UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA E INFORMÁTICA

"Excitações Coletivas e de Partícula Independente em Sistemas Multicamadas de GaAs δ dopadas "

Virgílio de Carvalho dos Anjos

Tese apresentada ao Instituto de Física de São Carlos, da Universidade de São Paulo, para a obtenção do título de Doutor em Ciências "Física Básica".

Orientador: Prof. Dr. Lidério Citrângulo Ioriatti Júnior

USP/IFSC/SBI
8-2-001241

São Carlos – São Paulo
1998

Meus documentos/declar-defesa

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

Anjos, Virgílio de Carvalho dos

Excitações Coletivas e de Partícula Independente em Sistemas Multicamadas de GaAs Delta-dopadas /Virgílio de Carvalho dos Anjos.– São Carlos, 1998.

82 p.

Tese (Doutorado)–Instituto de Física de São Carlos, 1998.

Orientador: Prof. Dr. Lidério Citrângulo Ioriatti Jr.

1. Semicondutores. 2. Muitos Corpos. 3. Flutuações de Densidade de Carga. 4. Flutuações de Densidade de Spin. 5. Dopagem Delta. 6. Super-redes. I. Título.

UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO
Instituto de Física de São Carlos

Av. Dr. Carlos Botelho, 1465
CEP 13560-250 - São Carlos - SP
Brasil

Fone (016) 274-3444
Fax (016) 272-2218

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE VIRGILIO DE CARVALHO DOS ANJOS APRESENTADA AO INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS DA UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 21 DE JANEIRO DE 1998.

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. Lidério Citrângulo Ioriatti Júnior/IFSC-USP

Prof. Dr. Luiz Nunes de Oliveira/IFSC-USP

Prof. Dr. Francisco Eduardo Gontijo Guimarães/IFSC-USP

Prof. Dr. Nelson Studart Filho/UFSCar

Prof. Dr. Adalberto Fazzio/IF-USP

Aos meus pais Antônio e Inah (em memória),
à minha filha Paula e à minha companheira Maria José.

Agradecimentos

- Agradeço aos meus pais pelo contínuo apoio durante todos esses anos de trabalho. Em especial à minha mãe, da estrela de onde estiver agradeço por sua dedicação e amor.

- Ao meu orientador *Lidério Citrângulo Ioriatti Jr.*, por ter proporcionado um problema bonito a ser resolvido. Pelo seu apoio, interesse e dedicação. Além de, como homem de ciência, mostrar profunda honestidade e retidão de conduta, que ficou evidente ao longo de nosso convívio.

- Aos amigos Marcio Adriano, Washington, J. Vitor, Manzoli, Marletta, Domingos, Daniela, Mauro, Dione, Cristina, Sandra, Silvia, Camilo, José Carlos, etc, pelas discussões e sugestões que muito contribuíram para a realização deste trabalho e pelo excelente ambiente por eles proporcionado.

- À Maria José pelo carinho e ajuda inestimáveis que tanto aprecio.

- A todos os funcionários do IFSC-USP.

Este trabalho foi financiado pela CAPES

Índice

Lista de Figuras iii

Resumo vi

Abstract vii

1 INTRODUÇÃO 1

1.1 Espalhamento Raman eletrônico 2

2 SUPER-REDES DELTA-DOPADAS 12

2.1 Introdução 12

2.2 Estrutura Cristalina e de Bandas do GaAs 12

2.3 Super-redes Delta-dopadas 15

3 ESTRUTURA ELETRÔNICA DE SUPER-REDES DELTA-DOPADAS 20

3.1 Introdução 20

3.2 A aproximação de Thomas-Fermi 22

3.3 Cálculos para a banda de condução 25

3.4 Cálculos para a banda de valência 31

4 TEORIA AUTO-CONSISTENTE PARA OBTENÇÃO DE ESPECTROS DE FDS E FDC 33

4.1 Introdução 33

4.2 Seções de choque de espalhamento de luz 34

4.3 Flutuações de densidade baseada na TFD 38

4.4 Acoplamento com fônons LO 42

4.5 Equações de movimento 44

4.6 Amortecimento das flutuações de densidade 45

4.7 Equações autoconsistentes 47
4.8 Funções resposta para FDS e FDC 49
4.9 Conclusões 51

5 RESULTADOS E DISCUSSÕES **53**
5.1 Introdução 53
5.2 Resultados da estrutura eletrônica 53
5.3 Resultados do espalhamento inelástico de luz 56

6 CONCLUSÕES **71**

A Função resposta e regra de soma em ressonância próxima **75**

Lista de Figuras

1.1 Geometria de quasi-retroespalhamento utilizada em experimentos de espalhamento ressonante de luz. 3

1.2 Diagrama esquemático mostrando as transições virtuais entre as bandas de valência e condução em um espalhamento ressonante. 4

1.3 A) Espectro despolarizado de excitações intersubbanda para vários valores do vetor de onda de espalhamento. As linhas são ajustes do espectro. Enxerto: geometria de espalhamento e a expressão de k. B) Espectro polarizado para vários valores de k. Enxerto: dependência das excitações intersubbanda com k no limite $k \ll k_F$. 7

1.4 Espectro Raman ressonante de um sistema multi-delta de GaAs com cela unitária de 500 Å. A) espectro despolarizado. B) espectro polarizado. As energias incidentes do laser são: a) 1.855 meV b) 1.863 meV c) 1.872 meV d) 1.880 meV e) 1.910 meV. 9

2.1 Estrutura cristalina da estrutura tipo Zinc-Blend. 13

2.2 Primeira zona de Brillouin para a estrutura Zinc-Blend, segundo a notação de Bouckaert. 14

2.3 Estrutura de bandas para materiais do grupo III-V. O efeito spin-órbita quebra degenerescência dando origem a um quadrupleto (Γ_8) e a um dupleto (Γ_7). Em parênteses estão indicadas as degenerescências das bandas. 14

2.4 Ilustração esquemática de um filme epitaxial contendo uma camada delta-dopada. Também é mostrado uma rede esquemática com os átomos dopantes confinados a um único plano atômico. 17

2.5 Diagrama esquemático de uma super-rede delta-dopada de N períodos e de cela unitária d. As dopagens delta na figura correspondem às regiões hachuradas em vermelho. Também é mostrado o gás de elétrons formado pela modulação espacial dos potenciais da banda de condução e de valência. 18

3.1 Gráfico da relação de dispersão de super-redes como função da energia onde é mostrada a formação de minibandas. 31

4.1 Esquema do processo Raman em situação de extrema ressonância para o caso de CDE. A banda de valência (BV) contribui na criação do par elétron-buraco na banda de condução (BC) via transições interbanda *virtuais*. A figura mostra também as regras de seleção dependentes da polarização incidente e espalhada. 35

5.1 Espectro de minibandas com as respectivas ocupações calculadas autoconsistentemente para um sistema multicamadas delta-dopados de 11 períodos e distribuição Gaussiana de 50 Å com condições periódicas de contorno. No alto à direita encontram-se a densidade eletrônica e o período utilizados. As densidades relativas de cada minibanda e o potencial gerado se encontram no lado direito da figura. 54

5.2 Espectro de minibandas da banda de split-off, densidades relativas para $k_z = 0$ e o potencial de Hartree autoconsistente. As energias são consideradas positivas tomando-se o nível de Fermi como referência. 55

5.3 Distribuição das forças de oscilador no caso FDS em condições de ressonância próxima para o sistema de multicamadas delta-dopadas. No alto à direita está indicado de quais minibandas as transições se originam. No gráfico também estão representadas as forças de oscilador para um gás de elétrons uniforme com a mesma densidade tridimensional do sistema multi-deltas. . 57

5.4 Seções de choque de espalhamento via mecanismo de FDS experimentais (círculos abertos) e teóricas (linhas contínuas) para várias energias de laser em regime de extrema ressonância. A) *sem* efeitos de correlação e troca. B) *com* efeitos de correlação e troca. 61

5.5 Espectro de forças de oscilador o sistema multicamadas delta-dopadas para o caso de excitações de densidade de carga em ressonância próxima. Os quadrados indicam acoplamentos entre excitações provenientes do quasi-contínuo de estados e os círculos acoplamentos entre excitações oriundas da primeira minibanda. O enxerto apresenta o mesmo cálculo para um gás uniforme de densidade tridimensional igual à densidade 3-D correspondente do sistema multi-deltas. 64

5.6 Seção de choque de espalhamento via mecanismo de FDC para várias energias de laser obtidas em regime de extrema ressonância com o gap de spin-split. À esquerda se encontram os dados teóricos. À direita se encontram os dados experimentais. Letras idênticas identificam os espectros teóricos e experimentais correspondentes. 66

5.7 Espectro de excitações coletivas e de partícula independente para energia do laser incidente em 1872 meV. 67

5.8 Seções de choque de espalhamento para o mecanismo de FDC experimentais (linha contínua) e teóricas (quadrados) para varias energias de excitação. Os espectros teóricos foram calculados utilizando $\gamma_g = 2$ meV. 68

Resumo

Apresentamos uma teoria para obtenção de seções de choque de espalhamento inelástico de luz via mecanismos de flutuações de densidade de carga e spin em um gás de elétrons não-uniforme formado por um sistema multi-camadas de GaAs periodicamente δ-dopadas com concentração eletrônica relativamente alta. Os cálculos, onde estão inclusos efeitos da interação coulombiana entre os portadores, efeitos de correlação e troca dinâmicos e o acoplamento com fônons LO, foram efetuados em condições de extrema ressonância com o gap de split-off do GaAs. Em tais condições, a estrutura detalhada dos níveis de energia dos buracos de spin-split torna-se extremamente importante e é fundamental para o surgimento do espectro de partícula independente apresentado nos espectros polarizados. Este comportamento é revelado através da seção de choque de espalhamento que consiste da parte imaginária de uma função resposta constituída de um termo de caráter de partícula independente e outro de caráter coletivo. De forma a levar em conta o amortecimento das flutuações de densidade, propõe-se uma função espectral baseada na conservação da corrente local. Comparação com formas de linha experimentais disponíveis para o caso de espectros despolarizados mostram excelente concordância. No caso dos espectros polarizados a concordância se deu em nível semi-quantitativo, já que excitações de caráter coletivo obtidas experimentalmente apresentaram intensidade menor do que aquelas fornecidas pela teoria. Tal discrepância é atribuída a efeitos de desordem introduzidas no processo de dopagem e que implicam na quebra das regras de conservação de momentum.

Abstract

We present a theory for the inelastic light scattering cross-section for the mechanisms of charge and spin-density fluctuations in the relatively high concentration of the non-uniform electron gas of a multi-layered δ-doped GaAs system. The calculations are done in conditions of extreme resonance with the spin-split edge of GaAs and include the effects of Coulomb interactions between the carriers, dynamical exchange-correlations and coupling with LO phonons. In such conditions, the detailed energy level structure of the spin-split holes becomes extremely important and is responsible by the single-particle behavior presented in the polarized spectrum. This behavior revealed by the scattering cross-section derived from the imaginary part of a response function, consists of a term showing single-particle character and another displaying collective character. To include the damping of the density fluctuations, a spectral function is proposed based on the foreknowledge that the local current must be conserved. Comparison with the available experimental line-shapes for the depolarized spectra show excellent agreement. In the case of polarized spectra the agreement was given in semi-quantitative terms as experimental collective excitations present less intensity than those calculated by the theory. Such diference is attributed to disorder effects produced during the doping process which results in break down of momentum conservation rules.

Capítulo 1

INTRODUÇÃO

Nos últimos trinta anos presenciou-se o renascer e a fixação da espectroscopia Raman ou espalhamento inelástico de luz como uma das técnicas mais celebradas no estudo de excitações elementares em sólidos. Este renascimento deve-se em sua maior parte ao surgimento do laser como fonte de excitação. Nos primeiros dias da técnica, os espectros eram obtidos usando as linhas de excitação de uma lâmpada de arco de mercúrio que possuia a desvantagem de exigir longos tempos de exposição para a detecção fotográfica, além de apresentar a dificuldade adicional da separação dos componentes Raman das linhas de emissão do Hg. O uso do laser, ao contrário, permite uma maior pureza espectral, maior intensidade, maior controle da polarização e direcionabilidade, além de, devido ao seu rápido desenvolvimento, fornecer tipos com diferentes comprimentos de onda, o que propicia uma escolha adequada para cada tipo de experimento. O espalhamento por excitações elementares tem sido observado em sólidos opacos, metais e semicondutores, assim como em cristais transparentes. O grupo de excitações incluem fônons acústicos e óticos, polaritons em "bulk" e superfície, magnons, excitações vibracionais de íons isolados e excitações em gases de elétrons (plasmons e excitações de partícula independente) [1].

Neste trabalho estaremos interessados no espalhamento inelástico de luz em um gás de elétrons bidimensional não uniforme formado pela modulação espacial do potencial de um sistema multicamadas de GaAs delta-dopadas com Silício.

USC-USP BIBLIOTECA E

1.1 Espalhamento Raman eletrônico

Em termos gerais o processo Raman eletrônico a ser estudado é uma teoria de segunda ordem em teoria de perturbação. Nele um quantum de radiação incidente é aniquilado e um quantum de radiação espalhada é criado. Isto ocorre com a criação (processo Stokes) ou aniquilação (processo Anti-Stokes) de uma excitação no gás de elétrons. O processo Anti-Stokes pode ocorrer então tão somente se o sistema se encontrar inicialmente no estado excitado. Neste trabalho os processos de espalhamento se darão à temperatura, $T = 0$, portanto o processo em questão será o Stokes.

Os semicondutores por serem simples, com estrutura de bandas bem conhecida, e por oferecerem uma enorme variedade, tem sido amplamente estudados via espalhamento Raman eletrônico. Os portadores podem ser produzidos por dopagem, por excitação ótica ou térmica. Além do que, enquanto a maioria dos plasmas produzidos por gases constituem sistemas com baixa densidade para temperaturas altas, nos semicondutores é possível formar plasmas degenerados a baixa temperatura que apresentem interações elétron-elétron substanciais.

Efeitos oriundos da estrutura de banda podem influenciar o processo de espalhamento inelástico de luz de várias formas. Uma delas é a substituição da massa eletrônica pelo tensor massa efetiva [2]. Outra é o comportamento ressonante da seção de choque de espalhamento para frequências incidentes de laser próximas aos gaps interbanda óticos. Efeitos de não parabolicidade de banda também podem produzir termos adicionais na distribuição espectral da radiação espalhada aumentando as contribuições da fração do espectro correspondente a excitações de partícula independente [3].

A partir dos anos 70 o modelamento de estruturas semicondutoras permitiu a realização de sistemas eletrônicos de baixa dimensionalidade. Estudos de sistemas bidimensionais via espalhamento inelástico de luz foram estimulados a partir da proposta pioneira

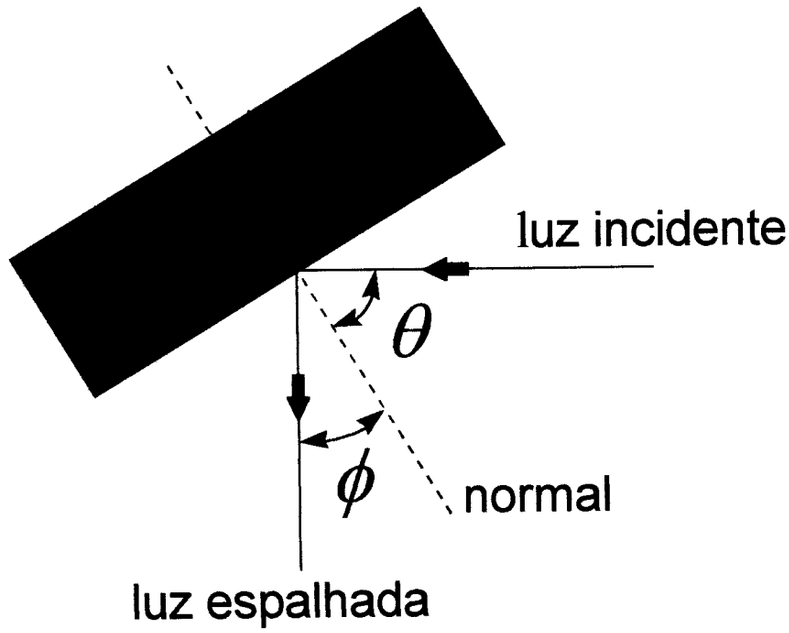

Figura 1.1: Geometria de quasi-retroespalhamento utilizada em experimentos de espalhamento ressonante de luz.

de Burstein *et al* [4]. Eles consideravam que experimentos realizados sob condições ressonantes poderiam ter a sensibilidade para observar excitações elementares dos sistemas eletrônicos 2-D. O aumento de sensibilidade foi previsto para fótons com energias próximas às transições óticas dos elétrons (no caso do GaAs são relevantes os gaps E_0 e $E_0 + \Delta_0$). As primeiras observações de espalhamento ressonante de luz em sistemas 2-D vieram logo a seguir e realizadas em heteroestruturas de GaAs-$Al_xGa_{1-x}As$ com dopagem seletiva [5], confirmando as predições de Burstein *et al* . Os espectros eram largos e com formas de linha que refletiam a qualidade das amostras daquele tempo.

A geometria mais utilizada nos experimentos, mostrada na fig.1.1, é a chamada geometria de quasi-retroespalhamento. A luz se propaga dentro da amostra numa direção próxima à normal do plano do sistema 2-D. Assumiremos o caso extremo em que os ângulos de incidência e espalhamento coincidem com a normal, situação esta não muito longe da realidade, já que, na prática, se lida com materiais de índices de refração alto (por exem-

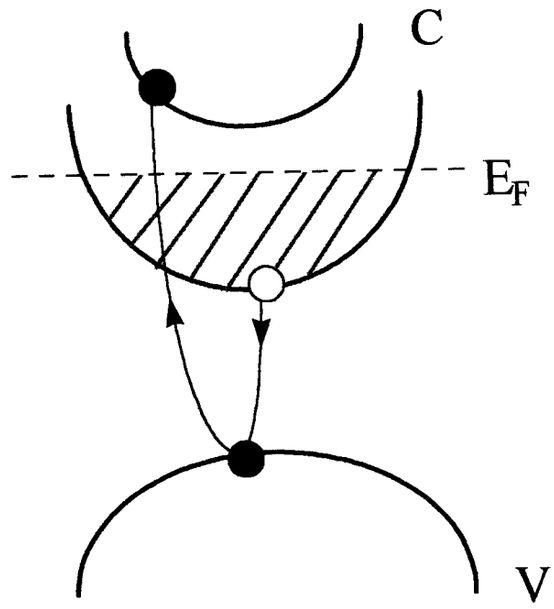

Figura 1.2: Diagrama esquemático mostrando as transições virtuais entre as bandas de valência e condução em um espalhamento ressonante.

plo para o GaAs $n \simeq 3,6$ na região espectral do visível). Esta suposição implica a não transferência de momento lateral e portanto apenas excitações *intersubbandas* verticais são permitidas.

A fig.1.2 mostra um diagrama esquemático que corresponde ao espalhamento ressonante de luz por excitações *intersubbandas*. A luz incidente, cuja energia é próxima a um gap ótico, causa transições da banda de valência para estados desocupados da banda de condução. Em seguida luz espalhada é emitida pela recombinação dos buracos criados na banda de valência e elétrons em estados ocupados da banda de condução.

Dependendo da polarização da luz incidente e espalhada dois tipos de espectros podem ser medidos: a) *espectros despolarizados*, onde as polarizações incidente e espalhada são perpendiculares entre si e associados a excitações via mecanismo de flutuações de densidade de spin. b) *espectros polarizados*, onde as polarizações são paralelas entre si e interpretados como devido à excitações intersubbanda via mecanismo de flutuações de

densidade carga. Estas regras de seleção foram obtidas pela primeira vez por Hamilton e McWhorter [6], que mostraram que efeitos advindos da estrutura de banda permitiam que um gás de elétrons, obtido pela dopagem uniforme tipo-n em GaAs, ao interagir com um campo de radiação, pudesse ter outro mecanismo que não apenas o de flutuação de densidade de carga. No artigo, seções de choque anomalamente grandes para espalhamento de excitações de partícula independente em GaAs puderam ser parcialmente explicadas a partir de espalhamento por flutuações de densidade de spin. O efeito residia na mistura via acoplamento spin-órbita dos orbitais p que dão a origem a banda de valência do GaAs (ver Cap.2 e 4). Para um gás de elétrons 2-D, os mecanismos de espalhamento e as regras de seleção como considerados por Burstein, Pinczuk e Mills se mostram similares aos de sistemas tridimensionais [7].

Em 1985 Katayama e Ando [8] apresentaram uma teoria de espalhamento inelástico de luz em situação de *ressonância próxima* para excitações de densidade de spin e de carga em super-redes de GaAs-$Al_xGa_{1-x}As$ com dopagem seletiva tipo-n. Para calcular as seções de choque de espalhamento a fórmula de Hamilton e McWhorter [6] foi extendida e dada em termos de funções de polarizabilidade dinâmica levando-se em conta interações coulombianas entre os portadores (campo de despolarização), efeitos de troca e correlação dinâmicos e a interação com os fônons LO. A inclusão de efeitos de troca e correlação dinâmicos (efeito tipo excitônico) se mostrou necessária a partir de um artigo sobre absorção ótica intersubbanda em camadas de inversão e acumulação em Silício, formadas pela interface óxido-semicondutor [9]. Neste caso, o efeito tipo excitônico quase que cancelava o efeito do campo de despolarização encontrado por Allen *et al* [10], resultando em energias ressonantes de absorção bem próximas das energias de transição intersubbandas observadas experimentalmente. Desta forma o acordo entre teoria e experimento se mostrou satisfatório tanto para as energias de absorção, quanto para as formas de linha.

Os cálculos desenvolvidos por Katayama e Ando se basearam em algumas aproxi-

mações importantes. Em primeiro lugar considerou-se que as camadas de GaAs estavam muito distantes entre si, de forma que a super-rede na realidade foi tratada como um sistema de múltiplos poços quânticos. Uma segunda aproximação foi feita ao assumir-se regime de ressonância próxima ou seja, regime em que a diferença entre a energia da luz incidente, $\hbar\omega_L$, e a energia do gap do GaAs, E_g, é grande quando comparada com a diferença típica de energia de transições intersubbandas. Neste caso os denominadores ressonantes de energia foram substituídos por um denominador médio. No entanto esta aproximação implica que a conservação de momentum entre os fótons incidentes e espalhados e as excitações com base na estrutura de bandas não seja considerada de forma detalhada. Em particular, o papel desempenhado pela banda de valência no processo de espalhamento é completamente negligenciado. Em condições de "extrema ressonância" ou seja, quando $E_g - \hbar\omega_L$ é da ordem das transições intersubandas tal aproximação não é válida devendo-se começar com uma fórmula diferente de forma a levar em conta detalhes da estrutura de bandas.

Em resumo, Katayama e Ando calcularam as energias dos modos coletivos intra e intersubbanda no regime de grandes comprimentos de onda para o caso simples de múltiplos poços quânticos onde existiam apenas uma subbanda ocupada e uma desocupada. No caso de espectros intersubbanda por excitações de densidade de spin e de carga realizados com diferentes números de subbandas ocupadas e desocupadas, seus dados numéricos forneceram uma compreensão semi-quantitativa das excitações eletrônicas no regime de baixa energia. Os principais aspectos encontrados foram os seguintes: 1) os efeitos de correlação e troca dinâmicos (efeitos tipo excitônicos) eram pequenos com um "red-shift" da ordem de 1 meV em relação às frequências naturais de excitação dos sistemas. 2) os espectros de excitações de densidade de carga apresentaram picos em energias mais altas em relação aos picos correspondentes de excitação de densidade de spin devido aos efeitos de campo de despolarização e acoplamento com os fônons LO. O acoplamento do

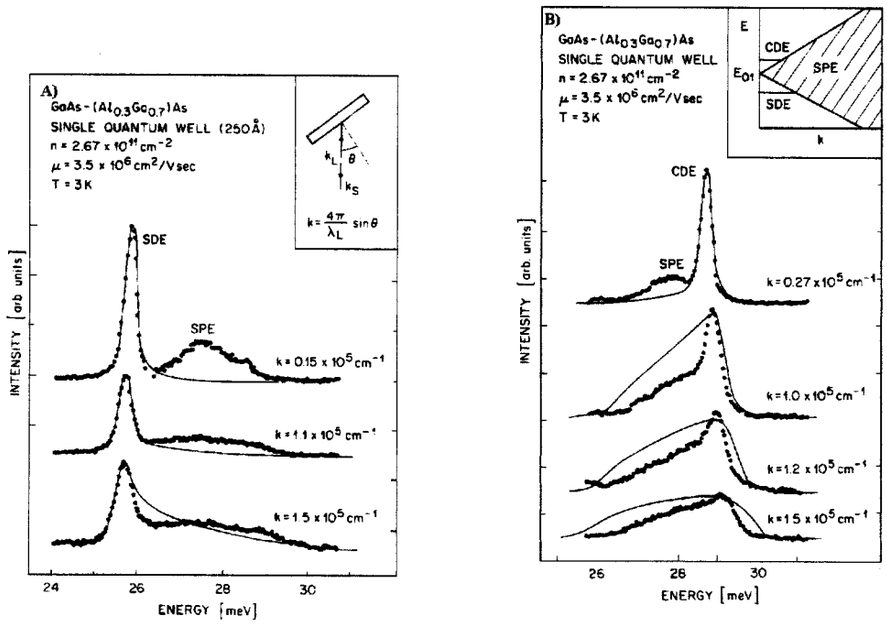

Figura 1.3: A) Espectro despolarizado de excitações intersubbanda para vários valores do vetor de onda de espalhamento. As linhas são ajustes do espectro. Enxerto: geometria de espalhamento e a expressão de k. B) Espectro polarizado para vários valores de k. Enxerto: dependência das excitações intersubbanda com k no limite $k \ll k_F$.

modo intersubanda-fônon LO dá origem a dois picos (L^+ e L^-). 3) O acoplamento dos modos intersubbanda-fônon LO no GaAs dá origem a um modo novo para cada modo intersubanda.

Como mencionado acima, as energias dos modos de excitação de densidade de spin são deslocadas das transições de partícula independente pelas interações de correlação e troca dinâmicas. Já os modos de excitação de densidade de carga possuem deslocamentos em energia devido ao termo direto de interação coulombiana, assim como, pelo termo de correlação e troca. Entretanto, como interações de correlação e troca em GaAs eram pequenas, excitações de densidade de spin em poços quânticos eram interpretadas como os espaçamentos entre as subbandas de energia e portanto interpretadas como excitações de partícula independente. Similarmente, o deslocamento em energia das excitações de

densidade de carga em relação às transições de partícula independente eram consideradas em termos do termo direto de Coulomb e acoplamento com os fônons óticos. No entanto essas interpretações tiveram de ser revistas quando em 1989 Pinczuk *et al* [11] observaram transições de partícula independente (SPE - "Single Particle Excitations") inesperadas juntamente com os modos coletivos de densidade de spin (SDE - "Spin Density Excitation") e de densidade de carga (CDE - "Charge Density Excitation") em poços quânticos de heteroestruturas de GaAs-$Al_xGa_{1-x}As$ crescidas por MBE, como mostra a fig.1.3. A geometria de retroespalhamento utilizada pelos autores, apresentada no enxerto da fig.1.3A, permitia que transições intersubandas não verticais fossem observadas. Desta forma um estudo da dependência das intensidades e larguras de linhas com o vetor de onda na direção paralela ao plano de dopagem foi feito. O espectro despolarizado revelou que a largura da banda atribuída a excitações de partícula independente (SPE) apresentava uma acentuada dependência com a componente do vetor de espalhamento ao longo do plano. Tal dependência com k é esperada para transições intersubanda de partícula independente não verticais. No limite de grandes comprimentos de onda $k \ll k_F$, as energias destas transições como esquematizado no enxerto da fig.1.3B, cobrem um contínuo limitado por $E_{01} \pm kv_F$, onde v_F é a velocidade de Fermi e E_{01} é o espaçamento intersubbanda para $k = 0$. Para vetores de onda grandes, verificou-se que a largura da banda de excitação SPE estava ao redor de $2kv_F$. Esta dependência com o vetor de onda de espalhamento na direção paralela também explica a forma de linha do modo coletivo de excitações de densidade de carga. Com o aumento de k o espectro de CDE intercepta o contínuo de excitações e portanto fortemente amortecido devido ao "damping de Landau". O espectro coletivo de excitação de densidade de spin mostrou menor dependência com o vetor de onda por estar mais distante em energia do contínuo (ver enxerto da fig.1.3B).

Em 1990 foi realizado por Maciel *et al* [12] o primeiro trabalho experimental de caracterização ótica em super-redes de GaAs com dopagem delta de Si com diferentes períodos e

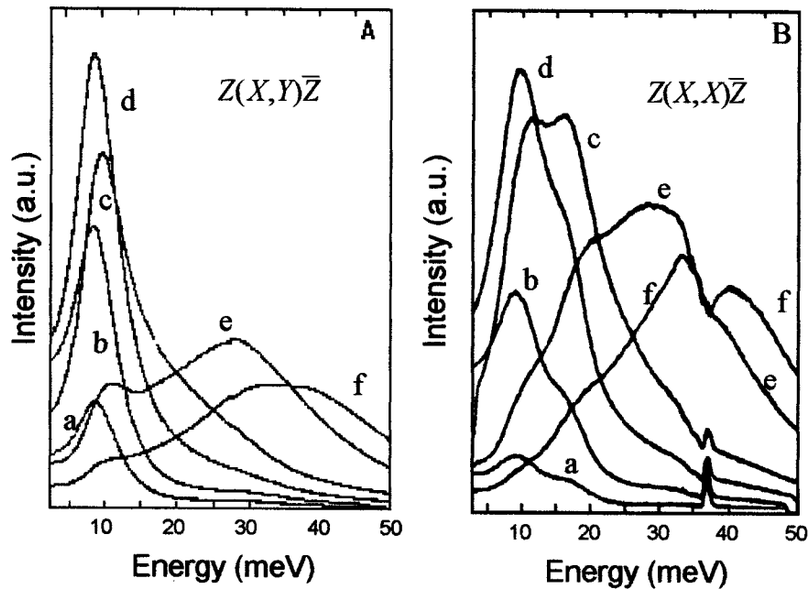

Figura 1.4: Espectro Raman ressonante de um sistema multi-delta de GaAs com cela unitária de 500 Å. A) espectro despolarizado. B) espectro polarizado. As energias incidentes do laser são: a) 1.855 meV b) 1.863 meV c) 1.872 meV d) 1.880 meV e) 1.910 meV.

dopagens. Espectros Raman polarizados e despolarizados em regime de extrema ressonância com o gap $E_0 + \Delta_0$ foram obtidos na geometria de quasi-retroespalhamento $z\,(x,x)\,\overline{z}$ e $z(x,y)\overline{z}$ respectivamente à temperatura $T = 4K$. Os espectros para estruturas de período curto se mostraram similares aos de materiais uniformemente dopados. Porém para estruturas de períodos maiores as formas de linha eram fortemente dependentes da frequência da radiação incidente, como mostra a fig. 1.4, onde estão presentes espectros para ambas polarizações de uma estrutura com 500 Å de período.

A interpretação dos dados experimentais baseou-se no cálculo da estrutura de eletrônica de uma camada delta isolada onde foi utilizado o método semiclássico de Ando [13] que resultou na previsão de três subbandas ocupadas. As formas de linha de ambos os espectros foram interpretadas então como transições coletivas intersubbandas podendo ser via mecanismo de excitação de densidade de spin (espectro despolarizado) ou via excitação de

densidade de carga (espectro polarizado). A distribuição espectral de forças de oscilador considerada implicava em uma estrutura de baixa energia atribuída a transições entre a segunda e terceira subbandas e uma estrutura larga em alta energia atribuída a transições da primeira subbanda e o contínuo (ver fig.1.4). Em trabalho posterior, foi sugerido que a fração do espectro referente a altas energias poderia estar relacionado à luminescência do não equilíbrio associada ao gap $E_0 + \Delta_0$ [14]. Na sequência, cálculos teóricos para o espectro Raman em regime de extrema ressonância SDE, onde efeitos excitônicos não foram considerados, elucidaram esta questão ao apresentar notável coincidência com as formas de linha experimentais [15]. O trabalho mostrou que as formas de linha Raman eram resultado de transições intersubbandas do gás de elétrons bi- e tridimensional formado pela modulação do potencial do sistema multideltas. Esclareceu-se também a importância dos estados de buraco neste regime de espalhamento. Em relação a uma estrutura que emerge no espectro CDE em torno de 17 meV, conforme podemos observar na fig.1.4, sugeriu-se que possivelmente sua origem não estaria ligada a transições intersubbandas e sim fruto de excitações coletivas tipo plasma oriundas da parte 3-D do gás de elétrons.

O espectro polarizado apresenta um aspecto complicador em sua interpretação. Na região do fônon LO existem fortes efeitos de interferência. Para o regime de ressonância próxima e na mesma amostra estas assimetrias foram teoricamente interpretadas [16] e experimentalmente confirmadas [17] como ressonância tipo-Fano devido a interferência do fônon LO e um contínuo de transições de partícula independente. No entanto acreditamos que numa situação ressonante, que é a situação em questão, se deva partir de uma formulação diferente de forma levar em conta a dependência das formas de linha com a frequência.

Neste trabalho calcularemos os espectros Raman polarizados e despolarizados em regime de extrema ressonância com as mesmas características nominais da super-rede estudada por Maciel *et al* [12] com a inclusão de acoplamentos diretos (coulombiano) e

de correlação e troca dinâmicos. Ao final demonstraremos que nesse regime os espectros serão constituídos por excitações de caráter coletivo e por excitações de caráter de partícula independente. Confronto com os dados experimentais resultam em bom acordo.

No Cap. 2 são apresentados os conceitos fundamentais a respeito da estrutura de bandas do GaAs assim como o conceito de super-redes $\delta-$dopadas.

No Cap. 3 aplicar-se-á a teoria de Thomas-Fermi juntamente com a teoria do funcional densidade, na aproximação de densidade local, a fim de se determinar a estrutura eletrônica da super-rede, a saber: funções de onda, perfis de potencial e estrutura de bandas.

No Cap. 4 desenvolver-se-á um formalismo autoconsistente de forma a calcular a seção de choque de espalhamento em condições de extrema ressonância, em temperatura $T = 0K$, para os mecanismos de flutuação de densidade de carga e de spin.

O Cap. 5 será devotado à apresentação e análise dos resultados.

No Cap. 6 estarão contidas as conclusões finais.

Capítulo 2

SUPER-REDES DELTA-DOPADAS

2.1 Introdução

Neste capítulo são apresentadas informações básicas envolvendo a estrutura cristalina e de bandas do GaAs, assim como o conceito de "delta doping" e super-redes delta-dopadas ou sistema de multicamadas delta-dopadas e suas possíveis aplicações.

2.2 Estrutura Cristalina e de Bandas do GaAs

O $GaAs$ é um composto binário do tipo III-V. Neste tipo de composto existem oito elétrons de valência por cela unitária, onde três são fornecidos pelo Ga e os cinco restantes pelo As. A configuração dos elétrons de valência do Ga e As são respectivamente: $4s^2 4p^1$e $4s^2 4p^3$. Os outros elétrons ocupando orbitais mais profundos, não tomam parte nos processos em que se está normalmente interessado, como condução e absorção. As ligações químicas são covalentes com caráter parcialmente iônico. Os átomos se distribuem de forma que cada átomo tem como vizinhos mais próximos quatro átomos do outro tipo, formando ligações tetraédricas. A cristalização se dá em uma estrutura do tipo "Zinc-Blend".

Esta estrutura consiste de duas redes cúbicas de face centrada (fcc) deslocadas uma em relação a outra de um quarto do parâmetro de rede na direção da diagonal de uma delas, conforme se pode notar na fig.2.1. A primeira Zona de Brillouin da rede recíproca é um octaedro truncado sendo que seus principais pontos e linhas de simetria estão indicados

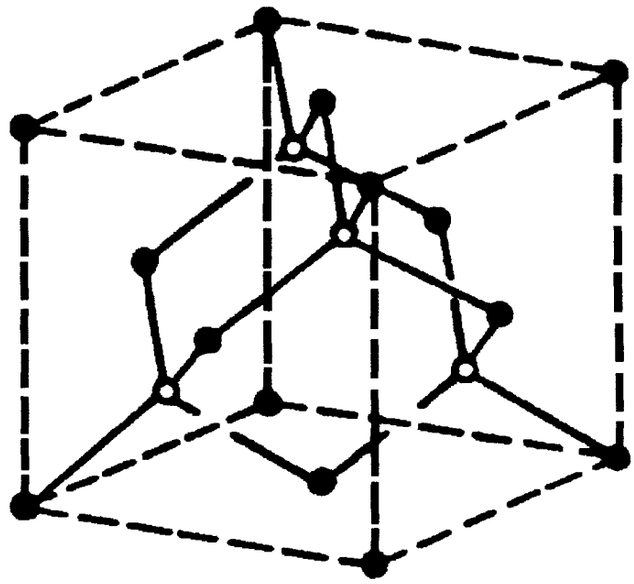

Figura 2.1: Estrutura cristalina da estrutura tipo Zinc-Blend.

na fig.2.2 segundo notação de Bouckaert *et al* [18].

Estamos interessados na região em torno do ponto $\Gamma\,(k = 0)$, onde estão localizados os extremos das bandas de condução e valência do GaAs. Este interesse advém, como veremos, do fato da célula unitária da rede recíproca da super-rede tratada neste trabalho ser muito menor que a célula unitária correspondente do GaAs.

Na fig.2.3 mostra-se o diagrama de bandas do GaAs. O fundo da banda de condução (Γ_6) é originada por orbitais do tipo s antiligantes. Na ausência do acoplamento spin-órbita, as três bandas de valência (originárias de orbitais do tipo p ligantes) seriam degeneradas em Γ. No entanto a existência desse acoplamento resulta na quebra desta degenerescência sêxtupla dando origem a um quadrupleto (simetria Γ_8) que corresponde a $J = 3/2$ e a um dupleto (simetria Γ_7) que corresponde a $J = 1/2$, onde J é o momento angular total. Isto implica em uma mistura dos orbitais do tipo p resultando nos seguintes estados de Bloch segundo modelo idealizado por Kane [19]:

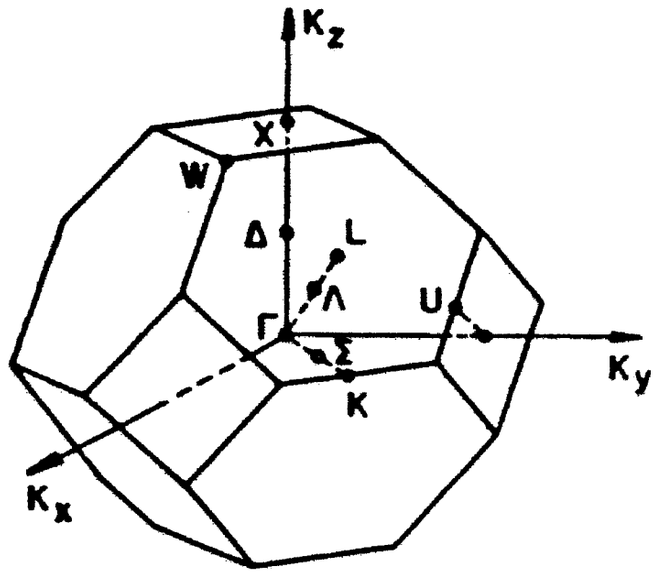

Figura 2.2: Primeira zona de Brillouin para a estrutura Zinc-Blend, segundo a notação de Bouckaert.

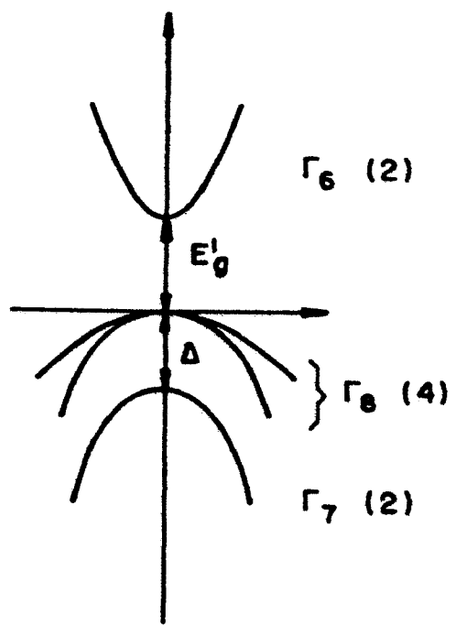

Figura 2.3: Estrutura de bandas para materiais do grupo III-V. O efeito spin-órbita quebra degenerescência dando origem a um quadrupleto (Γ_8) e a um dupleto (Γ_7). Em parênteses estão indicadas as degenerescências das bandas.

$$(3/2,3/2) \;:\; \frac{1}{\sqrt{2}}(X+iY)\uparrow$$
$$(3/2,-3/2) \;:\; \frac{1}{\sqrt{2}}(X-iY)\downarrow$$

para a banda de buraco pesado ao longo de k_z,

$$(3/2,1/2) \;:\; \frac{1}{\sqrt{6}}(X+iY)\downarrow -\sqrt{\frac{2}{3}}Z\uparrow$$
$$(3/2,-1/2) \;:\; \frac{1}{\sqrt{6}}(X-iY)\uparrow +\sqrt{\frac{2}{3}}Z\downarrow$$

para a banda de buraco leve ao longo de k_z e,

$$(1/2,1/2) \;:\; \frac{1}{\sqrt{3}}(X+iY)\downarrow +\frac{1}{\sqrt{3}}Z\uparrow$$
$$(1/2,-1/2) \;:\; \frac{1}{\sqrt{3}}(X-iY)\downarrow -\frac{1}{\sqrt{3}}Z\uparrow$$

para a banda de "split-off", onde os números entre parênteses representam os autovalores de J e m_J dos operadores J e J_z respectivamente.

Para a banda de condução, os estados são representados por funções de onda tipo S :

$$(1/2,1/2) \;:\; (S)\uparrow$$
$$(1/2,-1/2) \;:\; (S)\downarrow$$

2.3 Super-redes Delta-dopadas

Para a realização de dispositivos é necessária a presença de portadores livres. Porém em um semicondutor intrínseco, devido a ausência dos mesmos, a condutividade elétrica é muito baixa. Desta forma a fim de obter portadores é necessário que o material seja dopado.

A dopagem é obtida normalmente por incorporação de impurezas durante o processo de crescimento do semicondutor. Dependendo da finalidade, pode fornecer um excesso de

elétrons, quando é referida como do tipo n, ou com falta dos mesmos (excesso de buracos), dita do tipo p.

No caso do $GaAs$, a dopagem do tipo n é obtida pela introdução de um elemento do grupo IV em substituição ao gálio durante o processo de crescimento do cristal. O elemento mais utilizado neste tipo de dopagem é o Si. A dopagem do tipo p é similarmente obtida sendo que agora o elemento dopante (grupos II, III, IV) substitui átomos de As. Os principais dopantes neste caso são o Be, B e C [20].

As formas de dopagem podem ser diversas: permeando todo o material dopado (dopagem homogênea), com perfis abruptos, ou mesmo variando a concentração de dopantes. A forma a ser utilizada neste trabalho é a de um perfil abrupto conhecido como dopagem do tipo *delta*.

Dopagem delta ou planar é aquela em que os dopantes são confinados a um plano atômico normal à direção de crescimento. Tais perfis finos podem ser matematicamente descritos por uma função delta de Dirac, daí a origem do nome. Entretanto, esta é uma situação ideal já que na prática, efeitos de difusão de dopantes são inevitáveis [21]. Em 1988, *Schubert et al* [22] mostraram por exemplo, que o confinamento de dopantes é fortemente dependente da temperatura do substrato. Experimentos mostram que camadas dopadas com Si ou Be em $GaAs$, $Al_xGa_{1-x}As$ e InP com confinamento de $10-30$ Å de largura, são obtidas com sucesso, conforme resultados revelados por SIMS [23] (*Secondary Ion Mass Spectroscopy*), RHEED [24] (*Reflection High Electron Energy Diffraction*) e medidas de Capacitância-Voltagem [24]. A fig.2.4 apresenta um diagrama esquemático de uma dopagem do tipo delta de Si em GaAs crescido na direção (001).

As aplicações práticas da dopagem tipo delta podem ser divididas em três áreas. A primeira é a aplicação tecnológica em dispositivos de alta velocidade, tendo como principais exemplos o $\delta-$FET e o $\delta-$HEMT que apresentam várias vantagens em relação aos mesmos dispositivos com dopagem homogênea [25]. A segunda diz respeito à aplicação

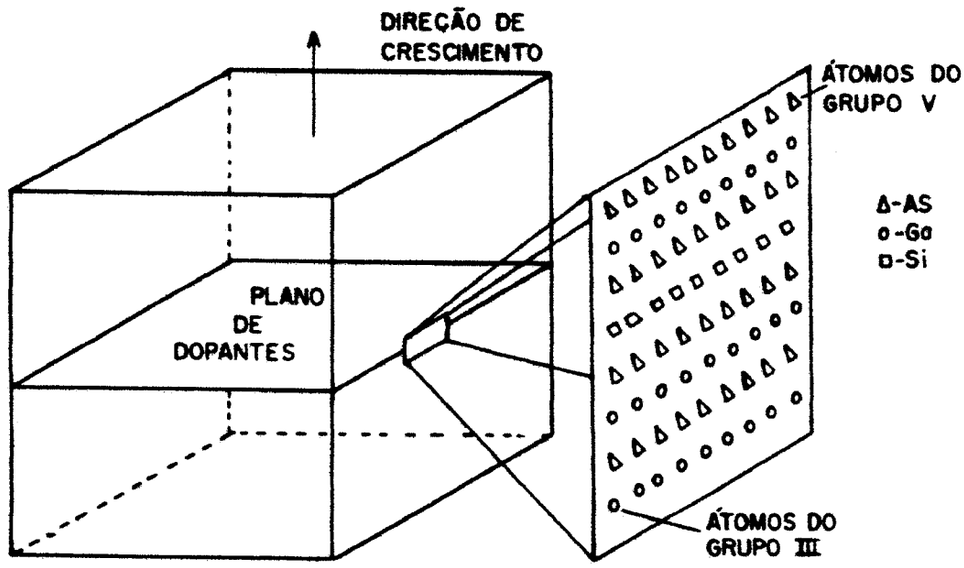

Figura 2.4: Ilustração esquemática de um filme epitaxial contendo uma camada delta-dopada. Também é mostrado uma rede esquemática com os átomos dopantes confinados a um único plano atômico.

de amostras delta-dopadas como detetores de luz. Foi demonstrado que elas apresentam forte absorção ressonante na região do infravermelho, o que as torna candidatas a fabricação de detetores nesta região, aliado ao fato da absorção poder ser sintonizada em função da dopagem. Por último, também é descrita a emissão estimulada sintonizável de radiação com energia abaixo do gap do $GaAs$ em super-redes delta-dopadas de $GaAs$ (a serem descritas abaixo) confinada entre duas barreiras de $Al_xGa_{1-x}As$. A luz emitida é de alta intensidade na região de 0.9 a $1.2\mu m$, o que as torna bastante atrativas para a aplicação em dispositivos fotônicos [25].

Por super-rede delta-dopada entende-se a estrutura periódica formada por sequências de dopagem do tipo delta intercaladas por regiões não dopadas. Estaremos interessados em estudar super-rede de Arsenieto de Gálio (GaAs) delta-dopada com Si, onde o Si entra como impureza subsitucional ao Gálio. Por ser do grupo IV cada Si doa um elétron para a rede ficando portanto positivo. Para concentrações relativamente altas (tipicamente $\geq$

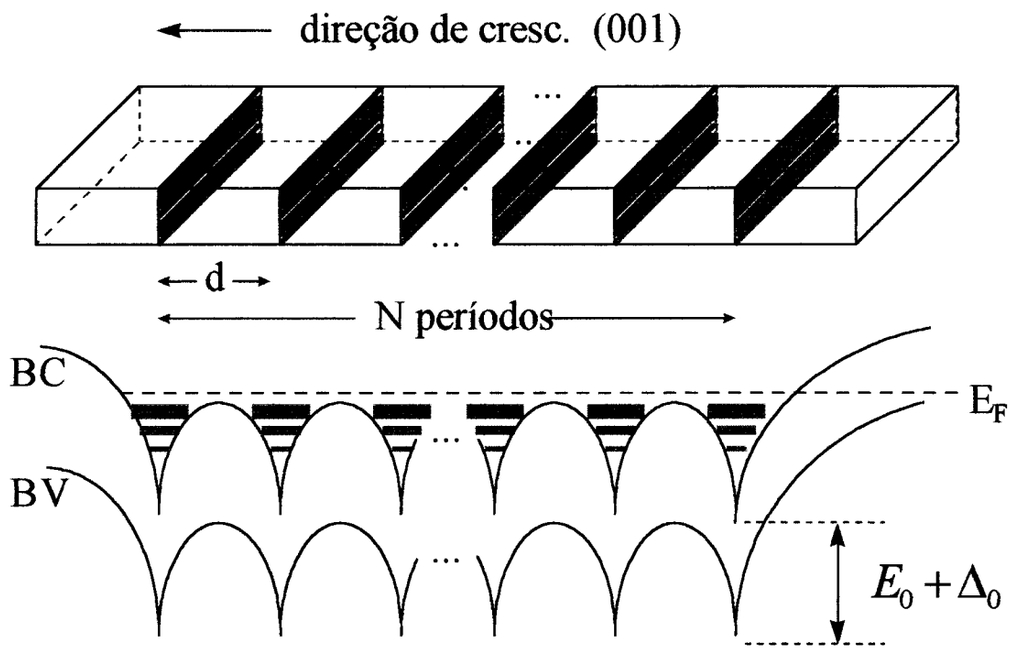

Figura 2.5: Diagrama esquemático de uma super-rede delta-dopada de N períodos e de cela unitária d. As dopagens delta na figura correspondem às regiões hachuradas em vermelho. Também é mostrado o gás de elétrons formado pela modulação espacial dos potenciais da banda de condução e de valência.

10^{11} cm^{-2}) há uma superposição de estados dos Si ionizados formando uma sequência de planos periódicos positivos de caráter metálico que dão origem a um potencial periódico, o potencial da super-rede. Este potencial confina os elétrons doados, na banda de condução, formando assim um gás de elétrons quasi-bidimensional. A fig.2.5 apresenta um diagrama esquemático de uma super-rede de período d e comprimento $L = Nd$ onde N é o número de períodos. A figura apresenta também os potenciais periódicos da banda de condução e da banda de valência de split-off que serão por nós utilizadas. Um dado adicional da figura é o pinning do nível de Fermi no nível aceitador devido a dopagem não intencional durante o crescimento. Normalmente este tipo de impureza é atribuída à presença de carbono.

Devido à modulação de potencial, as características mais marcantes das super-redes

delta-dopadas são: a) gap indireto no espaço real ou seja, as funções de onda de elétrons e buracos estão separadas espacialmente. Isto possibilita um aumento no tempo de vida de recombinações radiativas. b) gap de energia reduzido quando comparado ao gap do material hospedeiro.

Capítulo 3

ESTRUTURA ELETRÔNICA DE SUPER-REDES DELTA-DOPADAS

3.1 Introdução

A proposta deste capítulo é apresentar as formulações e os cálculos utilizados na obtenção da estrutura eletrônica de um sistema de multicamadas delta-dopadas para temperatura T = 0. Nossos cálculos serão efetuados utilizando o conceito de função envelope dentro da teoria da aproximação de massa efetiva. Os resultados em relação com aqueles obtidos em super-redes composicionais devem ser substancialmente melhores já que estas lidam com interfaces entre diferentes semicondutores [26]. Os cálculos autoconsistentes serão baseados em duas formulações: teoria do funcional densidade e a aproximação de Thomas-Fermi. A última servirá como "input" inicial do cálculo autoconsistente. A finalidade da sua apresentação neste capítulo visa mostrar quão fácil é sua utilização sendo seus resultados comparáveis à aproximação de Hartree.

A partir da proposta de Kohn e Sham [27] em 1965, a chamada teoria do funcional de densidade (TFD) ou teoria do gás de elétrons não homogêneo se desenvolveu como uma ferramenta extremamente útil no estudo de sistemas de muitos elétrons. Sua base remonta ao artigo de Hohenberg e Kohn (HK) [28] onde é desenvolvida uma teoria exata no tratamento de sistemas eletrônicos interagentes submetidos a um potencial externo.

Os autores demonstraram que todos os aspectos da estrutura eletrônica podem ser determinados como função da densidade eletrônica $n(\mathbf{r})$. A expressão formal para a energia do estado fundamental E é dada em termos de um funcional da densidade que engloba os termos de energia cinética e de interação e cuja expressão exata, dada a complexidade do problema, não é conhecida. Desta forma várias aproximações deste funcional foram propostas e utilizadas sendo que a mais simples leva à aproximação de Thomas-Fermi.

Do princípio variacional de energia de HK, Kohn e Sham reduziram o problema de muitos corpos a um sistema de equações autoconsistentes de uma partícula para a descrição do estado fundamental do sistema eletrônico. Para isso foi considerado um potencial efetivo, V_{ef}, no ponto $\mathbf{r}$, que depende da densidade total, $n(\mathbf{r}')$, onde formalmente todos os efeitos de muitos corpos são levados em conta. O potencial efetivo pode ser escrito como,

$$V_{ef}(\mathbf{r}) = \phi(\mathbf{r}) + V_{xc}(\mathbf{r}) \tag{3.1}$$

onde $\phi(\mathbf{r})$ é o potencial eletrostático total e $V_{xc}(\mathbf{r})$ é por definição, o potencial de correlação e troca. Ele é dado pela derivada funcional da parte de correlação e troca da energia do estado fundamental em relação a densidade. A expressão de $V_{xc}(\mathbf{r})$, e consequentemente de $V_{ef}(\mathbf{r})$, depende em princípio de uma forma complicada de $\mathrm{n}(\mathbf{r}')$. Na prática, recorre-se a aproximações, sendo a mais simples delas chamada aproximação de densidade local ou LDA. Neste caso a energia potencial de troca e correlação é aproximada pela contribuição de troca e correlação em relação ao potencial químico de um gás de elétrons homogêneo possuindo uma densidade uniforme igual a densidade local $n(\mathbf{r})$ do sistema não homogêneo.

Finalmente é interessante fazer uma comparação dos resultados que podem ser obtidos a partir da TFD e outros métodos. Evidentemente a TFD fornece melhores resultados que Hartree já que a última não leva em conta efeitos de muitos corpos. O principal

mérito da teoria de KS na aproximação de densidade local reside no fato de que, embora ela seja de desenvolvimento tão simples quanto a teoria de Hartree, ela fornece na maioria dos casos uma boa informação a respeito dos efeitos de correlação e troca. Ao contrário, cálculos baseados na teoria de Hartree-Fock exigem um esforço computacional considerável sendo difícil sua implementação para sistemas com muitos elétrons. Além do que, como colocado acima, as equações de KS incluem de forma razoável os efeitos de correlação e troca enquanto Hartree-Fock inclui efeitos de troca exatamente porém negligencia completamente efeitos oriundos de correlação.

3.2 A aproximação de Thomas-Fermi

Como dito anteriormente a aproximação de Thomas-Fermi constitui a versão mais simples da teoria do funcional densidade. Historicamente esta aproximação tem como base a teoria estatística de Thomas-Fermi [29,30] que foi aplicada no estudo do gás de elétrons não homogêneo. Tal aproximação local será melhor quando a densidade eletrônica $n(\mathbf{r})$, ou o potencial que a gera, varia de uma fração pequena sobre um comprimento de onda eletrônico característico. Esta condição nem sempre é obedecida como por exemplo, em átomos e moléculas , onde em regiões próximas ao núcleo o potencial é singular. No entanto ainda assim existe um regime de validade da teoria, a saber, o limite estastístico de muitos elétrons. Em suma a aproximação de Thomas-Fermi é válida nos seguintes regimes:

a) Densidade eletrônica $n(\mathbf{r})$ variando lentamente.

b) Limite de altas densidades.

O objetivo da aproximação de Thomas-Fermi é fornecer um método em que a densidade eletrônica seja obtida a partir de um potencial efetivo $v_{ef}(\mathbf{r})$, potencial este que compõe o conjunto de N equações de Schrödinger na aproximação do elétron independente de um sistema de N elétrons interagentes.

Como a teoria de Thomas-Fermi utiliza as relações de um gás de elétrons uniforme, o nosso ponto de partida será obtê-las.

Seja um gás de elétrons uniforme composto de N elétrons localizado numa região de volume V. Então sua densidade média é dada por

$$n_0 = \frac{N}{V}. \tag{3.2}$$

No estado fundamental todos os estados no espaço dos k, são preenchidos até $k = k_F$, que é o módulo do vetor de onda de Fermi do sistema. Temos então que o número de elétrons é dado pelo volume contido na região de zero até k_F dividido pelo volume elementar do espaço k,

$$N = 2\frac{4\pi\frac{k_F^3}{3}}{\frac{(2\pi)^3}{V}} = \frac{V}{3\pi^2}k_F^3 \tag{3.3}$$

onde o fator 2 se deve ao fato de cada estado k possuir dois níveis eletrônicos (um para cada valor do spin). Assim a densidade eletrônica média se relaciona com k_F por

$$n_0 = \frac{k_F^3}{3\pi^2} \ . \tag{3.4}$$

O próximo passo é assumir que as relações de um gás de elétrons uniforme podem ser aplicadas localmente para um gás de elétrons não homogêneo. Isto implica que em uma dada posição $\mathbf{r}$ o número de elétrons por unidade de volume $n(\mathbf{r})$, no estado fundamental é dado por

$$n(\mathbf{r}) = \frac{k_F^3(\mathbf{r})}{3\pi^2} \ , \tag{3.5}$$

onde k_F deve ser especificado para cada posição $\mathbf{r}$.

No regime em que a densidade eletrônica $n(\mathbf{r})$ varie lentamente a energia cinética do sistema não interagente $T_s[n]$, pode ser aproximada pelo primeiro termo da expansão em

séries do gradiente de $n(\mathbf{r})$ [28],

$$T_s[n] = \int t[n(\mathbf{r})]d\mathbf{r} \ , \tag{3.6}$$

onde $t[n]$ é a densidade de energia para um sistema de elétrons não interagentes com densidade $n(\mathbf{r})$.

Para elétrons livres na aproximação de banda parabólica pode se mostrar facilmente que a densidade de energia cinética é dada por

$$t[n(\mathbf{r})] = \frac{3\hbar^2}{10m^*}(3\pi^2)^{2/3}[n(\mathbf{r})]^{5/3} \tag{3.7}$$

e portanto

$$T_s[n(\mathbf{r})] = \frac{3\hbar^2}{10m^*}(3\pi^2)^{2/3}\int [n(\mathbf{r})]^{5/3}d\mathbf{r}. \tag{3.8}$$

Desta forma o funcional de energia para o sistema interagente submetido a um potencial externo $v(\mathbf{r})$ pode ser escrito como [27]:

$$E_v[n(\mathbf{r})] = T_s[n(\mathbf{r})] + \int v(\mathbf{r})n(\mathbf{r})d\mathbf{r} + \frac{1}{2}\int \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')d\mathbf{r}d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \ , \tag{3.9}$$

onde o último termo representa a interação elétron-elétron. Minimizando a eq.(3.9) em termos de $n(\mathbf{r})$ sujeita a condição

$$N[n] = \int n(\mathbf{r})d\mathbf{r} = N, \tag{3.10}$$

obtemos

$$\frac{\delta T_s}{\delta n(\mathbf{r})} + \phi(\mathbf{r}) - \mu = 0 \tag{3.11}$$

com

$$\phi(\mathbf{r}) = v(\mathbf{r}) + \int \frac{n(\mathbf{r}')d\mathbf{r}'}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \ , \tag{3.12}$$

onde μ é o multiplicador de Lagrange associado a eq.(3.10) e $\phi(\mathbf{r})$ o potencial efetivo sem efeitos de muitos corpos (correlação e troca).

Utilizando a eq.(3.8) juntamente com a eq.(3.11) onde, apenas enfatizando, desprezamos efeitos de correlação e troca obtém-se,

$$n(\mathbf{r}) = \frac{(2m^*)^{3/2}}{3\pi^2\hbar^2}\left(\mu - \phi(\mathbf{r})\right)^{3/2} \tag{3.13}$$

que nos dá a densidade de carga como função do potencial efetivo, $\phi(\mathbf{r})$. Na próxima seção mostraremos como esta equação nos permite calcular o potencial efetivo de super-redes δ-dopadas dentro da aproximação de Thomas-Fermi.

3.3 Cálculos para a banda de condução

Nossos cálculos serão baseados em duas aproximações principais. Assumimos (i) que a aproximação de massa efetiva seja válida de forma a podermos desprezar o potencial periódico da rede e usar a massa efetiva e a constante dielétrica do semicondutor hospedeiro e (ii) que a carga positiva das impurezas doadoras ionizadas está distribuída uniformemente no plano perpendicular à direção de crescimento (modelo jellium). Assim desprezamos a distribuição discreta dos dopantes e as flutuações espaciais que resultam da distribuição aleatória de impurezas no plano de dopantes.

A aproximação da função envelope dentro da teoria de massa efetiva, aplicada ao caso de heteroestruturas composicionais, poços quânticos e super-redes, necessitam da suposição extra de que as partes periódicas das funções de Bloch sejam as mesmas em cada tipo de camada que constitui a heteroestrutura. Evidentemente esta condição é automaticamente e exatamente satisfeita no caso que iremos tratar de estrutura multi-deltas.

A segunda suposição enquanto invariavelmente feita nos cálculos de estrutura eletrôni-

ca em camadas delta-dopadas, é muito mais difícil de justificar e constitui um dos problemas abertos na compreensão teórica destas estruturas. O problema é particularmente maior para sistemas compensados, enquanto que para sistemas não compensados, para dopagens suficientemente altas pode-se assumir que o sistema impureza-portador tem um comportameno metálico. É interessante chamar a atenção que experimentos recentes tem estudado o caso de baixa densidade onde a descrição em termos de subbandas não se aplica e se é forçado considerar cada impureza como um arranjo aleatório bidimensional. A compreensão teórica desta configuração já vem sendo estudada em trabalhos como por exemplo de Efros e Metzner [31, 32]. Nos parágrafos a seguir estabeleceremos os caminhos por nós percorridos para o cálculo da estrutura eletrônica do sistema de multi-deltas apresentado no Cap. 1.

Uma vez estabelecido que utilizaremos a aproximação usual de substituir a distribuição aleatória de impurezas puntuais no plano de dopantes por uma distribuição contínua, o problema se reduz a encontrar autoconsistentemente soluções das equações unidimensionais de Poisson e Schrödinger .

A aproximação de Thomas-Fermi fornece um meio fácil de determinar em primeira instância o potencial efetivo do sistema. Ela foi utilizada pela primeira vez em semicondutor δ-dopado por Ioriatti [33] e em super-redes por Barbosa [34].

Utilizando a eq.(3.13) que nos dá a densidade de carga como função do potencial efetivo (sem correlação e troca), juntamente com a equação de Poisson, obtemos a seguinte equação diferencial não linear de Thomas-Fermi na direção z (direção de crescimento):

$$\frac{d^2 v_{ef}}{dz^2} = -\frac{8}{3\pi}[\mu - v_{ef}(z)]^{\frac{3}{2}} + 8\pi n_D f(z) - 8\pi n_A. \tag{3.14}$$

Na equação acima μ é a energia de Fermi do sistema que será tomada como referencial para os valores de energia, n_D é a densidade de dopantes por área de Bohr que supomos

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

obedecer a uma distribuição gaussiana,

$$f(z) = \frac{\sum_{j=-(N-1)/2}^{(N-1)/2} \exp\{-[\frac{2\sqrt{\ln 2}}{a}(z - jd)]\}}{\int \sum_{j=-(N-1)/2}^{(N-1)/2} \exp\{-[\frac{2\sqrt{\ln 2}}{a}(z - jd)]\}dz} \tag{3.15}$$

com largura a meia altura a (tomada arbitrariamente como 50 Å) e n_A, indica que consideramos a existência de um fundo residual uniforme de aceitadores. Na eq.(3.15) N é o número de celas unitárias do sistema. É importante fazer a observação que ao longo deste trabalho, a menos que seja explicitamente colocado, todas as distâncias serão escaladas pelo raio de Bohr efetivo do GaAs ($a_B = 97,43$ Å) e as energias pelo Rydberg efetivo ($Ry^* = 5.92meV$).

A equação diferencial não linear de T-F é resolvida numericamente ao impormos as seguintes condições de contorno na cela unitária do sistema :

$$\frac{dv_{ef}}{dz}\Big|_{a/2} = \frac{dv_{ef}}{dz}\Big|_{-a/2} = 0. \tag{3.16}$$

Uma vez determinado o potencial efetivo de T-F, que Barbosa [34] verificou ser equivalente a aproximação de Hartree, este será usado como ponto de partida para as equações autoconsistentes, dentro da aproximação de massa efetiva. Como o movimento dos elétrons é quantizado na direção de crescimento z e livre no plano xy (onda plana), as equações autoconsistentes unidimensionais a serem resolvidas são :

a) A equação de Schrödinger

$$\left[-\frac{d^2}{dz^2} + V_H(z) + V_{xc}(z)\right]\psi_{ik_z}(z) = E_{ik_z}\psi_{ik_z}(z) \tag{3.17}$$

onde $\psi_{ik_z}(z)$ é a função envelope eletrônica correspondente ao índice de subbanda i com número de onda na direção z, k_z.

b) A equação de Poisson que determina o potencial de Hartree, V_H, devido a interação eletrostática mútua entre os elétrons e entre os elétrons e as impurezas intencionais e não

intencionais,

$$\frac{d^2V_H(z)}{dz^2} = -8\pi\left[n(z) - n_D f(z) + n_A\right] \tag{3.18}$$

c) A densidade eletrônica

$$n(z) = \sum_{i,k_z} N_{ik_z}|\psi_{ik_z}(z)|^2 \tag{3.19}$$

com

$$N_{ik_z} = [\mu - E_{ik_z}]\theta[\mu - E_{ik_z}]/2\pi \tag{3.20}$$

onde θ é a função escada, μ é a energia de Fermi e E_{ik_z} é o autovalor de $\psi_{ik_z}(z)$. De posse deste autovalor temos que a relação de dispersão de uma dada subbanda i da banda de condução com número de onda k_z é $\epsilon_c = E_c(i,k_z) + \hbar^2 k_{\parallel}^2/2m_c$ sendo, $k_{\parallel}$ o módulo do vetor de onda ao longo do plano xy e m_c a massa efetiva da banda de condução. Quando a expressão de N_{ik_z} for somada sobre todos k_z, obtemos N_i que é o número de elétrons por unidade de área do i-ésimo conjunto de subbandas.

Quanto ao potencial de correlação e troca na eq.(3.17) várias parametrizações são encontradas na literatura. A nossa escolha residiu na parametrização analítica sugerida por Hedin e Lundqvist [35].

Assim vemos do conjunto de eqs.(3.17), (3.18), (3.19) e (3.20) que, supondo um potencial de entrada $V_i(z)$, podemos calcular as funções de onda. Das funções de onda podemos calcular a densidade de carga, $n(z)$, que por sua vez gera um potencial de saída $V_f(z)$. O método usual para resolver a equação de Schrödinger no $(n+1)$-ésimo passo é usar como potencial de entrada uma combinação linear do potencial de entrada e o potencial de saída da interação no n-ésimo passo, ou seja,

$$V_i^{(n+1)}(z) = \alpha V_i^{(n)}(z) + (1-\alpha)V_f^{(n)}(z) \tag{3.21}$$

com $0 < \alpha < 1$.

O potencial de saída do n-ésimo passo não pode ser usado como potencial de entrada do $(n+1)$-ésimo pois acarretaria problemas de convergência do método. Em relação ao passo em que o processo deve ser interrompido segue-se o critério de convergência usual que é o de verificar as energias encontradas. O processo é interrompido no momento em que esta energia não mais se altera dentro de uma precisão pré-fixada.

Para determinarmos a estrutura de subbandas temos de resolver a equação de Schrödinger. Fixando a origem do sistema de coordenadas tal que em uma cela unitária da super-rede o potencial seja uma função par de z, podemos escolher duas soluções que sejam linearmente independentes, com paridade definida e dependentes da energia E satisfazendo [34],

$$\psi_p(0) = 1 \qquad \psi_p^{'}(0) = 0 \tag{3.22}$$

$$\psi_i(0) = 0 \qquad \psi_i^{'}(0) = 1, \tag{3.23}$$

cujo Wronskiano para todo o z é

$$W = \psi_p(z)\psi_i^{'}(z) - \psi_p^{'}(z)\psi_i(z) \equiv 1. \tag{3.24}$$

Aqui o índice (i) p indica a paridade (ímpar) par da solução. Desta forma podemos representar uma função arbitrária $\psi(z)$ da super-rede como

$$\psi(z) = A\psi_p(z) + B\psi_i(z) \qquad \text{para } |x| \leq a/2 \tag{3.25}$$

onde A e B são constantes arbitrárias.

Do teorema de Bloch, da continuidade de ψ e de sua derivada em $z = a/2$ obtemos:

$$A = 2\psi_i(a/2)\psi_i'(a/2) \qquad B = i \sin k_z a,$$

onde k_z é o vetor de onda de Bloch. Desta forma,

$$\psi(z) = \psi_p(z) + i\frac{\sin k_z a}{2\psi_i(a/2)\psi_i'(a/2)}\psi_i(z). \tag{3.26}$$

Obtém-se ainda para um dado valor da energia E, a relação de dispersão da super-rede [26],

$$\cos(k_z a) = \psi_p'(a/2)\psi_i(a/2) + \psi_i(a/2)\psi_p'(a/2) = F(E). \tag{3.27}$$

Resolvendo a equação acima para vários valores de energia verifica-se a formação de minibandas como é mostrado pelo gráfico de F(E) versus E (fig.3.1), já que apenas são permitidas energias tais que $-1 \leq F(E) \leq 1$. Isso explica a razão de termos introduzido o índice de subbanda i na equação de Schrödinger pois, para um dado um valor de k_z, temos várias soluções possíveis em energia. Assim para cada i, o conjunto de níveis eletrônicos especificados pela energia $E = E(i, k_z)$ chamaremos de minibanda. Os valores de $E(i, k_z)$ são separados por lacunas ou gaps de energia. Para energias correspondentes a estes gaps, não há estados de Bloch permitidos de forma a satisfazer às condições de contorno impostas.

Finalmente utilizando a relação de dispersão e efetuando a normalização reescrevemos a função de onda dos elétrons na banda de condução como

$$\psi_{ik_z}(z) = \frac{\psi_p(z) + iR(E)\psi_i(z)}{\sqrt{<\psi_p|\psi_p> + R(E)^2 <\psi_i|\psi_i>}} \tag{3.28}$$

para $|z| \leq a/2$ e com

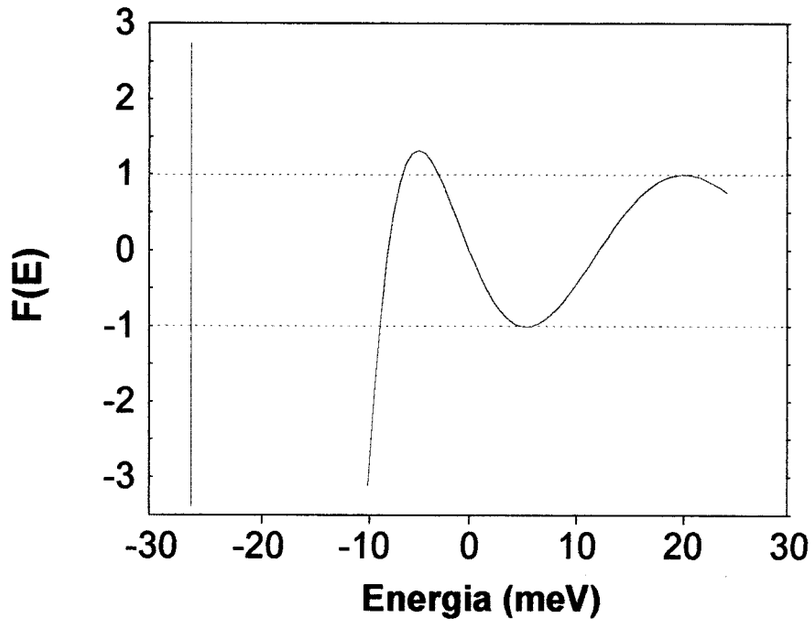

Figura 3.1: Gráfico da relação de dispersão de super-redes como função da energia onde é mostrada a formação de minibandas.

$$R(E) = \frac{\sqrt{1 - F(E)^2}}{2\psi_i(a/2)\psi_i'(a/2)} \tag{3.29}$$

para $k_z \geq 0$. Note ainda que $\psi_{-k_z} = \psi_{k_z}^*$ como consequência de simetria de inversão.

3.4 Cálculos para a banda de valência

Neste trabalho estaremos interessados em excitações óticas ressonantes com a banda de split-off. Como o "splitting" Δ da banda de split-off no GaAs está em torno de 340 meV e a modulação do potencial em torno de 40 meV o acoplamento existente com as bandas de buraco leve e pesado pode ser desprezado. Portanto os cálculos referentes a banda de interesse são estritamente análogos ao da banda de condução. Deve-se no entanto ter o cuidado de substituir aonde se fizer necessário a massa efetiva da banda de condução pela

a massa efetiva correspondente à banda de split-off e manter a coerência das unidades que escalam energia e distâncias. Em um tratamento geral das bandas de valência o hamiltoniano $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ de Luttinger-Kohn deve ser usado [36]. Este retém as três bandas de valência descrevendo a dispersão e a interação entre as mesmas até a ordem de k^2.

Um ponto importante a ser mencionado é que no cálculo do potencial efetivo da banda de valência desprezaremos contribuições de muitos corpos. A razão é que os buracos de baixa energia, obtidos oticamente, estão separados espacialmente dos elétrons. Desta forma não consideraremos efeitos de campo de despolarização dinâmicos produzido pelos elétrons. Portanto o potencial efetivo dos buracos levará em conta apenas a contribuição devido ao termo de Hartree estático.

De posse dos dados da estrutura eletrônica, cujos resultados serão apresentados no Cap.5, desenvolveremos a seguir uma teoria para obtenção de seções de choque de espalhamento para os mecanismos de excitações de densidade de carga e de spin em um gás de elétrons não-uniforme que será aplicada ao sistema de multi-deltas.

Capítulo 4

TEORIA AUTO-CONSISTENTE PARA OBTENÇÃO DE ESPECTROS DE FDS E FDC

4.1 Introdução

Neste capítulo apresentaremos a teoria detalhada para a obtenção de seções de choque de espalhamento Raman em situações de extrema ressonância via mecanismos de flutuações de densidade de spin (FDS) ou flutuações de densidade de carga (FDC) em estruturas semicondutoras. A teoria no estágio de desenvolvimento atual se aplica a espalhamentos intersubbanda em um gás de elétrons não uniforme. Para isso iremos supor uma geometria conveniente de forma que o vetor de onda de espalhamento esteja ao longo da direção de incidência da luz (retroespalhamento). Esta restrição, conforme veremos, simplica o problema gerando conjuntos de transições intersubanda degeneradas acopladas e forçadas que culminam em seções de choque Raman cujos espectros se compõem de excitações de partícula independente SPE- "Single Particle Excitations" e coletivas, CDE-"Charge Density Excitations" no caso de FDC ou SPE e SDE-"Spin Density Excitations" no caso de FDS.

A formulação para o cálculo das seções de choque utiliza uma extensão da teoria do funcional densidade (TFD) aplicada para estados excitados e para fenômenos dependentes

do tempo chamada de aproximação de densidade local dependente do tempo (TDLDA- "Time-Dependent Local Density Aproximation") desenvolvida por Zangwill e Soven e aplicada na obtenção de seções de choque ressonantes de fotabsorção de gases nobres (Ne, Ar, Kr e Xe) e de fotoemissão em Bário e Cério. Nela o campo externo de radiação é substituído por um campo efetivo que auto-consistentemente leva em conta a resposta de um sistema eletrônico interagente quando submetido a uma perturbação externa [37]. A partir do campo efetivo achamos funções resposta resolvendo as equações de movimento para as flutuações de densidade apropriadas a cada caso.

4.2 Seções de choque de espalhamento de luz

Nesta seção faremos uma apresentação concisa da teoria de espalhamento ressonante de luz para a obtenção das seções de choque de espalhamento via mecanismos de FDC e FDS. Para obter maiores detalhes são listadas ao longo da seção algumas das principais referências sobre o assunto que podem ser encontradas na literatura.

Em primeiro lugar ilustraremos o processo de espalhamento Raman via mecanismo de FDC de forma que se possa compreender a razão da dependência deste processo com detalhes da estrutura de banda eletrônica que implicam em regras de seleção sobre as polarizações incidente e espalhada da luz. O mecanismo de FDS segue de forma análoga. A fig.4.1 é um diagrama esquemático de como se dá processo Raman eletrônico em regime de extrema ressonância com o gap $E_0 + \Delta_0$ no caso de FDC. Suponha que na banda de condução tenhamos um gás de elétrons cujas funções de onda são constituídas pelo produto de funções das auto-soluções das equações de Kohn-Sham, α e das funções de onda de Kane ($S \uparrow$ ou $S \downarrow$), com energias das subbandas dadas por, $\epsilon_\alpha = E_c(n, k_z) + \hbar^2 k_{\parallel}^2/2m_c$. Por outro lado, na banda de valência (split-off), as funções de onda são dadas pelo produto de funções envelopes h e uma mistura de funções de onda, oriundas de orbitais tipo p, resultante do acoplamento spin-órbita com energia $\epsilon_h = E_v(n, k_z) + \hbar^2 k_{\parallel}^2/2m_v$ onde $k_{\parallel}$

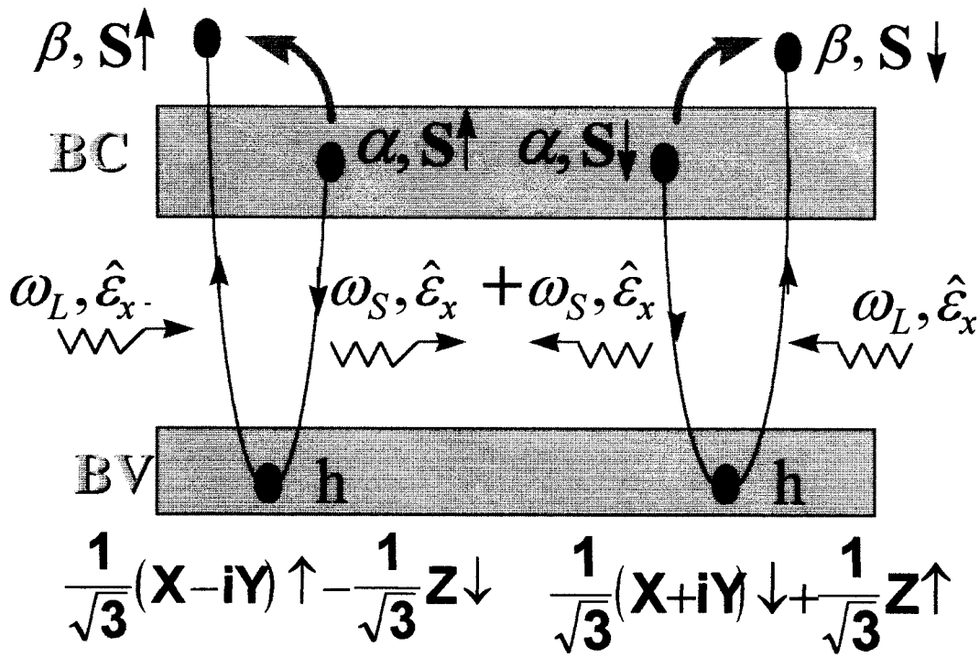

Figura 4.1: Esquema do processo Raman em situação de extrema ressonância para o caso de CDE. A banda de valência (BV) contribui na criação do par elétron-buraco na banda de condução (BC) via transições interbanda *virtuais*. A figura mostra também as regras de seleção dependentes da polarização incidente e espalhada.

é o vetor de onda bidimensional comum à banda de valência e condução (vide Cap.2 e 3). O processo Raman eletrônico via mecanismo de flutuações de densidade de carga que envolve a presença de dois fótons é então descrito da seguinte forma: um fóton incidente com energia $\hbar\omega_L$ e polarização ε_x é absorvido promovendo um elétron de spin para cima da banda de valência para um estado desocupado da banda de condução de mesmo spin. Em seguida um elétron de um estado ocupado de spin para cima relaxa para a banda de valência emitindo um fóton de energia $\hbar\omega_S$ e polarização ε_x. O resultado líquido é a criação de uma excitação $|\alpha,\uparrow\rangle \rightarrow |\beta,\uparrow\rangle$ na banda de condução conforme mostra a figura. O mesmo processo ocorre com elétrons de spin para baixo. No caso de FDS o processo é idêntico a menos do fato das polarizações incidente e espalhada serem perpendiculares entre si e dadas respectivamente por ε_x e ε_y.

Os processos acima podem então ser descritos através dos seguintes potenciais externos efetivos atuando sobre o sistema eletrônico e dados por:

$$\delta V^{efet}(t) = \sum_{\alpha\beta} \left[\left(c^{\dagger}_{\beta\uparrow} c_{\alpha\uparrow} + c^{\dagger}_{\beta\downarrow} c_{\alpha\downarrow} \right) \delta V^{cd}_{\beta\alpha} \right] e^{-i(\omega+i\delta)t} \tag{4.1}$$

para flutuações de densidade de carga e

$$\delta V^{efet}(t) = -i \sum_{\alpha\beta} \left[\left(c^{\dagger}_{\beta\uparrow} c_{\alpha\uparrow} - c^{\dagger}_{\beta\downarrow} c_{\alpha\downarrow} \right) \delta V^{sd}_{\beta\alpha} \right] e^{-i(\omega+i\delta)t} \tag{4.2}$$

para flutuações de densidade de spin e onde, ω é a frequência de bombeamento externo, $c^{\dagger}_{\beta}(c_{\alpha})$ são operadores de criação e destruição e $\delta \to 0^{+}$, indica que adotamos condições de contorno *adiabáticas*, o que corresponde a ligarmos a perturbação lentamente a partir de $t = -\infty$ evitando assim um "aquecimento" do sistema. Os fatores que aparecem na eq.(4.1) e (4.2) em regime de extrema ressonância, $\delta V^{cd}_{\beta\alpha}$ e $\delta V^{sd}_{\beta\alpha}$, são definidos como [38,39]

:

$$\delta V^{ext} \equiv \delta V^{cd}_{\beta\alpha} = \delta V^{sd}_{\beta\alpha} = \frac{P^2_{cv}}{3m} \sum_{h} \frac{\left\langle \beta \left| e^{\frac{1}{2}iqz} \right| h \right\rangle \left\langle h \left| e^{\frac{1}{2}iqz} \right| \alpha \right\rangle}{E_g + i\gamma_g + \epsilon_\beta + \epsilon_h - \hbar\omega_L} , \tag{4.3}$$

onde

$$P_{cv} \equiv \langle S | p_x | X \rangle = \langle S | p_y | Y \rangle = \langle S | p_z | Z \rangle$$

é o elemento de matriz de momentum interbanda apropriado para transições através do gap de spin-split E_g (alargado por um fator de amortecimeno fenomenológico γ_g). Em regime de *ressonância próxima* onde $E_g - \hbar\omega_L \gg (\epsilon_\beta + \epsilon_h)$ o denominador de energia da eq.(4.3) é substituído por um denominador médio de forma que é possível via relação de completeza eliminar os estados intermediários de buraco. É interessante mencionar que os potenciais efetivos representados pelas eqs. (4.1) e (4.2) são resultado do acoplamento do sistema eletrônico submetido a excitações óticas *ressonantes* e descritos em termos do operador $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}$ em segunda ordem em teoria de perturbação onde $\mathbf{p}$ é o momentum eletrônico e $\mathbf{A}$ o potencial vetor do campo eletromagnético [39]. O processo descrito pela

eq.(4.3) acima é o processo Stokes. Os outros processos, A^2 em primeira ordem em teoria de perturbação e o processo Anti-Stokes, são desprezíveis perante ao processo anterior dada a presença dos denominadores ressonantes de energia.

Das eq.(4.1) e (4.2) podemos depreender o significado físico dos nomes dos mecanismos. Para o caso de FDC verificamos que o "operador flutuação de carga" de spin para cima se soma à contribuição de spin para baixo de forma que temos uma "flutuação resultante de carga" igual a soma das duas contribuições [38]. No caso de FDS, ao contrario, as flutuações estão em oposição de fase. Assim o "operador de flutuação de densidade de carga total" não é excitado nesse processo [38] . Isto implica que em princípio este mecanismo não apresenta campos elétricos macroscópicos e portanto estas flutuações apresentariam caráter de partícula independente[1] [50].

Na eq.(4.3), $q = \left|\vec{k_L} - \vec{k_S}\right|$ é o módulo do vetor de onda de espalhamento da luz sendo que, $\left|\vec{k_L}\right| = \left|\vec{k_S}\right| = q/2$ são os módulos dos vetores de onda da radiação incidente e espalhada que iremos supor ao longo de uma mesma direção e iguais.

Utilizando teoria de perturbação, seções de choque de espalhamento podem ser expressas em termos da transformada de Fourier de funções de auto-correlação definidas por [6,39,40]:

$$\frac{\partial^2\sigma}{\partial\omega\partial\Omega} \propto \int \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \left\langle M^\dagger(t) M(0) \right\rangle \tag{4.4}$$

onde $M(t)$ é o operador de espalhamento apropriado na representação de Heisenberg e $\langle\rangle$ representa a média sobre estados iniciais de muitos corpos. Pode-se mostrar por sua vez que funções de correlação estão relacionadas via teorema da flutuação e dissipação a funções resposta do tipo $\left\langle M^\dagger(0)\right\rangle_\omega e^{-i\omega t}$ para um sistema submetido a uma perturbação

[1] Na verdade essa afirmação deve ser revista com a inclusão de efeitos de correlação e troca dinâmicos que implicam em acoplamento entre as excitações e portanto fazendo com que FDS também possua um caráter coletivo.

externa dependente do tempo $M(0)e^{-i\omega t}$, isto é,

$$\int \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \langle M^{\dagger}(t) M(0) \rangle = -\frac{\hbar}{\pi} \mathrm{Im}[\langle M^{\dagger}(0) \rangle_{\omega}]$$

onde $\langle M^{\dagger}(0) \rangle_{\omega}$ é a amplitude de Fourier em $-\omega$ do valor esperado do operador de Schrödinger $M(0)$ no estado de muitos corpos $|\Psi(t)\rangle$ originalmente no estado fundamental em $t = -\infty$. Para potenciais externos,

$$M(0) = \sum_{\alpha\beta} \delta V^{ext}_{\beta\alpha} \left(c^{\dagger}_{\beta\uparrow} c_{\alpha\uparrow} \pm c^{\dagger}_{\beta\downarrow} c_{\alpha\downarrow} \right),$$

definidos a partir das eqs.(4.1) e (4.2) temos então que,

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial\omega\partial\Omega} \propto -\frac{\hbar}{\pi} \mathrm{Im} \langle M^{\dagger}(0) \rangle_{\omega} = -\frac{\hbar}{\pi} \mathrm{Im} \sum_{\alpha\beta} [\delta V^{ext}_{\beta\alpha}]^* \left\langle c^{\dagger}_{\alpha\uparrow} c_{\beta\uparrow} \pm c^{\dagger}_{\alpha\downarrow} c_{\beta\downarrow} \right\rangle_{\omega} \tag{4.5}$$

onde $\pm$ se referem aos mecanismos de FDC e FDS respectivamente. Da eq.(4.5) vê-se que o resultado da ação do potencial externo é produzir flutuações induzidas para cada par de excitação $(\alpha\beta)$ dadas por,

$$\left\langle c^{\dagger}_{\alpha\uparrow} c_{\beta\uparrow} \pm c^{\dagger}_{\alpha\downarrow} c_{\beta\downarrow} \right\rangle_{t} \tag{4.6}$$

cujo valor esperado devemos calcular.

4.3 Flutuações de densidade baseada na TFD

Como indicado na seção anterior, quando um potencial externo atua sobre um sistema ele induz uma flutuação de densidade como resposta ao campo aplicado. Esta flutuação por sua vez produz um potencial induzido que apresenta uma dependência linear em relação ao potencial externo. Desta forma devemos sempre considerar a resposta do sistema submetido a um potencial total,

$$\delta V(t) = \delta V^{ext}(t) + \delta V^{ind}(t),$$

onde $\delta V^{ext}(t)$ é uma perturbação externa fraca e $\delta V^{ind}(t)$ é a flutuação induzida, no nosso caso, de carga ou spin.

Para calcular a resposta do gás de elétrons não uniforme submetido a ação de um potencial total utilizamos o método de Zangwill e Soven do campo autoconsistente generalizado ou TDLDA (segundo notação de Zangwill e Soven) [37]. O método foi desenvolvido como uma generalização dependente do tempo da TFD e aplicado para o cálculo de seções de choque atômicas de fotoabsorção e fotoemissão. Muito embora fosse utilizado, para a situação dependente do tempo, um potencial de correlação e troca independente da frequência, as seções de choque de fotoabsorção forneceram uma descrição muito boa dos dados experimentais.

A idéia central da aproximação do campo autoconsistente generalizado é supor que o sistema de muitos corpos responde ao campo total como um sistema de partículas não interagentes. Fisicamente a idéia é a mesma de RPA-"Random Phase Aproximation". A diferença básica entre TDLDA e RPA é que no primeiro há a inclusão de efeitos de troca e correlação dinâmicos na aproximação de densidade local, apesar da teoria independer da escolha particular do potencial de correlação e troca.

No caso estático ($\omega = 0$) as flutuações são exatamente tratadas dentro do formalismo do funcional densidade. Potenciais induzidos são dados em termos de derivadas funcionais da densidade de energia elétron-elétron [41]. Elas incluem além da interação de Coulomb (termo de Hartree), efeitos de muitos corpos devido a troca e correlação. No que concerne ao nosso trabalho para o caso estático temos que,

$$\delta V_{cd}^{ind}\left(\vec{x}\right) = \int d\,\vec{y}\left[\frac{e^2\delta n\left(\vec{y}\right)}{\epsilon_\infty\left|\vec{x}-\vec{y}\right|} + \frac{\delta^2 E_{xc}\left[n,m\right]}{\delta n\left(\vec{x}\right)\delta n\left(\vec{y}\right)}\right]\delta n\left(\vec{y}\right) \tag{4.7}$$

é o potencial induzido devido a uma flutuação de carga independente do tempo $\delta n\left(\vec{y}\right)$com constante dielétrica de altas frequências ϵ_∞, enquanto,

$$\delta V_{sd}^{ind}\left(\vec{x}\right) = \int d\,\vec{y}\,\frac{\delta^2 E_{xc}\left[n,m\right]}{\delta m\left(\vec{x}\right)\delta m\left(\vec{y}\right)}\delta m\left(\vec{y}\right) \tag{4.8}$$

é o potencial induzido devido a uma flutuação de densidade de spin independente do tempo $\delta m\left(\vec{y}\right)$.

As derivadas funcionais que aparecem nas expressões (4.7) e (4.8) são tomadas respectivamente em $n\left(\vec{x}\right) = n_0\left(\vec{x}\right)$ e $m\left(\vec{x}\right) = 0$, ou seja, no estado fundamental não polarizado. Na aproximação de densidade local (LDA), estas derivadas funcionais são dadas por:

$$\frac{\delta^2 E_{xc}}{\delta n\left(\vec{y}\right)\delta n\left(\vec{y}\right)} = U_{cd}\left[n_0\left(\vec{x}\right)\right]\delta\left(\vec{x}-\vec{y}\right)$$

$$\frac{\delta^2 E_{xc}}{\delta m\left(\vec{y}\right)\delta m\left(\vec{y}\right)} = U_{sd}\left[n_0\left(\vec{x}\right)\right]\delta\left(\vec{x}-\vec{y}\right).$$

Mesmo sem uma justificativa formal Zangwill e Soven assumiram que estes potencias representam a situação dependente do tempo ($\omega \neq 0$). Isto nos leva a uma versão dependente do tempo das eq.(4.7) e (4.8) da forma:

$$\delta V_{cd}^{ind}\left(\vec{x},t\right) = \frac{e^2}{\epsilon_\infty}\int d\,\vec{y}\,\frac{\delta n\left(\vec{y},t\right)}{\left|\vec{x}-\vec{y}\right|} + U_{cd}\left[n_0\left(\vec{x}\right)\right]\delta n\left(\vec{x},t\right) \tag{4.9}$$

e

$$\delta V_{sd}^{ind}\left(\vec{x},t\right) = U_{sd}\left[n_0\left(\vec{x}\right)\right]\delta m\left(\vec{x},t\right). \tag{4.10}$$

Baseado na eq.(4.6), as densidades de flutuação induzida deste trabalho na representação de coordenadas são dadas respectivamente por,

$$\delta n\left(\vec{x},t\right) = \sum_{\alpha\beta}\psi_\alpha^*\left(\vec{x}\right)\psi_\beta\left(\vec{x}\right)\left\langle c_{\alpha\uparrow}^\dagger c_{\beta\uparrow} + c_{\alpha\downarrow}^\dagger c_{\beta\downarrow}\right\rangle_t$$

e

$$\delta m\left(\vec{x},t\right) = \sum_{\alpha\beta}\psi_\alpha^*\left(\vec{x}\right)\psi_\beta\left(\vec{x}\right)\left\langle c_{\alpha\uparrow}^\dagger c_{\beta\uparrow} - c_{\alpha\downarrow}^\dagger c_{\beta\downarrow}\right\rangle_t.$$

Devemos observar que as duas flutuações correspondem a excitações independentes do gás de elétrons as quais não interagem entre si. As expressões explícitas para $U_{cd}\left[n_0\left(\vec{x}\right)\right]$ e

$U_{sd}\left[n_0\left(\vec{x}\right)\right]$ podem ser obtidas a partir dos dados do gás de elétrons uniforme [42]. Em unidades de Ryderg efetivo e raio de Bohr efetivo as expressões são :

$$U_{cd}\left(\vec{x}\right) = -1.706 r_s^2 a_B^3 \left[1 + \frac{0.6213 r_s}{11.4 + r_s}\right] Ry$$

e

$$U_{sd}\left(\vec{x}\right) = -1.706 r_s^2 a_B^3 \left[1 - 0.036 r_s + \frac{1.36 r_s}{1 + 10 r_s}\right] Ry$$

onde $r_s = \left[4\pi a_B^3 n\left(\vec{x}\right)/3\right]^{-1/3}$ é o raio de Wigner-Seitz do gás de elétrons e a_B é o raio de Bohr efetivo. Por outro lado o potencial de correlação e troca usados por nós na resolução das equações de Kohn-Sham é dado por:

$$V_{xc}\left(\vec{x}\right) = \frac{2}{\pi \alpha r_s}\left[1 + Bx \log\left(1 + 1/x\right)\right]$$

onde $x = r_s/21$, $\alpha = (4/8\pi)^{1/3}$ e $B = 0.7734$.

Justificativas formais para generalizações dependentes do tempo do teorema de Hohenberg e Kohn foram feitas por vários autores. Algumas se mostraram válidas para dois casos especiais [43]: a) para potenciais dependentes da posição e tempo que fossem restritos a funções que possuíssem uma dependência periódica com o tempo. b) para potenciais constituídos de uma parte estática e de uma pequena perturbação dependente do tempo. Um embasamento matemático rigoroso somente veio a ser fornecido no trabalho de Runge e Gross em 1984 [43]. Nele um formalismo comparável à teoria de Hohenberg-Kohn foi desenvolvido para sistemas arbitrários dependentes do tempo. Foi provado que o potencial de partícula independente, $v(\vec{r}, t)$ que leva a uma densidade $n(\vec{r}, t)$ v-representável, é univocamente determinado tal que o mapa $v \rightarrow n$ é inversível.

Em 1985 Gross e Kohn (para o caso b) acima) forneceram uma aproximação de densidade local para o valor do potencial de correlação e troca dependente do tempo dentro da teoria da resposta linear e compararam com os resultados da expressão "adiabática", $(\omega = 0)$, utilizada por Zangwill e Soven [44]. No espírito da teoria do funcional

densidade eles procuraram uma expressão para o potencial de correlação e troca que fosse um funcional linear da flutuação induzida pela perturbação pequena do potencial externo estático. Utilizando uma LDA dupla resultou que o potencial de correlação e troca era aproximadamente proporcional à flutuação de densidade induzida. O fator de proporcionalidade, dependente da frequência e da densidade do sistema (apenas com a perturbação estática), por sua vez, era constituído de uma parte real e imaginária. A parte real era reduzida ao caso de Zangwill e Soven utilizando a aproximação adiabática. O erro relativo para as subcamadas de gases nobres consideradas por Zangwill e Soven ficou entre 1% (para Ne(2p)) e 3% (para Xe(4d)). Isto mostra que não considerar a dependência com a frequência no potencial de correlação e troca não introduz um erro significativo pelo menos nestes processos de fotoabsorção.

4.4 Acoplamento com fônons LO

Excitações de densidade de spin não possuem campos elétricos resultantes já que a flutuação de densidade eletrônica permanece inalterada durante o processo. As flutuações de densidade de carga de spin para cima se cancelam com as de spin para baixo. Por outro lado o mesmo não acontece com as excitações de densidade de carga. Elas carregam consigo um campo elétrico macroscópico longitudinal de forma que há o acoplamento deste campo com os fônons longitudinais óticos.

O hamiltoniano de Fröhlich do sistema elétron-fônon é dado por:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{el} + \hbar\omega_l \sum a^\dagger_{\vec{k}} a_{\vec{k}} + iF \sum \frac{1}{k} \left(a_{\vec{k}} \rho^\dagger_{\vec{k}} - a^\dagger_{\vec{k}} \rho_{\vec{k}} \right)$$

onde $\mathcal{H}_{el}$ é o hamiltoniano do sistema eletrônico com as interações elétron-elétron blindadas por ϵ_∞, ω_l é a frequência do fônon LO e

$$F = \sqrt{\frac{2\pi e^2 \hbar\omega_l}{V} \left(\frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)}$$

é a constante de Fröhlich. A equação de movimento para $a_{\vec{k}}$ é

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\left\langle a_{\vec{k}}\right\rangle_t = \hbar\omega_l\left\langle a_{\vec{k}}\right\rangle_t - \frac{iF}{k}\left\langle \rho_{\vec{k}}\right\rangle_t,$$

enquanto a equação de movimento para $a^{\dagger}_{-\vec{k}}$ é dada por

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\left\langle a_{-\vec{k}}\right\rangle_t = -\hbar\omega_l\left\langle a_{-\vec{k}}\right\rangle_t - \frac{iF}{k}\left\langle \rho_{\vec{k}}\right\rangle_t.$$

Para uma dependência temporal $e^{-i\omega t}$ estas equações de movimento podem ser combinadas fornecendo

$$\left\langle a_{\vec{k}} - a^{\dagger}_{-\vec{k}}\right\rangle_t = -\frac{iF}{\hbar k}\frac{2\omega_l}{\omega^2-\omega_l^2}\left\langle \rho_{\vec{k}}\right\rangle_t.$$

A existência de tais flutuações implica em um potencial de campo médio para os elétrons,

$$\delta V^{ind}\left(\vec{x},t\right) = \frac{2\omega_l V F^2}{4\pi e^2\hbar\left(\omega^2-\omega_l^2\right)}\int d\,\vec{y}\,\frac{e^2}{\left|\vec{x}-\vec{y}\right|}\delta n\left(\vec{y},t\right).$$

Usando a relação de Lyddane-Sachs-Teller, nota-se que o fator multiplicativo na integral acima é $1/\epsilon_L(\omega) - 1/\epsilon_\infty$ sendo

$$\epsilon_L(\omega) = \epsilon_\infty\left(\frac{\omega^2-\omega_l^2}{\omega^2-\omega_t^2}\right)$$

a função dielétrica da rede e onde desprezamos o termo de amortecimento devido aos fônons pelo fato do mesmo ser pequeno. Adicionando esta contribuição com a mediada por ϵ_∞ (vide eq.4.9) encontramos que o potencial induzido para o caso de flutuações de densidade de carga é

$$\delta V^{ind}_{cd}\left(\vec{x},t\right) = \int d\,\vec{y}\,\frac{e^2}{\epsilon_L(\omega)\left|\vec{x}-\vec{y}\right|}\delta n\left(\vec{y},t\right) + U_{cd}\left(\vec{x},t\right)\delta n\left(\vec{x},t\right).$$

Por outro lado o potencial induzido devido a excitações de densidade de spin se mantém o mesmo e é dado por:

$$\delta V^{ind}_{sd}\left(\vec{x},t\right) = U_{sd}\left(\vec{x}\right)\delta m\left(\vec{x},t\right).$$

4.5 Equações de movimento

Nesta seção calcularemos o valor esperado no tempo t das eqs.(4.6) através da solução de suas correspondentes equações de movimento. Por simplicidade calcularemos o valor esperado do operador $c_\alpha^\dagger c_\beta$ com os estados $\alpha(\beta)$ constituídos da parte orbital e de spin.

O nosso ponto de partida é supor que o gás de elétrons não uniforme seja submetido a um potencial *total* (externo + induzido) dependente do tempo cuja representação em termos das auto-funções das equações de Kohn-Sham seja dado por:

$$\delta V(t) = \sum_{\nu,\nu'} \langle \nu' | \delta V | \nu \rangle \, c_{\nu'}^\dagger c_\nu e^{-i(\omega+i\delta)t}. \tag{4.11}$$

As auto-funções das equações de Kohn-Sham representam estados de partícula independente ν (orbital e spin) com energia ϵ_ν. Desta forma a equação de movimento para o valor esperado de um par de excitação elétron-buraco, $\langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t$, é dada por:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t = \langle [c_\alpha^\dagger c_\beta, H_{ef}] \rangle_t \tag{4.12}$$

onde,

$$H_{ef} = \sum_\nu \epsilon_\nu c_\nu^\dagger c_\nu + \sum_{\nu,\nu'} \langle \nu' | \delta V | \nu \rangle \, c_{\nu'}^\dagger c_\nu \, e^{-i(\omega+i\delta)t} \tag{4.13}$$

é o Hamiltoniano efetivo do sistema e $\langle\rangle_t$ representa o valor esperado do estado de muitos corpos $|\psi(t)\rangle$. No regime de resposta linear onde $\delta V(t)$ pode ser considerado arbitrariamente pequeno, a equação de movimento torna-se,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t = \left\langle \left[c_\alpha^\dagger c_\beta, \sum_\nu \epsilon_\nu c_\nu^\dagger c_\nu \right] \right\rangle_t + \left\langle \left[c_\alpha^\dagger c_\beta, \sum_{\nu,\nu'} \delta V_{\nu,\nu'}(t) c_{\nu'}^\dagger c_\nu \right] \right\rangle_0, \tag{4.14}$$

com $\langle\rangle_0$ sendo o valor esperado no estado inicial em $t \to -\infty$. Ao aplicarmos as regras de comutação de operadores fermiônicos obtemos,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t = (\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha) \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t + (n_\alpha - n_\beta) \, \delta V_{\beta\alpha} e^{-i(\omega+i\delta)t}. \tag{4.15}$$

Na equação acima n_α, n_β são os números de ocupação respectivos dos estados α e β. Como a perturbação é periódica no tempo podemos escrever $\langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t = \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_\omega e^{-i\omega t} e^{\delta t}$ e desta forma obter :

$$\langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t = \frac{1}{\hbar}\left(\frac{n_\alpha - n_\beta}{\omega + i\delta - \omega_{\beta\alpha}}\right)\delta V_{\beta\alpha} e^{-i(\omega+i\delta)t} \tag{4.16}$$

onde $\omega_{\beta\alpha} = (\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha)/\hbar$ é a frequência de Bohr associada com a transição $(\alpha\beta)$.

É interessante notar que a mesma equação pode ser obtida a partir da equação de movimento da matriz densidade de um corpo no regime de resposta linear, ou seja:

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\delta\rho(t) = [h_0, \delta\rho(t)] + [\delta V(t), \rho_0]. \tag{4.17}$$

Tomando o elemento de matriz entre os estados de uma partícula β e α e resolvendo para a dependência temporal $e^{-i\omega t}$ obtemos :

$$\delta\rho_{\beta\alpha}(t) = \frac{1}{\hbar}\left(\frac{n_\alpha - n_\beta}{\omega + i\delta - \omega_{\beta\alpha}}\right)\delta V_{\beta\alpha} e^{-i(\omega+i\delta)t} \tag{4.18}$$

4.6 Amortecimento das flutuações de densidade

Uma das dificuldades com que se depara ao tentar determinar a resposta de um sistema submetido a uma perturbação externa é levar em conta corretamente o amortecimento produzido por centros espalhadores. Isto implica no conhecimento da função espectral do processo. Esta seção é dedicada à proposição desta função.

Leis de conservação representam uma das ferramentas mais valiosas aos físicos pois elas proporcionam um teste rigoroso para qualquer descrição aproximada de um sistema de muitas partículas. Dentre elas, uma das mais simples é a de conservação do número de partículas. Ela proporciona como consequência direta a famosa regra de soma, "f-sum rule". Esta regra de soma, nos fornece uma relação entre o fator de estrutura dinâmico

(intrinsecamente relacionado com a função resposta do sistema) e o número de partículas (vide Apênd. A).

Uma das equações que garantem a conservação do número de partículas é a equação de continuidade

$$\nabla\cdot \vec{J} + \frac{\partial}{\partial t} n = 0.$$

Assim de forma a incluir o amortecimento corretamente procuramos garantir que a corrente local do sistema fosse conservada ou, o que vem a ser o mesmo, garantir que o número de partículas do sistema permanecesse o mesmo. Um possível esquema de conservação de corrente é como segue. Primeiro consideremos as equações de movimento na ausência de amortecimento

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta + c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta - c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t \tag{4.19}$$

e

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta - c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta + c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t + 2\left(n_\alpha - n_\beta\right)V_{\beta\alpha}\left(t\right). \tag{4.20}$$

Nestas equações iremos supor explicitamente que se α corresponde a um estado com energia ϵ_α e função orbital $\psi_\alpha\left(\vec{x}\right)$, então o estado α^* corresponde a um estado orbital de função de onda $\psi_\alpha^*\left(\vec{x}\right)$ com a mesma energia ϵ_α. Note ainda que por reversão temporal, $V_{\beta\alpha}\left(t\right) = V_{\alpha^*\beta^*}\left(t\right)$. Para incluirmos amortecimento , mantivemos a primeira das equações sem modificações e incluímos na segunda um termo de relaxação ôhmico , isto é,

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta - c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t &= \hbar\omega_{\beta\alpha}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta + c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t + 2\left(n_\alpha - n_\beta\right)V_{\beta\alpha}\left(t\right) - \\ &\quad -i\hbar\gamma_{\beta\alpha}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta - c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t . \end{aligned} \tag{4.21}$$

Dado que

$$\frac{\partial}{\partial t} n\left(\vec{x},t\right) = -i\omega\sum_{\alpha\beta}\psi_\beta\psi_\alpha^*\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta\right\rangle_t = -i\frac{\omega}{2}\sum_{\alpha\beta}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta + c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t \psi_\beta\psi_\alpha^* \tag{4.22}$$

e

$$\nabla\cdot\vec{J}=\frac{\hbar}{2mi}\nabla\cdot\sum_{\alpha\beta}\left[\psi_\alpha^*\nabla\psi_\beta-\psi_\beta\nabla\psi_\alpha^*\right]\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta\right\rangle_t \tag{4.23}$$

ou equivalentemente

$$\nabla\cdot\vec{J}=\frac{i}{2}\sum_{\alpha\beta}\omega_{\alpha\beta}\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta-c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t\psi_\beta\psi_\alpha^*\,, \tag{4.24}$$

pode-se demonstrar que a equação de movimento para $\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta+c_{\beta^*}^\dagger c_{\alpha^*}\right\rangle_t$ expressa a conservação da corrente local para cada par de transição $(\alpha\beta)$.

Resolvendo o sistema de equações (4.19) e (4.21) para $\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta\right\rangle_t$ e utilizando a equação de continuidade encontramos que

$$\left\langle c_\alpha^\dagger c_\beta\right\rangle_t=\frac{1}{\hbar}\frac{\omega+\omega_{\beta\alpha}}{\omega^2-\omega_{\beta\alpha}^2+i\gamma_{\beta\alpha}\omega}\left(n_\alpha-n_\beta\right)\delta V_{\beta\alpha}\left(t\right)\ . \tag{4.25}$$

4.7 Equações autoconsistentes

Como vimos,

$$\delta V\left(t\right)=\delta V^{ext}\left(t\right)+\delta V^{ind}\left(t\right) \tag{4.26}$$

é o potencial total agindo sobre o sistema eletrônico. Consideremos primeiramente o caso de FDC. Utilizando a eq.(4.25), temos que a flutuação de carga induzida associada ao segundo termo da equação acima é

$$\delta n\left(\vec{x},t\right)=\sum_{\alpha\beta}\Phi_{\beta\alpha}\frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha}n_\alpha(1-n_\beta)}{\hbar^2(\omega^2-\omega_{\beta\alpha}^2+i\gamma_{\beta\alpha}\omega)}\delta V_{\beta\alpha}\left(t\right) \tag{4.27}$$

onde

$$\Phi_{\beta\alpha}=\psi_\alpha^*\left(\vec{x}\right)\psi_\beta\left(\vec{x}\right).$$

Na eq.(4.27) gostaríamos de frisar que o elemento de matriz $\delta V_{\beta\alpha}\left(t\right)$ é constituído da contribuição do potencial externo mais o induzido. Este último, por sua vez, depende do potencial total. Temos então que resolver um problema de equações autoconsistentes.

Associemos uma coordenada harmônica $x_{\beta\alpha}$ a cada par de transição $(\beta\alpha)$ definindo-a como:

$$x_{\beta\alpha} = \frac{\sqrt{2\hbar\omega_{\beta\alpha}n_{\beta\alpha}}}{\hbar^2\left(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega\right)}\delta V_{\beta\alpha}$$

onde $n_{\beta\alpha} = n_\alpha(1 - n_\beta)$. Como cada par de transições interage através de suas flutuações de densidade associadas, as várias amplitudes $x_{\beta\alpha}$ se acoplam entre si através da equação:

$$\hbar^2\left(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\omega\gamma_{\beta\alpha}\right)x_{\beta\alpha} = \sum_{\gamma\delta} U_{\beta\alpha,\delta\gamma}x_{\beta\alpha} + \sqrt{2\hbar\omega_{\beta\alpha}n_{\beta\alpha}}\delta V_{\beta\alpha}^{ext},$$

onde os elementos de matriz $U_{\beta\alpha,\delta\gamma}$ são definidos como:

$$U_{\beta\alpha,\delta\gamma}(\omega) = \sqrt{4\hbar\omega_{\beta\alpha}\hbar\omega_{\delta\gamma}n_{\beta\alpha}n_{\delta\gamma}}\int \Phi_{\beta\alpha}^{\star}(\vec{x})\Phi_{\delta\gamma}(\vec{y})[\frac{e^2}{\epsilon_L(\omega)\left|\vec{x} - \vec{y}\right|} + U_{cd}\delta(\vec{x} - \vec{y})]d\,\vec{x}\,d\,\vec{y}\,.$$

Desta forma o problema ficou reduzido a encontrar a resposta de um conjunto de osciladores harmônicos acoplados forçados e amortecidos.

Ao invés de considerar a situação geral onde o potencial externo pode depender das coordenadas perpendiculares ao eixo da estrutura semicondutora, iremos nos restringir ao caso de campos externos aplicados longitudinalmente à direção de crescimento da mesma (definido como direção z). Assim a flutuação de densidade será função somente de z e portanto o potencial induzido produzirá uma oscilação coletiva entre duas subbandas $(\alpha\beta)$ em que todas as transições verticais participam com amplitudes iguais. Correspondentemente, definimos então uma nova coordenada harmônica dada por

$$\bar{x}_{\beta\alpha} = \frac{\sqrt{2\hbar\omega_{\beta\alpha}N_{\beta\alpha}}}{\hbar^2\left(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega\right)}\delta V_{\beta\alpha}$$

onde

$$N_{\beta\alpha} = 2\sum_{\mathbf{k}_\parallel} n_\alpha(k_\parallel)(1 - n_\beta(k_\parallel))$$

sendo que o fator 2 se deve a soma sobre os graus de liberdade de spin. A partir de agora os subescritos $(\alpha\beta)$ denotam números quânticos de subbandas da estrutura semicondutora

e

$$\delta V_{\beta\alpha}(t) = f^{[1]}_{\beta\alpha}(t) + \delta V^{ind}_{\beta\alpha}(t) \tag{4.28}$$

com

$$f^{[1]}_{\beta\alpha} = \frac{\sum_{\mathbf{k}_\parallel} n_\alpha(\mathbf{k}_\parallel)[1 - n_\beta(\mathbf{k}_\parallel)]\delta V^{ext}_{\beta\alpha}(\mathbf{k}_\parallel)}{\sum_{\mathbf{k}_\parallel} n_\alpha(\mathbf{k}_\parallel)[1 - n_\beta(\mathbf{k}_\parallel)]}. \tag{4.29}$$

Com estas definições, a equação de movimento de $\bar{x}_{\beta\alpha}$permanece a mesma do que aquela para $x_{\beta\alpha}$ sendo que o fator $n_{\beta\alpha}$ é agora substituído por $N_{\beta\alpha}$ e $\delta V^{ext}_{\beta\alpha}$ por $f^{[1]}_{\beta\alpha}$ em todas as equações anteriores. Equações similares podem ser obtidas para flutuações de densidade de spin. Elas são obtidas simplesmente retirando o termo coulombiano (termo de Hartree) e substituindo o potencial U_{cd} pelo termo equivalente U_{sd} nas expressões previamente definidas para a matriz de acoplamento **U**.

4.8 Funções resposta para FDS e FDC

As seções de choque de espalhamento para os casos de FDC e FDS podem ser obtidas a partir do conhecimento da seguinte função resposta:

$$\langle M^\dagger(0)\rangle_\omega = \sum_{\alpha\beta\mathbf{k}_\parallel} [\delta V^{ext}_{\beta\alpha}(\mathbf{k}_\parallel)]^* \left\langle c^\dagger_{\alpha\uparrow}(\mathbf{k}_\parallel)c_{\beta\uparrow}(\mathbf{k}_\parallel) \pm c^\dagger_{\alpha\downarrow}(\mathbf{k}_\parallel)c_{\beta\downarrow}(\mathbf{k}_\parallel)\right\rangle_\omega .$$

Esta pode ser reescrita a partir das eqs.(4.27), (4.28) e (4.29) como:

$$\langle M^\dagger(0)\rangle_\omega = \sum_{\alpha\beta\mathbf{k}_\parallel} [\delta V^{ext}_{\beta\alpha}(\mathbf{k}_\parallel)]^* \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha} n_\alpha(\mathbf{k}_\parallel)[1 - n_\beta(\mathbf{k}_\parallel)]}{\hbar^2(\omega^2 - \omega^2_{\beta\alpha} + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)}[\delta V^{ext}_{\beta\alpha}(\mathbf{k}_\parallel) + \delta V_{\beta\alpha} - f^{[1]}_{\beta\alpha}].$$

Usando as definições

$$f^{[2]}_{\beta\alpha} = 2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha} \frac{\sum_{\mathbf{k}_\parallel} n_\alpha(\mathbf{k}_\parallel)[1 - n_\beta(\mathbf{k}_\parallel)] \left|\delta V^{ext}_{\beta\alpha}(\mathbf{k}_\parallel)\right|^2}{\sum_{\mathbf{k}_\parallel} n_\alpha(\mathbf{k}_\parallel)[1 - n_\beta(\mathbf{k}_\parallel)]}$$

e

$$f_{\beta\alpha} = \sqrt{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}} \frac{\sum_{\mathbf{k}_\parallel} n_\alpha(\mathbf{k}_\parallel)[1 - n_\beta(\mathbf{k}_\parallel)]\delta V^{ext}_{\beta\alpha}(\mathbf{k}_\parallel)}{\sum_{\mathbf{k}_\parallel} n_\alpha(\mathbf{k}_\parallel)[1 - n_\beta(\mathbf{k}_\parallel)]}$$

temos que:

$$\langle M^\dagger(0)\rangle_\omega = \sum_{\alpha\beta} \frac{(f^{[2]}_{\beta\alpha} - |f_{\beta\alpha}|^2)}{\hbar^2(\omega^2 - \omega^2_{\beta\alpha} + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} + \sum_{\alpha\beta} f^*_{\beta\alpha}\bar{x}_{\beta\alpha} , \tag{4.30}$$

onde os $\overline{x}_{\beta\alpha}$ são componentes da equação matricial

$$[\hbar^2\omega^2 - \mathbf{U}(\omega) + i\mathbf{\Gamma}\hbar\omega] \cdot \overline{\mathbf{x}} = \mathbf{f} \tag{4.31}$$

com $\mathbf{\Gamma}_{\beta\alpha} = \hbar\gamma_{\beta\alpha}$.

Como o segundo termo da eq.(4.30) possui pólos nas auto-frequências do sistema acoplado, ele é interpretado como responsável pela resposta coletiva do sistema. O outro termo possuindo pólos nas frequências naturais do sistema representa excitações de partícula independente.

De forma a obter as partes real e imaginária da matrix $\bar{\mathbf{x}}$ multiplicamos à esquerda da eq.(4.31) por

$$(\mathbf{U} - \hbar^2\omega^2) \cdot \mathbf{\Gamma}^{-1} + i\hbar\omega.$$

Como $\mathbf{U}$ e $\mathbf{\Gamma}$ são reais obtemos,

$$[(\mathbf{U} - \hbar^2\omega^2) \cdot \mathbf{\Gamma}^{-1} \cdot (\mathbf{U} - \hbar^2\omega^2) + \hbar^2\omega^2\mathbf{\Gamma}] \cdot \bar{\mathbf{x}}_1 = -[(\mathbf{U} - \hbar^2\omega^2) \cdot \mathbf{\Gamma}^{-1} \cdot \mathbf{f}_1 - \hbar\omega\mathbf{f}_2]$$

e

$$[(\mathbf{U} - \hbar^2\omega^2) \cdot \mathbf{\Gamma}^{-1} \cdot (\mathbf{U} - \hbar^2\omega^2) + \hbar^2\omega^2\mathbf{\Gamma}] \cdot \bar{\mathbf{x}}_2 = -[(\mathbf{U} - \hbar^2\omega^2) \cdot \mathbf{\Gamma}^{-1} \cdot \mathbf{f}_2 - \hbar\omega\mathbf{f}_1]$$

onde $\bar{\mathbf{x}}_1$ ($\mathbf{f}_1$) e $\bar{\mathbf{x}}_2$ ($\mathbf{f}_2$) denotam as partes real e imaginária de $\bar{\mathbf{x}}$ ($\mathbf{f}$) respectivamente. Estas equações matriciais podem ser resolvidas usando decomposição LU seguida de "back-substitution" para cada frequência ω. Achada a solução para a matriz $\bar{\mathbf{x}}$ substituímos a mesma na eq.(4.30) achando assim para cada frequência a seção de choque de espalhamento do sistema. Voltemos agora nossa atenção para o caso específico do sistema multicamadas delta-dopadas.

Supondo um vetor de onda de espalhamento q ao longo do eixo do sistema multicamadas e funções de onda eletrônicas com condições periódicas de contorno sobre as N celas, a conservação de momentum de Bloch nos assegura que somente pares de excitações $(\beta\alpha)$ e $(\delta\gamma)$ possuindo números de onda que diferem entre si de $(q + g)$ são acopladas.

Neste caso os elementos da matrix de acoplamento coulombiano U para o caso de FDC se tornam:

$$U_{\beta\alpha,\delta\gamma}(\omega) = \frac{\sqrt{4\hbar\omega_{\beta\alpha}\hbar\omega_{\delta\gamma}N_{\beta\alpha}N_{\delta\gamma}}}{NAd}[\sum_g \frac{4\pi e^2}{\epsilon_L(\omega)}\frac{\rho^*_{\beta\alpha}(g)\rho_{\delta\gamma}(g)}{|q+g|^2} + d\int_{cela} U_{cd}(z)\Phi^*_{\beta\alpha}(z)\Phi_{\delta\gamma}(z)dz] +$$

$$+\delta_{\beta\alpha,\delta\gamma}(\hbar\omega_{\beta\alpha})^2$$

onde A é a area da seção reta perpendicular à direção de crescimento da super-rede, d é o tamanho de sua cela unitária, q conforme já dito é o momento transferido para a excitação ao longo do eixo da super-rede e $g = (2\pi/d \times inteiro)$ é o número de onda da rede recíproca. Na equação acima

$$\rho_{\beta\alpha}(g) = \int_{cela} e^{-i(q+g)z}\Phi_{\beta\alpha}(z)dz.$$

Nestas integrais cada função de onda ψ_β ou ψ_α do produto $\Phi_{\beta\alpha}(z)$ é normalizada na cela unitária.

4.9 Conclusões

Para finalizar este capítulo teceremos alguns comentários a respeito da teoria desenvolvida. Em primeiro lugar, pelo nosso conhecimento, este é o primeiro cálculo de espalhamento Raman eletrônico em situações de extrema ressonância para os mecanismos FDS e FDC. O cálculo mostra que neste regime é possível coexistirem excitações do sistema de caráter coletivo e de partícula independente. O regime de espalhamento em ressonância próxima se reduz a uma situação particular da teoria. A formulação desenvolvida para o cálculo de seções de choque de espalhamento é de caráter geral e bastante simples quando comparada com as teorias não ressonantes existentes. Na realidade o problema se reduz a inversão de matrizes evitando como em Katayama e Ando [8] a resolução de equações integrais complicadas ou como em Wolf [3], Hamilton [6] ou Blum [39] o cálculo de comutadores via método da equação de movimento. Além disso, o cálculo inclui o acoplamento entre

as celas do sistema multideltas via números de onda da rede recíproca. No cálculo de Katayama e Ando, apesar de se tratar de uma super-rede (de poços quânticos), este acoplamento não foi considerado. De uma forma simples em nossos cálculos efeitos de muitos corpos foram incluídos .

A inclusão do acoplamento elétron fônon na teoria é um efeito médio. Na verdade teríamos que considerar os detalhes da estrutura de bandas já que o processo se dá em regime de extrema ressonância. A validade deste cálculo tem que ser testada com os resultados do experimento. De uma forma geral podemos adiantar que o comportamento básico dos gráficos experimentais foram reproduzidas na região do fônon LO.

Nossos cálculos permitem testar a validade de se usar o método de TDLDA em regime de extrema ressonância.

Capítulo 5

RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1 Introdução

Neste capítulo serão apresentados e analisados os resultados numéricos da teoria desenvolvida nos Caps. 3 e 4 aplicada ao sistema de multicamadas δ-dopadas. Em primeiro lugar serão apresentados os dados referentes a estrutura eletrônica e em seguida aqueles referentes ao espalhamento inelástico de luz para os mecanismos de flutuações de densidade de carga e de spin. Nos cálculos os seguintes parâmetros do GaAs foram utilizados e mantidos fixos: a energia do gap $E_g = 1.861$ meV, a massa efetiva da banda de condução, $m_c = 0,067m_0$, a massa efetiva da banda de split-off, $m_{so} = 0,154m_0$ e a constante dielétrica $\epsilon_0 = 12,53$. [45]

5.2 Resultados da estrutura eletrônica

Nesta seção apresentamos os resultados autoconsistentes referentes a estrutura eletrônica das bandas de condução e de split-off de uma estrutura periodicamente δ-dopada do tipo-n. As características da super-rede por nós utilizada seguem aquelas encontradas no artigo de Maciel *et al* [12]. Basicamente o sistema consiste de uma sequência periódica de planos δ-dopados com Si separados espacialmente por uma camada de GaAs intrínseco. No total consideramos 11 períodos igualmente espaçados de uma distância $d = 500$ Å e com uma densidade de portadores $n_s = 1.0 \times 10^{12} cm^{-2}$. Como mencionado no Cap. 2, na

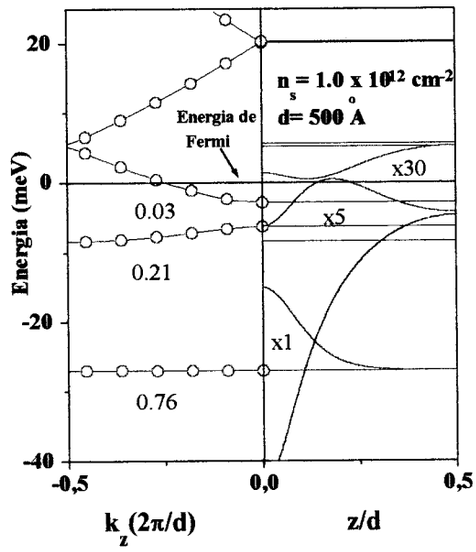

Figura 5.1: Espectro de minibandas com as respectivas ocupações calculadas autoconsistentemente para um sistema multicamadas delta-dopados de 11 períodos e distribuição Gaussiana de 50 Å com condições periódicas de contorno. No alto à direita encontram-se a densidade eletrônica e o período utilizados. As densidades relativas de cada minibanda e o potencial gerado se encontram no lado direito da figura.

prática, efeitos de difusão ocorrem, de forma que a distribuição discreta de doadores em cada camada foi substituída por uma distribuição Gaussiana com $D = 50$ Å de FWHM (largura total a meia altura) na direção perpendicular ao plano de dopantes. De forma a tornar o cálculo mais realista supusemos ainda a existência de uma distribuição uniforme não intencional de aceitadores negativamente carregados com $N_a = 1.0 \times 10^{15} cm^{-3}$ de densidade.

Na fig.5.1 encontram-se os dados referentes à banda de condução do sistema de multicamadas delta obtidos pela TFD dentro da aproximação de massa efetiva utilizando condições periódicas de contorno. No lado esquerdo da figura é mostrado o espectro discreto de subbandas $E_c(i, k_z)$. Nele podemos observar a existência de três minibandas ocupadas sendo que, a de mais baixa energia, correspodendo a 76% da ocupação total dos

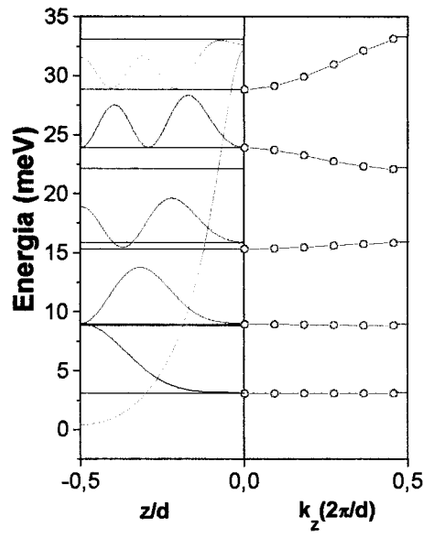

Figura 5.2: Espectro de minibandas da banda de split-off, densidades relativas para $k_z = 0$ e o potencial de Hartree autoconsistente. As energias são consideradas positivas tomando-se o nível de Fermi como referência.

estados disponíveis, não apresenta dispersão. As outras duas formam um quasi-contínuo de estados. Desta forma pode-se concluir que o gás de elétrons formado por esta estrutura em particular constitui um sistema híbrido onde coexistem um gás de caráter estritamente bidimensional (característico de uma estrutura δ isolada) e outro de caráter quasi-tridimensional análogo a um sistema uniformemente dopado. A última destas características é corroborada por medidas de fotoluminescência e Raman onde espectros de estruturas de período curto se mostram similares àqueles de materiais uniformemente dopados [12]. Na figura encontramos ainda o perfil do potencial da super-rede e as densidades relativas de cada minibanda.[1]

Na fig.5.2 estão contidos parte dos resultados numéricos obtidos para a banda de split-off. No gráfico constam o potencial efetivo de Hartree, algumas densidades de probabilida-

[1]Estritamente falando são subbandas. No entanto utilizaremos o termo minibanda para expressar o conjunto de subbandas com o mesmo número quântico orbital i.

de em $k_z = 0$ e algumas minibandas de energia. As energias dos buracos compreendendo uma faixa total ao redor de 200 meV foram consideradas positivas e escaladas em relação ao nível de Fermi. Isto equivale ao cálculo de 13 minibandas cujas funções de onda constituem uma base completa em uma parte em 10^4.

5.3 Resultados do espalhamento inelástico de luz

Esta seção compreende a parte mais importante deste trabalho. Nela são apresentados os resultados das seções de choque de espalhamento inelástico de luz para a obtenção do espectro despolarizado associado ao mecanismo de flutuações de densidade de spin (FDS) e para o espectro polarizado associado ao mecanismo de flutuações de densidade de carga (FDC). As seções de choque Raman correspondentes aos espectros de transições de ambos mecanismos são numericamente calculadas para várias energias de excitação do laser em condições de extrema ressonância com o gap de split-off, $E_0 + \Delta_0$. Por razões de comensurabilidade com a discretização das minibandas de energia, iremos supor que o módulo do vetor de onda de espalhamento seja,

$$q = \left|\vec{k_L} - \vec{k_S}\right| = 0.685 \times 10^6 cm^{-1},$$

ao longo da direção de crescimento (geometria de retro-espalhamento). Este valor é muito próximo daquele dado pela relação de dispersão do fóton [38]. Os resultados serão confrontados com resultados experimentais contidos na referência [12] perfazendo um total de doze espectros.

A fig.5.3 mostra a distribuição espectral das forças de oscilador, onde efeitos excitônicos foram desconsiderados, para o mecanismo de FDS no regime de *ressonância próxima* para a super-rede e para um gás de elétrons uniforme com a mesma densidade tridimensional e satisfazendo as mesmas condições de contorno. Para uma melhor vizualização, forças de oscilador de baixa intensidade foram suprimidas.

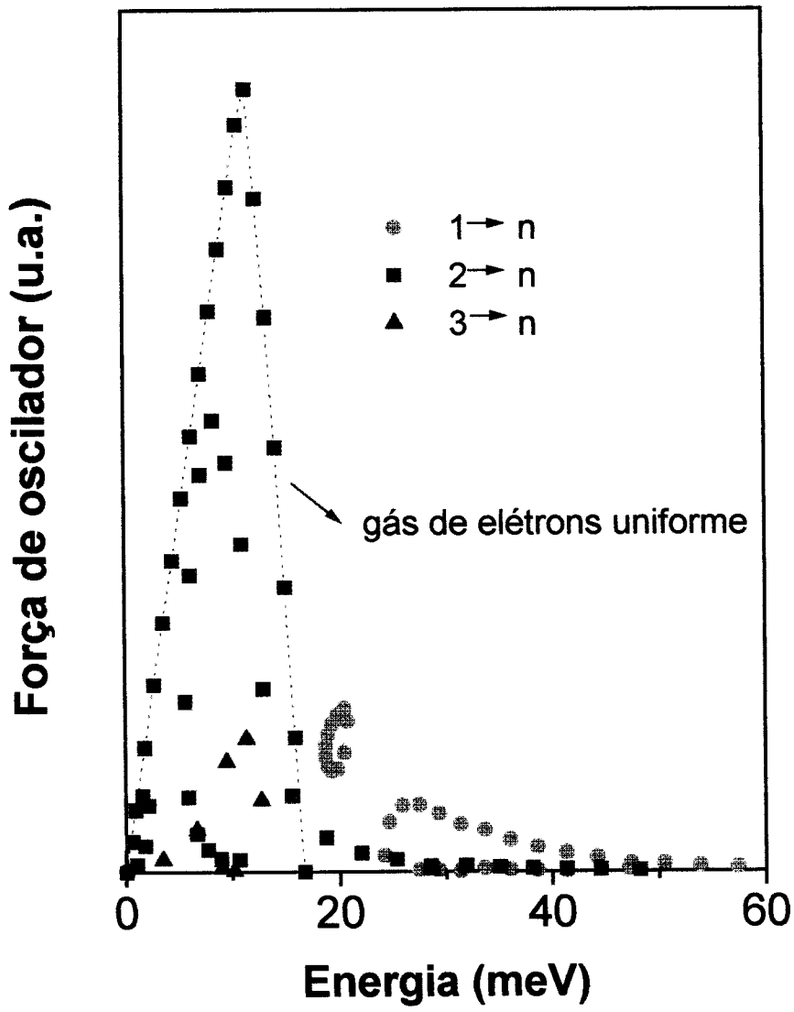

Figura 5.3: Distribuição das forças de oscilador no caso FDS em condições de ressonância próxima para o sistema de multicamadas delta-dopadas. No alto à direita está indicado de quais minibandas as transições se originam. No gráfico também estão representadas as forças de oscilador para um gás de elétrons uniforme com a mesma densidade tridimensional do sistema multi-deltas.

Conforme mencionado na introdução, por ressonância próxima entendemos um limite imposto na frequência da luz incidente tal que a diferença de energia entre o gap de spin-split e a energia da luz seja muito maior do que a diferença de energia entre os estados de subbandas. Neste regime podemos substituir todos os denominadores ressonantes de energia da eq.(4.3) por um denominador médio com a consequente eliminação dos estados intermediários via relação de completeza. Feita esta aproximação vê-se facilmente que há um cancelamento do termo atribuído a excitações de partícula independente da função resposta eq.(4.30), resultando que apenas excitações de caráter coletivo são responsáveis pelas intensidades de espalhamento. Como no mecanismo de FDS estão ausentes efeitos de campo de despolarização resultantes da interação elétron-elétron e como efeitos de muitos corpos foram desconsiderados, a matriz de acoplameno **U** é diagonal com elementos dados pelo quadrado das frequências naturais de transição. Desta forma as excitações apresentadas na figura representam transições intersubbandas não acopladas e portanto de caráter de partícula independente.

Ao analisarmos a figura um aspecto imediatamente se ressalta. A despeito do forte potencial confinador que mantém a maioria dos elétrons dentro da primeira minibanda, uma fração considerável das forças de oscilador se encontra na região espectral compreendida pelo gás de elétrons uniformemente dopado. Donde se conclui que a fração do espectro confinado a esta região é proveniente de transições do quasi-contínuo de estados (de caráter 3D) com a densidade espectral distorcida por processos *umklapp*. Por analogia, o restante da fração, que se encontra em regiões de mais alta energia, é associado a transições oriundas da minibanda de caráter estritamente bidimensional. Fica então evidente que a presença do potencial confinador resulta em transferência de forças de oscilador.

Antes de passarmos a análise dos espectros despolarizados em ressonância extrema é importante mencionar que no cálculo anterior assim como nos subsequentes está implícita a invariância translacional ao longo da direção paralela a camada de dopagem de

forma que cada transição representa uma superposição coerente degenerada de oscilações verticais. No entanto em um sistema real excitações deste tipo não devem ser estritamente estáveis dada a presença de vários potenciais espalhadores dentre os quais o mais importante se deve a flutuações de potencial induzidas por impurezas doadoras distribuídas aleatoriamente no plano de dopagem [46]. Desta forma a partir de um determinado tempo médio as impurezas induzem transições não verticais. Esse tempo pode então ser considerado como o tempo de vida da excitação.

Em teoria de transporte de sistemas metálicos normais, dois tipos de tempos característicos são definidos: um é o chamado tempo de relaxação de partícula independente τ_s e outro tempo de vida de espalhamento τ_t. O primeiro está relacionado com a parte imaginária Γ da função de auto-energia de partícula independente por, $\Gamma = \hbar/2\tau_s$. Ele é uma medida do tempo na qual um autoestado de momentum pode ser definido na presença de centros espalhadores. Por outro lado o tempo de espalhamento está relacionado com a condutividade dc σ por, $\sigma = ne^2\tau_t/m$, onde n é a densidade de portadores e e e m são carga e massa efetiva eletrônica respectivamente [47]. Estes tempos estão ligados às chamadas mobilidades quânticas e mobilidades de transporte. A primeira representa a probabilidade por unidade de tempo que um portador seja espalhado para qualquer estado de momentum com conservação de energia. A última representa esta probabilidade mediada por um fator que suprime o espalhamento para frente ("forward scattering") [46] [47]. Para amostras de alta mobilidade como por exemplo em heterojunções $Al_xGa_{1-x}As$-GaAs mostrou-se que τ_t é substancialmente maior que τ_s [47]. No entanto medidas de magnetoresistência e Shubinikov-de Haas em amostras de baixa mobilidade indicam tempos de relaxação de transporte 2,5 maior que os tempos de relaxação de partícula independente [46]. A partir do número acima inferimos diferentes fatores de alargamento para as várias minibandas e comparamos com dados de mobilidade de transporte existentes na literatura. Por exemplo, para transições oriundas da primeira minibanda assumimos um

fator de alargamento, $\Gamma_1 = 11\ meV$, que é consistente com uma mobilidade de transporte da ordem de 2.000 cm^2/Vs observados em espectros de mobilidade em amostras com densidades de dopantes comparáveis [48]. Vale observar que ao compararmos os dados numéricos com os dados experimentais fatores de alargamento em torno de 11 e 16 meV também se mostraram plenamente aceitáveis .

Para transições oriundas de minibandas de mais alta energia onde, pelo nosso conhecimento, nenhum dado se encontra disponível, assumimos um fator comum de alargamento Γ_n como um parâmetro a ser ajustado baseado nos espectros experimentais. É interessante notar que recentemente a existência de fatores comuns de mobilidade de transporte foram relatados na literatura em estruturas δ-simples. Cálculos para uma estrutura, com três subbandas ocupadas e com largura de distribuição de dopantes análoga a adotada neste trabalho, resultaram em mobilidades idênticas entre a segunda e terceira subbandas [49]. A explicação de tal comportamento se fundamenta no caráter ímpar da função de onda da segunda subbanda pois, a presença de um nodo em $z = 0$, permite a redução do "overlapp" com a região dopada implicando num consequente aumento de mobilidade da mesma dentro de uma certa região de distribuição de dopantes. Isto possibilita a igualdade na mobilidade das duas subbandas. Fazendo uma analogia com o nosso sistema que apresenta três minibandas ocupadas, segunda minibanda de caráter essencialmente ímpar e distribuição de dopantes comparável acreditamos ser plausível nossa suposição a respeito de um fator comum para Γ_n.

Na fig.5.4 estão representadas as seções de choque de espalhamento experimentais e teóricas para várias energias incidentes de laser para o mecanismo de flutuações de densidade de spin onde A) efeitos de correlação e troca *não* estão presentes e B) efeitos de correlação e troca estão presentes. Os espectros foram obtidos no regime de extrema ressonância. Neste regime a energia do laser incidente é comparável com a do gap não permitindo mais as simplificações sobre os denominadores de energia efetuadas no regime

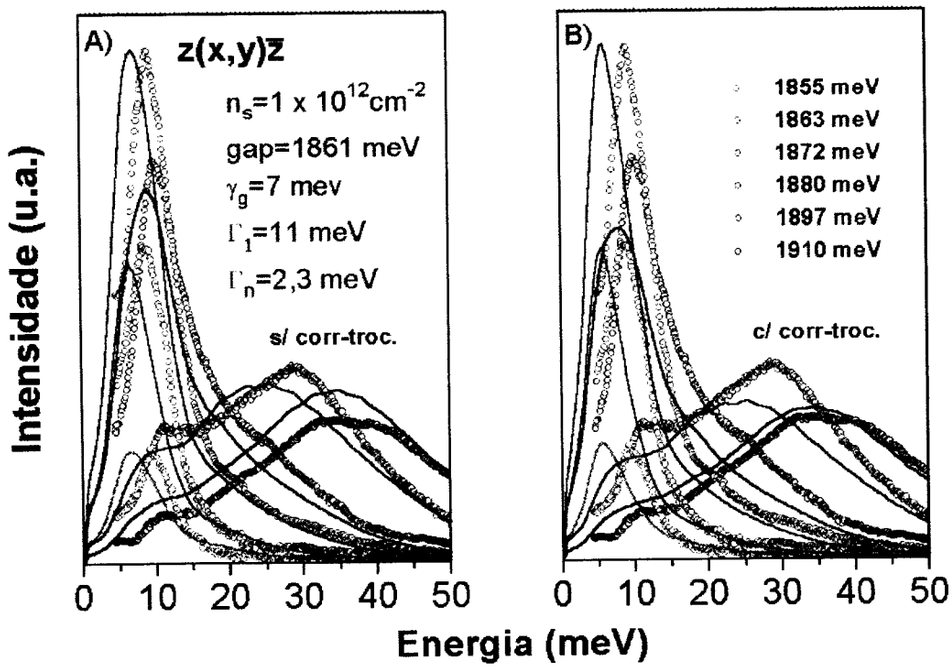

Figura 5.4: Seções de choque de espalhamento via mecanismo de FDS experimentais (círculos abertos) e teóricas (linhas contínuas) para várias energias de laser em regime de extrema ressonância. A) *sem* efeitos de correlação e troca. B) *com* efeitos de correlação e troca.

anterior. Desta forma o papel exercido pelos buracos de spin-split é relevante e não pode ser desconsiderado. Utilizamos como constante fenomenológica de amortecimento no denominador de energia da eq.(4.3) , $\gamma_g = 7\ meV$, compilada da referência [45]. As seções de choque de espalhamento foram recalculadas utilizando a eq.(4.30) onde está embutida a função espectral proposta no Cap.4. Fruto de nossas simulações, neste e em todos os espectros teóricos a serem apresentados a seguir, desconsideramos o acoplamento entre excitações provenientes da primeira minibanda com aquelas provenientes do quasi-contínuo de estados. Este desacoplamento pode ser entendido se observarmos que efeitos coletivos de uma banda localizada são localizados enquanto da última são extendidos. A necessidade desta consideração se mostrou necessária devido basicamente a análise dos efeitos coletivos nos espectros polarizados em situação de extrema ressonância. Os resultados teóricos foram ajustados com os experimentais considerando a largura e a intensidade do pico da curva (c) da figura. O fator de alargamento resultante deste ajuste foi de $\Gamma_2 = 2,3$ meV, que é fisicamente aceitável pois implica em mobilidade de transporte da ordem de 9.300 cm^2/Vs, para a segunda e terceira minibandas [48]. O restante das curvas teóricas segue como consequência deste ajuste sem parâmetro adicional. Comparando a posição do pico da curva (c) das fig.5.4A) e 5.4B) verifica-se que efeitos de correlação e troca são do tipo excitônicos e pequenos, já que houve um desvio para o vermelho em torno de 1 meV. Nota-se ainda que a ausência de efeitos de muitos corpos parece resultar num melhor ajuste entre experimento e teoria. Este fato, pelo nosso entendimento, deve ser reflexo da presença de desordem no sistema. No entanto voltaremos a tocar nesse ponto somente após a apresentação dos espectros polarizados em extrema resonância.

Apesar da ressalva feita acima, o acordo entre experimento e teoria em ambas figuras é muito bom e de pronta interpretação. Baseando-nos no espectro de forças de oscilador em ressonância próxima e sabendo que os efeitos tipo excitônicos são pequenos, as formas de linha dos espectros despolarizados em extrema ressonância são manisfestações explícitas

do caráter híbrido do sistema onde coexistem um gás de elétrons bi- e tridimensional a saber: a) uma estrutura de baixa energia produto de excitações oriundas do quasi-contínuo de estados e b) uma estrutura larga, em altas energias, produto de transições originárias do sistema de multicamadas formada pelo gás bidimensional.

A fig.5.5 mostra o espectro de forças de oscilador para o caso de FDC em ressonância próxima sem efeitos de correlação e troca e onde, conforme já dito, estão desacopladas excitações coletivas localizadas e extendidas. Para melhor comparação, o gráfico apresenta a mesma escala que o caso correspondente de flutuações de densidade de spin. Neste caso a matriz U é fruto apenas do acoplamento coulombiano e, devido ao desacoplamento de excitações localizadas e extendidas, não mais diagonal, e sim, bloco diagonal. Este resultado se traduz na figura por quadrados (bloco resultante de acoplamentos oriundos da minibanda localizada) e círculos (bloco resultante dos acoplamentos oriundos do quasi-contínuo de estados). Comparando com o espectro correspondente de flutuações de densidade de spin (fig.5.3), observa-se que o efeito do acoplamento coulombiano é deslocar o espectro como um todo para regiões de mais alta energia deformando as forças de oscilador. Além do que, picos pronunciados em torno de 15 meV e 24 meV se destacam. Analisemos primeiramente o último. Nossos dados numéricos indicam que o mesmo se origina de transições provenientes da primeira para a segunda minibanda. Isto corresponde na fig.5.3 à estrutura circular em torno de 17 meV . Analisando esta estrutura pode-se observar que ela possui forças de oscilador de intensidades comparáveis e possui uma dispersão em energia de aproximadamente 3 meV. Desta forma este bloco de transições forma um conjunto de osciladores aproximadamente degenerados.

Pode-se mostrar que um sistema constituído de um conjunto de N osciladores degenerados forçados e que sejam submetidos a um mesmo acoplamento, apresenta como solução, dois tipos de modos normais. O primeiro representa (N-1) oscilações de partícula independente com frequências iguais às frequências naturais do sistema. O segundo repre-

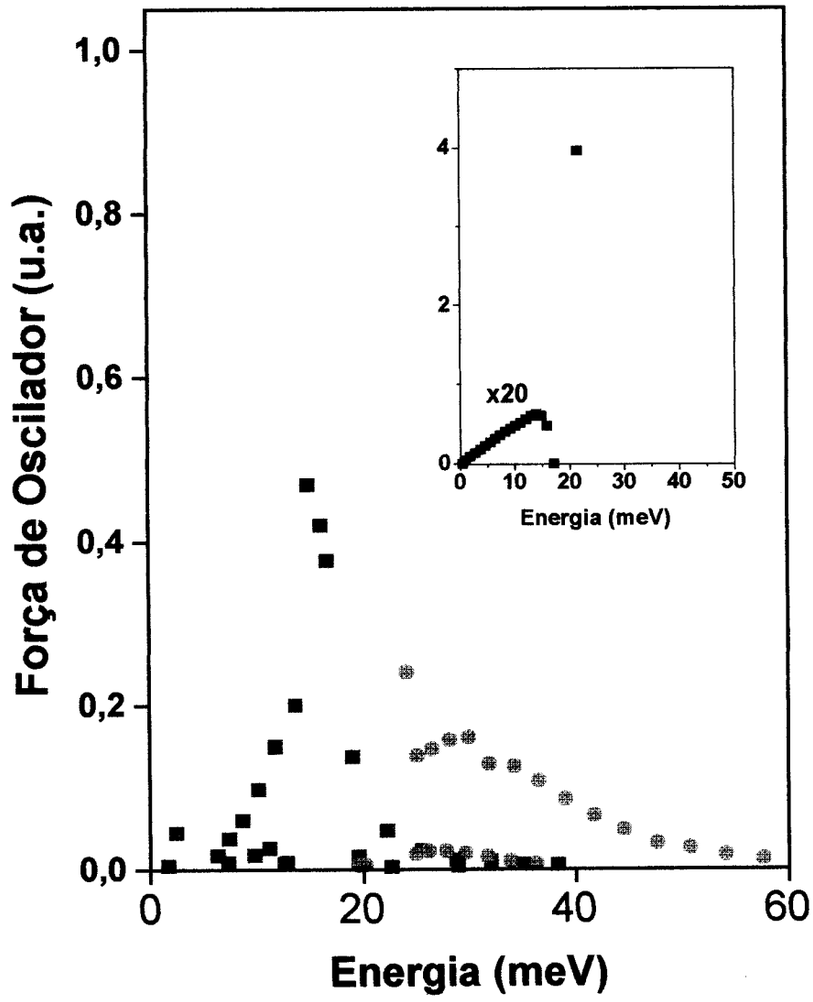

Figura 5.5: Espectro de forças de oscilador o sistema multicamadas delta-dopadas para o caso de excitações de densidade de carga em ressonância próxima. Os quadrados indicam acoplamentos entre excitações provenientes do quasi-contínuo de estados e os círculos acoplamentos entre excitações oriundas da primeira minibanda. O enxerto apresenta o mesmo cálculo para um gás uniforme de densidade tridimensional igual à densidade 3-D correspondente do sistema multi-deltas.

senta um modo de oscilação coletiva tipo-plasma deslocada para uma região de mais alta energia devido a efeito do campo de despolarização. Se o bombeamento externo for igual para todos os osciladores, toda a força de oscilador é transferida para a parte coletiva e portanto o aspecto de partícula independente do sistema é completamente blindado. Situação análoga a esta ocorre com a estrutura circular em torno de 17 meV, no regime de ressonância próxima. De forma que este pico é interpretado como de excitações coletivas tipo-plasma. O mesmo acontece com o pico em torno de 15 meV, interpretado como devido a oscilações coletivas tipo-plasma oriundas das bandas de elétrons quasi-livres. A existência de tal efeito coletivo é similar ao modo coletivo elétron-fônon LO observada em GaAs uniformemente dopado [50].

O enxerto da fig.5.5 mostra nossa simulação para o GaAs uniformemente dopado onde se exemplifica a discussão apresentada no parágrafo anterior. Dela podemos observar a existência de excitações de partícula independente na faixa de energia correspondente compreendida na fig. 5.3 e também de um modo coletivo de frequência bem definida ω_q. Comparamos o resultado numérico obido para a frequência ω_q com aquele dado pela expressão analítica da frequência de plasma de um gás uniforme considerando correções até primeira ordem em q^2 e dada por:

$$\omega_q \cong \omega_p \left\{ 1 + \frac{3}{10} \left(\frac{q v_f}{\omega_p} \right)^2 + \cdots \right\}$$

onde $\omega_p = 4\pi n e^2/m$ é a frequência de plasma, q é o vetor de onda de espalhamento e v_f é velocidade de Fermi do sistema [51]. O resultado obtido é que os dois cálculos forneceram uma frequência para o módulo coletivo em torno de 21 meV com um erro relativo entre as duas de menos de $1,0\%$.

Podemos concluir portanto que plasmas degenerados igualmente acoplados possuem dois tipos de excitação características: uma de caráter de partícula independente e outro de caráter coletivo. Em ressonância próxima apenas o modo coletivo é excitado. No

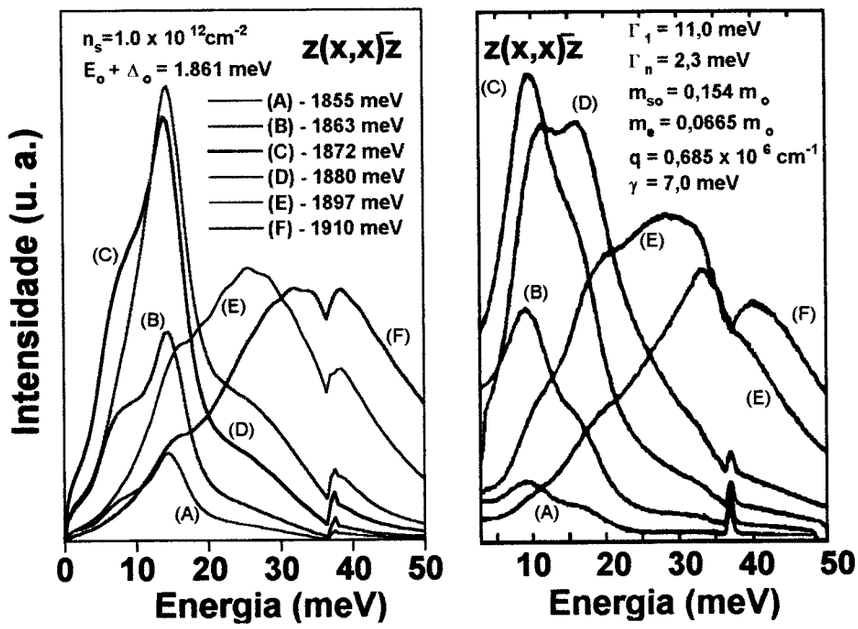

Figura 5.6: Seção de choque de espalhamento via mecanismo de FDC para várias energias de laser obtidas em regime de extrema ressonância com o gap de spin-split. À esquerda se encontram os dados teóricos. À direita se encontram os dados experimentais. Letras idênticas identificam os espectros teóricos e experimentais correspondentes.

entanto o modo de partícula independente existe, pode ser excitado e o é de fato no regime de ressonância extrema. Enfatizamos que este tipo de análise é absolutamente geral e deve valer para qualquer tipo de gás de elétrons formado por estruturas semicondutoras. De fato excitações de partícula independente e coletivas tem sido observadas em gases de elétrons com diferentes dimensionalidades e nas mais diversas estruturas como: poços quânticos, fios quânticos, etc.

Como análise final aplicamos a regra de soma [52] (f-sum rule) válida em condição de ressonância próxima (vide Apênd. A). Ela é dada pela integral do produto da frequência de excitação do sistema pela soma das forças de oscilador (alargadas pela função espectral proposta no Cap. 4). Nossos cálculos resultaram que 99,5% das forças de oscilador estão compreendidas na faixa de energia apresentada pela fig.5.5 e que, a concordância da regra

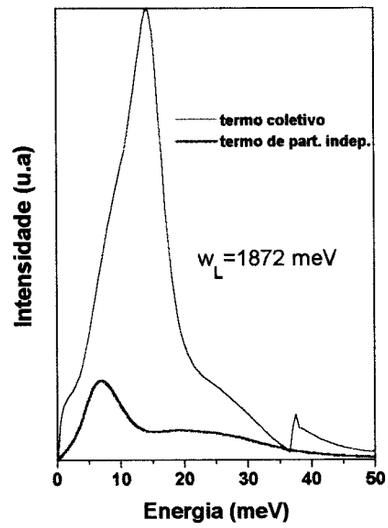

Figura 5.7: Espectro de excitações coletivas e de partícula independente para energia do laser incidente em 1872 meV.

de soma entre o caso de flutuações de densidade de spin e de carga é perfeita.

Na fig.5.6 são apresentados espectros despolarizados teóricos e experimentais para várias energias de excitação do laser no regime de ressonância extrema onde foram utilizados os mesmos parâmetros do caso correspondente de flutuações de densidade de spin. A despeito da grande diferença de intensidade da estrutura em torno de 15 meV (teoria) e 16 meV (experimental) (compare por exemplo os espectros para energia de excitação $\omega_L = 1880$ meV), todas as características experimentais são reproduzidas . Uma análise do espectro das forças de oscilador na fig.5.5 indica que esta estrutura se origina a partir de excitações coletivas tipo plasma do quasi-contínuo de estados. Esta constatação está em contraste com a interpretação original dada por Maciel *et al* [12] onde a mesma era atribuída a transições entre a primeira e segunda minibandas. Para uma melhor visualização desta estrutura apresentamos, na fig.5.7, separadamente as contribuições coletivas e de partícula independente para uma energia de excitação de 1872 meV.

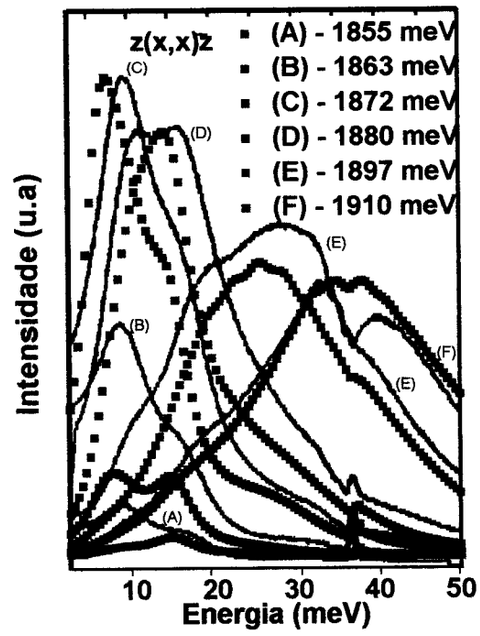

Figura 5.8: Seções de choque de espalhamento para o mecanismo de FDC experimentais (linha contínua) e teóricas (quadrados) para varias energias de excitação. Os espectros teóricos foram calculados utilizando $\gamma_g = 2$ meV.

Da contribuição de partícula independente verificamos que a forma de linha, como esperado, possui a mesma dependência que o caso de flutuações de densidade de spin, uma estrutura de baixa energia e uma estrutura larga na parte de alta energia e portanto com a mesma interpretação. Estrutura de baixa energia constituída de transições de partícula independente provenientes da banda de elétrons quasi-livres enquanto a segunda de transições oriundas da primeira minibanda.

Resta saber no entanto a razão da grande diferença de intensidades entre a parte coletiva e de partícula independente. Por exemplo, para $\omega_L = 1880$ meV, o resultado experimental na fig.5.6 mostra que a estrutura devido a transições de caráter de partícula independente do quasi-contínuo de estados e seu respectivo modo coletivo apresentam relações de intensidade comparáveis. Numa primeira análise acreditávamos que se intensificassemos as estruturas de partícula independente teríamos uma relação correta. Isto

pode ser feito diminuindo a constante fenomenológica de amortecimento γ_g. O melhor ajuste foi obtido para $\gamma_g = 2\ meV$ conforme mostra a fig.5.8. No entanto da figura observamos que ao realizarmos este ajuste, picos de partícula independente não tão ressonantes com a energia do laser perdem intensidade relativa (a curva A por exemplo). Este fato foi confirmado ao recalcularmos os espectros despolarizados utilizando o valor de γ_g definido acima. Desta forma descartamos a opção de aumentarmos a contribuição de partícula independente e procuramos ao invés, uma outra que diminuísse a contribuição coletiva.

A discrepância entre as intensidades dos espectros coletivos teóricos e experimentais pode ser explicada por efeitos de desordem inerentes ao processo de dopagem e que implicam na quebra das regras de conservação de momentum. Nos termos correspondentes a excitações de partícula independente de certa forma efeitos de desordem foram considerados através da inclusão de amortecimento. No entanto o mesmo não aconteceu ao tratarmos os termos de acoplamento que dão origem aos efeitos coletivos do sistema onde conservação de momentum foi estritamente considerada. As flutuações de potencial introduzidas pela desordem implicam em não verticalidade das excitações coletivas intersubanda e isto destroi parcialmente a coerência destas excitações. Efeitos de desordem explicariam ainda por que os espectros despolarizados *sem* efeitos de muitos corpos aparentemente forneceram melhores resultados do que aqueles onde efeitos de muitos corpos estavam presentes.

A não verticalidade das excitações com a consequente quebra das regras de conservação de momentum foram sistematicamente observadas em trabalho de Pinczuk *et al* [53] em MQW de GaAs-($Al_{0.12}Ga_{0.88}$) dopadas seletivamente ("modulation doped"). Neste trabalho mostrou-se que existe uma correlação entre os espectros ressonantes e as mobilidades eletrônicas ao longo do plano de dopagem. Além disso mostrou-se existir uma dependência das larguras de linhas espectrais com as energias dos fótons incidentes em amostras de baixa mobilidade. Verificou-se que as mobilidades mostravam uma clara correlação com

a largura da camada espaçadora.

Para interpretar estes resultados, Pinczuk *et al*, propuseram que o espalhamento inelástico de luz por excitações intersubbanda fosse afetado por processos de relaxação do vetor de onda relacionados com aqueles que limitam as mobilidades eletrônicas. Estes processos de relaxação, devido ao espalhamento dos elétrons pelo potencial coulombiano dos doadores ionizados, deve depender da camada espaçadora. Sob estas circunstâncias a condição de conservação do vetor de onda é quebrada. As transições intersubanda ativas nos espectros não seriam mais necessariamente verticais ou seja, poderiam ocorrer com transferência de momento ao longo do plano.

Um aspecto complementar pode ser visto no espectro despolarizado na região do fônon LO onde linhas assimétricas surgem. Em condições de *ressonância próxima* com o gap de split-off, conforme mencionado na introdução, estas linhas foram teóricamente interpretadas [16] e experimentalmente confirmadas [17] como interferência do fônon LO e um contínuo de transições de partícula independente. No entanto aqui as assimetrias são originárias de efeitos da função dielétrica da rede dependente da frequência que mediam o acoplamento coulombiano entre as transições. Quando a frequência da excitação eletrônica coincide com aquela do fônon LO, a função dielétrica é zero o que implica num acoplamento infinito levando portanto a uma ausência de excitações nesta região. Por outro lado na região de frequência do fônon TO a constante dielétrica da rede é infinita o que implica num acoplamento igual a zero. Consequentemente na região do fônon TO, os espectros polarizados e despolarizados possuem apenas caráter de partícula independente.

Capítulo 6

CONCLUSÕES

Neste trabalho apresentamos uma teoria autoconsistente para o cálculo das seções de choque de espalhamento inelástico de luz via mecanismos de flutuações de densidade spin e de carga para o gás de elétrons não uniforme de um sistema multi-camadas de GaAs delta-dopadas em regime de extrema ressonância com o gap de spin-split do GaAs a temperatura T=0.

No cálculo da estrutura eletrônica das bandas de condução e de split-off do sistema foi utilizada a teoria do funcional densidade dentro da aproximação de densidade local usando condições periódicas de contorno sendo que, como "input" inicial, utilizamos o potencial obtido através da teoria de Thomas-Fermi. Os resultados para a banda de condução mostraram que o gás de elétrons modulado para um sistema periódico de multi-deltas com cela unitária de 500 Å e com dopagem de $1,0 \times 10^{12} cm^{-2}$ possui simultaneamente caraterísticas bi- e tridimensionais [15]. Estas características se refletiram nos espectros Raman de ambos os mecanismos através da forte dependência com as energias de excitação.

O formalismo desenvolvido neste trabalho simplifica bastante os cálculos para a obtenção das seções de choque de espalhamento reduzindo o problema a achar funções resposta através da inversão de matrizes. Nele estão presentes efeitos de troca e correlação dinâmicos (para ambos mecanismos), além dos efeitos de campo de despolarização produzi-

dos pelas flutuações de densidade dependentes do tempo (para o mecanismo de FDC) e acoplamento com fônons LO. Na obtenção das flutuações de densidade utilizamos o método TDLDA-"Time Dependent Local Density Aproximation" que é uma generalização da teoria do funcional densidade de Hohenberg-Kohn-Sham aplicado à situações dinâmicas ($\omega \neq 0$) [37]. Este método já havia sido utilizado por Katayama e Ando em sistemas de múltiplos poços quânticos porém em situações de *ressonância próxima* [8]. No entanto na formulação desenvolvida por Katayama e Ando o problema da *ressonância extrema* é intratável pois as funções resposta devem ser calculadas a partir de equações integrais envolvendo operadores de espalhamento não locais. Além do que não foi levado em conta o acoplamento entre os poços. Ao contrário, neste trabalho leva-se em conta esse acoplamento e as equações das funções respostas são discretas. O formalismo em princípio é geral e se aplica para o estudo de gases de elétrons não uniformes sendo que a limitação está na capacidade de se inverter matrizes.

A geometria de espalhamento utilizada neste trabalho a saber, de retroespalhamento, permitiu que apenas espectros de excitações intersubbandas fossem calculadas. Estas excitações para cada par de subbandas constituem um conjunto de osciladores degenerados acoplados forçados e amortecidos que, em condições de *extrema ressonância*, apresentam seções de choque Raman compostas de dois termos: um de caráter de partícula independente e outro de caráter coletivo. Isto nos faz crer que a presença de excitações de partícula independente, em espectros Raman em regime de extrema ressonância observadas nos mais variados tipos de estruturas semicondutoras, estejam ligadas a existência de tais tipos de osciladores. Para levar em conta o amortecimento dos osciladores uma função espectral foi proposta baseada na conservação de corrente local.

Os espectros despolarizados calculados para diferentes energias incidentes de laser mostraram boa concordância com os dados experimentais disponíveis. Para estes cálculos, assim como para o caso dos espectros polarizados, foram utilizadas ao todo 6 minibandas

de condução e 13 minibandas de valência. A inclusão de efeitos de correlação e troca dinâmicos nos espectros despolarizados apresentou um efeito tipo excitônico pequeno da ordem de 1 meV. Aparentemente o conjunto de espectros onde não foram incluídos os termos de correlação e troca forneceram melhores resultados. Ao nosso ver este fato está ligado a efeitos de desordem provenientes da distribução aleatória de dopantes e que resultam em quebra das regras de conservação de momentum. Esta desordem induz transferência de momentum da luz ao longo do plano de dopagem, quebrando a verticalidade das excitações intersubandas, diminuindo consequentemente efeitos de caráter coletivo.

Nos espectros polarizados onde os efeitos coletivos, devido a campo de despolarização e excitônicos, são bem maiores o acordo entre teoria e experimento se deu de uma forma apenas semi-quantitativa sendo que a razão da discrepância é atribuída aos efeitos de desordem acima citados. No entanto todas as características básicas dos espectros experimentais foram reproduzidas. Em relação a uma estrutura em torno de 16 meV e anteriormente interpretada como sendo devido a transições intersubanda, nossos cálculos indicam que a mesma é fruto de oscilações coletivas tipo plasma oriundas de excitações do quasi-contínuo de estados. No tocante às assimetrias que surgem na região do fônon LO nossos resultados indicam que as mesmas são reflexos de efeitos da constante dielétrica da rede. O zero da constante dielétrica se dá justamente quando o deslocamento Stokes é igual à frequência do fônon LO resultando num acoplamento infinito entre as excitações o que implica na ausência de auto-oscilações do sistema nesta região.

Verificamos que todos os espectros teóricos possuem um desvio para mais baixa energia em relação aos dados experimentais. No entanto um melhor ajuste é obtido ao aumentarmos a densidade dos portadores em torno de 20% o que é consistente com um aumento de densidade de portadores devido a neutralização da contribuição dos aceitadores carregados nas camadas de depleção durante a incidência de luz laser [46]. Com a iluminação pares de elétron-buracos são criados. Os elétrons são incorporados ao gás de

elétrons enquanto os buracos se recombinam com os aceitadores carregados. Um melhor ajuste também é conseguido ao aumentarmos o tamanho da largura média da camada de difusão dos doadores. Por último notamos que os nossos cálculos são extremamente sensíveis ao valor do gap utilizado. A sensibilidade é de tal ordem que variações de 1 meV afetam de maneira marcante as relações de intensidade entre as formas de linha.

Em resumo os resultados obtidos atestam a validade da formulação desenvolvida neste trabalho para situações de extrema ressonância. No entanto seria interessante aplicá-las em sistemas com diferentes mobilidades e menos "sujos" ou seja, em sistemas em que o espectro de transições não estejam tão superpostas, a fim de se estudar efeitos de desordem.

Apêndice A

Função resposta e regra de soma em ressonância próxima

No caso de ressonância próxima a função resposta é proporcional somente à parte imaginária do termo coletivo da eq.(4.30), isto é:

$$G(\omega) = -\frac{\hbar}{\pi}\,\mathrm{Im}\left\langle M^{\dagger}(0)\right\rangle_{\omega} = -\frac{\hbar}{\pi}\,\mathrm{Im}\sum_{\alpha\beta} f^{*}_{\beta\alpha}\overline{x}_{\beta\alpha} \tag{A.1}$$

onde $\overline{x}_{\beta\alpha}$ é solução da eq.(4.31). Rotulando cada transição $\beta\alpha$ por i temos:

$$G(\omega) = -\frac{\hbar}{\pi}\,\mathrm{Im}\sum_{i}(f^{*}_{i}\overline{x}_{i}) = -\frac{\hbar}{\pi}\,\mathrm{Im}(\mathbf{f}^{*}\cdot\overline{\mathbf{x}}) \tag{A.2}$$

Desprezando a dependência da matriz de acoplamento $\mathbf{U}$ com a frequência, assumindo por simplicidade que a parte imaginária de $\mathbf{f}$ seja zero e devido ao fato das matrizes $\mathbf{U}$ e $\mathbf{\Gamma}$ serem reais, a equação para $\overline{\mathbf{x}}$ toma a seguinte forma:

$$[(\mathbf{U}-\hbar^{2}\omega^{2})\cdot\mathbf{\Gamma}^{-1}\cdot(\mathbf{U}-\hbar^{2}\omega^{2})+\hbar^{2}\omega^{2}\mathbf{\Gamma}]\cdot\mathbf{x}_{2} = -\hbar\omega\mathbf{f} \tag{A.3}$$

onde $\mathbf{x}_2$ é a parte imaginária de $\overline{\mathbf{x}}$ (tomamos a parte imaginária de $\overline{\mathbf{x}}$ por causa da eq.(A.2)). Como $\mathbf{U}$ é real e simétrica sua decomposição espectral é dada em termos da seguinte equação de autovalores:

$$\mathbf{U}\cdot\boldsymbol{\lambda} = \lambda\boldsymbol{\lambda}. \tag{A.4}$$

Supondo ainda que o amortecimento seja o mesmo para todas as transições ou seja, que

$\mathbf{\Gamma} = \gamma\mathbf{1}$ e colocando $\hbar = 1$, a equação para $\mathbf{x}_2$ é reescrita como:

$$[(\lambda - \omega^2) \cdot \mathbf{\Gamma}^{-1} \cdot (\lambda - \omega^2) + \omega^2\mathbf{\Gamma}]\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{x}_2 = -\omega\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{f} \tag{A.5}$$

ou ainda,

$$[(\lambda - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2]\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{x}_2 = -\omega\gamma\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{f}, \tag{A.6}$$

o que nos fornece:

$$\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{x}_2 = -\frac{\omega\gamma}{[(\lambda - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2]}\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{f} \tag{A.7}$$

Podemos expandir a matriz $\mathbf{x}_2$ em termos dos autovalores da matriz $\mathbf{U}$ com isso,

$$\mathbf{x}_2 = \sum_{\lambda}(\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{x}_2)\boldsymbol{\lambda}, \tag{A.8}$$

obtendo então que

$$\mathbf{x}_2 = -\sum_{\lambda} \frac{\omega\gamma}{[(\lambda - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2]}(\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{f})\boldsymbol{\lambda}. \tag{A.9}$$

Assim a função resposta para o regime de ressonância próxima é dada por:

$$G(\omega) = \frac{1}{\pi}\sum_{\lambda} \frac{\omega\gamma}{[(\lambda - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2]}(\boldsymbol{\lambda} \cdot \mathbf{f})^2 \tag{A.10}$$

A função resposta deve obedecer a seguinte regra de soma (conforme ref. [52]):

$$\frac{1}{V}\int_0^{\infty} \omega G(\omega) d\omega = \frac{q^2}{2m}\left(\frac{N}{V}\right)\gamma_0^2 \tag{A.11}$$

onde $1/\gamma_0$ é o fator ressonante de energia para o espalhamento em ressonância próxima dado pelo denominador de energia da eq.(A.12). Nesse regime os componentes da matriz $\mathbf{f}$ são dados por:

$$f_i = \sqrt{2\omega_i N_i}\frac{\langle\beta\,|e^{iqz}|\,\alpha\rangle}{\overline{E_g} - \omega_L}, \tag{A.12}$$

onde $\overline{E_g}$ é um denominador médio de energia (um gap efetivo), ω_L é a frequência do laser incidente e onde utilizamos a relação de completeza para eliminar os estados intermediários de buracos da eq.(4.3) e onde desprezamos a constante $\frac{P_{cv}^2}{3m}$ sendo que,

$$N_i = \frac{A}{2\pi}\begin{cases} E_\beta - E_\alpha & \text{se } E_\beta < E_F \\ E_F - E_\alpha & \text{se } E_\beta > E_F \end{cases}. \tag{A.13}$$

Na forma em que se apresentam os N_i, foi feita a soma nos estados de onda plana perpendiculares à direção de crescimento sendo que no primeiro caso o fundo da subanda do estado final β se encontra abaixo da energia de Fermi, E_F, e no segundo, o fundo se encontra acima. Na expressão (A.13), A representa a área da amostra ao longo do plano de dopagem. Desta forma temos que a regra de soma é dada pela seguinte expressão:

$$\frac{1}{N_p d}\int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi}\omega \sum_\lambda \frac{\omega\gamma}{[(\lambda-\omega^2)^2+\omega^2\gamma^2]}(\boldsymbol{\lambda}\cdot\mathbf{f}^*)^2 = \frac{q^2}{2m}\left(\frac{N}{V}\right)\gamma_0^2 \tag{A.14}$$

onde o símbolo $*$ significa que retiramos a dependência com a área da matriz $\mathbf{f}$, N_p é o número de períodos da super-rede e d o tamanho de sua cela unitária. Resolvendo a integral da eq.(A.14), temos:

$$I = \int_0^\infty d\omega \frac{\omega^2\gamma}{[(\lambda-\omega^2)^2+\omega^2\gamma^2]} = a\int_0^\infty du \frac{1}{(\frac{1}{u}-u)^2+a^2} \tag{A.15}$$

onde fizemos a seguinte mudança de variáveis $u = \omega/\sqrt{\lambda}$ e $a = \gamma/\sqrt{\lambda}$. Façamos agora a seguinte mudança de variáveis na integral (A.15): $y = 1/u$ e em seguida, $y = -y$ obtendo:

$$I = a\int_{-\infty}^0 \frac{dy}{y^2}\frac{1}{(\frac{1}{y}-y)^2+a^2} \tag{A.16}$$

Somando as integrais (A.15) e (A.16) e fazendo a substituição $x = y - 1/y$ obtemos finalmente que

$$2I = a\int_{-\infty}^\infty dx \frac{1}{x^2+a^2} = \pi$$

Vemos então que a integral da frequência multiplicada pela função resposta onde está imbutida a função espectral proposta no Cap.3, independe de como o sistema é amortecido. Com isso a regra de soma toma a seguinte forma final adimensionalizada:

$$\frac{1}{N_p d}\sum_\lambda (\boldsymbol{\lambda}\cdot\mathbf{f}^*)^2 = q^2\left(\frac{N}{V}\right)\gamma_0^2 \tag{A.17}$$

Bibliografia

[1] M. Cardona, em *Light Scattering in Solids IV, Topics Appl. Phys*, vol. **54**, (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1984), ed. M. Cardona e G. Güntherodt, pg. 5.

[2] P. M. Platzmann, Phys. Rev., **139**, A379 (1965); A. L. Mcwhorter, *Physics of Quantum Eletronics* (Mc Graw-Hill, New York, 1966), pg. 111.

[3] P. A. Wolf, *Phys. Rev. Lett.*, **16**, 225 (1966).

[4] E. Burstein, A. Pinczuk e S. Buchner, em *Physics of Semiconductors 1978*, ed. por B. L. H. Wilson (The Institute of Physics, London, 1979), pg. 1231.

[5] G. Abstreiter e K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.*, **42**, 1308, (1979); A. Pinczuk, H. L. Störmer, R. Dingle, J. M. Worlock, W. Wiegmann e A. C. Gossard, *Solid State Commun.*, **32**,1001 (1979).

[6] D. Hamilton e A. L. McWhorter, em *Light Scattering in Solids*, ed. por G. B. Wright (Springer, New York, 1969), pg. 309.

[7] E. Burstein, A. Pinczuk, D. L. Mills, *Surface Science*, **98**, 451 (1980).

[8] S. Katayama e T. Ando, *J. Phys. Soc. Japan*, **54**, 1615 (1985).

[9] T. Ando, *Solid State Communications*, **21**, 133 (1977).

[10] S. J. Allen, D. C. Tsui e B. Vinter, *Solid State Communications*, **20**, 425 (1976).

[11] A. Pinczuk, S. Schmitt-Rink, G. Danan, J. P. Valladares, L. N. Pfeiffer e K. W. West, *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 1633 (1989).

[12] A. C. Maciel, M. Tatham, J. F. Ryan, J. M. Worlock, R. E. Nahory, J. P. Harbinson e L. T. Florez, *Surface. Science.*, **228**, 251 (1990).

[13] T. Ando, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **54**, 2676 (1985).

[14] N. Mestres, F. Cerdeira, F. Meseguer, A. Ruiz, J. P. Silveira, F. Briones e K. Ploog, *J. Appl. Phys.*, **71**, 5619 (1992).

[15] V. Anjos, L. Ioriatti e L. A. O. Nunes, *Phys. Rev. B*, **49**, 7805 (1994); V. Anjos, *Espalhamento Raman Eletrônico via Flutuações de Densidade de Spin em Super-redes δ-Si:GaAs*, tese de Mestrado apresentada ao Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo para a obtenção do título de Mestre em Ciências-Física Básica (1993).

[16] L. Ioriatti, *Phys. Rev. B*, **43**, 14742 (1991).

[17] L. A. O. Nunes, L. Ioriatti, L. T. Florez e J. P. Harbinson, *Phys. Rev. B*, **47**, 13011 (1993).

[18] L. P. Bouckaert, R. Smoluchowsky e E. Wigner, *Phys. Rev.*, **50**, 58 (1936).

[19] E. O. Kane, *J. Phys. Chem. Solids*, **1**, 249 (1957).

[20] J. Singh, *Physics of Semiconductors and Their Heterostructures*, McGraw-Hill International Editions (1993), cap. 8.

[21] H. Lee, W. J. Schaff, G. W. Wicks, L. F. Eastman, A. R. Calawa, *Inst. Phys. Conf. Ser.*, **74**, 321 (1985).

[22] E. F. Schubert, J. B. Stark, B. Ulrich, J. E. Cunningham, *Appl. Phys. Lett.*, **52**, 1508 (1988).

[23] R. B. Beall, J. B. Clegg, J. J. Harris, *Semicond. Sci. Technol.*, **3**, 612 (1988).

[24] E. F. Schubert, *Delta-Doping of Semiconductors*, Cambridge University Press, (1996).

[25] K. Ploog, M. Hauser, A. Fisher, *Appl. Phys. A*, **45**, 233 (1988).

[26] G. Bastard, em *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures* (Les Editions de Physique, Les Ulis, France,1988).

[27] W. Kohn, L. J. Sham, *Phys. Rev.*, **140**, 1133 (1965).

[28] P. Hohenberg, W. Kohn, *Phys. Rev.*, **136**, 864 (1964).

[29] E. Fermi, *Eur. Phys.*, **48**, 73 (1928).

[30] L. H. Thomas, *Proc. Camb. Phil. Soc.*, **23**, 542 (1927).

[31] A. L. Efros, F. G. Pikus e G. G. Samsinidze, *Phys. Rev. B*, **41**, 8295 (1990).

[32] C. Metzner, H. J. Beyer e G. H. Döhler, *Phys. Rev. B*, **46**, 4128 (1992).

[33] L. Ioriatti, *Phys. Rev. B*, **41**, 8340 (1990).

[34] J. C. Barbosa, *Aproximação de Thomas-Fermi Aplicada a Estruturas Semicondutoras Delta-Dopadas*, tese de Mestrado apresentada ao Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo para a obtenção do título de Mestre em Ciências-Física Básica (1992); J. C. Egues, J. C. Barbosa, A. C. Notari, P. Basmaji, L. Ioriatti, E. Ranz, J. C. Portal, *J. Appl. Phys.*, **70**, 3678 (1991).

[35] L. Hedin e B. I. Lundqvist, *J. Phys. C*, **4**, 2064 (1971).

[36] J. M. Luttinger e W. Kohn, *Phys. Rev.*, **97**, 869 (1955).

[37] A. Zangwill e P. Soven, *Phys. Rev. A*, **21**, 1561 (1980); A. Zangwill e P. Soven, *Phys. Rev. Lett.*, **45**, 204 (1980).

[38] G. Abstreiter, M. Cardona, A. Pinczuk. Na ref. [1] Cap. 2.

[39] F. A. Blum, *Phys. Rev. B*, **1**, 1125 (1970).

[40] P. A. Wolf. Na ref. [6] pag. 273.

[41] *Theory of The Inhomogeneous Electron Gas*, ed. S. Lundqvist e N. H. March (Plenum Press, New York , 1983).

[42] D. Gammon, B. V. Shanabrook, J. C. Ryan e D. S. Katzer, *Phys. Rev. B*, **41**, 12311 (1990).

[43] E. Runge e E. K. U. Gross, *Phys. Rev. Lett.*, **52**, 997 (1984).

[44] E. K. U. Gross e Walter Kohn, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 2850 (1985).

[45] *Numerical data and functional Relationships in Science and Tecnology*, ed. O. Madelung, Landolt-Börnstein, New Series, Group III, vol. **17-a** (Springer, Berlin, 1982).

[46] P. M. Koenraad, B. F. A. van Hest, F. A. Blom, R. van Dalen, M. Leys, J. A. A. J. Perenboom e J. H. Wolter, *Physica B*, **177**, 485 (1992).

[47] S. Das Sarma e Frank Stern, *Phys. Rev. B*, **32**, 8442 (1985).

[48] A. Ya Shik, *Sov. Phys. Semicond.*, **26**, 649 (1992).

[49] A. B. Henriques, *Phys. Rev. B*, **53**, 16365 (1996).

[50] M. V. Klein, em *Light Scattering in Solids, Topics Appl. Phys*, vol. **8**, (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1975), ed. M. Cardona, pg. 147.

[51] D. Pines, *Elementary Excitations in Solids*, (W. A. Benjamin, Inc, New York,1964) pag.148.

[52] Veja por exemplo ref. [50] pag.185.

[53] A. Pinczuk, J. M. Worlock, H. L. Störmer, A. C. Gossard, W. Wiegmann, *J. Vac. Sci. Technol.*, **19**, 561 (1981).