

Universidade Federal de Juiz de Fora  
Pós-Graduação em Ciências Exatas  
Mestrado em Física

Alison Arantes Gonçalves

**EXCITAÇÕES COLETIVAS EM SISTEMAS  
ELETRÔNICOS QUASI-2D VIA  
ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ**

Juiz de Fora  
2012

ALISON ARANTES GONÇALVES

**EXCITAÇÕES COLETIVAS EM SISTEMAS  
ELETRÔNICOS QUASI-2D VIA  
ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ**

Dissertação de Mestrado apresentada ao  
Programa de Pós-graduação em Física da  
Universidade Federal de Juiz de Fora, como  
requisito parcial para obtenção do grau de  
Mestre.

Orientador: Prof. Dr. Virgílio de Carvalho dos Anjos

Juiz de Fora  
2012

# Agradecimentos

Agradeço a minha família pelo apoio. Meus pais, José e Marli, e minhas irmãs, Aline e Amanda. Ao meu orientador, prof. Virgílio, por esses 5 anos de trabalho contínuo, pela paciência, e entusiasmo no ensino. A Poli, minha namorada, por me apoiar e me fazer alguém melhor. Aos membros da banca, pelas sugestões e críticas. Aos colegas de pos-graduação e professores, pelo clima agradável de convívio. Aos funcionários da limpeza e da secretaria, em especial ao Sr. Domingos, pela eficiência no trabalho.

Este trabalho é financiado pela CAPES.

# Resumo

Apresentamos uma teoria para obtenção da seção de choque de espalhamento inelástico de luz, espalhamento Raman, a temperatura de  $T = 0K$  em um gás de elétrons quasi-bidimensional formado pela heteroestrutura semicondutora de AlGaAs-GaAs dopada seletivamente.

Os cálculos de estrutura eletrônica foram baseados na *Teoria do Funcional Densidade* dentro da aproximação de densidade local. Os cálculos para a seção de choque foram realizados em geometria de retroespalhamento e em regime de ressonância do laser incidente com o gap ótico de spin-órbita do GaAs.

Estudamos os mecanismos de excitações de densidade de carga e excitações de densidade de spin. Os resultados obtidos foram [1]:

- 1) a observação do colapso do termo de Hartree nas excitações de densidade de carga para baixas densidades, observado experimentalmente por Ernst *et al.* [2];
- 2) a observação de um cruzamento anômalo entre as excitações de densidade de carga e densidade de spin, em virtude dos funcionais de exchange-correlação. Este efeito constitui um teste de validade para as parametrizações adotadas;
- 3) a predição da existência de excitações de mais alta energia, ainda não observadas experimentalmente.

Finalmente, demonstramos que o formalismo desenvolvido permite mapear as excitações eletrônicas na teoria BCS.

PALAVRAS-CHAVE: Heteroestruturas. Espalhamento Raman Eletrônico.

# Abstract

We present a theory for obtaining the inelastic light scattering cross section, Raman scattering, at  $T = 0K$  temperature in a quasi-bidimensional electron gas formed by the GaAs-AlGaAs semiconductor heterostructure doped selectively.

The electronic structure calculations were based on *Density Functional Theory* within the local density approximation. The calculations for the cross section were performed in backscattering geometry and resonant regime of the incident laser with the spin-orbit optical gap of GaAs .

We study charge density excitations mechanism and spin density excitations mechanism. Our results were as follows [1]

- 1) the observation of the collapse of the Hartree term in the charge density excitation for low densities, observed experimentally by Ernst *et al.* [2],
- 2) the observation of an anomalous cross between charge density and spin density excitations, due to the exchange-correlation functional. This effect is a validity test for the adopted parameterizations;
- 3) the prediction of the existence of excitations of higher energy, not yet observed experimentally.

Finally, we demonstrate that the formalism developed enables mapping the electronic excitations in the BCS theory, which describes the normal superconducting state.

KEYWORDS: Heterostructures. Electronic Raman Scattering.

# Conteúdo

|  |            |
|--|------------|
| <b>AGRADECIMENTOS</b>                                  | <b>i</b>   |
| <b>RESUMO</b>  | <b>ii</b>  |
| <b>ABSTRACT</b>  | <b>iii</b> |
| <b>1 INTRODUÇÃO</b>                                    | <b>1</b>   |
| <b>2 ESTRUTURA DE BANDAS DO POÇO QUÂNTICO</b>          | <b>4</b>   |
| 2.1 Heteroestrutura AlGaAs-GaAs . . . . .              | 5          |
| 2.2 O Método Autoconsistente . . . . .                 | 8          |
| 2.3 Solução Numérica . . . . .                         | 13         |
| 2.4 Resultados . . . . .                               | 15         |
| <b>3 EXCITAÇÕES ELETRÔNICAS COLETIVAS</b>              | <b>21</b>  |
| 3.1 Teoria da Resposta Linear . . . . .                | 22         |
| 3.2 Teoria do Campo Autoconsistente . . . . .          | 25         |
| 3.3 O Tensor Harmônico . . . . .                       | 27         |
| 3.4 O Modelo de Duas Subbandas . . . . .               | 29         |
| 3.5 Acoplamento Plasmon-LO Fônon . . . . .             | 32         |
| <b>4 ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ</b>                | <b>34</b>  |
| 4.1 Mecanismos e Regras de Seleção . . . . .           | 36         |
| 4.2 Formalismo Básico . . . . .                        | 40         |
| 4.3 Excitações Eletrônicas no Formalismo BCS . . . . . | 48         |
| <b>5 RESULTADOS E CONCLUSÕES</b>                       | <b>52</b>  |

|   |   |    |
|---|---|----|
| A | Expressão para o Potencial Induzido     | 64 |
| B | Teorema da Flutuação-Dissipação         | 67 |
| C | Potencial Externo Médio e Regra de Soma | 69 |

# Capítulo 1

## *INTRODUÇÃO*

A partir da década de 40, com as pesquisas em Ge e Si, os físicos aprenderam a manipular os semicondutores com impurezas específicas que agem como doadores ou aceitadores de elétrons. O interesse pelas propriedades de transporte eletrônico e uma grande variedade de processos óticos abriu caminho para dispositivos eletrônicos básicos, tais como os diodos, transistores, e também lasers de estado sólido.

A partir da década de 70, o avanço nas técnicas de crescimento de cristais tornou possível a construção das estruturas *mesoscópicas*.<sup>1</sup> Em particular, as propriedades óticas de materiais semicondutores ainda hoje são extensivamente estudadas, tanto teórico quanto experimentalmente. Esse grande interesse se justifica por suas enormes aplicações tecnológicas, uma vez que o modo de vida contemporâneo é indissociável da revolução microeletrônica, cuja base são os materiais semicondutores heteroestruturados.<sup>2</sup>

Um exemplo é o poço quântico, onde os elétrons são confinados em uma dimensão, no entanto o movimento eletrônico no plano perpendicular à direção de crescimento é livre [3, 4]. Tal estrutura, formada por AlGaAs e GaAs por exemplo, pode ser criada pela técnica de *Epitaxia por Feixe Molecular* [5, 6], depositando-se várias camadas de GaAs entre as camadas de um material com lacuna de banda maior, como  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ .

No capítulo 2, faremos uma discussão sobre os efeitos básicos do confinamento quântico, e consideraremos as modificações que ele provoca na estrutura de ban-

---

<sup>1</sup>Que tem tamanho intermediário entre o 1 *nm* e 100  $\mu\text{m}$ .

<sup>2</sup>Estrutura formada por junção de camadas semicondutores heterogêneas.



das do sistema eletrônico. Basicamente, resolveremos a equação de Schrodinger unidimensional  $\zeta(z)$  usando o método autoconsistente da *Teoria do Funcional Densidade*. Os resultados das simulações serão apresentados no final do capítulo, bem como algumas simplificações adotadas.

Iniciamos o capítulo 3 com uma revisão da Teoria das Resposta Linear. Em seguida, apresentamos a Teoria do Campo Autoconsistente [7, 8], usada para se estudar as excitações elementares de gases de elétrons. Isto é feito no limite em que a perturbação externa pode ser considerada pequena. Obteremos assim uma analogia desse problema com o de um oscilador harmônico clássico, tratado anteriormente no trabalho de Anjos *et al.* [9, 10].

Em sistemas quânticos a interação Coulombiana entre os elétrons tem fortes manifestações no espectro das excitações elementares. A interação Coulombiana de longo alcance é descrita em termos de oscilações coletivas do sistema eletrônico (excitações de plasma, ou plasmons); enquanto que a interação de curto alcance é descrita pela interação eletrônica renormalizada pela função dielétrica, o que constitui o efeito de blindagem.

Particularmente, o espalhamento inelástico de luz (espalhamento Raman<sup>3</sup>) de um gás de elétrons fornece informação sobre as excitações coletivas, que são compostas por interações Coulombianas diretas e efeitos de correlação e troca, ou somente por efeitos de correlação e troca. O primeiro é conhecido como mecanismo de excitação de densidade de carga (CDE)<sup>4</sup>, o último por mecanismo excitação de densidade de spin (SDE)<sup>5</sup>. Estes dois mecanismos podem ser distinguidos por regras de seleção baseadas na polarização da luz. O mecanismo CDE é ativo na geometria polarizada (polarização da luz incidente e espalhada do laser são paralelas). O mecanismo SDE é ativo na geometria depolarizada (polarização da luz incidente e espalhada do laser são perpendiculares). O sistema eletrônico apresenta também excitações anômalas quando a energia do laser incidente é ressonante com as transições óticas interbanda (i.e., transições envolvendo a banda de valência e os estados da banda de condução). Tais excitações tem energias próximas às das

---

<sup>3</sup>Historicamente, o espalhamento inelástico de luz por fônons óticos (vibrações quantizadas das moléculas) é chamado simplesmente de espalhamento Raman, e o espalhamento por fônons acústicos, de espalhamento Brillouin. Para o espalhamento Raman eletrônico, frequentemente o termo espalhamento inelástico de luz é usado.

<sup>4</sup>CDE, *charge-density excitations*.

<sup>5</sup>SDE, *spin-density excitations*.

transições eletrônicas intrabanda (i.e. transições entre os níveis de energia de uma mesma banda). Portanto, são chamadas de excitações de partícula independente (SPE)<sup>6</sup>.

No capítulo 4 apresentamos a teoria autoconsistente generalizada de Anjos-Ioriatti [9] para obtenção da seção de choque de espalhamento inelástico de luz via mecanismos de flutuações de densidade de carga e spin para um sistema eletrônico quasi-2D. Apresentamos o intrigante resultado que excitações SPE correspondem a excitações coletivas não-renormalizadas. A teoria mostra que a origem das excitações SPE reside em três condições:

1. A energia do laser deve estar em ressonância com as transições interbanda.
2. A existência de um conjunto de excitações degeneradas na banda de condução.
3. A interação entre os pares de excitações deve ser degenerada.

Também demonstramos que é possível fazer uma correspondência direta entre este problema e aquele da formação do estado supercondutor nos metais normais, dentro da teoria BCS [11].

No capítulo 5 apresentamos as simulações para os cálculos do capítulo 4. Os resultados obtidos foram:

1. a observação do colapso do termo de Hartree nas excitações de densidade de carga para baixas densidades, observado experimentalmente por Ernst *et al.*;
2. a obtenção de um cruzamento anômalo entre as excitações de densidade de carga e densidade de spin, em virtude dos funcionais de exchange-correlação. Este efeito constitui um teste de validade para as parametrizações adotadas;
3. a predição da existência de excitações de mais alta energia, ainda não observadas experimentalmente.

---

<sup>6</sup>SPE, *single-particle excitations*.

## Capítulo 2

# ***ESTRUTURA DE BANDAS DO POÇO QUÂNTICO***

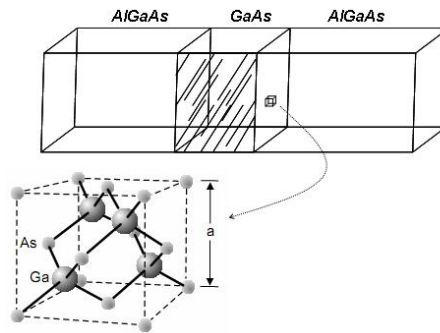
Na década de 70, trabalhos pioneiros em sistemas quasi-bidimensionais (*quasi-2D*) em camadas de inversão e acumulação, formadas em estruturas metal-isolante ou metal-semicondutor, foram feitos por Stern e Howard [12, 13]. Nas décadas de 80 e 90, o poço quântico em heteroestruturas semicondutores foi exaustivamente estudado. Um bom resumo sobre estes sistemas pode ser encontrado no trabalho de Ando, Fowler, e Stern [14]: *Propriedades Eletrônicas de Sistemas Bidimensionais*, que se tornou referência para muitos trabalhos lançados posteriormente.

Os primeiros cálculos de estrutura eletrônica em sistemas quasi-2D foram baseados em várias aproximações tais como: desprezar a penetração da função de onda eletrônica na região de barreira, o emprego do poço de potencial triangular finito ou infinito, e a aproximação de Hartree [15, 16]. Stern e Ando resolveram o problema numericamente usando a teoria do funcional densidade [17]. Estudos dos níveis de energia, mobilidade eletrônica e propriedades ópticas nesses sistemas, usando abordagens analíticas e numéricas, foram feitos também em outros trabalhos [18, 19, 20, 21]. Desde então, inúmeros trabalhos em poços quânticos foram realizados utilizando as mais diferentes técnicas. Uma trabalho atual e abrangente sobre semicondutores heteroestruturados é dado por Davies em *The Physics of Low-Dimensional Semiconductors* [22].

A seguir, apresentaremos os conceitos básicos de poços quânticos dopados modularmente, bem como o cálculo autoconsistente de subbandas baseado na teoria do funcional densidade e na aproximação de massa efetiva.

## 2.1 Heteroestrutura AlGaAs-GaAs

A maioria dos compostos semicondutores III-V, como AlGaAs-GaAs, crescem em uma estrutura tipo blenda de zinco (fig. 2.1) formada por duas redes cúbicas de face centrada interpenetradas e deslocadas entre si por um quarto da diagonal principal.

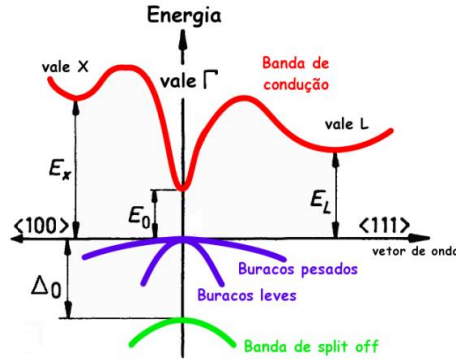


**Figura 2.1:** Liga ternária  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , formada pela substituição de uma fração  $x$  de átomos de Alumínio na rede cristalina GaAs. Tanto AlAs quanto GaAs tem parâmetro de rede muito próximos, garantindo o crescimento com pouco estresse ou deformação de um material sobre o outro.

Nos compostos semicondutores III-V, oito elétrons por célula unitária contribuem com a ligação entre os átomos vizinhos. Os orbitais  $s$  e  $p$  se hibridizam, surgindo orbitais ligantes e anti-ligantes. Como o sólido macroscópico é formado por um número muito grande de células unitárias, os orbitais se transformam em bandas de energia. Os orbitais ligantes  $s$  tem os menores níveis de energia e são ocupados por dois elétrons por célula unitária, os seis elétrons restantes completam os três orbitais ligantes  $p$ . As bandas formadas por orbitais anti-ligantes estão desocupadas.

A maioria dos processos óticos em semicondutores acontecem entre as bandas de condução e valência no ponto  $\Gamma$  ( $\mathbf{k} = 0$ ). Na banda de condução, oriunda de orbitais tipo  $s$ , os estados eletrônicos são duplamente degenerados na ausência de campo magnético externo. Por outro lado, devido ao acoplamento spin-órbita a banda de valência, oriunda de orbitais tipo  $p$ , se desdobra em três níveis de energia (Fig. 2.2): banda de buraco leve, banda de buraco pesado, e banda de splitt-off ou banda de spin órbita. O modelo de Kane [23] é a aproximação padrão para descrever

os estados de spin na banda de valência.

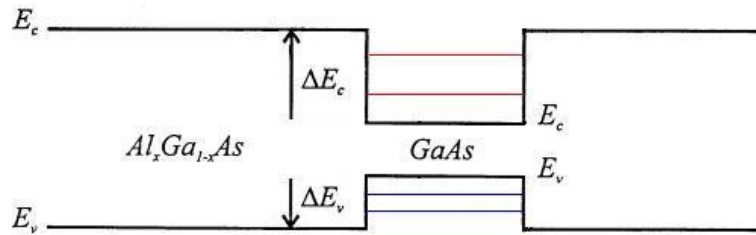


**Figura 2.2:** Estrutura de bandas tipo blenda de zinco de gap direto. Devido à assimetria de inversão de rede, há um *split* entre as bandas de valência. Para os portadores na banda de condução as ressonâncias óticas relevantes ocorrem no gap fundamental  $E_0 \simeq 1.5$  eV e no gap de *split-off*  $E_G = E_0 + \Delta_0 \simeq 1.9$  eV.

As redes dessas ligas ternárias tipo blenda de zinco não possuem invariância translacional. Em princípio isto tem um forte impacto na descrição teórica dessas estruturas, uma vez que estrutura de bandas, massa efetiva dos elétrons, etc., não são mais quantidades definidas. Uma forma de contornar tal problema é introduzir a chamada aproximação de cristal virtual, que considera a liga ternária como um cristal cuja propriedades podem ser interpoladas entre aquelas do GaAs e AlAs. Na prática, o potencial real é substituído por um potencial efetivo que restaura a invariância translacional. Isto garante que os estados de Bloch, gaps de energia, e massa efetiva seja definidos.

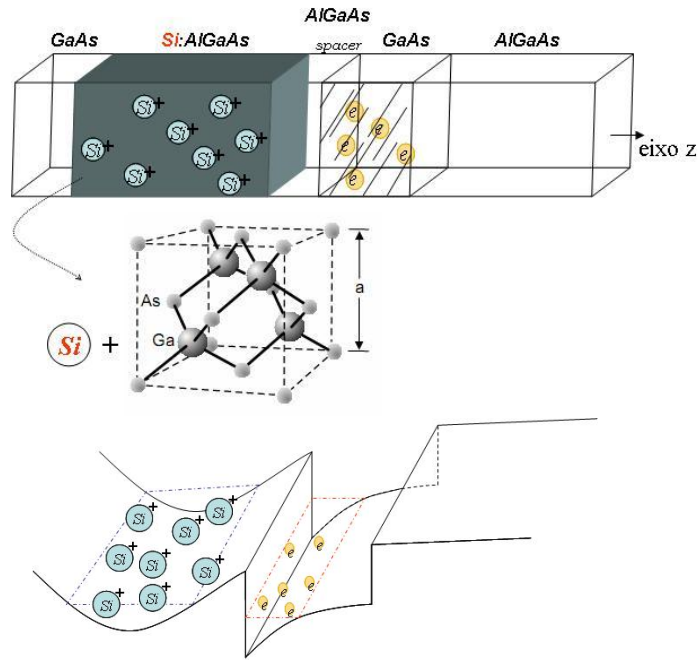
A energia de gap do  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  é maior que a do GaAs, dependendo linearmente com a fração  $x$  de Al por célula unitária, quando  $x < 0.45$ . Esta descontinuidade nas bandas de energia, como mostrado na figura 2.3, torna possível a construção de poços quânticos ou super-redes através de sequencia adequada de camadas.

Nosso trabalho será focado no poço quântico dopado modularmente, como mostrado na figura 2.4. Tal estrutura é construída através do crescimento de uma camada (tipicamente 20-30 nm de espessura) de GaAs entre uma barreira de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (com  $x \simeq 0.3$ ). Esta técnica de dopar parte da barreira  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , normalmente com Silício, é chamada dopagem modular ou dopagem seletiva. De-



**Figura 2.3:** Bandas de condução (BC) e valência (BV) para o poço quântico não dopado. A quantização no eixo  $z$  produz níveis discretos de energia chamados de subbandas. A descontinuidade de banda  $\Delta E$  causa o confinamento de elétrons no poço da BC e buracos na barreira da BV.

vido a descontinuidade do potencial na interface entre os dois materiais, elétrons são transferidos da camada de dopagem para o poço quântico e formam um sistema eletrônico quasi-2D. A camada positiva de carga dos doadores ionizados na barreira e os elétrons carregados negativamente no poço quântico levam a uma curvatura das bandas de valência e condução. A camada AlGaAs não dopada (spacer) separa os doadores ionizados e o gás de elétrons, reduzindo o espalhamento por impurezas. Dessa forma a concentração de portadores pode ser aumentada significativamente sem comprometer a mobilidade eletrônica.



**Figura 2.4:** Perfil da dopagem modulada na heteroestrutura. Parte da camada de AlGaAs é dopada com Silício. Ao substituir o Ga ou Al na célula unitária de AlGaAs, o Si doa 1 elétron para rede cristalina. Os elétrons doados se acumulam na região do GaAs, formando um sistema quasi-2D. Na parte de baixo da figura tem-se a curvatura na banda de condução devido a distribuição de carga ao longo da heteroestrutura.

## 2.2 O Método Autoconsistente

Calcularemos agora a estrutura eletrônica do poço quântico modularmente dopado. Nos restringiremos aos elétrons de massa efetiva  $m^*$  na banda de condução. No entanto cálculos similares para buracos na banda de valência podem ser feitos.<sup>1</sup> Vamos negligenciar a interação spin-órbita.

A solução da equação de Schrödinger envolve o Hamiltoniano de muitas partículas

<sup>1</sup>Na aproximação de massa efetiva o potencial cristalino é embutido na massa do elétron, que fica então proporcional ao inverso da derivada segunda da energia. Assim, a massa efetiva varia conforme a relação de dispersão  $E(\mathbf{k})$  e por vezes é até negativa, o que acontece para os elétrons no topo da banda de valência. Verifica-se que tais elétrons respondem a um campo elétrico contrariamente ao esperado, por isso o sinal negativo da massa efetiva é incorporado à carga desses elétrons, tornando possível explicar seu comportamento de partículas positivas. Os *elétrons* da banda de valência são conhecidos como *buracos*.

interagindo coulombicamente,

$$H = - \sum_i \frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla_i^2 + \frac{1}{2} \sum_{i,j,i \neq j}^N \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} . \quad (2.1)$$

A solução, mesmo que numérica, é inviável quando o número de elétrons é muito grande. Normalmente a aproximação de campo médio é usada, onde o problema de muitos corpos interagindo entre si é reduzido ao problema de um corpo sujeito a um potencial efetivo devido à todos os outros corpos. A forma mais simples dessa aproximação considera apenas a interação Coulombiana clássica, aproximação de Hartree, com potencial efetivo  $V_H(\mathbf{r})$ .

Com a correção quântica, feita ao expandirmos a perturbação com respeito a interação Coulombiana, temos a aproximação de Hartree-Fock, que adiciona um termo de exchange (troca) na energia do sistema. A razão para isto é o princípio da exclusão de Pauli, que lida com a indistinguibilidade das partículas quânticas. A soma desconhecida das correções de ordem superior é chamada de correlação. Contudo, essas correções são não-locais e sua correta avaliação envolve conceitos avançados de teoria de perturbação diagramática.<sup>2</sup>

Uma simplificação usada é incluir as correções de exchange e correlação adicionando um potencial  $V_{XC}(\mathbf{r})$ , derivado de uma aproximação de densidade local<sup>3</sup> da *Teoria do Funcional Densidade* de Hohenberg, Kohn, e Sham [26, 27, 28]. Nesse modelo, a equação de Schrödinger de muitos corpos (2.1) se reduz a equação auto-consistente de Kohn-Sham

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V_{LDA}(\mathbf{r}) \right] \psi(\mathbf{r}) = \epsilon \psi(\mathbf{r}) , \quad (2.2)$$

com  $V_{LDA}(\mathbf{r}) = V_H(\mathbf{r}) + V_{XC}(\mathbf{r})$ .

Voltemos a atenção novamente para o poço quântico. Os estados da banda de condução e valência podem ser descritos usando a idéia de função envelope, originalmente desenvolvida por Bastard [29, 30], que descreve o estado eletrônico sob a influência do potencial cristalino periódico. A função de onda do bulk GaAs consiste de duas partes: a função de Bloch  $u(\mathbf{r})$ , com oscilação rápida e periodicidade da rede

<sup>2</sup>Uma abordagem mais detalhada sobre interação Coulombiana e aproximação de Hartree-Fock é encontrada, por exemplo, em [24] cap. 17, e [25] cap. 9.

<sup>3</sup>Local Density Approximation, LDA.



cristalina, e a função envelope, que varia lentamente sobre uma célula unitária,

$$\psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{A}} e^{i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}} \zeta_n(z), \quad (2.3)$$

onde  $\mathbf{r}_{\parallel} \in (x, y)$  e  $\mathbf{k}_{\parallel} \in (k_x, k_y)$ . No plano  $xy$  não há confinamento, os estados são ondas planas normalizados pela área superficial do material e com condições de contorno de Born-von Karman. A função de onda  $\zeta_n(z)$  descreve o confinamento eletrônico na direção  $z$  e tem condições de contorno de Dirichlet.

Introduzindo eq. (2.3) em (2.2), a equação de Schrödinger fica,

$$\left[ \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m^*} - \frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2}{dz^2} + V_{LDA}(z) + V_{CONF}(z) \right] \zeta_n(z) = \epsilon_n(\mathbf{k}) \zeta_n(z), \quad (2.4)$$

sendo que cada nível (subbanda) de energia  $n$  tem dispersão parabólica

$$\epsilon_n(\mathbf{k}) = \epsilon_n + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m^*}.$$

Estamos negligenciando aqui os efeitos de não-parabolicidade, i.e, ignorando que a massa efetiva seja um tensor e varie dentro de cada subbanda. Para o poço de GaAs, onde os elétrons estão confinados, a aproximação da banda de condução ser isotrópica é aceitável, conforme a figura 2.2.  $V_{CONF}(z)$  é o potencial de confinamento, dado por  $\Delta E_c$  na região de AlGaAs e 0 na região do GaAs, uma vez que tomamos a escala de energia a partir da banda de condução do GaAs no ponto  $\Gamma$ .

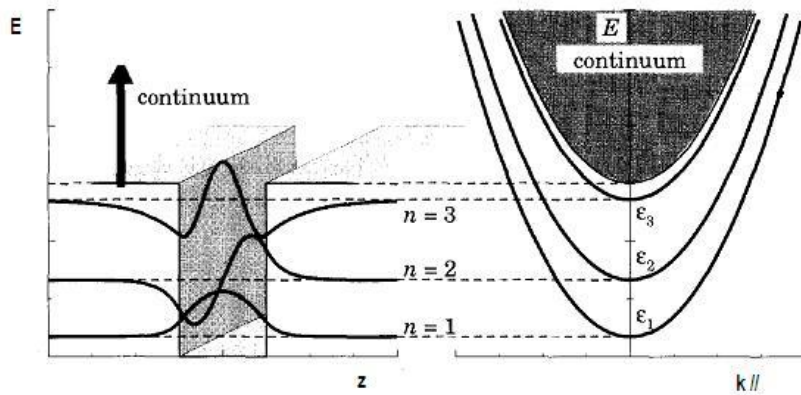
Na representação de Kane, a função de Bloch para a banda de condução é

$$|u^c \uparrow\rangle \equiv |S \uparrow\rangle; \quad |u^c \downarrow\rangle \equiv |S \downarrow\rangle.$$

Para a banda de *split-off*, que será de interesse no capítulo 4,

$$\begin{aligned} |u^v \uparrow\rangle &\equiv \frac{1}{\sqrt{3}} |(X + iY) \downarrow + Z \uparrow\rangle \\ |u^v \downarrow\rangle &\equiv \frac{1}{\sqrt{3}} |(X - iY) \uparrow - Z \downarrow\rangle. \end{aligned}$$

A estrutura de bandas discutida é mostrada na figura 2.5 para a heteroestrutura sem dopagem, i.e., poço quântico quadrado.



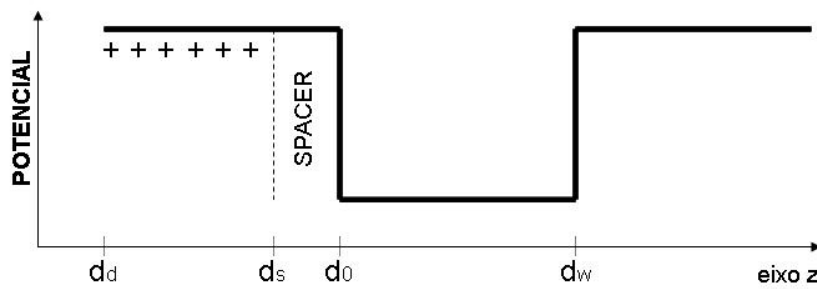
**Figura 2.5:** Perfil da estrutura de bandas no espaço real (esquerda) e recíproco (direita). Figura tirada da referencia [22].

### A equação de Poisson

A energia de Hartree é dada por  $V_H(z) = -e\phi(z)$ , sendo  $\phi(z)$  o potencial eletrostático, que é solução da equação de Poisson

$$\phi''(z) = -\frac{4\pi}{\epsilon}\rho(z), \tag{2.5}$$

onde  $\epsilon$  é a constante dielétrica para altas frequências que simula a blindagem tipo *jellium* do sistema quasi-2D.  $\rho(z) = -en(z) + eN_D(z) - eN_A(z)$  é a densidade de carga de todos os portadores na heteroestrutura,<sup>4</sup> como mostra a figura 2.6.



**Figura 2.6:** Distribuição de cargas na heteroestrutura.

<sup>4</sup>A densidade eletrônica que entra aqui é somente a densidade dos portadores de carga na heteroestrutura. Na aproximação de massa efetiva, os efeitos dos elétrons de caroço são incorporados na massa e na constante dielétrica.

Consideraremos um fundo residual uniforme de aceitadores,<sup>5</sup>  $N_A \sim 10^{14} \text{cm}^{-3}$ . Na região de dopagem, os doadores Silício possuem densidade da ordem de  $10^{18} \text{cm}^{-3}$ . A distribuição das cargas livres  $n(z)$  é dado por

$$n(z) = \sum_i N_i |\zeta_i(z)|^2, \quad (2.6)$$

com  $N_i$  sendo a densidade superficial na  $i$ -ésima subbanda, que pode ser calculada a partir da densidade de estados para o sistema eletrônico 2D,  $g_{2D} = m^*/(\pi\hbar^2)$ , e da distribuição de Fermi-Dirac,  $f_{FD}$ :

$$N_i = \int_{\epsilon_i}^{\infty} d\epsilon g_{2D} f_{FD} = g_{2D} k_B T \ln(1 + e^{\frac{\mu - \epsilon_i}{k_B T}}) \approx g_{2D} (\epsilon_F - \epsilon_i) \theta(\epsilon_F - \epsilon_i). \quad (2.7)$$

Na última passagem assumimos que  $T \approx 0K$ .  $\theta$  é a função usual de Heaviside, ou função degrau. Naturalmente, o somatório sobre todos os estados ocupados dá a densidade superficial de elétrons:  $\sum_{i=ocup.} N_i = N_s$ .

Como visto na eq. (2.6), o potencial de Hartree depende da solução  $\zeta_n(z)$  da equação de Kohn-Sham (2.4); que por sua vez depende do potencial de Hartree, dado pela equação de Poisson (2.5). Portanto, uma solução iterativa auto-consistente deve ser realizada para lidar com as equações acopladas de Kohn-Sham e Poisson.

## Efeitos de correlação e troca

O potencial de correlação e troca  $V_{XC}(z)$  é em geral um funcional desconhecido da densidade eletrônica  $\rho(z)$ . Dentro da aproximação de densidade local,  $V_{XC}(z)$  já foi parametrizado por diversos autores. Usaremos a parametrização analítica sugerida por Hedin e Lundqvist [31]:

$$V_{XC}(z) = -\frac{2}{\pi r_s} \left( \frac{9\pi}{4} \right)^{1/3} \left( 1 + 0.0368 r_s \ln\left(1 + \frac{21}{r_s}\right) \right) Ry^*, \quad (2.8)$$

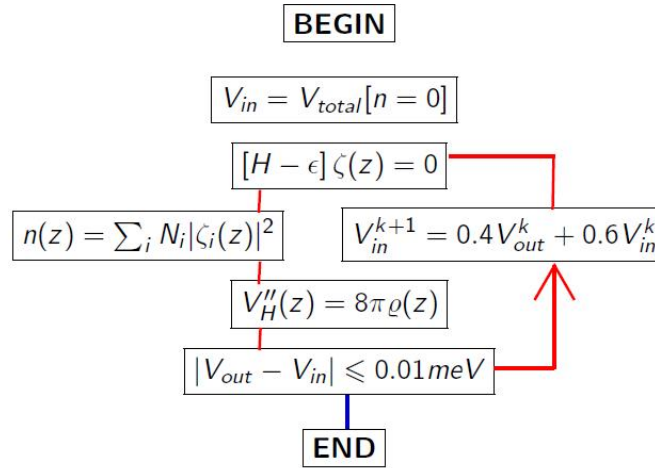
onde  $r_s \equiv [4/3\pi(a_0^*)^3 n(z)]^{-1/3}$ ,  $a_0^* = \epsilon\hbar^2/(m^*e^2)$ . A unidade de energia é o Rydberg efetivo,  $Ry^* = e^2/2\epsilon a_0^*$ ;  $\epsilon \equiv \epsilon(z)$  é constante dielétrica local e  $m \equiv m(z)$  é massa efetiva local.

---

<sup>5</sup>Os materiais bulk GaAs apresentam uma dopagem intrínseca tipo-p provocada por impurezas residuais de carbono, inerente ao processo de fabricação desses materiais.

## 2.3 Solução Numérica

Devemos resolver as eqs. (2.5), (2.4) e (2.6) autoconsistentemente, seguindo o fluxograma da fig. 2.7. A solução destas equações nos fornecerá a densidade de carga, ocupação das subbandas, potencial efetivo, níveis de energia e funções de onda do gás de elétrons não-homogêneo na heteroestrutura. O programa desenvolvido por nós para este cálculo de estrutura eletrônica foi escrito na linguagem de programação *FORTRAN 90*, utilizando o compilador *gFortran*. Seguiremos a metodologia adotada por Steinebach [32].



**Figura 2.7:** Fluxograma do cálculo autoconsistente.

### Equação de Schrödinger

Nosso objetivo é diagonalizar  $H$  tal que  $[H - \epsilon] \zeta(z) = 0$ . Usando o método das diferenças finitas, transformamos uma equação diferencial em um sistema de equações lineares algébricas. Dessa forma, funções contínuas são tratadas como um conjunto discreto de valores:

$$z \rightarrow z_i, \quad z_{i+1} - z_i = h, \quad f(z) \rightarrow f_i, \quad f(z \pm h) \rightarrow f_{i \pm 1}.$$

Expandindo  $f(z)$  em série de Taylor, obtemos

$$f(z \pm h) = f(z) \pm hf'(z) + \frac{h^2}{2} f''(z) + O(h^3),$$

ou,

$$f''(z) = \frac{f(z+h) - 2f(z) + f(z-h)}{h^2} + O(h^3).$$

Podemos então escrever a eq. (2.4) como

$$-\frac{\zeta_{i+1} - 2\zeta_i + \zeta_{i-1}}{h^2} + \frac{2m^*}{\hbar^2} V_i \zeta_i = \frac{2m^*}{\hbar^2} \epsilon \zeta_i, \quad (2.9)$$

sendo  $V_i$  o potencial total (efetivo)  $V_{LDA} + V_{CONF}$ . Fazendo  $2m^* \hbar^{-2} h^2 V_i = U_i$  e  $2m^* \hbar^{-2} h^2 \epsilon = E$ , obtemos

$$\begin{bmatrix} 2+U_1 & -1 & 0 & \cdots & 0 \\ -1 & 2+U_2 & -1 & 0 & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & -1 & 2+U_{n-1} & -1 \\ 0 & \cdots & 0 & -1 & 2+U_n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \zeta_1 \\ \zeta_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ \zeta_{n-1} \\ \zeta_n \end{bmatrix} = E \begin{bmatrix} \zeta_1 \\ \zeta_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ \zeta_{n-1} \\ \zeta_n \end{bmatrix}$$

Diagonalizamos  $H$  usando a subrotina *tqli*, baseada no algoritmo QR.<sup>6</sup> Usamos aqui uma discretização uniforme, mas existem métodos em que a discretização do espaço não é uniforme, levando a uma matriz tridiagonal não simétrica. Com mais intervalos, embora o esforço computacional aumente, o resultado é mais acurado nas regiões onde a função de onda varia rapidamente. Por sua vez, em regiões onde a função de onda é quase constante, pode-se usar uma discretização de espaçamento maior [19].

## Equação de Poisson

Existem vários métodos de soluções autoconsistentes levando em conta condições apropriadas de contorno, equilíbrio eletrostático e termodinâmico, bem como a forma de convergência de cada método. Resolveremos a eq. de Poisson semi-analiticamente, como feito por Steinebach [32]. Consideraremos o tunelamento de funções de onda somente na região do spacer, i.e., todos os doadores estão ionizados e não existem estados eletrônicos na região de dopagem (aproximação de depleção). Parametrizando por  $a_0^*$  e  $Ry^*$ , a eq. (2.5) toma a forma

<sup>6</sup>Ref. [33], cap. 11.

$$V_H''(z) = 8\pi [-n(z) + N_D(z) - N_A(z)] \left( \frac{Ry^*}{a_0^{*2}} \right) .$$

Integrando a forma adimensional sobre toda a distribuição de carga, na região de interesse temos

$$V_H'(z > d_s) = 8\pi \left[ - \int dz n(z) + N_D(d_s - d_d) - N_A(z - d_d) \right] ,$$

Com a condição de que a derivada do potencial se anule no final da heteroestrutura, temos a condição de contorno:

$$N_s = \int dz n(z) = N_D(d_s - d_d) - N_A(z_f - d_d) .$$

Integrando novamente e usando a condição de contorno anterior,

$$V_H(z > d_s) = 8\pi \left[ - \int dz \int dz' n(z') + (N_s + N_{dpl})z - N_{dpl}z^2/2 \right] ,$$

onde  $N_{dpl} \simeq 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , para  $z_f \simeq 5 \mu\text{m}$ . O último termo do potencial é desprezível na região do poço quântico.

Numericamente, a integral dupla sobre a densidade pode ser avaliada por

$$I_2(i) = h \sum_{j=-\infty}^i I_1(j) , \quad I_1(i) = h \sum_{j=-\infty}^i n(j) ,$$

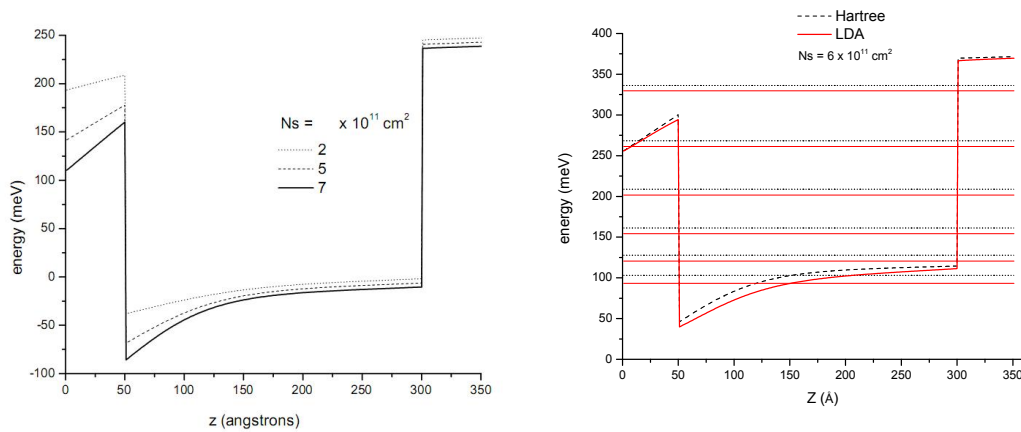
sendo  $h = 1/a_0^*$  o intervalo adimensional de integração.

## 2.4 Resultados

Apresentamos agora os resultados numéricos para o método autoconsistente desenvolvido nas seções 2.2 e 2.3. Os seguintes parâmetros foram utilizados: temperatura  $T = 0K$ , massa efetiva da banda de condução  $m^* = 0.067m_e$ , massa efetiva da banda de valência  $m_{so}^* = 0.154m_e$ , sendo  $m_e$  a massa do elétron; raio de Bohr efetivo  $a_0^* = 98.7\text{\AA}$  e Rydberg efetivo  $Ry^* = 5.83 \text{ meV}$ ; concentração de alumínio  $x = 0.33$ , descontinuidade entre as bandas  $\Delta E = 1247 \text{ meV}$ , sendo a profundidade do poço  $\Delta E_C = 0.6\Delta E$  e da barreira  $\Delta E_V = 0.4\Delta E$ .

A figura 2.8(a) apresenta o potencial efetivo,  $V_{ef} = V_{LDA} + V_{conf}$ , que age sobre o gás de elétrons confinado no poço quântico. Como esperado das eqs. (2.5),

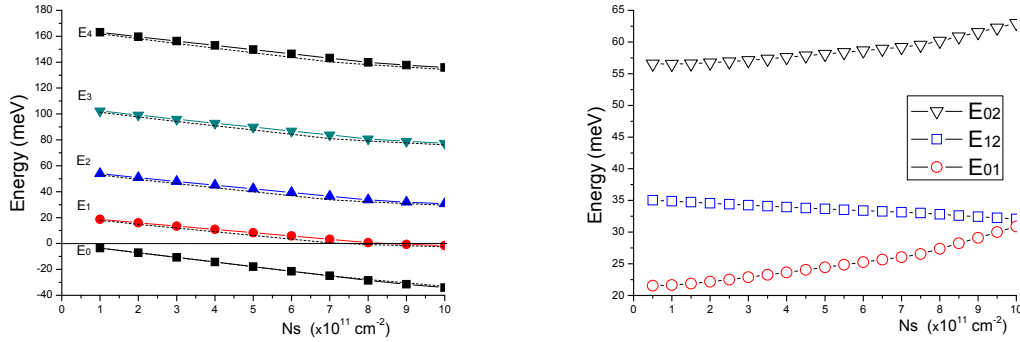
(2.4) e (2.6), quanto maior a densidade eletrônica quasi-bidimensional ( $N_S$ ) maior a mudança no potencial de poço quadrado da heteroestrutura. Efeitos de exchange e correlação estáticos, introduzidos através da LDA usando a parametrização de Hedin-Lundqvist, mostram uma renormalização de  $\sim 10\text{meV}$  para o estado fundamental e  $\sim 7\text{meV}$  para os estados excitados, figura 2.8(b).



**Figura 2.8:** (a)(esquerda) Potencial efetivo calculado autoconsistentemente para alguns valores de densidade. (b) (direita) Potencial efetivo com (linha) e sem (pontilhado) efeitos de correlação e troca.

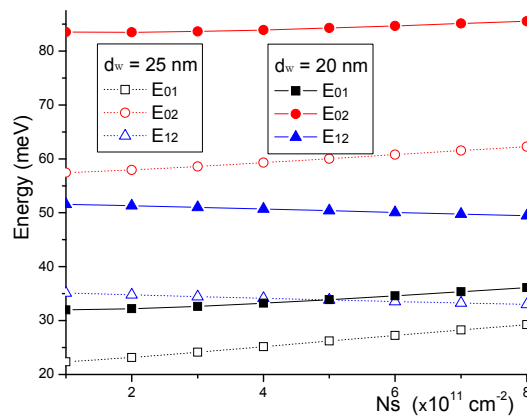
Na figura 2.9(a) vemos que com o aumento da densidade conseguimos popular o primeiro estado excitado de energia  $E_1$  à partir de  $N_S \sim 8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . Em 2.9(b) vemos que variando a densidade aumentamos o intervalo de energia entre o estado fundamental e os estados excitados, no entanto a diferença entre os estados excitados diminui. Como veremos, este comportamento das energias reflete num deslocamento para o azul (blue shift) no espectro Raman conforme aumentamos  $N_S$ .

É importante frisar que a figura 2.9 dá o comportamento para várias amostras de densidade diferentes, ou então, para uma amostra que tenha sua densidade variando devido à pressão hidrostática [2]. Nessa situação a redução da densidade se explica pela forma como banda de valência, estados de superfície e níveis doadores dependem da pressão. Porém, nos experimentos mais comuns, a densidade é variada aplicando-se uma voltagem dc na heteroestrutura. Dessa forma, as bandas de valência e condução são curvadas e o comportamento descrito na figura 2.9 é sobrepujado pelo efeito Stark, que diminui  $E_{01}$  e  $E_{02}$  conforme  $N_S$  aumenta [34, 35].



**Figura 2.9:** (a) Perfil das subbandas de energia em função de  $N_s$ . A linha pontilhada denota o potencial calculado sem efeito de correlação e troca. (b) Perfil das energias intersubbandas em função de  $N_s$ .

A figura 2.10 mostra as energias das transições de partícula independente como função da densidade eletrônica para o poço quântico de largura  $d_w = 20$  e  $25$  nm. Como esperado, quando o poço se estreita os níveis tem maior energia e as transições possíveis são também mais energéticas. Note que para  $d_w = 20$  nm as transições são menos influenciadas pela densidade.

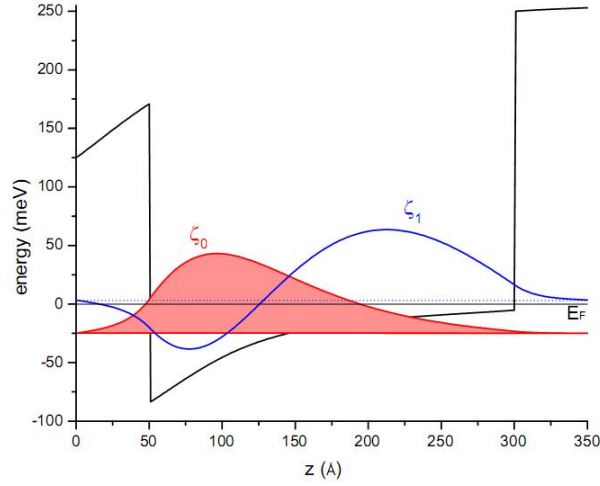


**Figura 2.10:** Transições inter-subbandas para o poço de largura  $d_w = 20$  e  $25$  nm.

Na figura 2.11, temos os estados quânticos para os dois níveis de menor energia na banda de condução. A densidade de probabilidade ao longo de  $z$  dá ao sistema



puramente bidimensional o caráter quasi-2D. Se os elétrons popularem apenas a subbanda de menor energia, o movimento em  $z$  será completamente quantizado.



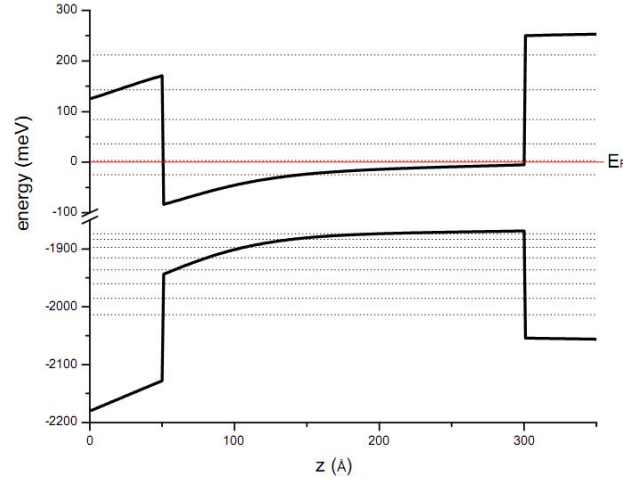
**Figura 2.11:** Funções de onda autoconsistentes para o estado fundamental e o primeiro estado excitado. À temperatura zero, apenas estados com subbandas abaixo do nível de Fermi estão ocupado com elétrons.

A 2.12 mostra os níveis de energia para banda de valência e condução. Os cálculos referentes a banda de valência são estritamente análogos aos 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 massa efetiva da banda de *split-off*, e manter a coerência das unidades que escalam energia e distancia. É importante mencionar que agora devemos desprezar o potencial de correlação e troca. A razão é que os buracos estão separados espacialmente dos elétrons, de forma que ignoraremos qualquer interação Coulombiana dinâmica com estes últimos. Consideramos apenas a interação Coulombiana direta estática entre os buracos consigo mesmos.

Um teste a se levar em conta para os estados da banda de condução e valência é o teste de completeza. Sabemos que  $\sum_j |\phi_j^v\rangle\langle\phi_j^v| = \mathbf{1}$  para todos os estados existentes na banda valência, mas até qual estado  $j$  devemos considerar? Como os autoestados da banda de condução  $|\phi_i^c\rangle$  são normalizados podemos fazer

$$1 = \langle\phi_i^c|\phi_i^c\rangle = \sum_j \langle\phi_i^c|\phi_j^v\rangle\langle\phi_j^v|\phi_i^c\rangle .$$

para qualquer estado  $i$ . Com isso verificamos que para  $j = 7$ , e  $N_S = 7 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ ,



**Figura 2.12:** Subbandas de energia na banda de condução e na banda de valência *split-off*.

a expressão acima dá um valor de 0.9993; para  $N_S = 2 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$  temos 0.9998.

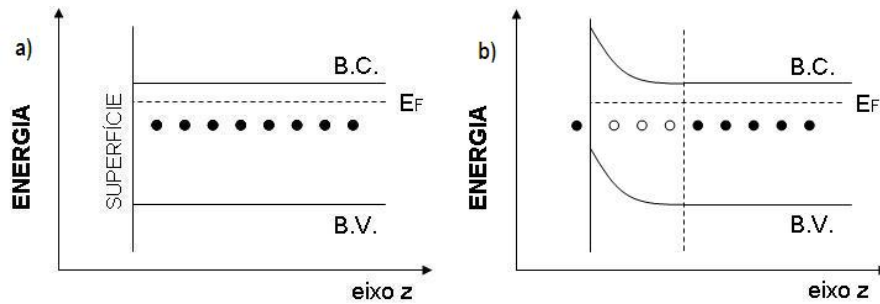
Algumas últimas considerações a respeito das simplificações adotadas podem ser enumeradas:

1. Ao usar LDA no cálculo de heteroestruturas, a descontinuidade tanto da massa efetiva, quanto da constante dielétrica, na interface GaAs-AlGaAs deve ser considerada [17]. Para heteroestruturas típicas, a mudança na constante dielétrica é da ordem de 10% ou menor. Já a massa efetiva, para banda de condução ou valência, consideraremos constante ao longo de cada material. Neste trabalho foi usado:  $m_{AlGaAs}^* = 0.067 + 0.083x$  para a banda de condução;  $m_{AlGaAs}^* = 0.15 + 0.09x$  para a banda de valência; e  $\varepsilon_{AlGaAs} = 12.5 - 2.4x$ .

2. A concentração de alumínio na célula unitária do GaAs altera o gap desse material [36]:  $E_{Gap}^{AlGaAs} = (1.424 + 1.24x) \text{ eV}$  para  $x \leq 0.45$ . Tipicamente, o alinhamento das bandas AlGaAs-GaAs é de 60:40. Significa que a diferença na banda de condução é 60% do  $\Delta E_{Gap} = E_{Gap}^{AlGaAs} - E_{Gap}^{GaAs}$ . E para banda de valência é 40% do  $\Delta E_{Gap}$ , como mostra a fig. 2.3. Ainda,  $Al_xGa_{1-x}As$  tem gap direto para valores de concentração  $x < 0.45$ , o que é desejável para transições óticas inter-subbanda sem transferência de momento em  $k_{\parallel}$ .

3. Neste trabalho ignoramos qualquer efeito de superfície. Nas teorias mais simples de junção metal-semicondutor os elétrons próximos a superfície metálica são

capturados por estados de superfície, deixando a heteroestrutura ionizada. Considere um semiconductor tipo n com estados aceitadores superficiais e situação inicial mostrada na fig. 2.13(a).



**Figura 2.13:** (a) A temperatura é  $0K$  e não ocorre transferência eletrônica entre os estados de bulk e da superfície. (b) Em suma, estados aceitadores superficiais em semicondutores tipo n tem carga superficial negativa, uma região depleto de elétrons e com carga positiva, e uma curvatura das bandas de energia por uma quantidade  $\Phi_s$ , onde  $\Phi_s$  é o potencial na superfície.

Com a temperatura, os elétrons fluem para os estados aceitadores formando uma camada negativa na superfície e deixando para trás doadores ionizados de carga positiva, fig. 2.13(b). O resultado é uma região de carga positiva fixa no bulk semiconductor. No equilíbrio existe um campo elétrico na região de depleção que impede a transferência de elétrons para a superfície.

Como nos transistores de efeito de campo, uma voltagem dc aplicada na heteroestrutura altera a forma das bandas e conseqüentemente a densidade do gás eletrônico no poço quântico. O potencial aplicado ao gate é  $\Phi_s = \Phi_{BS} - V_g$ , onde  $\Phi_{BS}$  é o potencial Schottky de contato (ou barreira Schottky).

4. Assumimos anteriormente que os doadores são completamente ionizados. Porém, quando a concentração de doadores é grande, Si:AlGaAs pode existir em um segundo estado, o *centro DX*. Neste caso a rede cristalina relaxa em torno do doador e libera uma energia maior que a do estado hidrogenóide (normalmente considerado). Isto aprisiona o elétron doado mais fortemente ao silício.

Para detalhes sobre um modelo mais realístico do sistema eletrônico quasi-2D, veja Davies [22], cap. 9.

## Capítulo 3

# *EXCITAÇÕES ELETRÔNICAS COLETIVAS*

Quando o sistema eletrônico é sujeito a um potencial externo, este induz uma perturbação no sistema, que por sua vez, altera o potencial total (externo + induzido) e este volta a alterar o potencial induzido. Este é um problema de ordem infinita em teoria de perturbação.

Para determinar as excitações dinâmicas do sistema, usa-se a teoria de perturbação dependente do tempo e calcula-se o espectro das excitações autoconsistentemente. Utilizaremos uma teoria de campo autoconsistente [7] conhecida como TDLDA<sup>1</sup>, que é uma generalização da Teoria do Funcional Densidade aplicado à situações dinâmicas ( $\omega \neq 0$ ) [8]. Nesse método exchange e correlação podem ser levados em conta pela inclusão de um potencial local dependente do tempo.

Desenvolveremos neste capítulo a relação de dispersão dos plasmons inter-subbandas, as excitações coletivas do sistema eletrônico quasi-2D ao longo do eixo  $z$ , perpendicular ao plano de confinamento eletrônico. No limite de grandes comprimentos de onda,  $\mathbf{q}_{\parallel} \rightarrow 0$ , é possível obter expressões analíticas, que servirão como guias nos casos mais específicos, onde a implementação computacional se faz necessária.

---

<sup>1</sup>Time Dependent Local Density Approximation

### 3.1 Teoria da Resposta Linear

Apresentamos brevemente uma revisão da Teoria da Resposta Linear, importante neste e no próximo capítulo. Uma abordagem mais detalhada sobre o assunto é encontrada, por exemplo, em Solyom, apêndice J [37]; Dressel-Gruner, cap. 3 [38]; e Marder, cap. 20 [25].

Grosseiramente, a física da matéria condensada experimental pode ser dividida em três grandes áreas: *experimentos que medem coeficientes termodinâmicos; experimentos de transporte; espectroscopia*. As medidas espectroscópicas contém informações detalhadas da estrutura espacial e temporal das excitações dominantes no sistema, em outras palavras, sua relação de dispersão.

A maioria dos experimentos envolve uma perturbação eletromagnética externa agindo no sistema sob estudo, já que a interação do sistema de muitos corpos com seu ambiente é quase que exclusivamente mediada por forças eletromagnéticas. A resposta do sistema então é medida por algum dispositivo.

Considere um sistema descrito pelo Hamiltoniano  $\hat{H}$ , independente do tempo, perturbado por um campo externo  $F(t)$  que se acopla linearmente com um observável  $\hat{X}$  do sistema. O Hamiltoniano total fica

$$\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \int d\mathbf{r} F(\mathbf{r}, t) \hat{X}(\mathbf{r}) ,$$

onde  $F$  pode ser pensado como uma *força generalizada* e  $\hat{X}$  como um *deslocamento generalizado*.

O objetivo de qualquer teoria é entender e prever a dependência dos valores medidos de  $\hat{X}$  com respeito a  $F$ . Para campos suficientemente fracos podemos esperar uma dependência linear da forma

$$\hat{X}(\mathbf{r}, t) = \int d\mathbf{r}' \int dt' \chi(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') F(\mathbf{r}', t') .$$

Enquanto que  $F$  ( $\hat{X}$ ) segue a relação ajustável (observável),  $\chi$  representa uma propriedade intrínseca do sistema não perturbado, e é chamada de função resposta, ou susceptibilidade generalizada. Ela descreve como o sistema responde a perturbação  $F$  e é completamente determinada pela estrutura analítica dos autovalores e autofunções do sistema não perturbado.

Estas considerações deixam claro que a função resposta é a responsável por relacionar experimento e teoria. Experimentalmente ela é medida relacionando o input  $F$  com a resposta  $\hat{X}$ . Teoricamente, criam-se modelos para a função resposta de forma a reproduzir a resposta observada no experimento.

Algumas propriedades de  $\chi(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t')$  são:

i) Causalidade: a força generalizada não pode causar qualquer efeito antes de ser aplicada, assim  $\chi(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = 0$  se  $t < t'$ . Formalmente, dizemos que a função resposta é retardada,

$$\hat{X}(\mathbf{r}, t) = \int d\mathbf{r}' \int_{-\infty}^t dt' \chi(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') F(\mathbf{r}', t') .$$

ii) Continuidade Adiabática: A teoria da resposta linear é baseada na consideração de que partindo do sistema não perturbado, podemos analisar o sistema perturbado aplicando teoria de perturbação em primeira ordem, desde que a perturbação seja suficientemente fraca e o sistema não sofra nenhuma transição de fase como magnetismo ou supercondutividade. Se pudermos criar uma correspondência entre os estados do sistema não perturbado e o sistema perturbado, dizemos que os estados estão conectados por uma continuidade adiabática, ou que são adiabaticamente contínuos. Para isso, imagine que no passado distante,  $t' \rightarrow -\infty$ , o sistema estava preparado em equilíbrio térmico e o Hamiltoniano não perturbado era  $H_0$ . A perturbação é introduzida de maneira adiabática (lenta, quasi-estática) e cresce até seu valor original, em  $t' = t$ . O sistema perturbado terá autofunções e autoenergias levemente diferentes, mas o ponto chave é que ainda podemos usar os mesmos números quânticos que usamos para o estado não perturbado.

iii) Invariância Temporal e Translacional: se o Hamiltoniano não depende explicitamente do tempo,  $\chi(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = \chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; t - t')$ , e para sistemas translacionalmente invariantes,  $\chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; t - t') = \chi(\mathbf{r} - \mathbf{r}'; t - t')$ . Neste caso, é conveniente expressar a resposta no espaço de Fourier  $(\mathbf{q}, \omega)$ :

$$\hat{X}(\mathbf{q}, \omega) = \chi(\mathbf{q}, \omega) F(\mathbf{q}, \omega) . \quad (3.1)$$

Com isso, no regime de resposta linear uma perturbação monocromática agindo numa certa frequência  $\omega$  irá causar uma resposta na mesma frequência. Caso o sistema responda com uma frequência  $\neq \omega$ , significa que o regime é não-linear. Ainda, de acordo com eq. (3.1), um pico na resposta  $\hat{X}(\mathbf{q}, \omega)$  para uma frequência

$\omega$  e momento  $\mathbf{q}$  indica um máximo local na função resposta  $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ , que significa a presença de uma excitação intrínseca do sistema. Ao menos em princípio, as medidas em resposta linear são capazes de explorar a relação de dispersão completa das excitações de um sistema.

No espaço de Fourier, o potencial externo (e seu complexo conjugado, c.c.) é dado por:  $F(t) = F(\omega)e^{i\omega t} + c.c.$  Para garantir que a perturbação seja introduzida no sistema de maneira adiabática fazemos

$$F(t) = F(\omega)e^{i(\omega - i\eta)t} + c.c. ,$$

onde  $\eta \rightarrow 0^+$ , tal que  $F(-\infty) = 0$ . Uma análise mais avançada envolveria o comportamento da frequência  $\omega$  no plano complexo: relações de Kramers-Kronig, analiticidade e causalidade, regras de soma, etc.

Alguns exemplos de funções respostas, eq. 3.1, ligadas ao campo elétrico  $\mathbf{E}$  da luz são:

*condutividade elétrica*, que relaciona a corrente  $\mathbf{j}$  gerada no material, aplicando-se um campo elétrico:  $\mathbf{j} = \sigma\mathbf{E}$ .

*polarização elétrica*, que dá a polarização  $\mathbf{P}$  em termos do campo elétrico agindo naquele meio:  $\mathbf{P} = \chi_e\mathbf{E}$ .

*função dielétrica*, que relaciona o vetor de deslocamento  $\mathbf{D}$  em termos da polarização e o campo elétrico:  $\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P} = (1 + 4\pi\chi_e)\mathbf{E} \equiv \varepsilon\mathbf{E}$ .

Da equação de continuidade ainda é possível obter:<sup>2</sup>  $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 + 4\pi i\sigma(\mathbf{q}, \omega)/\omega$ . Quantidades físicas determinadas experimentalmente, tais como coeficiente de absorção, resistividade, espectro Raman, etc, podem ser calculadas a partir da função dielétrica, que fornece informações a respeito das excitações elementares do sistema (de quasi-partículas individuais e oscilações coletivas). Neste trabalho em particular, calcularemos o espectro Raman.

---

<sup>2</sup>Os físicos teóricos preferem obter a condutividade elétrica fazendo cálculos de corrente. Mas os experimentais tem problemas para analisar o movimento das cargas em detalhes. Por isso preferem estudar a dispersão, absorção, e o espalhamento do campo eletromagnético no material, para assim determinar a função dielétrica. A eq. relacionando condutividade  $\sigma$  e função dielétrica  $\varepsilon$  constitui então a conexão entre o ponto de vista teórico e experimental mencionado anteriormente.

## 3.2 Teoria do Campo Autoconsistente

Dentro do regime de resposta linear, assumimos que o sistema eletrônico responde a um campo total, autoconsistente,

$$V(\mathbf{r}, t) = V^{ext}(\mathbf{r}, t) + V^{ind}(\mathbf{r}, t) , \quad (3.2)$$

como um sistema de partículas independentes, onde  $V^{ext}$  é um potencial externo periódico fraco e  $V^{ind}$  é uma flutuação de carga induzida, linear com  $V$ . Tal potencial induzido inclui, além da interação de Coulomb clássica, efeitos de muitos corpos como exchange e correlação. Considere que o potencial total, assim como o externo e o induzido, são da forma

$$V(\mathbf{r}, t) = V(\mathbf{q}, z, \omega) e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)} ,$$

onde  $\mathbf{q} \equiv \mathbf{q}_{\parallel}$  pertence ao plano  $k_x k_y$ . A frequência  $\omega$  é a frequência de Matsubara, definida como  $\omega \rightarrow \omega + i0^+$  a fim de assegurar que a resposta do sistema seja causal.<sup>3</sup> O elemento de matriz desses potenciais entre os estados

$$\psi_{\alpha}(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | \alpha \rangle = \langle \mathbf{r} | m, \mathbf{k}, \sigma \rangle = \frac{1}{\sqrt{A}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \zeta_m(z) u(\mathbf{r}) ,$$

é dado por <sup>4</sup>

$$V_{\beta\alpha}(\mathbf{r}, t) = \langle n, \mathbf{k}', \sigma' | V(\mathbf{q}, z, \omega) e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)} | m, \mathbf{k}, \sigma \rangle = V_{nm} \delta_{k', k+q} \delta_{\sigma, \sigma'} e^{-i\omega t} ,$$

onde  $V_{nm} \equiv \langle n | V(\mathbf{q}, z, \omega) | m \rangle$ . Aplicando o mesmo raciocínio na eq. (3.2),

$$V_{nm} = V_{nm}^{ext} + V_{nm}^{ind} . \quad (3.3)$$

A expressão para  $V_{nm}^{ind}$  é desenvolvida em detalhe no apêndice A, e resulta em

$$V_{nm} = V_{nm}^{ext} + \sum_{ij} C_{ij, mn} \Pi_{ij}^0 V_{ij} , \quad (3.4)$$

<sup>3</sup>O que é equivalente a condição de contorno adiabática, i.e., a perturbação, considerada fraca, é introduzida de maneira adiabática no sistema. Consideramos que a perturbação é ligada no tempo  $t = -\infty$  e cresce até seu valor original em  $t = 0$ . Adota-se  $\omega^2 \simeq \omega^2 + i2\gamma\omega$ , onde o fator  $\gamma$  também descreve o espalhamento por impurezas e está relacionado ao tempo de vida da transição.

<sup>4</sup>Lembrem que  $m$  é o índice de banda da função de onda no eixo  $z$ , que já tomamos como normalizada;  $\mathbf{k}$  descreve o elétron livre no plano  $xy$ , e a função é normalizada pela área  $A$ ;  $u$  é o spinor (função de Bloch) que descreve o estado de spin. A menos que especificado o contrário, sempre tomaremos  $\mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_{\parallel}$ .



sendo

$$C_{ij,mn} = \underbrace{\frac{2\pi e^2}{Aq\epsilon_\infty} \iint dz dz' \zeta_i(z') \zeta_j(z') e^{-q|z-z'|} \zeta_m(z) \zeta_n(z)}_{\alpha_{ij,mn}} + \underbrace{\frac{1}{A} \int dz U_{xc}(z) \zeta_m(z) \zeta_n(z)}_{-\beta_{ij}} \quad (3.5)$$

e

$$\Pi_{ij}^0 = \sum_{k,\sigma} \frac{f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k} + \mathbf{q})}{\epsilon_i(\mathbf{k}) - \epsilon_j(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + \hbar\omega} . \quad (3.6)$$

$C_{ij,mn}$  é o elemento de matriz da transformada de Fourier no plano  $\mathbf{k}_\parallel$ , que acopla a flutuação na densidade de carga entre as subbandas  $mn$  com as flutuações das subbandas  $ij$ . Possui contribuições da interação Coulombiana direta,  $\alpha_{ij,mn}$ , e indireta,  $-\beta_{ij}$ .  $\epsilon_\infty$  é a constante dielétrica para altas frequências que simula a blindagem tipo *jellium* do sistema quasi-2D, válida quando pudermos negligenciar a resposta dinâmica da rede cristalina.<sup>5</sup> Note que  $C_{ij,mn}$  é simétrica com a troca de índice  $i \leftrightarrow j$  e  $m \leftrightarrow n$ , uma vez que  $\zeta(z)$  é real.

$\Pi_{ij}^0$  é a função resposta obtida para o sistema eletrônico não-interagente.  $f_i(\mathbf{k})$  é a distribuição de Fermi-Dirac na  $i$ -ésima subbanda, e  $\epsilon_i(\mathbf{k}) = \epsilon_i + \hbar^2 k^2 / 2m^*$  é a relação de dispersão para a energia na aproximação de banda parabólica.

Simplificaremos eq. (3.4) considerando apenas excitações inter-subbandas, i.e.,  $\mathbf{q} \rightarrow 0$ . Também limitaremos o problema para  $T = 0K$ , de forma que  $f_i(\mathbf{k}) = \theta(\epsilon_F - \epsilon_i(\mathbf{k}))$ . Consideraremos que  $\epsilon_i < \epsilon_F$  e  $\epsilon_j > \epsilon_F$ . Dessa forma, a função resposta fica

$$\lim_{\substack{q \rightarrow 0 \\ T \rightarrow 0}} \Pi_{ij}^0 = \frac{\sum_{\mathbf{k},\sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})]}{\epsilon_i - \epsilon_j + \hbar\omega} = \frac{1}{\hbar\omega - \omega_{ji}} N_{ji} ,$$

onde  $\omega_{ji} = (\epsilon_j - \epsilon_i)/\hbar$  é a frequência de Bohr associada a transição, e  $N_{ji} \equiv \sum_{\mathbf{k},\sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})]$  é o numero de elétrons que contribui na transição  $i \rightarrow j$ . Note ainda que,

$$\lim_{\substack{q \rightarrow 0 \\ T \rightarrow 0}} \Pi_{ji}^0 = -\frac{1}{\hbar\omega + \omega_{ji}} N_{ji} \quad \text{e} \quad \Pi_{ii}^0 = 0 .$$

Como os elementos de matriz  $C_{ij,mn}$  e  $V_{ij}$  são simétrico, eq. (3.4) toma a forma

$$V_{nm} = V_{nm}^{ext} + \sum_{ij, j>i} C_{ij,mn} \chi_{ji}^0 V_{ji} , \quad (3.7)$$

<sup>5</sup>Na heteroestrutura *AlGaAs - GaAs* normalmente a energia das transições inter-subbandas é comparável a energia do fônon da rede, resultando num acoplamento de origem Coulombiana.

onde

$$\chi_{ji}^0 \equiv \Pi_{ij}^0 + \Pi_{ji}^0 = \frac{2N_{ji}\hbar\omega_{ji}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)} .$$

Eq. (3.7) pode ser reescrita como

$$\sum_{\substack{ij \\ j>i}} \underbrace{[\delta_{ij,mn} - C_{ij,mn}\chi_{ji}^0]}_{\varepsilon_{ij,mn}} V_{ji} = V_{nm}^{ext} . \quad (3.8)$$

$\varepsilon_{ij,mn}$  é o tensor dielétrico, também uma função resposta à perturbação externa. As excitações coletivas (ou modos coletivos) são as frequências naturais em que o sistema realiza uma transição para outro estado. Em teoria da resposta linear, isto é válido quando  $V_{nm}^{ext} \rightarrow 0$ . Assim, as soluções não triviais para  $\omega$  na eq. (3.8) são dadas pela condição,  $\det |\varepsilon_{ij,mn}| = 0$ .

### 3.3 O Tensor Harmônico

Considere o problema clássico de uma partícula descrevendo um movimento harmônico com frequência  $\omega_0$  em torno de sua posição de equilíbrio. Quando existe um atrito  $\gamma$  que retarda a oscilação e uma força externa que a perturba, a equação de movimento é dada por

$$\ddot{\mathbf{x}}(t) + 2\gamma\dot{\mathbf{x}}(t) + \omega_0^2\mathbf{x}(t) = \mathbf{f}(t)/m ,$$

com solução no domínio de frequência:  $[\omega^2 + 2i\gamma\omega - \omega_0^2]\mathbf{x}(\omega) = -\mathbf{f}(\omega)/m$ . Considere agora a analogia com o problema das transições eletrônicas: os elétrons são excitados devido ao potencial externo periódico, logo as transições também são periódicas. Por outro lado, a interação com centros espalhadores diversos age como uma espécie de atrito, retardando as excitações.

Assim, seguindo a idéia adotada por Anjos-Ioriatti [9], associamos uma coordenada generalizada

$$x_{ji} \equiv \frac{V_{ji}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)}$$

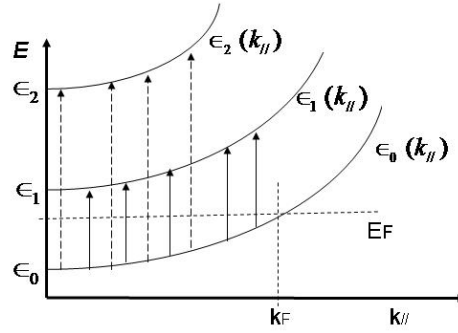
a cada transição  $i \rightarrow j$ , e reescrevemos a eq. (3.7) como

$$\hbar^2(\omega^2 - \omega_{nm}^2)x_{nm} = V_{nm}^{ext} + \sum_{ij, j>i} 2N_{ji}\hbar\omega_{ji}C_{ij,mn}x_{ji}$$

$$\Rightarrow \sum_{\substack{ij \\ j>i}} \underbrace{[\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)\delta_{ij,mn} - 2N_{ji}\hbar\omega_{ji}C_{ij,mn}]}_{\Lambda_{ij,mn}} x_{ji} = V_{nm}^{ext}, \quad (3.9)$$

onde definimos  $\Lambda_{ij,mn}$  como o tensor harmônico. Eq. 3.9 nos permite interpretar as excitações eletrônicas inter-subbandas como um conjunto infinito de excitações harmônicas *renormalizadas, amortecidas, acopladas e forçadas!* Explicamos:

Chamaremos de excitação harmônica entre dois níveis (subbandas  $i$  e  $j$ ) àquela com energia  $\hbar\omega = \hbar\omega_{ji}$ . Porém o sistema eletrônico interage, renormalizando  $\hbar\omega$ . Cada excitação interage com todas as outras no plano  $xy$ , que tem infinitos valores de  $k$ , implicando em um continuum de excitações acopladas coulombicamente, como mostra a figura 3.1. O caráter de amortecimento fica evidente quando usamos explicitamente  $\omega \rightarrow \omega + i\gamma$  na eq. 3.9, com  $\gamma \approx 0^+$  e  $\gamma^2 = 0$ .



**Figura 3.1:** Continuum de excitações coletivas no plano  $k_x k_y$ . As excitações entre mesmas subbandas são igualmente acopladas coulombicamente. O amortecimento é dado pelo fator  $\gamma$ , e caráter de oscilador forçado é dado por  $V_{nm}^{ext}$ .

Novamente, os modos coletivos do sistema são dados quando o potencial externo é arbitrariamente pequeno, implicando em  $\det |\Lambda_{ij,mn}| = 0$ . Comparando as definições dos tensores dielétrico e harmônico, temos a relação:

$$\Lambda_{ij,mn} = \hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)\epsilon_{ij,mn}.$$

Isto mostra que  $\det |\epsilon_{ij,mn}| = 0$  é equivalente à  $\det |\Lambda_{ij,mn}| = 0$ .

Escrevendo explicitamente os elementos de  $\Lambda_{ij,mn}$  para  $j > i$ ,  $n > m$ , e  $j_{max} = n_{max} = p$ , temos a matriz de ordem  $p! \times p!$ :

$$\{\Lambda_{ij,mn}\} = \begin{vmatrix} \Lambda_{01,01} & \Lambda_{01,02} & \cdots & \Lambda_{01,0p} & \cdots & & & & & \Lambda_{01,(p-1)p} \\ \Lambda_{02,01} & \Lambda_{02,02} & & & & & & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & & & & & & & \\ \Lambda_{0p,01} & & & \Lambda_{0p,0p} & & & & & & \\ \vdots & & & & \Lambda_{12,12} & & & & & \\ & & & & & \ddots & & & & \\ & & & & & & \Lambda_{1p,1p} & & & \\ & & & & & & & \ddots & & \\ \Lambda_{(p-1)p,01} & & & & & & & & & \Lambda_{(p-1)p,(p-1)p} \end{vmatrix}$$

Ao considerarmos o estado fundamental com apenas uma subbanda ocupada, todos os elementos de matriz, com exceção daqueles no primeiro bloco  $p \times p$  se anulam, uma vez que  $N_{ji}$  será não nulo apenas para transições  $(0 \rightarrow j), (0 \rightarrow n)$ . Fatorando a matriz, temos

$$\{\Lambda_{ij,mn}\} = \begin{vmatrix} \Lambda_{01,01} & \Lambda_{01,02} & \cdots & \Lambda_{01,0p} \\ \Lambda_{02,01} & \Lambda_{02,02} & & \\ \vdots & & \ddots & \\ \Lambda_{0p,01} & & & \Lambda_{0p,0p} \end{vmatrix}.$$

Na literatura, frequentemente o acoplamento entre as excitações associadas com diferentes transições inter-subbandas  $(i \rightarrow j) \neq (m \rightarrow n)$  é negligenciado, já que os elementos não diagonais são pequenos. Assim,  $\det |\Lambda_{ij,mn}| = 0$  implica em elementos diagonais  $\Lambda_{01,01} \times \Lambda_{02,02} \times \cdots \times \Lambda_{0p,0p} = 0$  e a transição do estado fundamental para  $j$ -ésima subbanda tem energia

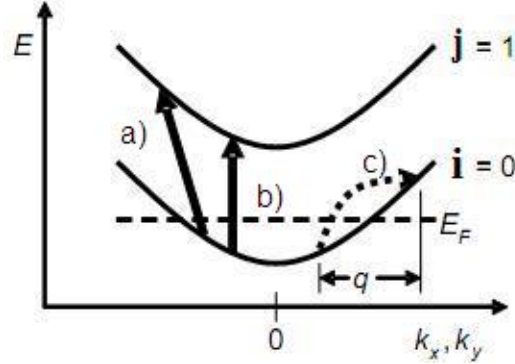
$$(\hbar\omega)^2 = (\hbar\omega_{j0})^2 + 2N_{j0}\hbar\omega_{j0}C_{0j,0j}. \quad (3.10)$$

Um desenvolvimento além envolveria a diagonalização de  $\{\Lambda_{ij,mn}\}$ .

### 3.4 O Modelo de Duas Subbandas

A fim de obtermos uma análise física transparente de resultados numéricos, ou uma trabalhosa álgebra matricial, vamos calcular os modos normais do sistema eletrônico quasi-2D dentro do modelo simples de duas subbandas, com o estado

fundamental ( $i = 0$ ) ocupado e o primeiro estado excitado ( $j = 1$ ) desocupado. A figura 3.2 ilustra o modelo. Considerando processos onde o momento lateral transferido pela perturbação externa seja  $\mathbf{q}_{\parallel} \rightarrow 0$ ,<sup>6</sup> nós garantimos que todas as transições ao longo de  $\mathbf{k}_{\parallel}$  sejam degeneradas em energia.<sup>7</sup>



**Figura 3.2:** Existem apenas duas subbandas no poço quântico, com níveis  $\epsilon_0 < \epsilon_F$  e  $\epsilon_1 > \epsilon_F$ . Somente transições inter-subbanda (b) são possíveis, já que transições inter-subbanda (a) e transições intra-subbandas  $0 \rightarrow 0$  (c), requerem um valor finito de  $\mathbf{q}_{\parallel}$ , que supomos ser desprezível.

Os modos coletivos são dados pelas raízes de  $\det |\Lambda_{ij,mn}| = 0$ , que neste caso contém apenas o elemento  $\Lambda_{01,01} = 0$ . Assim, o modo coletivo que representa as excitações inter-subbandas  $0 \rightarrow 1$  é

$$(\hbar\omega)^2 = (\hbar\omega_{10})^2 + \underbrace{2N_{10}\hbar\omega_{10}C_{01,01}}_{\Delta_{01}}. \quad (3.11)$$

Como as excitações intra-subbandas são nulas na nossa aproximação, não existem modos acoplados de excitações intra- e inter-subbandas. Quando a transferência de momento lateral vai além da aproximação de longos comprimentos de onda,  $\mathbf{q}_{\parallel} \rightarrow 0$ , o acoplamento entre diferentes modos de excitação se torna importante [39].

Chamaremos as excitações de energia  $\hbar\omega_{ji}$ , antes referidas como excitações

<sup>6</sup>Experimentalmente, isto é alcançado na configuração de retroespalhamento. Veja seção 4.1 para mais detalhes.

<sup>7</sup>Para a nossa configuração do poço quântico, a aproximação de duas subbandas é razoável para  $N_s \lesssim 1 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ . Nessa situação cerca de 84% das forças de oscilador são dadas pela transição  $0 \rightarrow 1$ . A figura 5.1 mostra um caso para  $N_s = 6 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ .

harmônicas, de excitações de partícula independente, ou partícula livre.<sup>8</sup> São as excitações naturais de um sistema eletrônico ideal que não interage coulombicamente. Parece intuitivo que essas excitações sempre serão renormalizadas pela interação Coulombiana. Um dos objetivos desse trabalho é mostrar que isso nem sempre ocorre.

Na eq. 3.11, vemos que plasmons inter-subbanda ( $0 \rightarrow 1$ ) tem energia de excitação deslocada das excitações SPE devido ao termo  $\Delta_{01}$ ,<sup>9</sup> que tem contribuição da interação Coulombiana direta e indireta, esta última parametrizada pelo funcional  $U_{XC}$  dentro da aproximação de densidade local. Excitações dessa natureza serão chamadas de excitações de densidade de carga.<sup>10</sup> Para o modelo de duas subbandas,

$$\Delta_{01}^{CDE} = 2N_{10}\hbar\omega_{10}(\alpha_{01,01} - \beta_{01}^{CDE}) .$$

A distinção se faz necessária. Como veremos em detalhe na seção 4.1, dependendo da polarização da luz espalhada em relação à incidente, o espalhamento inelástico no regime de extrema ressonância faz surgir um novo tipo de excitação elementar: as excitações de densidade de spin.<sup>11</sup> Nessas excitações, o sistema eletrônico oscila de forma que elétrons de spin up estejam completamente defasados dos de spin down. Se o sistema eletrônico não for magnetizado a interação Coulombiana direta será cancelada por não existir uma flutuação resultante de carga. Com isso, SDE são deslocadas das excitações SPE devido apenas a efeitos de correlação e troca:

$$\Delta_{01}^{SDE} = -2N_{10}\hbar\omega_{10}\beta_{01}^{SDE} .$$

Com um único poço quântico na heteroestrutura e sistemas eletrônicos não muito diluídos, os termos direto e indireto da interação Coulombiana tem pesos comparáveis. Neste caso também é válida a aproximação  $\beta_{01}^{CDE} = \beta_{01}^{SDE}$ . Contudo o comportamento desses funcionais para baixas densidades revelam algumas surpresas quando analisamos os modos CDE e SDE em função da densidade eletrônica superficial  $N_s = N_{ji}/A$ , como será mostrado no capítulo 5.

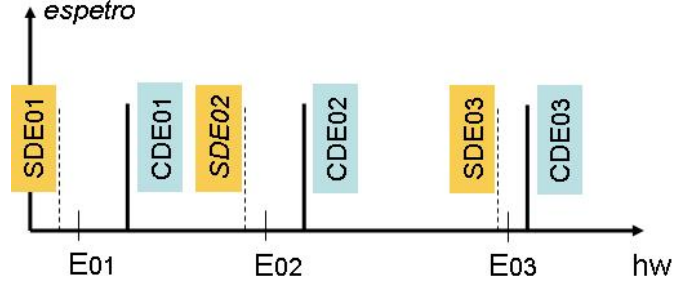
A figura 3.3 ilustra esquematicamente o espectro dos modos CDE e SDE, que será desenvolvido numericamente para o espalhamento inelástico de luz.

<sup>8</sup>SPE, *single-particle excitation*.

<sup>9</sup>Também chamado de *Campo de Depolarização*. É o campo elétrico macroscópico associado com as excitações inter-subbandas.

<sup>10</sup>CDE, *charge-density excitation*.

<sup>11</sup>SDE, *spin-density excitation*.



**Figura 3.3:** Plasmons inter-subbandas tem duas componentes, dependendo da configuração de espalhamento: CDE e SDE.

### 3.5 Acoplamento Plasmon-LO Fônon

Como AlGaAs-GaAs é um semiconductor polar, espera-se que os efeitos do acoplamento elétron-fônon sejam importantes. O fônon LO (Longitudinal Ótico) interage com as cargas livres via interação de Frohlich de longo alcance. Do ponto de vista dos fônons, as oscilações dos íons são acompanhadas por uma nuvem eletrônica que tenta blindar o campo de polarização criado pela rede. Do ponto de vista dos elétrons, a interação elétron-elétron inclui diagramas envolvendo interações mediadas por fônons [35].

A flutuação de carga induzida produz um campo elétrico macroscópico longitudinal de forma que há um acoplamento deste campo com os fônons longitudinais óticos. Para flutuações dentro do poço quântico, temos a função dielétrica do bulk GaAs [40]:

$$\frac{1}{\epsilon(\omega)} = \frac{1}{\epsilon_\infty} \frac{\omega_{TO}^2 - \omega^2 + i\gamma_{ph}\omega}{\omega_{LO}^2 - \omega^2 + i\gamma_{ph}\omega},$$

onde  $\omega_{LO}$  ( $\omega_{TO}$ ) é a frequência do fônon LO (TO). O fator  $\gamma_{ph}$  dá o tempo de vida dos fônons, e se rá negligenciado neste trabalho para que  $\epsilon(\omega)$ , e conseqüentemente a matriz  $C_{ij,mn}$ , sejam reais.<sup>12</sup> Então a quantidade  $\alpha_{ij,mn}$  definida na eq. (3.5) se torna

$$\alpha_{ij,mn}(q, \omega) \rightarrow \alpha_{ij,mn}(q)(\omega_{TO}^2 - \omega^2)/(\omega_{LO}^2 - \omega^2).$$

Conforme eq. (3.10), ignorando por simplicidade o termo de correlação e troca,

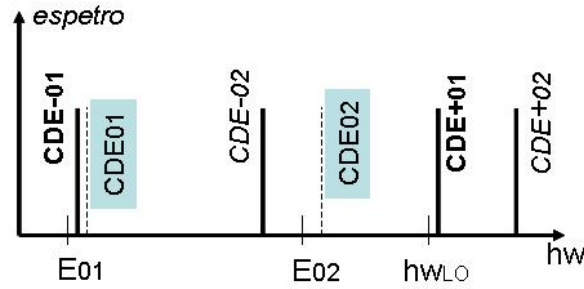
<sup>12</sup>Basicamente, o motivo para isso é que o método (numérico) que utilizamos para determinar  $x_{ji}$ , como será visto no próximo capítulo, se torna menos complicado com  $C_{ij,mn}$  real. Dessa forma, a inclusão do acoplamento elétron-fônon na teoria é um efeito médio.

a interação faz surgir os modos acoplados de plasmon-LO fônon:

$$(\hbar\omega)_{\pm}^2 = \frac{1}{2}[(\hbar\omega_{LO})^2 + (\hbar\omega_{j0})^2 + \Delta_{0j}] \pm \frac{1}{2}\left([\hbar\omega_{LO})^2 + (\hbar\omega_{j0})^2 + \Delta_{0j}]^2 - 4(\hbar\omega_{j0})^2(\hbar\omega_{LO})^2 - 4\Delta_{0j}(\hbar\omega_{TO})^2\right)^{1/2}$$

A figura 3.4 ilustra esquematicamente o espectro dos modos CDE-LO-Fônons. Existem dois tipos de regime [10, 35]:

- (i) *Acoplamento fraco*, quando a energia do plasmon inter-subbanda é distante da energia do fônon LO. O acoplamento renormaliza as energias dos modos coletivos para um modo de quasi-plasma,  $CDE_{01}^-$ , e um modo de quasi-fônon,  $CDE_{01}^+$ .
- (ii) *Acoplamento forte*, quando os modos coletivos tem energias comparáveis, o acoplamento faz surgir dois modos,  $CDE_{02}^-$  e  $CDE_{02}^+$ , que não podem mais ser pensados como plasmas ou fônons.



**Figura 3.4:** Comportamento qualitativo dos modos acoplados de plasmon-fônon no regime de acoplamento fraco  $E_{01} \ll \hbar\omega_{LO}$  e acoplamento forte  $E_{02} \sim \hbar\omega_{LO}$ .



## Capítulo 4

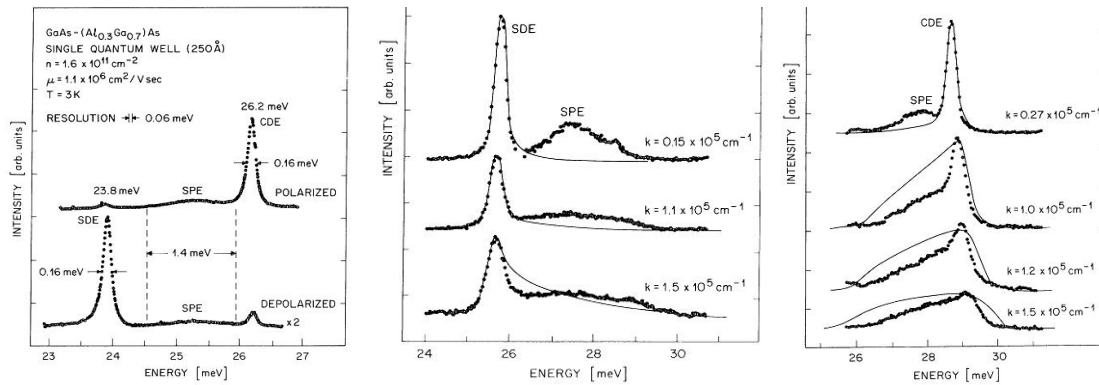
# *ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ*

Os primeiros experimentos de espalhamento inelástico de luz por elétrons livres foram realizados por Mooradian and Wright em 1966 [41], que estudaram o acoplamento plasmon-LO fônon em bulk GaAs tipo n. Em seguida, Mooradian também observou excitações ressonantes, que naquele tempo foram interpretadas com excitações de partícula independente [42]. Com os dados experimentais, Hamilton e McWhorter deduziram em seu trabalho teórico que o espalhamento resultante de partículas independentes, resultante da chamada flutuação de densidade de spin, podia ser observado em semicondutores tipo blenda de zinco numa geometria de polarizada de espalhamento, i.e., a polarizações da luz espalhada é perpendicular à polarização da luz incidente. Espalhamento por plasmons, devido a flutuação de densidade de carga, ocorriam numa configuração de polarização paralela entre a luz incidente e espalhada [43].

O espalhamento Raman eletrônico é fortemente dependente do efeito ressonante no gap ótico do semicondutor. Em 1978, Burstein propôs que o espalhamento em regime de ressonância seria sensível o bastante para a observação de excitações elementares em sistemas eletrônicos quasi-2D [44]. Isso coincidiu na época com o advento das heteroestruturas semicondutoras (ou poços quânticos) de alta mobilidade eletrônica através das técnicas de epitaxia por feixe molecular e dopagem modulada [6]. Em seguida, as primeiras observações de excitações inter-subbandas em sistemas quasi-2D foram reportadas por Pinczuk [45] e Abstreiter [46].

Na década seguinte, foi comumente aceito que as excitações observadas se dividiam em: excitações de densidade de spin (SDE), observada em espectro depolari-

zado, e que foram interpretadas como excitações de partícula independente porque acreditava-se que os efeitos de correlação e troca eram pequenos; e excitações de densidade de carga (CDE), observadas em espectros polarizados, e com maior energia devido aos efeitos de interação Coulombiana direto. Porém, em 1989, Pinczuk et al. observaram além de excitações SDE e CDE, excitações com energias entre as duas anteriores e que podiam ser observadas em ambas configurações de polarização [47], veja figura 4.1. Estas excitações mostravam aspectos de partículas independentes e então SDEs, assim como CDEs, foram consideradas excitações coletivas do gás de elétrons e as excitações que não apresentavam regras de seleção foram interpretadas como excitações de partícula independente (SPE).



**Figura 4.1:** Espectro do espalhamento inelástico de luz das excitações inter-subbandas para o sistema eletrônico quasi-2D confinado no poço quântico de AlGaAs-GaAs. Note que SPE apresenta uma acentuada dependência com a momento  $k_{\parallel}$ .

É interessante notar que excitações SPE, além de CDE e SDE, surgem em poços, fios, e pontos quânticos, além de bulk n-GaAs [47, 48, 49]. Isto constituiu um quebra-cabeça por mais de 25 anos. Experimentalmente o regime de ressonância extrema é uma condição necessária para o surgimento das excitações SPE. Tal interpretação foi confirmada teoricamente por Das Sarma and Wang em sistemas 2D and 1D por um método RPA ressonante.<sup>1</sup>

Em 2001, Anjos e Ioriatti [9] obtiveram pela primeira vez um cálculo de espalhamento Raman eletrônico em uma superrede  $\delta$ -dopada em situações de extrema

<sup>1</sup>Random-Phase Approximation.

ressonância para os mecanismos CDE e SDE. O resultado mostrou que nesse regime é possível coexistir excitações de caráter coletivo e de partícula independente. Sendo o regime de espalhamento em ressonância próxima deduzido como um caso particular. Como veremos neste capítulo, a formulação por eles desenvolvida para o cálculo da seção de choque se reduz a inversão de matrizes.

Dessa forma, vamos mostrar que o surgimento das excitações com energias de partícula independente estão relacionadas com três fatores:

*regime de extrema ressonância,  
existência de excitações inter-subbandas degeneradas,  
interações degeneradas entres os pares de excitações.*

Além disso, veremos que a física que governa este problema é similar àquela que descreve a formação do estado supercondutor na teoria BCS de metais normais.

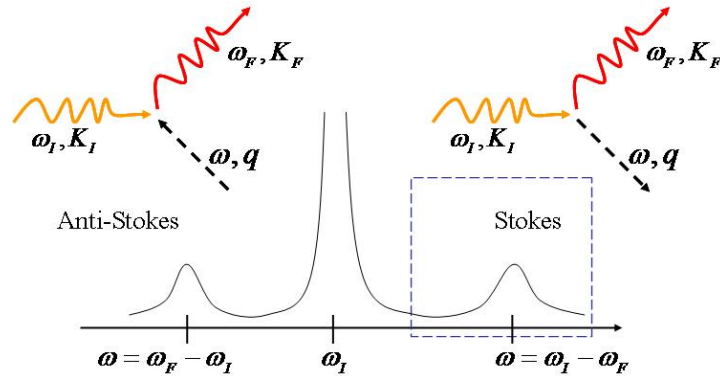
## 4.1 *Mecanismos e Regras de Seleção*

Ao interagir com a matéria os fótons podem criar ou destruir uma excitação elementar de energia  $\hbar\omega$  e momentum  $\mathbf{q}$ . Para o poço quântico, a invariância translacional só é válida dentro do plano do poço. Da conservação de energia e momentum

$$\omega_I = \omega_F \pm \omega, \quad \mathbf{k}_I = \mathbf{k}_F \pm \mathbf{q},$$

onde o subscrito I(F) se refere a radiação incidente (espalhada) e o sinal  $+$ ( $-$ ) define o processo Stokes (anti-Stokes), em que ocorre um ganho (perda) de energia pelo sistema. A figura 4.2 ilustra o espectro Raman para uma única excitação elementar. A baixas temperaturas somente o processo Stokes tem probabilidade significativa, já que o sistema está no estado fundamental e não pode fornecer energia para os fótons. Note que há uma componente muito forte para o espalhamento elástico (Rayleigh) com energia  $\hbar\omega_I$ .

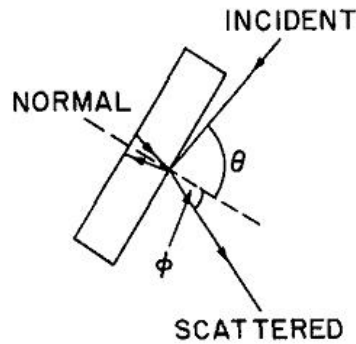
A figura 4.3 mostra a geometria de retroespalhamento que é tipicamente usada na investigação das transições eletrônicas [50]. Nessa configuração, a luz se propaga dentro da amostra quase paralelamente à direção de crescimento. Assumiremos o caso limite em que os ângulos de incidência e espalhamento coincidem com a normal,  $\theta + \phi = 0$ , o que é plausível já que o índice de refração do GaAs é alto ( $\eta \simeq 3,6$ )



**Figura 4.2:** Exemplo de espectro Raman, ilustrando processo Stokes e anti-Stokes.

na região do espectro visível. Isto implica a não transferência de momento lateral e portanto apenas excitações inter-subbandas são permitidas.

Para pequenas transferências de energia,  $\hbar\omega_F \approx \hbar\omega_I$ , e também  $\mathbf{k}_F \approx \mathbf{k}_I \approx (2\pi/\lambda_I)\eta \hat{\mathbf{z}}$ . O vetor de onda transferido paralelo ao plano do poço é dado por  $q_{\parallel} = 2(2\pi/\lambda_I)\sin\theta \sim 10^4 \text{cm}^{-1}$  até um máximo de  $\sim 2 \times 10^5 \text{cm}^{-1}$ . O momento transferido na direção normal é  $q_z \approx 2(2\pi/\lambda_I)\eta$ , e na região do espectro visível tem valores entre  $5 - 7 \times 10^5 \text{cm}^{-1}$ .



**Figura 4.3:** Geometria de retroespalhamento.

A quantidade chave para o espalhamento Raman é a seção de choque diferencial  $\partial^2\sigma/\partial\Omega\partial\omega$ . Para a região Stokes do espectro e para um ângulo de espalhamento fixo, ela é determinada como a taxa de remoção da energia do laser incidente como resultado do espalhamento num elemento de ângulo sólido  $\partial\Omega$  com frequência entre

$\omega$  e  $\omega + \partial\omega$ , dividido  $\partial\Omega\partial\omega$  vezes a intensidade do raio incidente.

A expressão explícita da seção de choque depende em detalhe da estrutura de banda do semiconductor e da polarização da radiação incidente ( $\hat{\mathbf{e}}_I$ ) e espalhada ( $\hat{\mathbf{e}}_S$ ). Analisaremos o impacto da orientação relativa dessas polarizações. Aplicamos aqui o resultado de Hamilton e McWhorter [43], válido para semicondutores III-V tipo n.

Devido a interação spin-órbita, a banda de valência do GaAs se divide em banda de buraco leve, buraco pesado e split-off (spin-órbita). As duas primeiras ainda são degeneradas no ponto  $\Gamma$ , o que pode ocasionar um espalhamento de terceira ordem [51, 52]. Evitaremos este problema considerando o espalhamento ressonante entre a banda de split-off e a banda de condução, garantindo o processo de segunda ordem com a banda de split-off como estado intermediário.

Para a banda de condução os estados de spin são representados por funções de onda de Bloch de orbital tipo  $s$ . Na banda de split-off esses estados são oriundos de orbital tipo  $p$ . Usando estas funções, é possível demonstrar que a seção de choque de espalhamento é multiplicada pelo termo

$$(\hat{\mathbf{e}}_I \cdot \hat{\mathbf{e}}_S)\delta_{\sigma_\alpha, \sigma_\beta} + i(\hat{\mathbf{e}}_I \times \hat{\mathbf{e}}_S) \cdot \langle \sigma_\alpha | \vec{\sigma} | \sigma_\beta \rangle , \quad (4.1)$$

onde  $\vec{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$  são as matrizes de Pauli;  $|\sigma_\alpha\rangle$  e  $|\sigma_\beta\rangle$  são estados de spin da banda de condução.<sup>2</sup>

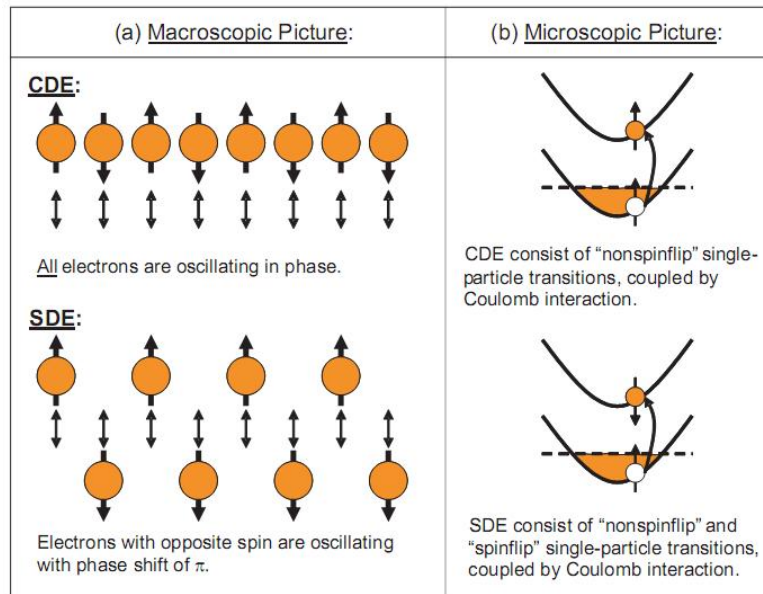
Isto nos diz que o espalhamento de luz por flutuações da densidade eletrônica se divide em duas componentes. O primeiro termo é simétrico com a polarização da luz incidente e espalhada, e está relacionado com a flutuação da densidade de carga. O segundo termo é antissimétrico com  $\hat{\mathbf{e}}_I$  e  $\hat{\mathbf{e}}_S$ , e está relacionado com mudanças nos graus de liberdade do spin, dando origem ao espalhamento por flutuação da densidade de spin e transições spin-flip. Estes dois últimos fenômenos são equivalentes na ausência de um campo magnético externo. Dizemos então que SDE são ativos no espectro depolarizado e CDE, no espectro polarizado.

CDE e SDE são oscilações coletivas do plasma quasi-2D na heteroestrutura. CDE (ou plasmon) é uma oscilação macroscópica da densidade de carga, que é induzida por uma perturbação externa, como o campo eletromagnético da luz. Nas

---

<sup>2</sup>Comentaremos sobre essa demonstração mais adiante. Veja mais detalhes em Schuller [53], seção 4.2.3, que demonstra a eq. 4.1 para o regime de ressonância próxima.

excitações inter-subbanda o gás eletrônico oscila entre as duas interfaces do poço quântico. A figura 4.4 mostra, esquematicamente, a oscilação dos elétrons no modelo macroscópico. Microscopicamente, as excitações consistem de transições inter-subbandas acopladas por interação Coulombiana. Devido ao termo direto da interação, a energia CDE é deslocada para o azul com respeito a energia SPE.



**Figura 4.4:** Modelo esquemático para as excitações coletivas inter-subbandas. Figura tirada da ref. [53].

Em excitação SDE, ao contrário, elétrons com diferentes spins estão oscilando com diferença de fase  $\pi$ . Assim, o centro de massa do gás de elétrons não oscila e não induz perturbações no sistema. SDE são afetadas apenas por efeitos de correlação e troca, que é atrativo para elétrons. Portanto, a energia da excitação SDE é deslocada para o vermelho com respeito à excitação SPE [54].

O cálculos que serão realizados, considerarão a configuração de espectro polarizado:  $\hat{e}_I = \hat{e}_x$  e  $\hat{e}_S = \hat{e}_x$ , tal que (4.1) seja igual a 1. Um raciocínio idêntico segue para o caso do espectro depolarizado, lembrando neste caso qualquer efeito de interação Coulombiana direta deve ser ignorado.

## 4.2 *Formalismo Básico*

Em geral, o espalhamento inelástico de luz por excitações eletrônicas em estruturas semicondutoras pode ser observado sob condições ressonantes específicas interbanda. Isto significa que os estados da banda de valência estão envolvidos no processo de espalhamento como estados intermediários. Ainda, é verificado que excitações de partícula independente aparecem apenas em condições de extrema ressonância. Contudo, a maior parte do trabalho teórico sobre a resposta dinâmica do sistema quasi-2D é feita em condições de não ressonância, negligenciando a estrutura da banda de valência.<sup>3</sup>

Vamos calcular a seção de choque para o espalhamento eletrônico considerando o regime de ressonância interbanda, i.e., as transições ocorrem entre a banda de valência e condução, com a energia do laser incidente ressonante com o gap ótico. [9, 1]

O acoplamento do campo eletromagnético com o sistema eletrônico resulta em um momento adicional  $\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p} + e\mathbf{A}/c$  no Hamiltoniano não perturbado calculado no capítulo 2. Três termos adicionais, tratados como perturbações, surgem:<sup>4</sup>

$$H' = \frac{e^2}{2mc^2} \sum_i \mathbf{A}^2(\mathbf{r}_i) + \frac{e}{2mc} \sum_i [\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_i) + \mathbf{A}(\mathbf{r}_i) \cdot \mathbf{p}_i], \quad (4.2)$$

onde  $\mathbf{p}_i$  é o momento do  $i$ -ésimo elétron e  $\mathbf{A}(\mathbf{r}_i)$  é a soma do potencial vetor para radiação incidente e espalhada no ponto  $\mathbf{r}_i$ . A interação elétron-fônon será tratada dentro da função dielétrica.

Em 1<sup>a</sup> ordem em teoria de perturbação, o termo  $\mathbf{A}^2$  está relacionado com excitações intrabanda, ou seja, transições entre uma mesma subbanda. Em 2<sup>a</sup> ordem, o termo  $\mathbf{pA}$  se relaciona com excitações intrabanda e inter-subbanda (entre as subbandas).

Quanticamente, o espalhamento inelástico de luz estimula uma transição de um fóton do estado  $(\omega_I, \mathbf{k}_I, \hat{\mathbf{e}}_I)$  - com frequência, momentum e polarização incidente - para o estado pós espalhamento  $(\omega_F, \mathbf{k}_F, \hat{\mathbf{e}}_F)$ ; enquanto o sistema de muitas partículas vai do estado inicial  $|I\rangle$  para o estado final  $|F\rangle$ . Aplicando a teoria de per-

<sup>3</sup>Veja também, por exemplo, [55]; [43]; [53]; [56] seção 4.1; [40] seção 2.3.

<sup>4</sup>Para uma revisão sobre interação da radiação com a matéria, veja, por exemplo, Sakurai: *Advanced Quantum Mechanics, cap2*.

turbação dependente do tempo (Regra de Ouro de Fermi) e usando a perturbação, por exemplo, como a descrita pela eq. (4.2), a seção de choque diferencial para  $T = 0$   $K$  será dada por [43]

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial \omega} \sim \frac{\omega_F}{\omega_I} S(\omega) , \quad S(\omega) = \sum_F |M_{FI}|^2 \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) , \quad (4.3)$$

onde  $S(\omega)$  é chamado fator de estrutura dinâmico.  $M_{FI}$  é o elemento de matriz do operador efetivo de espalhamento da luz, que descreve a transição do estado de muitos corpos  $|I\rangle$  com energia  $E_I$  para o estado  $|F\rangle$  com energia  $E_F$ . Antes de apresentarmos a expressão para  $M$ , precisamos lidar com o problema dos estados de muitos corpos, cuja solução não sabemos.

No apêndice B mostramos que o fator de estrutura dinâmico pode ser escrito como a transformada de Fourier de uma função de correlação

$$S(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \langle M^\dagger(t) M(0) \rangle_\omega , \quad (4.4)$$

com  $M(t)$  sendo o operador de espalhamento escrito na representação de Heisenberg. Ainda no apêndice B, derivamos o teorema da flutuação-dissipação, que relaciona a função de correlação à parte imaginária de uma função resposta,

$$S(\omega) = -\frac{\hbar}{\pi} \text{Im} \langle M^\dagger(0) \rangle_\omega . \quad (4.5)$$

A solução para o problema de espalhamento inelástico é remetido à determinação da média de  $M^\dagger$  sobre o estado fundamental do sistema de muitos corpos, que pode ser descrito em termos de funções de onda de um corpo, i.e.,  $|n, \mathbf{k}_\parallel, \sigma\rangle$ .

## **Potencial Externo**

O mecanismo de espalhamento em um gas de elétrons livres é relacionado com o acoplamento da luz com o operador de densidade eletrônica,  $N_q = \sum_k c_{k+q}^\dagger c_k$ . Para o caso de elétrons em um semiconductor, precisamos generalizar o mecanismo de acoplamento para descrever o espalhamento de luz devido a transição eletrônica  $|\alpha\rangle \rightarrow |\beta\rangle$ . O operador de densidade generalizado, ou operador efetivo de espalhamento, é dado por

$$M = \sum_{\alpha\beta} V_{\beta\alpha}^{ext} c_\beta^\dagger c_\alpha , \quad (4.6)$$



onde  $V_{\beta\alpha}^{ext}$  é um elemento de matriz com denominador ressonante que dá a amplitude de espalhamento, descrita no trabalho de Anjos [9] como  $\gamma_{\beta\alpha}$ . Quando explicitamos os índices de spin na última equação, o operador de flutuação de densidade  $c_{\beta}^{\dagger}c_{\alpha}$  fica  $c_{\beta\uparrow}^{\dagger}c_{\alpha\uparrow} \pm c_{\beta\downarrow}^{\dagger}c_{\alpha\downarrow}$  sendo que o sinal  $+$  ( $-$ ) se refere à flutuação de densidade de carga (spin).

Considerando apenas o termo ressonante da transição interbanda [55], temos

$$V_{\beta\alpha}^{ext} = \frac{1}{m} \sum_h \frac{\langle \beta | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_I | h \rangle \langle h | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_F | \alpha \rangle}{E_{res} - \hbar\omega_I + i\gamma}, \quad (4.7)$$

onde  $\gamma$  é um fator de amortecimento fenomenológico;  $|\alpha\rangle$  e  $|\beta\rangle$  são funções envelope da banda de condução calculadas de forma autoconsistente no capítulo 2;  $|h\rangle \equiv |j', \mathbf{k}'_{\parallel}, \sigma'\rangle$  são estados intermediários de buraco na banda de valência. Como estamos considerando apenas transições verticais, o somatório sobre o índice  $\mathbf{k}'_{\parallel}$  se reduzirá à uma delta  $\delta_{\mathbf{k}'_{\parallel}, \mathbf{k}_{\parallel}}$ , com  $\mathbf{k}_{\parallel}$  na banda de condução. Os estados de spin são aqueles descritos pelo modelo de Kane.

Como indicado na figura 4.5,  $E_{res} = E_G + \epsilon_{\beta} + \epsilon_h$ . Dependendo da energia de excitação da radiação incidente, temos os seguintes regimes de ressonância:

*Ressonância Próxima:* a energia do laser é tal que  $E_G - \hbar\omega_I \gg \epsilon_{\beta} + \epsilon_h$ , de modo que  $E_{res} \simeq E_G$ . De fato, a teoria de espalhamento Raman fica enormemente simplificada nesse regime, já que os detalhes da estrutura dos níveis de energia são desprezados, permitindo que se use completude para eliminar os estados intermediários da banda de valência. Porém, 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.

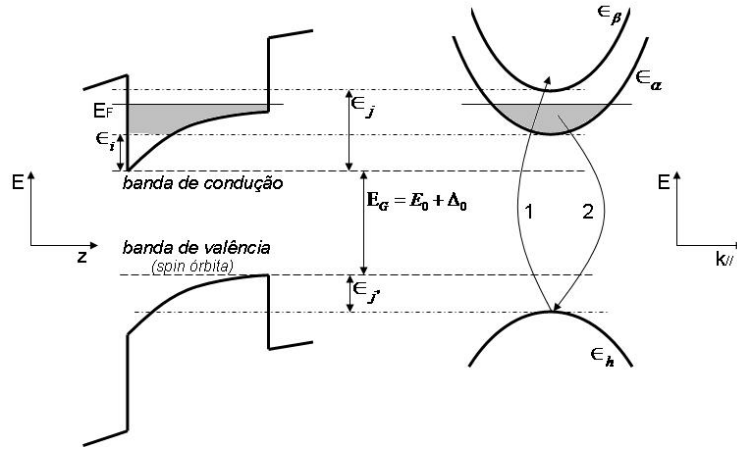
*Ressonância Extrema:* a energia da luz incidente coincide com a energia do gap da banda *split-off* mais os estados da banda de valência e condução envolvidos na transição. A dependência da estrutura de banda com  $\mathbf{k}$  deve ser considerada. Isto foi experimentalmente reconhecido por Pinczuk *et al.* [57] em bulk n-GaAs, e teoricamente explicado por Klein [56]. A expressão para  $E_{res}$  considerando a estrutura detalhada dos níveis de energia toma a forma

$$E_{res} = E_G + \epsilon_j(k) + \epsilon_{j'}(k') = E_G + \epsilon_j + \epsilon_{j'} + \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}. \quad (4.8)$$

Note que assumimos  $\delta_{k', k}$ . A massa reduzida  $\mu$  entre os elétrons na banda de condução e os buracos na banda de valência é dado por:  $\mu^{*-1} = m^{*-1} + m_{so}^{*-1}$ .

Na figura 4.5 também ilustramos as transições virtuais descritas pelos elementos de matriz contidos na eq. (4.7). A radiação penetra no semiconductor e excita um elétron da banda de valência para banda de condução, para um estado desocupado acima do nível de Fermi (passo 1). Um elétron abaixo do nível de Fermi sente o buraco deixado pelo elétron excitado e emite um fóton para recombinar-se com o buraco na banda de valência (passo 2).

Esses dois processos são virtuais, eles não conservam energia, pois são estados intermediários em teoria de perturbação. O processo real, o que realmente podemos medir e que conserva energia, é a excitação direta na banda de condução de um estado ocupado  $|\alpha\rangle \equiv |i, \mathbf{k}_{\parallel}, \sigma_{\alpha}\rangle$  para um estado desocupado  $|\beta\rangle \equiv |j, \mathbf{k}_{\parallel} + \mathbf{q}_{\parallel}, \sigma_{\beta}\rangle$ .



**Figura 4.5:** Bandas e sub-bandas de energia do poço quântico no espaço real (esquerda) e recíproco (direita). O estado  $|h\rangle$  tem dispersão  $\epsilon_h = \epsilon_{j'} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{so}^*}$  e o estado  $|\beta\rangle$ ,  $\epsilon_{\beta} = \epsilon_j + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}$ , com  $\mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_{\parallel}$ . Também é mostrado uma excitação inter-banda descrita pelo elemento de matriz da eq. (4.7).

Vamos analisar a eq. (4.7) considerando uma geometria de retroespalhamento,  $z(x, x)\bar{z}$ , ou seja, o laser incide perpendicularmente no material (i.e, sentido  $z$ ) com polarização  $\hat{e}_x$  e é retroespalhado na direção  $-\hat{z}$  com polarização também  $\hat{e}_x$ . Como estamos interessados somente em excitações inter-subbanda, assumiremos que o momento transferido pela luz está ao longo do eixo  $z$ , com  $|\mathbf{k}_I| = |\mathbf{k}_F| = q_z/2$ . Dessa

forma,

$$\begin{aligned}\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_I &= \mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{e}}_x e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}} = p_x e^{iq_z z/2}, \\ \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_F &= \mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{e}}_x e^{-i\mathbf{k}_F \cdot \mathbf{r}} = p_x e^{iq_z z/2}.\end{aligned}$$

Como visto no capítulo 2, os estados da banda de condução e valência podem ser descritos, dentro da aproximação de massa efetiva, como funções de onda de um corpo  $\langle \mathbf{r} | n \rangle = e^{ik_{\parallel} \mathbf{r}_{\parallel}} \zeta_n^{(b)}(z) u^{(b)}(\mathbf{r})$ , onde  $u$  é o spinor (função de Bloch) da banda de valência (v) ou condução (c). Uma vez que  $p_x$  atua somente sobre  $u^{(b)}(\mathbf{r})$ , os elementos de matriz na eq. (4.7) ficam reduzidos aos estados de função envelope,

$$\langle \beta | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_I | h \rangle \langle h | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_F | \alpha \rangle = \delta_{k',k} \langle \sigma_{\beta} | p_x | \sigma' \rangle \langle \sigma' | p_x | \sigma_{\alpha} \rangle \langle j | e^{iq_z z/2} | j' \rangle \langle j' | e^{iq_z z/2} | i \rangle.$$

Podemos fazer esta última passagem de forma mais clara, explicitando  $\langle \sigma | p_x | \sigma' \rangle$ :

$$\begin{aligned}\langle S \uparrow | p_x | u^v \downarrow \rangle &= \frac{1}{\sqrt{3}} \langle S \uparrow | p_x | (X - iY) \uparrow - Z \downarrow \rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \langle S \uparrow | p_x | X \uparrow \rangle \\ \langle S \downarrow | p_x | u^v \uparrow \rangle &= \frac{1}{\sqrt{3}} \langle S \downarrow | p_x | (X + iY) \downarrow + Z \uparrow \rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \langle S \downarrow | p_x | X \downarrow \rangle \\ \langle S \uparrow | p_x | u^v \uparrow \rangle &= 0 \\ \langle S \downarrow | p_x | u^v \downarrow \rangle &= 0\end{aligned}$$

Definimos  $\langle \sigma | p_x | \sigma' \rangle \sqrt{3} \equiv \langle S | p_x | X \rangle \equiv P_{cv}$  como o elemento de matriz de momentum interbanda. Fica explícito também que  $\langle \sigma_{\beta} | p_x | \sigma' \rangle \langle \sigma' | p_x | \sigma_{\alpha} \rangle$  é não nulo apenas se  $\sigma_{\alpha} = \sigma_{\beta}$ , i.e., no mecanismo de flutuação de densidade de carga, que se configura no espectro polarizado, não ocorre mudança do estado de spin.<sup>5</sup>

<sup>5</sup>É possível agora demonstrar a eq. (4.1) seguindo a seguinte linha de raciocínio,

$$\begin{aligned}V_{\beta\alpha}^{ext} &= \frac{1}{m} \sum_h \frac{\langle \beta | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_I | h \rangle \langle h | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_F | \alpha \rangle}{E_{res} - \hbar\omega_I + i\gamma} \\ &= \left( \sum_{\sigma'} \langle \sigma_{\beta} | \mathbf{p} | \sigma' \rangle \langle \sigma' | \mathbf{p} | \sigma_{\alpha} \rangle \hat{\mathbf{e}}_I \cdot \hat{\mathbf{e}}_F \right) \frac{1}{m} \sum_{j'k'} \frac{\langle jk | e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}} | j'k' \rangle \langle j'k' | e^{-i\mathbf{k}_F \cdot \mathbf{r}} | ik \rangle}{E_{res} - \hbar\omega_L + i\gamma} \delta_{k',k} \\ &= \left( (\hat{\mathbf{e}}_I \cdot \hat{\mathbf{e}}_F) \delta_{\sigma_{\alpha}, \sigma_{\beta}} + i(\hat{\mathbf{e}}_I \times \hat{\mathbf{e}}_F) \cdot \langle \sigma_{\alpha} | \vec{\sigma} | \sigma_{\beta} \rangle \right) \frac{P_{cv}^2}{3m} \sum_{j'} \frac{\langle j | e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}} | j' \rangle \langle j' | e^{-i\mathbf{k}_F \cdot \mathbf{r}} | i \rangle}{E_{res} - \hbar\omega_L + i\gamma}.\end{aligned}$$

Um cálculo mais detalhado, embora menos geral, é feito por Schuller [53], seção 4.2.3. A constante  $P_{cv}^2/3m$  não é incluída nas simulações.

Assim, o potencial externo eq. (4.7), na configuração de *retroespalhamento* e no regime de *ressonância extrema*, toma a forma

$$V_{ji}^{ext}(\mathbf{k}_{\parallel}) = \frac{P_{cv}^2}{3m} \sum_{j'} \frac{\langle j | e^{iq_z z/2} | j' \rangle \langle j' | e^{iq_z z/2} | i \rangle}{E_G + \epsilon_j + \epsilon_{j'} + \hbar^2 k_{\parallel}^2 / 2\mu^* - \hbar\omega_I + i\gamma}. \quad (4.9)$$

## Função Resposta

Voltemos nossa atenção agora para a eq. (4.5). A função resposta em  $t = 0$  é dada por

$$\langle M^{\dagger} \rangle_{\omega} = \sum_{\alpha\beta} [V_{\beta\alpha}^{ext}]^* \langle c_{\alpha}^{\dagger} c_{\beta} \rangle_{\omega} = \sum_{\alpha\beta} [V_{\beta\alpha}^{ext}]^* \frac{f_{\alpha} - f_{\beta}}{\epsilon_{\alpha} - \epsilon_{\beta} + \hbar\omega} V_{\beta\alpha}, \quad (4.10)$$

onde usamos a componente de Fourier da eq. (A.4). Explicitando-se os índices quânticos da heteroestrutura ( $i, \mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_{\parallel}, \sigma$ ), e procedendo de forma análoga à seção 3.2, a equação anterior fica

$$\begin{aligned} \langle M^{\dagger} \rangle_{\omega} &= \lim_{q \rightarrow 0} \sum_{\substack{i, \mathbf{k}, \sigma \\ j, \mathbf{k}', \sigma'}} [V_{ji}^{ext}(\mathbf{k})]^* \frac{f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k}' + \mathbf{q})}{\epsilon_i(\mathbf{k}) - \epsilon_j(\mathbf{k}' + \mathbf{q}) + \hbar\omega} V_{ji} \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}' + \mathbf{q}} \delta_{\sigma, \sigma'} \\ &= \sum_{ij} \frac{V_{ji}}{\hbar(\omega - \omega_{ji})} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})] [V_{ji}^{ext}(\mathbf{k})]^* \\ &= \sum_{ij, j>i} \frac{2\hbar\omega_{ji} V_{ji}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})] [V_{ji}^{ext}(\mathbf{k})]^*. \end{aligned} \quad (4.11)$$

Agora o somatório (integral) sobre  $\mathbf{k}$  é mais elaborado, pois  $V_{ji}^{ext}(\mathbf{k})$ , eq. (4.9), também é função de  $\mathbf{k}$ . Será útil definir uma média estatística sobre esses estados para uma função genérica  $F_{ji}(\mathbf{k})$ , tal que

$$\overline{F_{ji}} \equiv N_{ji}^{-1} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})] F_{ji}(\mathbf{k}); \quad N_{ji} \equiv \sum_{\mathbf{k}, \sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})].$$

A eq. (4.11) por ser reescrita como

$$\langle M^{\dagger} \rangle_{\omega} = \sum_{ij, j>i} \frac{2\hbar\omega_{ji} N_{ji} V_{ji}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)} \overline{[V_{ji}^{ext}]^*} = \sum_{ij, j>i} 2\hbar\omega_{ji} N_{ji} \overline{[V_{ji}^{ext}]^*} x_{ji}, \quad (4.12)$$

onde foi usado a coordenada generalizada  $x_{ji} = [\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)]^{-1} V_{ji}$ , introduzida na seção 3.3.

A expressão anterior dá as excitações coletivas do sistema eletrônico em resposta à perturbação externa. Porém, experimentalmente é verificado que excitações SPE surgem no regime de extrema ressonância e desaparecem fora dele. A fim de reproduzir essas excitações, Anjos e Ioriatti [9] adicionaram o termo  $V_{\beta\alpha}^{ext} - \overline{V_{\beta\alpha}^{ext}}$  ao potencial total. Note que  $V_{\beta\alpha}^{ext}$ , eq. 4.9, depende em detalhe da estrutura eletrônica, mas no regime de ressonância próxima independe de  $\mathbf{k}_{\parallel}$ , assim  $\overline{V_{\beta\alpha}^{ext}} = V_{\beta\alpha}^{ext}$ . Fazendo  $V_{\beta\alpha} \rightarrow V_{\beta\alpha}^{ext} - \overline{V_{\beta\alpha}^{ext}} + V_{\beta\alpha}$  na eq. 4.10, surgem dois termos adicionais:

$$\sum_{\alpha\beta} \frac{f_{\alpha} - f_{\beta}}{\epsilon_{\alpha} - \epsilon_{\beta} + \hbar\omega} [V_{\beta\alpha}^{ext}]^* V_{\beta\alpha}^{ext} = \sum_{ij, j>i} \frac{2\hbar\omega_{ji} N_{ji}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)} |\overline{V_{ji}^{ext}}|^2, \quad (4.13)$$

e

$$- \sum_{\alpha\beta} \frac{f_{\alpha} - f_{\beta}}{\epsilon_{\alpha} - \epsilon_{\beta} + \hbar\omega} [V_{\beta\alpha}^{ext}]^* \overline{V_{\beta\alpha}^{ext}} = - \sum_{ij, j>i} \frac{2\hbar\omega_{ji} N_{ji}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)} \overline{V_{ji}^{ext}} [\overline{V_{ji}^{ext}}]^*. \quad (4.14)$$

Dessa forma,

$$\langle M^{\dagger} \rangle_{\omega} = \sum_{ij, j>i} 2\hbar\omega_{ji} N_{ji} \left[ \frac{|\overline{V_{ji}^{ext}}|^2 - |\overline{V_{ji}^{ext}}|^2}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)} + [\overline{V_{ji}^{ext}}]^* x_{ji} \right]. \quad (4.15)$$

Analisando a eq. (4.15), podemos ver que o primeiro termo tem pólos nas frequências das transições não acopladas, então representa a contribuição das excitações de partículas independentes. O segundo termo, tendo pólos nas autofrequências do sistema acoplado, representa a resposta coletiva do gas de elétrons.

Note que o numerador do termo de partícula independente é claramente expressado como uma variância,

$$|\overline{V_{ji}^{ext}}|^2 - |\overline{V_{ji}^{ext}}|^2 = \overline{\left( |V_{ji}^{ext}| - |\overline{V_{ji}^{ext}}| \right)^2}.$$

Esta variância será diferente de zero somente no regime de extrema ressonância, onde  $\mathbf{k}_{\parallel}$  fornecerá contribuições diferentes para  $\overline{V_{ji}^{ext}}$  e  $V_{ji}^{ext}$ . *Portanto a ocorrência de SPE pode ser interpretada como o resultado de um desvio do valor médio do potencial externo.*

Em condições de ressonância próxima, por outro lado, todos os denominadores de energia de  $V_{ji}^{ext}(\mathbf{k}_{\parallel})$  são substituídos por uma média, que é consequência da eliminação dos estados intermediários na banda de valência através de completiza [58]. Assim, a dependência do potencial externo em  $\mathbf{k}_{\parallel}$  é perdida, cancelado o termo

de partícula independente. Este resultado mostra consistentemente que no regime de ressonância próxima somente excitações coletivas estão presentes.

Como explicado na seção 3.3, a coordenada generalizada  $x_{ji}$  é determinada resolvendo-se a equação matricial 3.9,

$$\sum_{\substack{ij \\ j>i}} [\hbar^2(\omega^2 - \omega_{ji}^2)\delta_{ij,mn} - 2N_{ji}\hbar\omega_{ji}C_{ij,mn}] x_{ji} = V_{nm}^{ext} ,$$

que pode ser reescrita como

$$\sum_{\substack{ij \\ j>i}} [(\hbar\omega)^2\delta_{ij,mn} - U_{ij,mn}(\omega) + i\Gamma_{ji}\hbar\omega\delta_{ij,mn}] x_{ji} = V_{nm}^{ext} , \quad (4.16)$$

onde explicitamos a parte imaginária da frequência,

$$\hbar^2(\omega + i\gamma)^2 = (\hbar\omega)^2 + 2i\hbar^2\omega\gamma - (\hbar\gamma)^2 \simeq (\hbar\omega)^2 + i\Gamma\hbar\omega ,$$

e  $\Gamma \equiv 2\hbar\gamma$ ;  $\gamma^2 \rightarrow 0$ . Para representar melhor uma situação real, vamos associar a cada transição  $i \rightarrow j$  um amortecimento característico  $\Gamma_{ji} = 2\hbar\gamma_{ji}$ . Além disso definimos

$$U_{ij,mn}(\omega) \equiv 2N_{ji}\hbar\omega_{ji}C_{ij,mn}(\omega) + (\hbar\omega_{ji})^2\delta_{ij,mn} . \quad (4.17)$$

Lembre que a dependência em  $\omega$  de  $U_{ij,mn}$  vem da função dielétrica  $\varepsilon(\omega)$ , eq. (3.5). Contudo uma consideração fundamental neste trabalho é que  $\varepsilon(\omega)$  seja real, i.e., ignorando o termo imaginário da função dielétrica estamos desconsiderando o tempo de vida dos fônons.

Por simplicidade, vamos colocar eq. (4.16) em sua forma matricial

$$[\mathbf{U} - (\hbar\omega)^2\mathbf{I} - i\hbar\omega\mathbf{\Gamma}] \cdot \mathbf{x} = -\mathbf{V}^{ext} , \quad (4.18)$$

sendo  $\mathbf{I}$  a matriz identidade. De forma a obter as partes real e imaginária de  $\mathbf{x}$ , multiplicamos a equação anterior por  $[\mathbf{U} - (\hbar\omega)^2\mathbf{I} - i\hbar\omega\mathbf{\Gamma}]^\dagger$ . Como  $\mathbf{U}$  e  $\mathbf{\Gamma}$  são matrizes reais e simétricas, e além disso  $\mathbf{x} = \mathbf{x}_R + i\mathbf{x}_I$  e  $\mathbf{V}^{ext} = \mathbf{V}_R^{ext} + i\mathbf{V}_I^{ext}$ , com o índice R (I) denotando a parte real (imaginária) dos vetores  $\mathbf{x}$  e  $\mathbf{V}^{ext}$ , obtemos o seguinte sistema

$$\begin{aligned} [(\mathbf{U} - (\hbar\omega)^2\mathbf{I})^2 + (\hbar\omega\mathbf{\Gamma})^2] \cdot \mathbf{x}_R &= -(\mathbf{U} - (\hbar\omega)^2\mathbf{I}) \cdot \mathbf{V}_R^{ext} + \hbar\omega\mathbf{\Gamma} \cdot \mathbf{V}_I^{ext} \\ [(\mathbf{U} - (\hbar\omega)^2\mathbf{I})^2 + (\hbar\omega\mathbf{\Gamma})^2] \cdot \mathbf{x}_I &= -(\mathbf{U} - (\hbar\omega)^2\mathbf{I}) \cdot \mathbf{V}_I^{ext} - \hbar\omega\mathbf{\Gamma} \cdot \mathbf{V}_R^{ext} . \end{aligned}$$

Estas equações podem ser resolvidas usando decomposição LU seguida de *backsubstitution* para cada frequência  $\omega$ .<sup>6</sup> Achada a solução para  $\mathbf{x}$ , e expressões explícitas para o potencial externo em  $\overline{|V_{ji}^{ext}|}$  e  $\overline{|V_{ji}^{ext}|^2}$ , podemos determinar a função resposta (e então a seção de choque) para cada frequência  $\omega$ .<sup>7</sup>

Equações similares podem ser obtidas para flutuações de densidade de spin. Para isso, basta retirar o termo de Hartree  $\alpha_{ij,mn}$  e substituir o potencial  $\beta_{ij}^{CDE}$  pelo termo  $\beta_{ij}^{SDE}$  nas expressões previamente definidas para a matriz de acoplamento Coulombiano  $C_{ij,mn}$ .

### 4.3 Excitações Eletrônicas no Formalismo BCS

Há duas formas de se entender fisicamente porque a eq. (4.15) possui modos coletivos e de single-particle. Anjos e Ioriatti [9], fizeram uma analogia das excitações inter-subbandas no espalhamento Raman Ressonante com um sistema de osciladores acoplados, forçados e amortecidos (seção 3.3).

Por outro lado, usando o conceito de líquido de Fermi é possível demonstrar que essas excitações são como pares de Cooper da teoria BCS, que explica o estado supercondutor normal [11, 59]. Em outras palavras, o fenômeno de espalhamento inelástico de luz, o fenômeno de osciladores clássicos acoplados [60], e o estado supercondutor normal são descritos basicamente com o mesmo formalismo. Formalismo esse que ilustramos a seguir.

Considere um sistema *degenerado* de  $N$  elétrons *não-interagentes* com energia  $\epsilon_F$ , de modo que  $\epsilon(\mathbf{k}_F) = cte$  representa uma superfície equipotencial esférica no espaço recíproco (esfera de Fermi). Neste caso, o estado quântico é dado pelo determinante de Slater, que é descrito em termos de  $N$  estados de partícula independente, e o Hamiltoniano tem autoenergias representado pela matriz diagonal

$$\{\epsilon_F\}_{diag} = \begin{vmatrix} \epsilon_F & & \cdots & 0 \\ & \epsilon_F & & \\ \vdots & & \ddots & \\ 0 & & & \epsilon_F \end{vmatrix} .$$

<sup>6</sup>Ref. [33], cap. 2.

<sup>7</sup>No apêndice C desenvolvemos uma expressão analítica para o termo  $\overline{|V_{ji}^{ext}|}$  enquanto que para  $\overline{|V_{ji}^{ext}|^2}$  utilizamos integração numérica.

Agora considere que os elétrons interajam fracamente entre si de forma que a interação seja igual para todos os pares. Diz-se que o acoplamento  $C_{ij}$  entre quaisquer  $i$ -ésimo e  $j$ -ésimo elétron no sistema é degenerado. Considere que o acoplamento seja atrativo, tal que  $C_{ij} = -V(1 - \delta_{ij})$ . Ao diagonalizarmos a expressão  $\{\epsilon_F\}_{diag} + \{C_{ij}\}$ , teremos as energias renormalizadas pelas interações. Assim,

$$\det \left| \{\epsilon_F\}_{diag} + \{C_{ij}\} - \lambda \delta_{ij} \right| = - \det \left| \begin{array}{cccc} \lambda - \epsilon_F & V & \cdots & V \\ V & \lambda - \epsilon_F & & \\ \vdots & & \ddots & \\ V & & & \lambda - \epsilon_F \end{array} \right|_{N \times N} = 0 .$$

Para uma matriz de ordem 1 ou 2 a solução é trivial. Para  $N \geq 3$  podemos obter

$$(\lambda - \epsilon_F)^N + (N-1)V^N - N(\lambda - \epsilon_F)V^{N-1} = [\lambda - (\epsilon_F - (N-1)V)][\lambda - (\epsilon_F + V)]^{N-1} = 0 .$$

O lado direito da última equação é obtido por indução matemática, e também se verifica que abrange o caso para  $N \leq 2$ . Vemos que existem  $(N-1)$  modos (estados) normais com energia  $\epsilon_F + V$  e um estado *condensado* com energia  $\epsilon_F - (N-1)V$ .

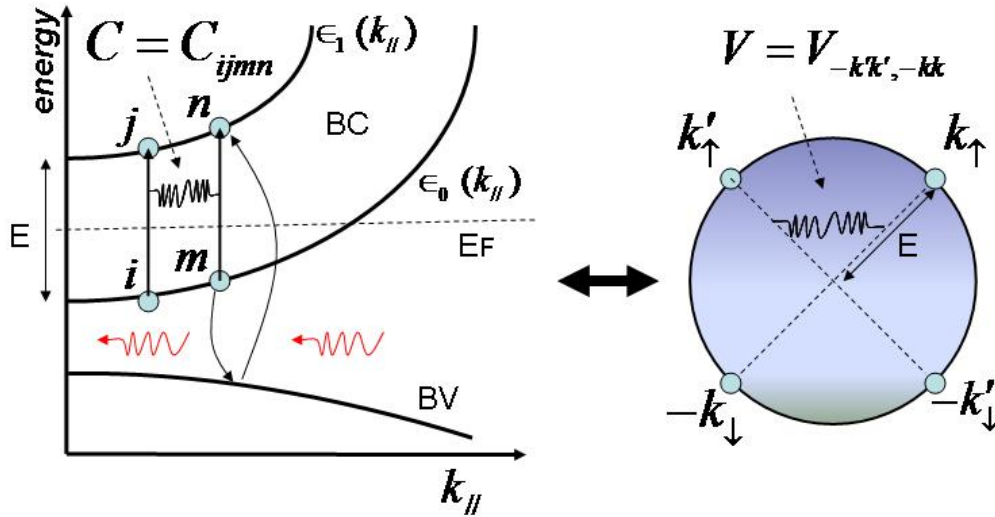
Assim, as interações renormalizam o sistema de modo que

$$\left| \begin{array}{cccc} \epsilon_F & -V & \cdots & -V \\ -V & \epsilon_F & & \\ \vdots & & \ddots & \\ -V & & & \epsilon_F \end{array} \right|_{N \times N} \longrightarrow \left| \begin{array}{cccc} \epsilon_F - (N-1)V & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & \epsilon_F + V & & \\ \vdots & & \ddots & \\ 0 & & & \epsilon_F + V \end{array} \right|_{N \times N} .$$

Agora vamos aplicar esse resultado para as excitações inter-subbandas. Na figura 4.6, identificamos o oscilador ( $i \rightarrow j$ ) como uma excitação entre os estados não-interagentes na banda de condução. Além de ser amortecido por centros espalhadores, tal oscilador ainda é acoplado com outras excitações (i) por interação Coulombiana direta e efeito de correlação e troca para o caso CDE, (ii) e apenas por efeitos de correlação e troca para o caso SDE.

Como  $q_{\parallel} = 0$ , os processos inter-subbandas tem transições degeneradas  $E$  ao longo de  $k_{\parallel}$  que igualmente acopladas por  $C_{ijmn}$ , eq. (3.5). Portanto, temos de resolver uma equação secular de um sistema de  $N$  osciladores cujo determinante tem elementos diagonais degenerados ( $E$ ) e elementos não-diagonais igualmente acoplados ( $C$ ). É importante frisar que a renormalização das excitações coletivas são





**Figura 4.6:** Correspondência entre o espalhamento Raman ressonante e a formação do estado supercondutor na teoria BCS.

independente da área: da eq. (3.5),  $C \sim 1/A$ ; e da eq. (C.2),  $N \sim A$ . Portanto, as excitações coletivas, que dependem do produto  $NC$ , são finitas. Enquanto isso, nas excitações de single-particle teremos  $E + C \rightarrow E$ , i.e., SPE praticamente não são renormalizados. O ponto crucial é que a renormalização de SPE só é revelada no regime de extrema ressonância, condição na qual SPE terá uma força de oscilador não negligenciável.

Assim, os  $N$  modos normais serão sempre do tipo:  $(N - 1)$  modos degenerados com energia não-renormalizada proporcional ao acoplamento entre os osciladores, o que caracteriza sua natureza como SPE; um modo com energia renormalizada por uma quantidade macroscópica, caracterizando uma excitação coletiva. De acordo com as regras de seleção o modo coletivo terá um deslocamento de energia para o azul (CDE) ou para o vermelho (SDE) em comparação com a energia da excitação SPE não-renormalizada.

Para o estado supercondutor a interação elétron-fônon na superfície de Fermi do metal é responsável por um acoplamento degenerado entre dois pares de elétrons (pares de Cooper). O potencial BCS é exatamente correspondente ao mecanismo SDE, i.e., atrativo. Para CDE o comportamento é repulsivo. Em ambos os casos, a diagonalização da matriz de acoplamento resulta em  $N$  estados renormalizados

tal que: um estado corresponde à excitação coletiva coerente de carga/spin, ou, seguindo nossa analogia, corresponde ao estado supercondutor; os restantes  $(N - 1)$  estado são SPE, ou os estados normais do metal.

Finalmente, a necessidade das duas condições acima é claramente vista nos resultados de Steinebach *et al.* [61] em pontos quânticos, onde desvios dos valores de SPE foram encontrados. Isto é natural, já que em pontos quânticos temos quebra das condições acima estabelecidas, i.e., os pares de transições não são degenerados.

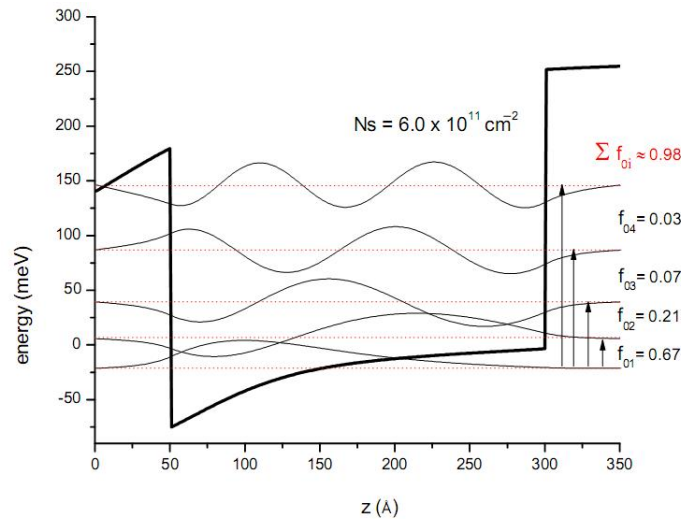
# Capítulo 5

## *RESULTADOS E CONCLUSÕES*

### Forças de Oscilador

A Regra de Soma (ver Apêndice CC) constitui um teste importante ao qual os autoestados e autoenergias de um sistema quântico sujeito a uma perturbação devem obedecer. Ela é um poderoso vínculo entre resultados teóricos e experimentais.

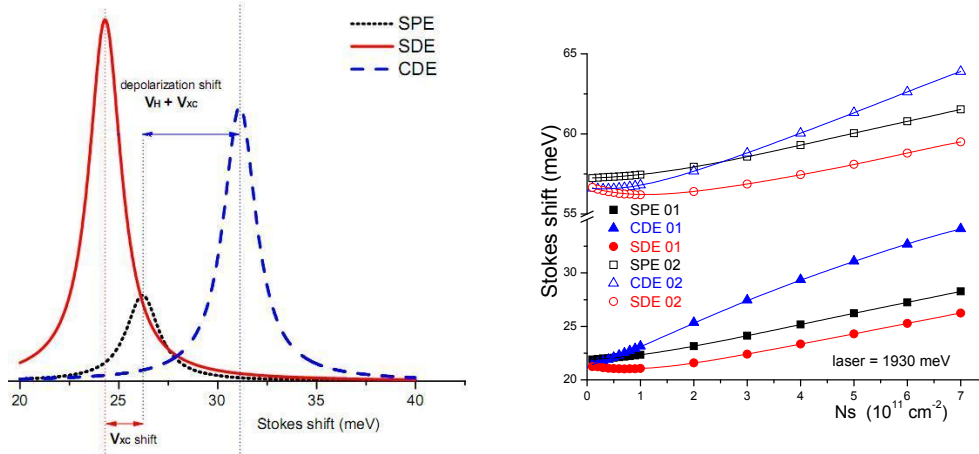
Na figura 5.1 temos as forças de osciladores das transições possíveis do estado fundamental para os estados excitados dentro do poço quântico. Excitações para o contínuo tem forças de oscilador desprezíveis.



**Figura 5.1:** Força de oscilador para transições dentro do poço quântico para  $N_s = 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  quando somente o estado fundamental é ocupado. Para  $N_s < 3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  a soma das forças de oscilador dentro do poço atinge 0,99.

## Colapso do termo de Hartree

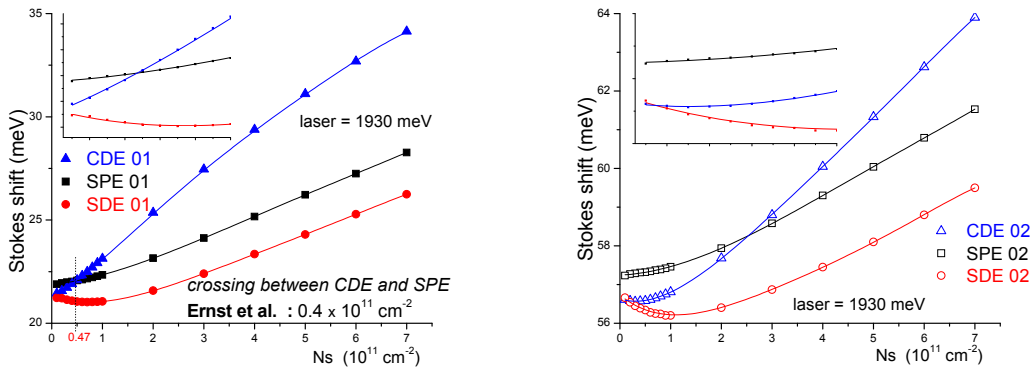
A figura 5.2(a) mostra os espectros de excitações coletivas polarizado e depolarizado referente a transição 01. Os deslocamentos em relação ao pico SPE são uma medida da intensidade da interação Coulombiana: SDE são deslocados para energias menores que SPE devido a correção de vértice devido a efeitos de exchange (Vxc shift) e CDE são deslocadas para energias maiores que SPE devido ao termo de Hartree. Em 5.2(b) temos as energias dos modos coletivos e de single-particle em função da densidade eletrônica bidimensional,  $N_S$ .



**Figura 5.2:** (a) Espectros Raman com os dois modos possíveis de polarização da luz: polarizado e depolarizado. Em extrema ressonância, o pico de partícula independente aparece nos dois espectros. (b) Energias das excitações CDE, SDE, e SPE em função de  $N_S$  envolvendo transições 01 e 02, ignorando o acoplamento plasmon-LO fônon.

Uma análise mais detalhada dos espectro para as transição 01 e 02 é mostrada na figura 5.3. Em termos gerais, quando a densidade aumenta temos um aumento na energia de todos os conjuntos de excitações. Por outro lado, para densidades baixas a contribuição de Hartree (interação Coulombiana direta) é pequena devido ao número reduzido de elétrons envolvidos no processo. Como resultado, um cruzamento entre  $CDE_{01}$  e  $SPE_{01}$  deveria ocorrer a uma densidade crítica. Isto é chamado de colapso do termo de Hartree. A densidade crítica obtida por nós foi  $N_c = 0.47 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , que está em excelente acordo com o resultado experimental de Ernst *et al.* [2],  $N_c = 0.4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , em um poço quântico com os mesmos parâmetros.

Para o conjunto 02 o cruzamento ocorre em  $N_c = 2.5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ , que é maior que a densidade anterior. A razão é que a sobreposição de função de onda das subbandas é pequena para o conjunto 02. Isto implica numa flutuação de densidade de carga menor, que por sua vez implica em uma interação Coulombiana menor. Há ainda um inesperado cruzamento adicional entre  $CDE_{02}$  e  $SPE_{02}$  que ocorre em  $N_c = 0.15 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ .

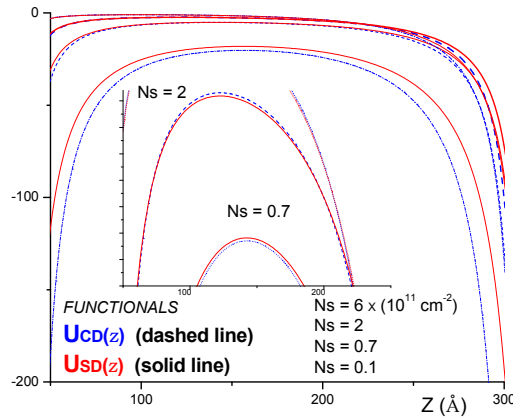


**Figura 5.3:** Transições do estado fundamental para o (a) primeiro e (b) segundo estado excitado, ignorando o acoplamento plasmon-LO fônon.

Para entender este comportamento entre CDE e SDE, observe os funcionais de correlação e troca  $U_{CD}(z)$  e  $U_{SD}(z)$  (modos coletivos de densidade de carga e spin, respectivamente) para algumas densidades na figura 5.4. Na ref. [62], estes funcionais, eqs. (11,12) tem o primeiro termo (exchange) idêntico. No entanto, o segundo termo (correlação) diferencia os funcionais conforme a densidade. Note que há um cruzamento entre  $U_{CD}(z)$  e  $U_{SD}(z)$  quando a densidade diminui. Considerando este efeito no potencial induzido, eq. (A.1), o colapso do termo de Hartree fica mais evidente até que CDE se torna menor que SDE para  $N_s$  muito pequeno.

### Acoplamento plasmon-LO fônon

Outro ponto interessante é que em semicondutores polares, como GaAs, o modo coletivo CDE's pode acoplar (através de seu campo elétrico macroscópico) ao fônon LO. Para levar este acoplamento em conta, nós substituímos no termo de interação Coulombiana direto, a constante dielétrica de alta frequência  $\epsilon_\infty$ , pela



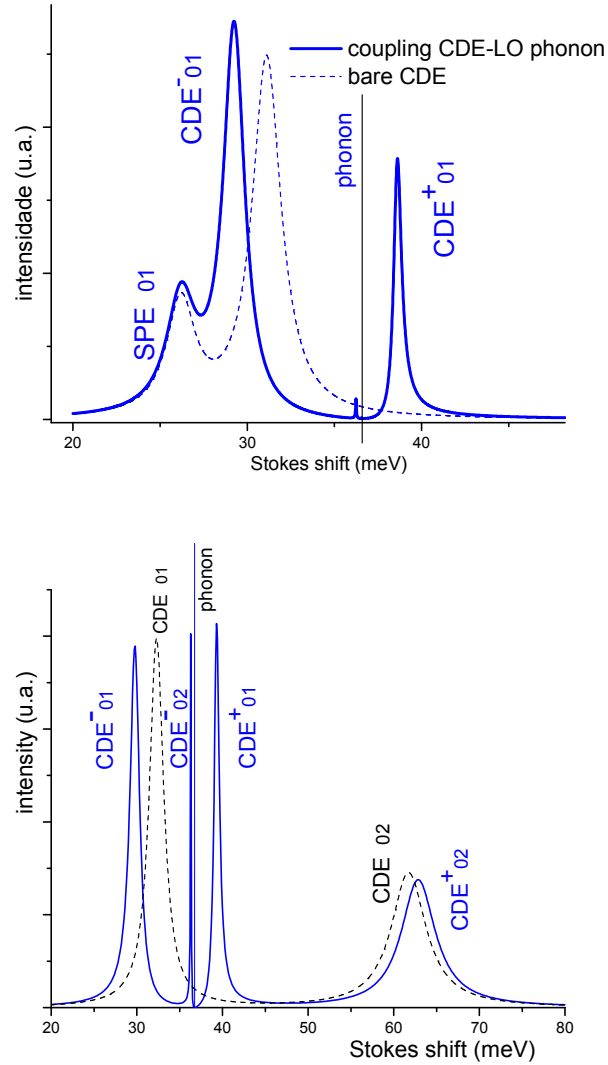
**Figura 5.4:** Comportamento dos funcionais de correlação e troca  $U_{CD}(z)$  e  $U_{SD}(z)$  para alguns valores de densidade num poço quântico de  $250 \text{ \AA}$ . Os funcionais se cruzam para um valor de densidade entre  $(0.7 - 2) \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ .

função dielétrica dependente da frequência,  $\varepsilon_L(\omega)$ . A figura 5.5(a) mostra o espectro para a primeira excitação inter-subbanda quando  $\varepsilon_L(\omega) = cte$  e quando se considera o acoplamento plasmon LO fônon.<sup>1</sup>

Na figura 5.5(b) fica claro que os modos acoplados se desdobram em dois tipos de acoplamentos: forte e fraco. No primeiro caso, as excitações do plasmon são próximas do fônon LO e por isso vão interagir fortemente, criando modos similares à  $L_+$  e  $L_-$  em três dimensões [46]. Este é o caso para transição  $E_{01}$ , que se desdobra em  $CDE_{01}^-$  e  $CDE_{01}^+$ . O regime de acoplamento fraco corresponde aos modos  $CDE_{02}^-$  e  $CDE_{02}^+$ , (podemos falar em quasi-fônon e quasi-plasmon, respectivamente) sendo este último dominado pelo modo  $SPE_{02}$  em extrema ressonância.

Considerando agora excitações para subbanda mais enérgicas, também existem modos de *quasi-fônons* próximos à energia do fônon LO,  $\omega_{LO} = 36.6 \text{ meV}$ , mostrados na figura 5.6. No entanto, estes modos são extremamente fracos e tem largura de linha de décimos até milésimos de  $\text{meV}$ ! Nas simulações foi possível detectar essas excitações até mesmo para transições para o contínuo, desde que se tenha uma força de oscilador não nula e uma precisão (não factível experimentalmente) de décimo

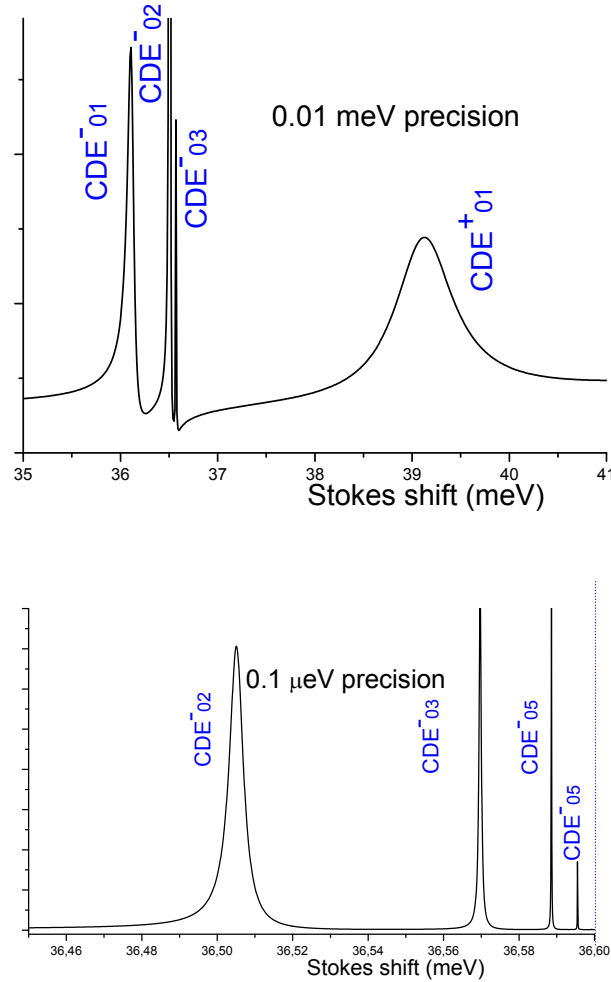
<sup>1</sup>Lembre que fizemos  $\varepsilon_L(\omega)$  real, com isso o tempo de vida do fônon LO é infinito e sua largura de linha é zero, representada apenas por um tracejado nas figuras 5.5 e 5.6.



**Figura 5.5:** (a) Efeito da interação plasmon LO fônon para o modo  $CDE_{01}$ . (b) Efeito da interação plasmon LO fônon no espectro de modos coletivos.

de  $\mu eV$ ! Nos experimentos o pico do fônon LO é ativo óticamente em qualquer geometria de polarização, e sua largura de linha normalmente sobrepõe os modos de *quasi-fônons*, terminando assim por desencorajar qualquer observação detalhada desses modos.

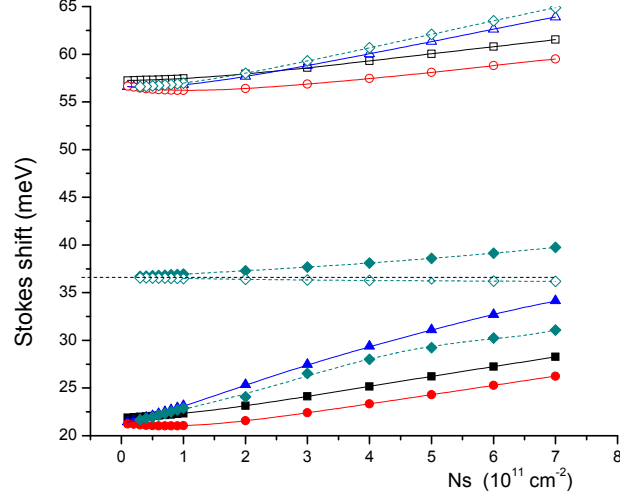
Na figura 5.7 temos o mesmo gráfico que em 5.2(b), mas agora considerando



**Figura 5.6:** Modos coletivos para o acoplamento plasmon-LO fônion. Em (a) tem-se uma precisão de 0.1 meV e em (b) uma precisão 100 vez maior.

o efeito do acoplamento plasmon-LO fônion. Os modos acoplados  $CDE_{01}^-$  e  $CDE_{01}^+$  mostram considerável variação com a densidade enquanto os modos referentes a transição 02 são mais fracos, uma vez que a força de oscilador  $f_{02}$  é menor que  $f_{01}$ . De fato as excitações acopladas tem carácter de quasi-plasmons ( $CDE_{02}^+$ ) e quasi-fônions ( $CDE_{02}^-$ ). Para densidades mais baixas, os modos acoplados convergem para os modos desacoplados de plasmon ( $CDE_{01}^-$  e  $CDE_{02}^+$ ) e fônion ( $CDE_{01}^+$  e  $CDE_{02}^-$ ).





**Figura 5.7:** Energias das excitações CDE, SDE, e SPE em função de  $N_S$  envolvendo transições do 01 e 02, considerando o acoplamento plasmon-LO fônon.

## Espectros em função da energia incidente

Mostramos agora os resultados para a seção de choque, CDE e SDE, calculada numericamente para várias energias de excitações do laser em condições de ressonância extrema com o gap de *split-off*,  $E_0 + \Delta_0$ . O vetor de onda de espalhamento é  $\mathbf{q} = \mathbf{q}_{\parallel} + \mathbf{q}_z$ . Estamos desconsiderando qualquer transferência de momento lateral, assim  $q_{\parallel} \rightarrow 0$ . Consideramos que o módulo do vetor de onda de espalhamento ao longo da direção de crescimento é dado por  $q_z = 0,685 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ . O fator de amortecimento (ou alargamento)  $\Gamma$  é determinado experimentalmente utilizando medidas de transporte quântico, ou medidas de reflectância. Aqui, usaremos  $\Gamma$  com um parâmetro ajustável baseados em espectros experimentais. Nas transições do estado fundamental para o primeiro estado excitado, assumimos  $\Gamma_{10} = 2 \text{ meV}$ , para níveis mais energéticos assumimos  $\Gamma_{j0} = 5 \text{ meV}$ .

A figura 5.8 mostra o comportamento ressonante de  $SPE_{01}$  no espectro polarizado conforme variamos a energia do laser incidente. O pico de excitação de densidade de carga é deslocado em relação ao pico de single-particle devido à interação Coulombiana direta e efeitos de correlação e troca. Na figura 5.9 temos o espectro das excitações de densidade de spin (SDE), ativas no espectro depolarizado.

Neste caso, a interação Coulombiana direta é cancelada restando apenas efeitos de correlação e troca (correções excitônicas).

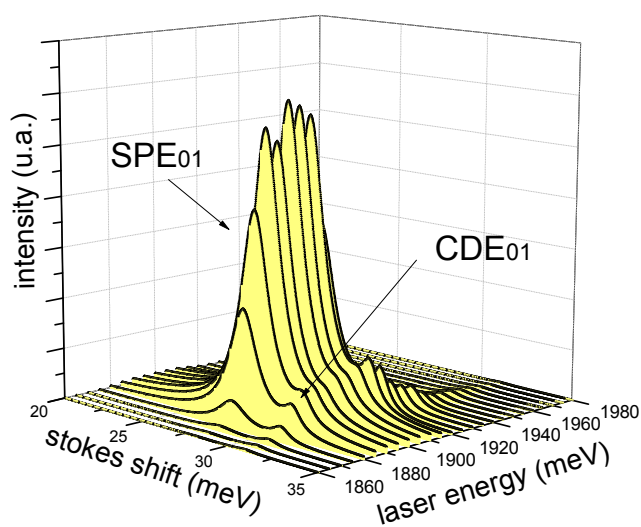


Figura 5.8: Espectro Raman ressonante polarizado das excitações 01.

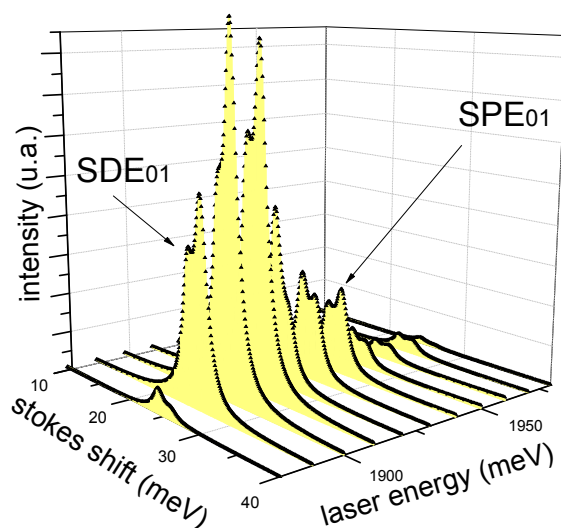
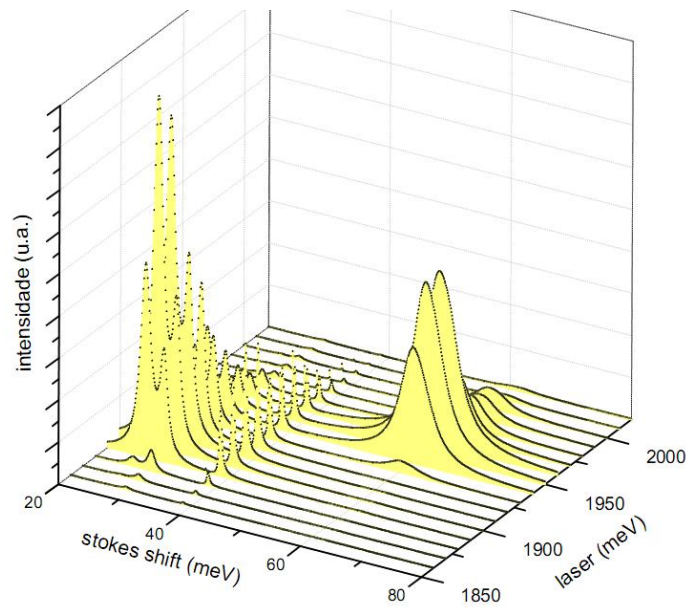
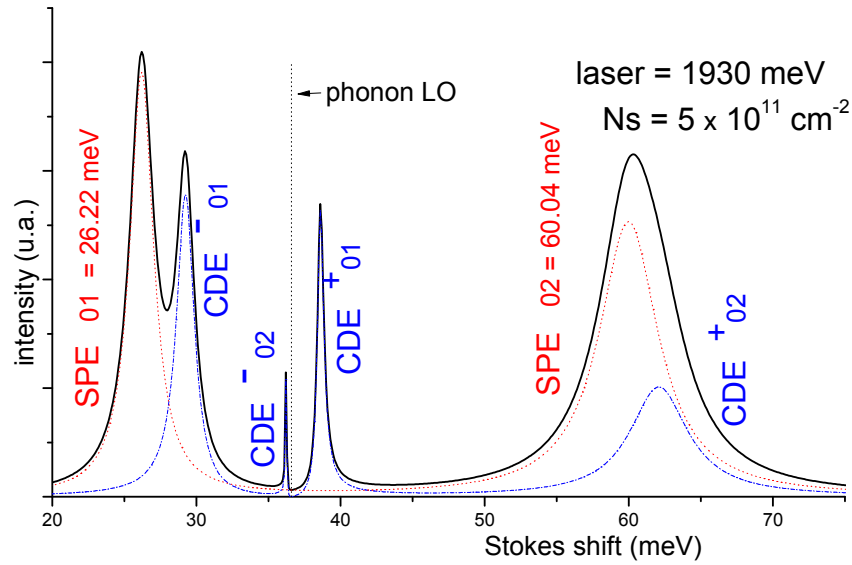


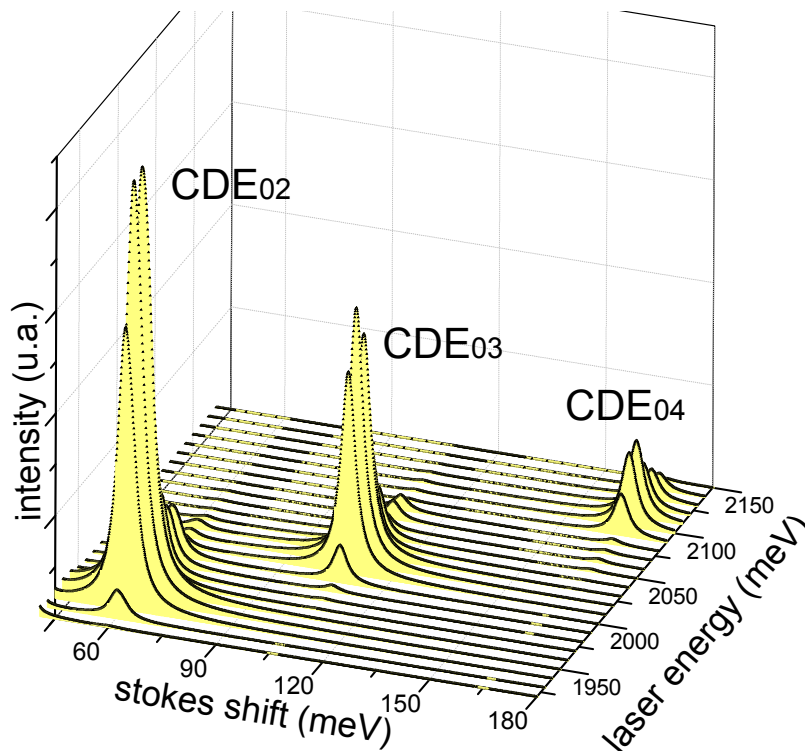
Figura 5.9: Espectro Raman ressonante depolarizado das excitações 01.

Na figura 5.10(a) temos o espectro Raman polarizado no regime de extrema ressonância, com densidade superficial  $N_S = 5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$  e energia do laser de  $1930 \text{ meV}$ .



**Figura 5.10:** Espectro Raman ressonante polarizado para  $\omega_L = 1930 \text{ meV}$  (a) e  $\omega_L = 1850 - 2020 \text{ meV}$  (b).

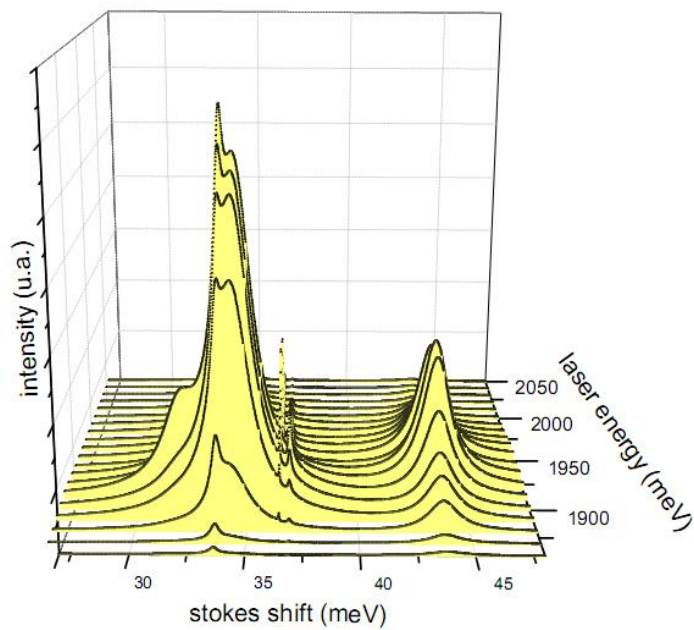
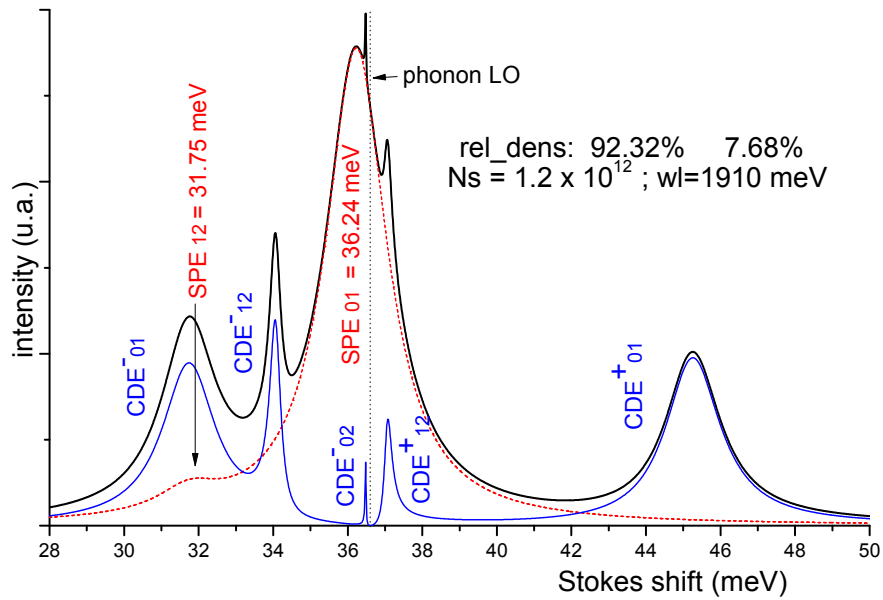
A figura 5.11 mostra o espectro polarizado resolvido autoconsistentemente. Fica evidente o caráter ressonante das transições 01-04, conforme a energia do laser aumenta. Note que CDE e SPE são indistinguíveis nestas transições. As forças de oscilador, figura 5.1, mostra que as transições envolvendo estados mais enérgicos do poço quântico são muito fracas. Dessa maneira, CDE's são fracas também, uma vez que existem menos elétrons envolvidos nas excitações inter-subbandas.



**Figura 5.11:** Espectro Raman ressonante polarizado das excitações inter-subbanda do poço quântico como função da energia do laser incidente.

### Ocupação da segunda subbanda

Na figura 5.12 temos o espectro Raman ressonante no regime de alta dopagem Si, de forma que o primeira estado excitado se torna populado. Consideramos apenas a transição 12, do primeiro estado excitado para o segundo. Quando  $N_s = 1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ , 92.32% do gás de elétrons se encontra no estado fundamental e 7.68% esta no primeiro estado excitado.



**Figura 5.12:** Espectro Raman ressonante polarizado (linha sólida) com uma segunda subbanda ocupada. A linha pontilhada é a contribuição dos modos de single-particle e a linha tracejada, dos modos coletivos. A energia do laser é  $\omega_L = 1930$  meV e a densidade eletrônica  $N_s = 1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ .

## Conclusão

Usando uma teoria de campo autoconsistente generalizada investigamos o processo de espalhamento Raman eletrônico ressonante em poços quânticos de GaAs-AlGaAs. Correções de muitos corpos são incluídas nesse esquema de campo autoconsistente por meio da aproximação de densidade local, da Teoria do Funcional Densidade.

Na obtenção das flutuações de densidade utilizamos o método TDLDA, generalização da Teoria do Funcional Densidade. O formalismo desenvolvido por Anjos-Ioriati simplifica a obtenção da seção de choque de espalhamento reduzindo o problema a achar funções resposta através da inversão de matrizes. O tratamento, em princípio, é geral para sistemas eletrônicos inhomogêneos. A limitação está na possibilidade de se inverter matrizes.

A geometria de espalhamento considerada, o retroespalhamento, permite apenas espectros de excitações inter-subbandas, pois a transferência de momento ao longo do plano  $xy$  fica desprezível. Estas excitações constituem um conjunto de osciladores degenerados, igualmente acoplados, forçados e amortecidos, que em condições de extrema ressonância apresentam seção de choque Raman composta de dois termos: um de caráter de partícula independente e outro de caráter coletivo.

Demonstramos que excitações de partícula independente estão relacionadas à três fatores: o regime de extrema ressonância, a existência de excitações inter-subbandas degeneradas no sistema eletrônico, e interações degeneradas entre os pares de excitações. Com isso, a física que governa o problema fica similar àquela responsável pela formação do estado supercondutor na teoria BCS.

Os espectros de excitações de carga e spin foram calculados variando-se a energia do laser incidente, como também a densidade eletrônica. No regime de baixas densidades reproduzimos o colapso do termo de Hartree no espectro CDE, como observado por Ernst *et al.* A respeito da largura de ressonância da energia do laser incidente, encontramos picos de excitações de mais alta energia a partir do estado fundamental, não tratados em trabalhos anteriores de espalhamento Raman eletrônico em poços quânticos. Isto porque os modelos teórico normalmente se limitam ao modelo de duas subbandas, enquanto que experimentalmente ainda não foi realizada nenhuma medida para energias de excitação maiores que 60 *meV*.

# Apêndice A

## Expressão para o Potencial Induzido

O potencial induzido inclui, além da interação Coulombiana clássica (Hartree), efeitos de muitos corpos (exchange-correlação):

$$V^{ind}(\mathbf{r}, t) = \int \left[ \frac{e^2}{\varepsilon_\infty |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + U_{xc}(\mathbf{r})\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \right] \delta n(\mathbf{r}', t) d\mathbf{r}' . \quad (\text{A.1})$$

Em segunda quantização, a flutuação da densidade induzida é

$$\delta n(\mathbf{r}, t) = \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{r}, t) \hat{\psi}(\mathbf{r}, t) \rangle_t = \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) \langle c_\alpha^\dagger(t) c_\beta(t) \rangle_t . \quad (\text{A.2})$$

Os operadores agem nos estados  $|\alpha\rangle \equiv |i, \mathbf{k}, \sigma\rangle$  e  $|\beta\rangle \equiv |j, \mathbf{k}', \sigma'\rangle$ .

A equação de movimento para o valor esperado de um par de excitação elétron-buraco na representação de Heisenberg é dada por,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t = \langle [c_\alpha^\dagger c_\beta, H_{ef}] \rangle_0 , \quad (\text{A.3})$$

onde  $H_{ef} = \sum_\nu \epsilon_\nu c_\nu^\dagger c_\nu + V(t)$ . Mesmo com o comutador variando no tempo, através de  $V(t)$ , consideramos que os valores médios  $\langle \dots \rangle_0$  são calculados a partir de combinações lineares de autoestados do sistema não perturbado.

$$V(\mathbf{r}, t) = \sum_{\nu'\nu} \langle \nu' | V(\mathbf{r}, t) | \nu \rangle c_{\nu'}^\dagger c_\nu = \sum_{\nu'\nu} V_{\nu'\nu} c_{\nu'}^\dagger c_\nu .$$

Resolvendo a derivada temporal expandindo a flutuação da densidade no domínio de frequência, a eq. (A.3) fica

$$\hbar\omega \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t = \left\langle \left[ c_\alpha^\dagger c_\beta , \sum_\nu \epsilon_\nu c_\nu^\dagger c_\nu + \sum_{\nu'\nu} V_{\nu'\nu} c_{\nu'}^\dagger c_\nu \right] \right\rangle_0 .$$

Usando a propriedade de comutadores fermiônicos:

$$[c_\alpha^\dagger c_\beta, c_{\nu'}^\dagger c_\nu] = c_\alpha^\dagger c_\nu \delta_{\beta\nu'} - c_{\nu'}^\dagger c_\beta \delta_{\alpha\nu} ,$$

chegamos à

$$\begin{aligned} \hbar\omega \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t &= (\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha) \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t + (f_\alpha - f_\beta) V_{\beta\alpha} \\ \langle c_\alpha^\dagger c_\beta \rangle_t &= \frac{f_\alpha - f_\beta}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega} V_{\beta\alpha} , \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

sendo  $f_\alpha$  a função distribuição de Fermi-Dirac, e  $\hbar\omega$  a energia da excitação. Voltando à eq. A.2,

$$\delta n(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha\beta} \frac{f_\alpha - f_\beta}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) V_{\beta\alpha} . \quad (\text{A.5})$$

O elemento de matriz de  $V$  é dado por

$$\langle \beta | V(\mathbf{r}, t) | \alpha \rangle = \langle j, \mathbf{k}', \sigma' | V(\mathbf{q}, z, \omega) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | i, \mathbf{k}, \sigma \rangle e^{-i\omega t} = \delta_{k', k+q} \delta_{\sigma, \sigma'} V_{ji}(\mathbf{q}, \omega) e^{-i\omega t} ,$$

onde  $\mathbf{k}$  e  $\mathbf{q} \in (k_x, k_y)$ . Ainda,  $V_{ji}(\mathbf{q}, \omega) \equiv \langle j | V(\mathbf{q}, z, \omega) | i \rangle = V_{ij}(\mathbf{q}, \omega)$ .

Com isso, eq. (A.5) fica

$$\begin{aligned} \delta n(\mathbf{r}, \omega) &= \sum_{\substack{i, k, \sigma \\ j, k', \sigma'}} \frac{f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k} + \mathbf{q})}{\epsilon_i(\mathbf{k}) - \epsilon_j(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + \hbar\omega} \frac{1}{A} \zeta_i(z) \zeta_j(z) e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r}} \delta_{k', k+q} \delta_{\sigma, \sigma'} V_{ij}(\mathbf{q}, \omega) \\ &= \sum_{ij} \Pi_{ij}^0(\mathbf{q}, \omega) \frac{1}{A} \zeta_i(z) \zeta_j(z) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} V_{ij}(\mathbf{q}, \omega) , \end{aligned}$$

onde

$$\Pi_{ij}^0(\mathbf{q}, \omega) \equiv \sum_{k\sigma} \frac{f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k} + \mathbf{q})}{\epsilon_i(\mathbf{k}) - \epsilon_j(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + \hbar\omega} . \quad (\text{A.6})$$

Substituindo  $\delta n$  em  $V^{ind}$  na eq. A.1, temos

$$V^{ind}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{ij} C_{ij}(\mathbf{r}) \Pi_{ij}^0(\mathbf{q}, \omega) V_{ij}(\mathbf{q}, \omega) ,$$

com

$$\begin{aligned} C_{ij}(\mathbf{r}) &= \int d\mathbf{r}' \left[ \frac{e^2}{\epsilon_\infty |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + U_{xc}(\mathbf{r}) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \right] \frac{1}{A} \zeta_i(z') \zeta_j(z') e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}'_{\parallel}} \\ &= \frac{e^2}{A\epsilon_\infty} \int dz' \zeta_i(z') \zeta_j(z') \int d\mathbf{r}'_{\parallel} \frac{e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}'_{\parallel}}}{[(z' - z)^2 + (\mathbf{r}'_{\parallel} - \mathbf{r}_{\parallel})^2]^{1/2}} + \frac{1}{A} U_{xc} \zeta_i(z) \zeta_j(z) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{\parallel}} \\ &= \left[ \frac{2\pi e^2}{Aq\epsilon_\infty} \int dz' \zeta_i(z') \zeta_j(z') e^{-q|z-z'|} + \frac{1}{A} U_{xc} \zeta_i(z) \zeta_j(z) \right] e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{\parallel}} . \end{aligned}$$



Por último, resta determinar os elementos de matriz de  $V^{ind}(\mathbf{r}, \omega)$ ,

$$V_{\beta\alpha}^{ind}(\mathbf{r}, \omega) = \langle n, \mathbf{k}', \sigma' | V^{ind}(\mathbf{r}, \omega) | m, \mathbf{k}, \sigma \rangle = \delta_{k', k+q} \delta_{\sigma, \sigma'} V_{nm} ,$$

onde

$$V_{nm}(\mathbf{q}, \omega) = V_{mn}(\mathbf{q}, \omega) = \sum_{ij} C_{ij, mn}(\mathbf{q}) \Pi_{ij}^0(\mathbf{q}, \omega) V_{ij}(\mathbf{q}, \omega) ,$$

e

$$C_{ij, mn}(\mathbf{q}) \equiv \frac{2\pi e^2}{Aq\varepsilon_\infty} \iint dz dz' \zeta_i(z') \zeta_j(z') e^{-q|z-z'|} \zeta_m(z) \zeta_n(z) + \frac{1}{A} \int dz U_{xc}(z) \zeta_m(z) \zeta_n(z) .$$

# Apêndice B

## Teorema da Flutuação-Dissipação

Inicialmente, note a relação entre a eq. (4.3) e (4.4),

$$\begin{aligned}
 S(\omega) &= \sum_F |M_{FI}|^2 \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) \\
 &= \frac{1}{2\pi} \int dt \sum_F \langle I|M^\dagger|F\rangle \langle F|M|I\rangle e^{-i\frac{E_F - E_I - \hbar\omega}{\hbar}t} \\
 &= \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \sum_F \langle I|e^{i\frac{H}{\hbar}t} M^\dagger e^{-i\frac{H}{\hbar}t}|F\rangle \langle F|M|I\rangle \\
 &= \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \langle I|M^\dagger(t)M(0)|I\rangle .
 \end{aligned}$$

Considere agora a perturbação  $M(t) = M e^{-i(\omega+i\eta)t}$ , ligada adiabaticamente. Da teoria de perturbação dependente do tempo, em primeira ordem,

$$|\Psi(t)\rangle = e^{-i\frac{E_0}{\hbar}t}|0\rangle + \sum_n b_n^{(1)}(t) e^{-i\frac{E_n}{\hbar}t}|n\rangle, \quad \text{com}$$

$$\begin{aligned}
 b_n^{(1)}(t) &= \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \langle n|M(t')|0\rangle e^{i\omega_{n0}t'} \\
 &= \frac{1}{\hbar} \frac{\langle n|M|0\rangle e^{-i(\omega - \omega_{n0} + i\eta)t}}{\omega - \omega_{n0} + i\eta} .
 \end{aligned}$$

O valor médio de  $M^\dagger$  é dado por

$$\begin{aligned}
 \langle \Psi(t)|M^\dagger|\Psi(t)\rangle &= \sum_n [\langle 0|M^\dagger|n\rangle b_n e^{-i\omega_{n0}t} + \langle n|M^\dagger|0\rangle b_n^\dagger e^{i\omega_{n0}t}] \\
 &= \frac{1}{\hbar} \sum_n \frac{\langle 0|M^\dagger|n\rangle \langle n|M|0\rangle e^{\eta t}}{\omega - \omega_{n0} + i\eta} e^{-i\omega t} \\
 &\quad + \frac{1}{\hbar} \sum_n \frac{\langle n|M^\dagger|0\rangle \langle 0|M^\dagger|n\rangle e^{\eta t}}{\omega - \omega_{n0} - i\eta} e^{i\omega t} .
 \end{aligned}$$

O primeiro termo  $\langle M^\dagger \rangle_\omega e^{-i\omega t}$ , dá a resposta à perturbação. Usando a relação,

$$\lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{1}{x + i\eta} = \frac{1}{x} - i\pi\delta(x).$$

Finalmente temos,

$$\text{Im}\langle M^\dagger \rangle_\omega = -\frac{\pi}{\hbar} \sum_n |\langle n|M|0\rangle|^2 \delta(\omega - \omega_{no}) = -\frac{\pi}{\hbar} S(\omega) .$$

Este é o teorema da flutuação-dissipação para a temperatura de zero absoluto.

# Apêndice C

## Potencial Externo Médio e Regra de Soma

### A - Somatório em $k_{\parallel}$

Inicialmente, vamos calcular  $N_{ji}$ : o número de elétrons que contribui na transição  $i \rightarrow j$ . Para  $T = 0$ , temos

$$N_{ji} \equiv \sum_{\mathbf{k}, \sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})] = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} 1 .$$

O cálculo é sutil e exige distinguir o somatório no plano recíproco, quando o estado final  $|\beta\rangle$  está abaixo (fig. C.1a) ou acima (fig. C.1b) do nível de Fermi.<sup>1</sup> Assim,

$$\begin{aligned} N_{ji} &= 2 \frac{A}{(2\pi)^2} \int d\mathbf{k}_{\parallel} = 2 \frac{A}{(2\pi)^2} 2\pi \int dk_{\parallel} k_{\parallel} \\ &= \frac{A}{2\pi} \left( \theta(\epsilon_F - \epsilon_j) k_{\parallel}^2 \Big|_{k_{\parallel}^j}^{k_{\parallel}^i} + \theta(\epsilon_j - \epsilon_F) k_{\parallel}^2 \Big|_0^{k_{\parallel}^i} \right) . \end{aligned} \quad (\text{C.1})$$

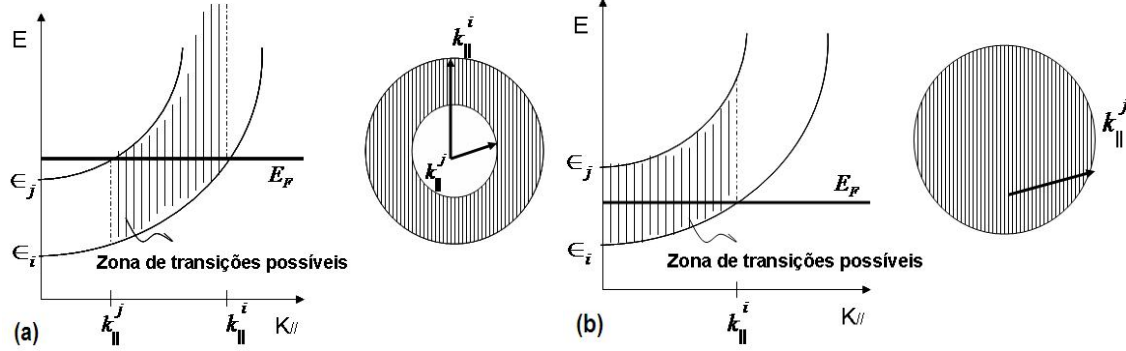
Mas note que  $\epsilon_i(k_{\parallel}) = \epsilon_i + \hbar^2 k_{\parallel}^2 / 2m^*$  e portanto  $\epsilon_i(k_{\parallel}^i) = \epsilon_F = \epsilon_i + \hbar^2 (k_{\parallel}^i)^2 / 2m^*$ . Substituindo  $(k_{\parallel}^i)^2$  e  $(k_{\parallel}^j)^2$  nos limites de integração da eq. (C.1) temos

$$N_{ji} = \frac{A}{2\pi} \frac{2m^*}{\hbar^2} [(\epsilon_j - \epsilon_i)\theta(\epsilon_F - \epsilon_j) + (\epsilon_F - \epsilon_i)\theta(\epsilon_j - \epsilon_F)] \quad (\text{C.2})$$

Uma rápida análise dimensional mostra que  $2m^*/\hbar^2 = 1/Rya_0^2$ . Como a área  $A$  tem dimensão de  $a_0^2$  e as energias dimensão de  $Ry$ , a eq. (C.2) é adimensional, que é o esperado pois  $N_{ji}$  nada mais é do que o número de elétrons que contribui na transição  $i \rightarrow j$ .

---

<sup>1</sup>O somatório sobre  $\sigma$  resulta num fator 2.


 Figura C.1: Relação de dispersão em  $\mathbf{k}_{\parallel}$ .

### B - Cálculo de $|\overline{V_{ji}^{ext}}|$ em Ressonância Extrema

Seja

$$|\overline{V_{ji}^{ext}}| = N_{ji}^{-1} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} [f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})] V_{ji}^{ext}(\mathbf{k}) ,$$

onde  $\mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_{\parallel}$  e

$$V_{ji}^{ext}(\mathbf{k}) = \frac{P_{cv}^2}{3m} \sum_{j'} \frac{\langle j | e^{iqz/2} | j' \rangle \langle j' | e^{iqz/2} | i \rangle}{E_G + \epsilon_j + \epsilon_{j'} + \hbar^2 k^2 / 2\mu^* - \hbar\omega_I + i\gamma} .$$

Para  $T=0$ ,  $[f_i(\mathbf{k}) - f_j(\mathbf{k})] = 1$ . Vamos chamar os elementos de matriz mais a constante  $P_{cv}^2/3m$  de  $\wp_{ji}(j')$ . Fazemos ainda

$$a \equiv E_G + \epsilon_j + \epsilon_{j'} - \hbar\omega_I ; \quad b \equiv \hbar^2 / 2\mu^* = (\hbar^2 / 2m^*) m^* / \mu^* = (Ry a_0^2) m^* / \mu^* \rightarrow m^* / \mu^* .$$

Note que toda equação está parametrizada por Rydberg e raio de Bohr efetivos. O potencial médio então fica

$$|\overline{V_{ji}^{ext}}| = N_{ji}^{-1} \sum_{j', \mathbf{k}, \sigma} \frac{\wp_{ji}(j')}{a + bk^2 + i\gamma} = N_{ji}^{-1} \sum_{j'} \wp_{ji}(j') 2 \frac{A}{(2\pi)^2} 2\pi \int dk \frac{k}{a + bk^2 + i\gamma} .$$

Os limites na integral são os mesmos da fig. C.1, de modo que teremos um termo para  $\epsilon_j < \epsilon_F$  e outro para  $\epsilon_j > \epsilon_F$ , como no cálculo de  $N_{ji}$ . Fazendo uma mudança de variável  $\epsilon = k^2$  (energia em unidades de Ry), a integral fica

$$\begin{aligned} I &= \int dk \frac{k}{a + bk^2 + i\gamma} = \frac{1}{2} \int d\epsilon \frac{1}{a + b\epsilon + i\gamma} \\ &= \frac{1}{2} \int d\epsilon \frac{a + b\epsilon}{(a + b\epsilon)^2 + \gamma^2} - \frac{i\gamma}{2} \int d\epsilon \frac{1}{(a + b\epsilon)^2 + \gamma^2} . \end{aligned}$$

A primeira integral é resolvida fazendo-se a mudança de variável  $x = a + b\epsilon$  e em seguida  $y = x^2 + \gamma^2$ . A segunda integral, fazendo  $x = a + b\epsilon$ , se torna uma integral trigonométrica. O calculo é direto e resulta em

$$I = \frac{1}{4b} \ln[(a + b\epsilon)^2 + \gamma^2] - \frac{i}{2b} \tan^{-1} \left( \frac{a + b\epsilon}{\gamma} \right). \quad (\text{C.3})$$

Quando  $\epsilon_j < \epsilon_F$ , o limite de integração inferior é  $\epsilon_1 = (k^i)^2 = \epsilon_F - \epsilon_j$  e o superior é  $\epsilon_2 = (k^f)^2 = \epsilon_F - \epsilon_i$ . Para  $\epsilon_j > \epsilon_F$ ,  $\epsilon_1 = 0$  e  $\epsilon_2 = \epsilon_F - \epsilon_i$ . Podemos então escrever a expressão final para o potencial médio da seguinte forma

$$\overline{|V_{ji}^{ext}|} = \frac{A}{\pi N_{ji}} \sum_{j'} \left( I \Big|_{\epsilon_F - \epsilon_j}^{\epsilon_F - \epsilon_i} \theta(\epsilon_F - \epsilon_j) + I \Big|_0^{\epsilon_F - \epsilon_i} \theta(\epsilon_j - \epsilon_F) \right),$$

com  $I$  dado pela eq. (C.3).

Para o termo  $\overline{|V_{ji}^{ext}|^2}$ , usando a notação anterior, temos

$$\overline{|V_{ji}^{ext}|^2} = N_{ji}^{-1} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \left| \sum_{j'} \frac{\wp_{ji}(j')}{a + bk^2 + i\gamma} \right|^2.$$

Optamos por resolver esta última equação numericamente.

## © - Regra de Soma

Quando um sistema quântico é sujeito a um potencial externo periódico, as energias e os estados envolvidos na transição obedecem a uma equação chamada Regra de Soma de Thomas-Reiche-Kuhn, ou simplesmente Regra de Soma, dada por

$$\sum_{\alpha\beta} \hbar\omega_{\beta\alpha} |\langle \beta | e^{iqz} | \alpha \rangle|^2 = N \frac{\hbar^2 q^2}{2m^*}. \quad (\text{C.4})$$

Para o caso de um sistema eletrônico 3D translacionalmente invariante e não-interagente,  $\alpha \equiv (\mathbf{k}, \sigma)$  e  $\beta \equiv (\mathbf{k}', \sigma')$ , a eq. (C.4) é facilmente verificada notando-se que o elemento de matriz fica  $\delta_{\sigma, \sigma'} \delta_{\mathbf{k}', \mathbf{k} + \mathbf{q}}$ , e que  $\sum_{\mathbf{k}, \sigma} 1 = N$ .

Para o sistema eletrônico 2D confinado num semiconductor temos  $\alpha \equiv (i, \mathbf{k}_{\parallel}, \sigma)$  e  $\beta \equiv (j, \mathbf{k}'_{\parallel}, \sigma')$ . Ainda  $\mathbf{q} = \mathbf{q}_{\parallel} + \mathbf{q}_z$ , com  $q_{\parallel} \rightarrow 0$ , é o momento transferido pela perturbação para o sistema eletrônico. O elemento de matriz fica  $\delta_{\sigma, \sigma'} \delta_{\mathbf{k}'_{\parallel}, \mathbf{k}_{\parallel} + \mathbf{q}_{\parallel}} |\langle j | e^{iq_z z} | i \rangle|$ ,

e então a eq. (C.4) se torna

$$\sum_{ij} \hbar\omega_{ji}N_{ji}|\langle j|e^{iq_z z}|i\rangle|^2 = N\frac{\hbar^2q_z^2}{2m^*}.$$

Podemos reescrever a ultima equação (na forma adimensionalizada) como

$$\sum_{ij} f_{ji}^{osc} = 1 ,$$

onde

$$f_{ji}^{osc} \equiv \frac{\hbar\omega_{ji}N_{ji}|\langle j|e^{iq_z z}|i\rangle|^2}{Nq_z^2} \quad (C.5)$$

é a força de oscilador, que pode ser interpretada com uma medida da intensidade da transição  $i \rightarrow j$ .

A figura 5.1 mostra as forças de oscilador no poço quântico para uma densidade superficial  $N_s = N/A$  e um momento de espalhamento da luz  $q_z = 0,685 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ .

# Bibliografia

- [1] A. Arantes and V. Anjos. *to be published*.
- [2] K. Syassen S. Ernst, A. R. Goni and K. Eberl. *Phys. Rev. Lett.* **72**, 4029 (1994).
- [3] R. Dingle. *Festkorperprobleme XV (Advances in Solid State Physics)*, (Pergamon-Vieweg, Braunschweig, 1975), p. 21.
- [4] A. C. Gossard R.Dingle and W. Wiegmann. *Phys. Rev. Lett.* **34**, 1327 (1975).
- [5] L. Esaki and L. L. Chang. *Thin Solid Films* **36**, 285 (1976).
- [6] A. C. Gossard R.Dingle, H.L.Stormer and W. Wiegmann. *Appl. Phys. Lett.* **33**, 665 (1978).
- [7] H. Ehrenreich and M. H. Cohen. *Phys. Rev.* **115**, 786 (1959).
- [8] A. Zangwill and P. Soven. *Phys. Rev. A* **97**, 204 (1980).
- [9] V. Anjos e L. Ioriatti. *Phys. Rev. B* **63**, 035404 (2001).
- [10] M. A. R. Souza V. Anjos, S. A. Leão and J. R. Leite. *Phys. Rev. B* **70**, 035313 (2004).
- [11] L. N. Cooper. *Nobel Lectures in Physics 1971-1980*, edited by S. Lundqvist, (World Scientific, Singapore, 1992),p.73.
- [12] F. Stern and W. E. Howard. *Phys. Rev.* **163**, 816 (1967).
- [13] F. Stern. *Phys. Rev. B* **5**, 4891 (1972).
- [14] A. B. Fowler T. Ando and F. Stern. *Rev. Mod. Phys.* **54**, 437 (1982).



- [15] G. Bastard. *Surface Science* **142**, 284 (1984).
- [16] F. F. Fang and W. E. Howard. *Phys. Rev. Lett.* **16**, 797 (1966).
- [17] F. Stern and S. Das Sarma. *Phys. Rev. B* **30**, 840 (1984).
- [18] G. Hurkx and W. Van Haeringen. *J. Phys. C* **18**, 5617 (1985).
- [19] L. D. Chang I. H. Tan, G. L. Snider and E. L. Hu. *J. Appl. Phys* **68**, 4071 (1990).
- [20] L. L. Chang G. Bastard, E. E. Mendez and L. Esaki. *Phys. Rev. B* **28**, 3241 (1983).
- [21] Mehmet Sahin and Mehmet Tomak. *Int. J. Mod. Phys. B* **16**, 3883 (2002).
- [22] John H. Davies. *The Physics of Low-Dimensional Semiconductors*, (Cambridge Publications, Inc., New York, 2005).
- [23] E. O. Kane. *J. Phys. Chem Solids* **63**, 249 (1957).
- [24] Ashcroft and Mermin. *Solid State Physics*, (Harcourt College Publishers, 1976).
- [25] Michael P. Marder. *Condensed Matter Physics, Second Edition*, (John Wiley and Sons, Inc., New York, 2010).
- [26] P. Hohenberg and W. Kohn. *Phys. Rev. B* **136**, 864 (1964).
- [27] W. Kohn and L. J. Sham. *Phys. Rev. A* **140**, 1133 (1965).
- [28] L. J. Sham and W. Kohn. *Phys. Rev.* **145**, 561 (1966).
- [29] G. Bastard. *Phys. Rev. B* **24**, 5693 (1981).
- [30] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, (Halsted press, John Wiley and Sons New York Chichester Brisbane Toronto Singapore 1988).
- [31] L. Hedin and B. I. Lundqvist. *J. Phys. C* **4**, 2064 (1971).

- [32] Christoph Steinebach. *Selbstkonsistente Berechnung des Potentialverlaufs und der optischen Anregungen in GaAs/AlGaAs Heterostrukturen*, Diplomarbeit, Universitat Hamburg (1996).
- [33] W. T. Vetterling W. H. Press, S. A. Teukolsky and B. P. Flannery. *Numerical Recipes*, (Cambridge University Press, New York, 1992).
- [34] U. Haboeck K. Eberl C. Thomsen A. R. Goñi, M. Danckwerts. *Phys. Status Solidi (B)* **215**, 347 (1999).
- [35] C. Thomsen K. Eberl P. Giudici, A. R. Goñi and M. Hauser. *Phys. Rev. B* **73**, 045315 (2006).
- [36] L. Eaves. *Properties of Gallium Arsenide*, Inspec (1986).
- [37] Jenő Solyom. *Fundamentals of the Physics of Solids, vol. 3*, (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2010).
- [38] Martin Dressel and George Gruner. *Electrodynamics of Solids*, (Cambridge Publications, Inc., New York, 2003).
- [39] J. K. Jain and S. Das Sarma. *Phys. Rev. B* **36**, 5949 (1987).
- [40] A. Pinczuk G. Abstreiter, M. Cardona. *Light Scattering in Solids IV*, edited by M. Cardona and G. Guntherodt, (Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1982).
- [41] A. Mooradian and G. B. Wright. *Phys. Rev. Lett.* **16**, 999 (1966).
- [42] A. Mooradian. *Phys. Rev. Lett.* **20**, 1102 (1968).
- [43] D. C. Hamilton and A. L. McWhorter. *Light Scattering Spectra of Solids*, edited by G. B. Wright, (Springer, New York, 1969).
- [44] A. Pinczuk E. Burstein and S. Buchner. *Physics of Semiconductors, ed. by B. L. H. Wilson*, (The Institute of Physics, London, 1979), p. 1231.
- [45] R. Dingle J. M. Worlock W. Wiegmann A. Pinczuk, H. L. Stormer and A. C. Gossard. *Solid State Commun.* **32**, 1001 (1979).

- [46] G. Abstreiter and K. Ploog. *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1308 (1979).
- [47] G. Danan J. P. Valladares L. N. Pfeiffer A. Pinczuk, S. Schmitt-Rink and K. W. West. *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1633 (1989).
- [48] K. Keller C. Steinebach D. Heitmann P. Grambow C. Schuller, G. Biese and K. Eberl. *Phys. Rev. B* **54**, 17304 (1996).
- [49] L. Brillson A. Pinczuk and E. Burstein. *Phys. Rev. B* **27**, 317 (1971).
- [50] A. Pinczuk and G. Abstreiter. *Light Scattering in Solids V*, edited by M. Cardona and G. Guntherodt, (Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1989).
- [51] J. P. Valladares L. N. Pfeiffer K. W. West G. Danan, A. Pinczuk and C. W. Tu. *Phys. Rev. B* **39**, 5512 (1989).
- [52] A. O. Govorov. *J. Phys. Condens. Matter* **9**, 4681 (1997).
- [53] C. Schuller. *Inelastic Light Scattering of Semiconductor Nanostructures*, (Springer, Berlin, Heidelberg) 2006.
- [54] J. C. Ryan D. S. Katzer D. Gammon, B. V. Shanabrook and M. J. Yang. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1884 (1992).
- [55] F. A. Blum. *Phys. Rev. B* **1**, 1125 (1970).
- [56] M. V. Klein. *Light Scattering in Solids I*, edited by M. Cardona, (Springer-Verlag, Berlin, 1975).
- [57] L. Brillson A. Pinczuk and E. Burstein. *Phys. Rev. Lett.* **17**, 317 (1971).
- [58] L. Ioriatti V. Anjos and L. A. O Nunes. *Phys. Rev. B* **49**, 7805 (1994).
- [59] R. D. Mattuck. *A Guide to Feymann Diagrams in the Many-Body Problem*, edited by S. Lundqvist, (Dover Publications, Inc., New York, 1976), chap.15.
- [60] Thornton and Marion. *Classical Dynamics of Particles and Systems*, (Thomson Brooks/Cole, USA, 2003 5ed.), seção 12.3.
- [61] C. Schuller C. Steinebach and D. Heitmann. *Phys. Rev. B* **59**, 10240 (1999).

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