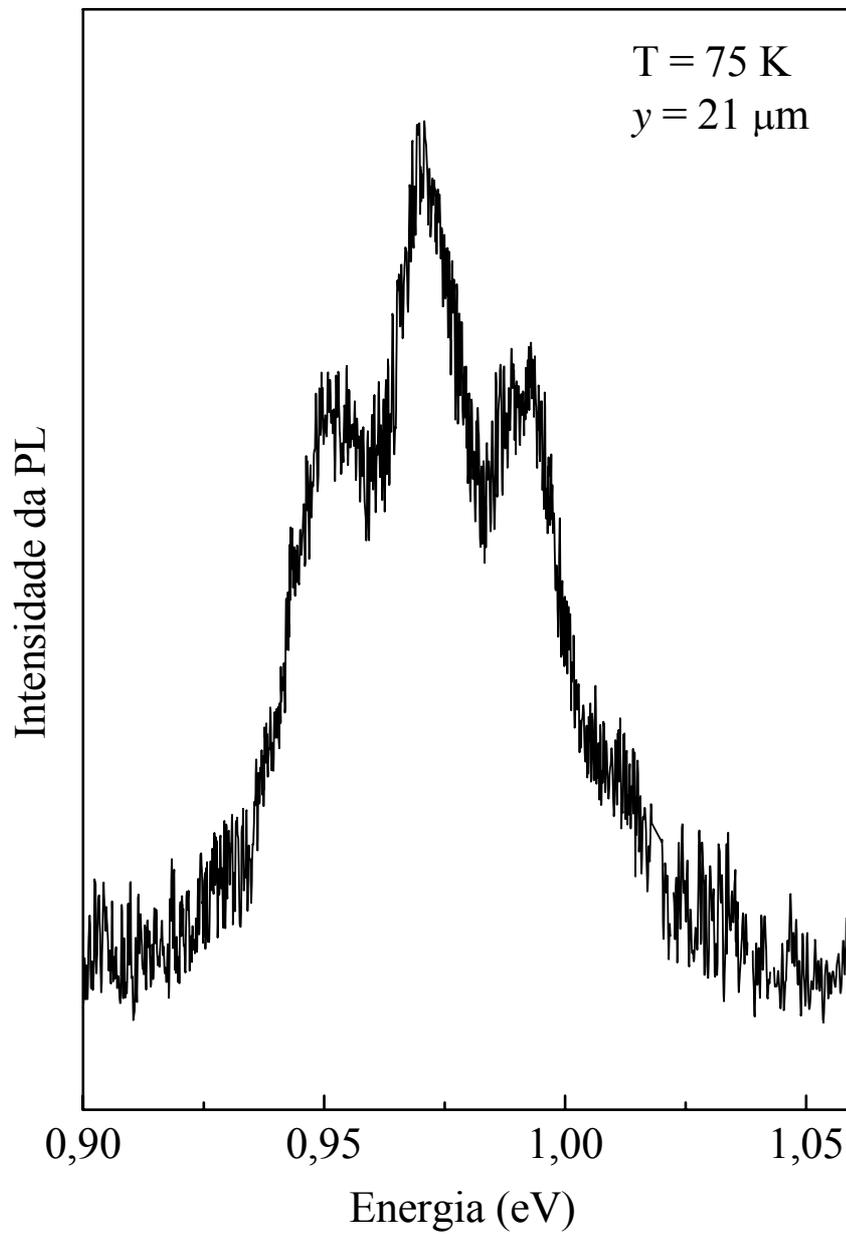


Figura 5.10 – Espectro de fotoluminescência a 21  $\mu\text{m}$  do centro do *spot* de excitação.

Uma explicação para a presença da recombinação Auger no sistema, como indicado pelos dados mostrados na Figura 5.3, não é clara até o momento. Este efeito é predominante na direção  $y$  e na região próxima ao spot de excitação. Uma vez que o pico assimétrico é observado somente ao longo da direção  $y$ , certamente a característica fractal, como também discutida em [Chaves, 1998; Monte *et al.*, 2000], está associada com a rugosidade da interface InP/InGaAs e com os terraços formados ao longo daquela direção. Em outras palavras, a morfologia da interface fractal deve determinar o caráter fracionário do processo de difusão. Neste fenômeno a invariância translacional na direção  $y$  é quebrada pela flutuação do potencial lateral, tendo amplitudes mais largas do que a energia térmica dos éxcitons, explicando com isto a presença da difusão anômala. Em complemento, os portadores que se movem ao longo da direção  $y$  são submetidos a um perfil de potencial espacial completamente diferente do observado pelos portadores que se movem ao longo da direção  $x$  que são submetidos a um potencial menos restritivo. Como a eficiência do efeito Auger depende fortemente do grau de confinamento dos portadores [Htoon *et al.*, 2003], sendo mais pronunciado no potencial mais restritivo, é razoável esperar que a recombinação Auger é aumentada na direção  $y$ .

## Conclusão

A assinatura óptica, revelada pela difusão dos portadores fotoexcitados no poço quântico de InGaAs crescido sobre substrato inclinado de InP orientado  $2^\circ$  fora da direção  $[001]$ , foi investigada usando medidas de fotoluminescência resolvida espacialmente em função da densidade de excitação, temperatura e posição na amostra. Simulações dos perfis da densidade de portadores, usando uma equação de difusão não-Fickiana descrita pela estatística de Lévy, mostraram que os perfis ao longo das direções  $x // [1-10]$  e  $y // [110]$  são compostos por duas componentes. No caso da difusão ao longo de  $x$  foi encontrado que estas componentes são simétricas e descritas com  $\alpha = 2$  e  $1,3$ , sendo seus picos localizados no centro do *spot* de excitação. Para a difusão ao longo de  $y$  verificou-se que apenas uma das componentes é simétrica e está centrada no *spot* de excitação ( $\alpha = 2$ ). Já a outra componente é descrita com  $\alpha = 1,3$  e apresenta um perfil assimétrico, deslocado da posição central do *spot* de excitação. Os resultados mostraram que o coeficiente de difusão  $D_r$ , associado à posição do pico assimétrico, cresce sublinearmente com a densidade de excitação e decresce com o aumento da temperatura da amostra. Estas dependências foram explicadas considerando que o coeficiente de difusão pode aumentar com a densidade de portadores (a qual aumenta com a densidade de excitação) e decrescer com o espalhamento dos portadores pela rede que aumenta com o aumento da temperatura. Foi revelado que a difusão anômala e assimétrica observada na direção  $y$  está associada com a presença de recombinação Auger induzida pela morfologia da interface fractal.

## **CAPÍTULO 6**

### **Conclusão Geral**

Nesta tese foram investigados a dinâmica e o transporte de portadores ambipolares em sistemas de poços e fios quânticos de InGaAs crescidos sobre substrato de InP orientado 2° fora da direção [001]. Para isso foram realizadas medidas de fotoluminescência resolvida espectralmente e espacialmente em função da densidade de excitação, largura e espessura dos fios quânticos, temperatura e posição na amostra.

A dinâmica de recombinação e relaxação dos portadores fotogerados na barreira que se difundem para os diferentes fios quânticos de InGaAs foi modelada por um conjunto de equações de taxa acopladas de modo a simular os dados de fotoluminescência em função da densidade de excitação.

As medidas de fotoluminescência resolvida espectralmente e em função da densidade de excitação mostraram que, para uma determinada excitação, o sinal da PL integrada proveniente de fios quânticos com 2 e 3 monocamadas decresce exponencialmente com o aumento da densidade de excitação do laser incidente. A simulação dos resultados mostrou que este comportamento está associado ao

tunelamento ressonante de portadores confinados nos fios quânticos para estados da barreira de InP. Foi mostrado que a alta densidade de portadores confinados nos QWRs gera um efeito de muitos corpos que, por sua vez, provoca um decréscimo dos níveis de energia dos estados eletrônicos dos QWRs. Este *redshift* na energia diminui a altura da barreira de potencial, favorecendo o tunelamento dos portadores confinados, resultando na diminuição da intensidade da PL observada. Também foi encontrado que os parâmetros que permitiram simular a variação da intensidade da PL estão na região dos valores encontrados na literatura e mostraram uma forte correlação com a morfologia das amostras.

Medidas de fotoluminescência resolvida espacialmente em um poço quântico de InGaAs/InP orientado 2° fora da direção [001] revelaram que o perfil assimétrico da distribuição de portadores é composto por dois tipos de processos de recombinação. Foi verificado que no centro da distribuição a recombinação dos portadores é predominantemente radiativa, enquanto que na região assimétrica a recombinação é governada pelo processo de recombinação Auger, o qual é intensificado pelas características fractais das interfaces.

## Perspectivas de Trabalhos Futuros

- Estudar o efeito da variação da temperatura na dinâmica dos portadores confinados em fios quânticos.
- Estudar o efeito da polarização da luz incidente nos processos de captura de portadores pelos fios quânticos.
- Investigar a possibilidade da existência da difusão anômala em super-redes de InGaAs/GaAs crescidos na direção  $[311]A$  e  $[311]B$ .
  - Efeito da contribuição da rugosidade interfacial no processo de difusão.
  - Efeito da maximização da difusão anômala devido à repetição das interfaces.

## Apêndice A

Tabela A1 - Parâmetros importantes para o InP e para o  $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$

Material	InP	$\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$
*Energia de gap $E_g$ (eV)	1,4205	0,79
*Massa do elétron ( $m_0$ )	0,077	0,041
*Massa do buraco ( $m_0$ )	0,5	0,47
**Constante Dielétrica ( $\epsilon_0$ )	12,61	
**Constante Dielétrica ( $\epsilon_\infty$ )	9,61	
** Fônons LO ( $\text{cm}^{-1}$ )	345	268
**Fônons TO ( $\text{cm}^{-1}$ )	304	287

\*10 K, \*\* 300 K [Sze, 1981; Singh, 1993; Worlock *et. al.*, 1991]

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- Ahrenkiel R. K., Ellingson R., Johnston S., Wanlass M., Appl. Phys. Lett. **72** 3470 (1998).
- Anders S., Rebohle L., Schrey F. F., Schrenk W., Unterrainer K., Strasser G., Appl. Phys. Lett. **82** 3862 (2003).
- Barkai E., Klafter J., Phys. Rev. Lett. **79** 2245 (1997).
- Bastard G., *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures* Halsted Press (1988).
- Ben-Avraham D., Havlin S., *Diffusion and Reactions in Fractals and Disordered Systems*, Cambridge University Press (2000).
- Bewley W. W., Vurgaftman I., Felix C. L., Meyer J. R., Lin C. -H., Zhang D., Murry S. J., Pei S. -S., Ram-Mohan L. R., J. Appl. Phys. **83** 2384 (1998).
- Bhattacharya P., *Semiconductor Optoelectronic Devices*, Prentice-Hall International, Inc. (1994).
- Blackburn J. A., Gronbeck-Jensen N., Phys. Rev. E **53** 3068 (1996).
- Borges J. B., da Silva S. W., Morais P. C., Monte A. F. G., Appl. Phys. Lett. **89** 142103 (2006).
- Chang Y.L., Tan I. H., Zhang Y.H., Bimberg D., Merz J., Hu E., J. Appl. Phys. **74** 5144 (1993).
- Chaves A. S., Phys. Lett. A **239** 13 (1998).
- Cox H. M., Hummel S. G., Keramidas V. G., J. Cryst. Growth **79** 900 (1986).

- Cox H. M., Lin P. S., Yi-Yan A., Kash K., Seto M., Bastos P., Appl. Phys. Lett. **55** 472 (1989).
- Cox H. M., Aspnes D. E., Allen S. J., Bastos P., Hwang D. M., Mahajan S., Shahid M. A., Morais P. C., Appl. Phys. Lett. **57** 611 (1990).
- Da-Yong Z., Qing L., Yun-Chuan K., Zhen-Hua M., Song-Lin F., Zhi-Chuan N., Chin. Phys. Soc. **12** 218 (2003).
- de Dios-Leyva M., Oliveira L. E., J. Appl. Phys. **75** 660 (1994).
- de Sales F.V., Cruz J.M.R., da Silva S.W., Soler M.A.G., Morais P.C., da Silva M.J., Quivy A.A., Leite J.R. J. Appl. Phys. **94** 1787 (2003)
- del-Castilho-Negrete D., Carreras B. A., Lynch V. E., Phys. Rev. Lett. **91** 018302 (2003).
- Dumke W. P., Phys. Rev. **105** 139 (1956).
- Dutta N. K., Nelson R. J., J. Appl. Phys. **53** 74 (1982).
- Efros A. L., Efros A. L., Sov. Phys. Semicond. **16** 772 (1982).
- Exner P., Seba P., Stovicek P., Czech. J. Phys. **39** 1181 (1989).
- Gfroerer T. H., Priestley L. P., Fairley M. F., Wanlass M. W., J. Appl. Phys. **94** 1738 (2003).
- Göni A. R., Pfeiffer L. N., West K. W., Pinczuk A., Baranger H. U., Stormer H. L., Appl. Phys. Lett. **61** 1956 (1992).
- Hausser S., Fuchs G., Hangleiter A., Streuber K., Tsang W. T., Appl. Phys. Lett. **56** 913 (1990).
- Heim U., Röder O., Pilkuhn M. H., Solid State Communications **7** 1173 (1969).
- Htoon H., Hollingsworth J. A., Dickerson R., Klimov V. I., Phys. Rev. Lett. **91** 227401 (2003).

- Kersting R., Schwedler R., Wolter K., Leo K., Kurz H., Phys. Rev. B **46** 1639 (1992).
- Kieseling F., Braun W., Ils P., Forchel A., Gyuro I., Klenk M., Zielinski E., Phys. Rev. B **51** 13809 (1995-a).
- Kieseling F., Braun W., Wang K.H., Forchel A., Knipp P. A., Reinecke T. L., Ils P., Goldstein L., Phys. Rev. B **52** R11595 (1995-b).
- Klimov VI, Mikhailovsky AA, McBranch DW, Leatherdale CA, Bawendi MG, Science **287** 1011 (2000).
- Kono T., Tsukamoto S., Nagamune Y., Sogawa F., Nishioka M., Arawawa Y., Appl. Phys. Lett. **64** 1564 (1994).
- Lambkin J. D., Dunstan D. J., Homewood K. P., Howard L. K., Emeny M. T., Appl. Phys. Lett. **57** 1986 (1990).
- Lévy P., *Théorie de l'Addition des Variables Aleatoires*, Gauthies-Villiers, Paris, (1937).
- Liu X., Lu W., Li Z. F., Chen Y. D., Shen S. C., Fu Y., Willander M., Tan H. H., Yuan S., Jagadish C., Zou J., Cockayne D. J. H., Appl. Phys. Lett. **75** 3339 (1999).
- López C., Mayoral R., Meseguer F., Porto J. A., Sánchez-Dehesa J., Leroux M. Grandjean N., Deparis C., Massies J., J. Appl. Phys. **81** 3281 (1997)
- Lourenço S. A., Dias I. F. L., Poças L. C., Duarte J. L., de Oliveira J. B. B., Harmand J. C., J. Appl. Phys. **93** 4475 (2003).
- Mandelbrot B. B., *The Fractal Geometry Of Nature*, W. H. Freeman And Company, New York, (1977).
- Melgarejo A.A., Renzi D. G., Stoico C.O., Vercat F., Physica E **3** 205 (1998).

- Mello B. A., Chaves A. S., Oliveira F. A., Phys. Rev. E **63** 041113 (2001).
- Monte A. F. G., Cruz J. M. R., Morais P. C., Rev. Sci. Instrum. **68** 3890 (1997).
- Monte A. F. G., da Silva S. W., Cruz J.M.R., Morais P.C., Chaves A.S., Cox H. M., Phys. Lett. A **268** 430 (2000).
- Monte A. F. G., da Silva S. W., Cruz J.M.R., Morais P.C., Chaves A. S., Appl. Phys. Lett. **81** 2460 (2002).
- Monte A. F. G., da Silva S. W., Cruz J. M. R., Morais P. C., Chaves A., Physica E **17** 169 (2003).
- Morais P. C., Cox H. M., Bastos P. L., Hwang D. M., Worlock J. M., Yablonovitch E., Nahory R. E., Appl. Phys. Lett. **54** 442 (1989).
- Mouillet R., de Vaultier L. A., Deleporte E., Guldner Yves, Travers L., Harmand J. C., Solid State Communications **126** 333 (2003).
- Nötzel R., Ledentsov N. N., Däveritz L., Ploog K., Hohenstein M. Phys. Rev. B **45** 3507 (1992)
- Olshansky R., Mannig C. B. SU., Powazinik W., IEEE J. Quantum Electronics **20** 838 (1984).
- Ott A., Bouchaud J. P., Langevin D., Urbach W., Phys. Rev. Lett. **65** 2261 (1990).
- Pankove J. I., *Optical Processes in Semiconductors*, Prentice-Hall, Inc. (1971).
- Pérez-Tomás A., Brosselard P., Godignon P., Millán J., Mestres N., Jennings M. R., Covington J. A., Mawby P. A., J. Appl. Phys. **100** 114508 (2006).
- Petroff P. M., Gossard A. C., Logan R. A., and Wiegmann W. W., Appl. Phys. Lett. **41** 635 (1982).

- Piwonski, T., O'Driscoll, I., Houlihan, J., Huyet, G., Manning, R. J., Uskov, A. Appl. Phys. Lett. **90**, 122108 (2007).
- Popovic, Z. V., Cardona, M., Richter, E., Strauch, D., Tapfer, L., Ploog, K., Phys. Rev. B **40** 1207 (1989).
- Reif F., *Fundamentals of Statistical and Thermal Physics*, Mc Graw Hill Book Company, New York, (1965).
- Ridley B. K., Phys. Rev. B **50** 1717 (1994)
- Roosbroeck W, Van e Shockley W., Phys. Rev. **94** 1558 (1954).
- Rosenwaks Y., Iseberova, I., Gero H., Phys. Rev. B **68** 115210 (2003).
- Sakurai J. J., *Advanced Quantum Mechanics*, Addison-Wesley, London (1967).
- Shockley W., Read W. T., Phys. Rev. **87** 835 (1952).
- Shlesinger M. F., West B. J., Physica A **140** 212 (1986).
- Shlesinger M. F., Zaslavsky G. M., Klafter J., Nature **363** 31 (1993).
- Singh J., *Physics Of Semiconductors And Their Heterostructures*, McGraw Hill, New York (1993).
- Smith L. M., Wake D. R., Wolfe J. P., Levi D., Klein M. V., Klem J., Henderson T., Morkoç H., Phys. Rev. B **38** 5788 (1988).
- Solomon T. H., Weeks E. R., Swinner H. L., Phys. Rev. Lett. **71** 3975 (1993).
- Someya T., Akiyama H., Sakaki H., Phys. Rev. Lett. **76** 2965 (1996).
- Sugaya T., Takahashi T., Nakagawa T., Ogura M., Sugiyama Y., Electron. Lett. **34** 926 (1998).
- Sweeney S. J., Phillips A. F., Adams A. R., O'Reilly E. P., Thijs P. J. A., IEEE Photonics Technology Letters **10** 1076 (1998).

- Sze S. M., *Physics of Semiconductor Devices*, 2nd edition John Wiley & Sons, Inc. (1981).
- Tang Y., Rich D. H., Mukhametzhanov I., Chen P., Madhukar A., *J. Appl. Phys.* **84** 3342 (1998).
- Varshni Y. P., *Physica* **34** 149 (1967).
- Vasconcellos A. R., Laureto E., Meneses E. A., Luzzi R., *Chaos, Solitons & Fractals* **28** 8 (2006).
- Weisbuch C. and Vinter B., *Quantum Semiconductor Structures*, Academic, New York, (1991).
- Wells Jr, P. R. “Estudo de Propriedades de Transporte de um Pacote de Ondas em Sistemas Desordenados” Dissertação de Mestrado, Instituto de Física, Universidade Federal do Rio de Janeiro (2005).
- Worlock J. M., Peeters M. F., Cox H. M., Morais P. C., *Phys. Rev. B* **44** 8923 (1991).
- Wu J. C., Wybourne M. N., Yindepol W., Weisshaar A., Goodnick S. M., *Appl. Phys. Lett.* **59** 102 (1991).