

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação
Universidade Federal do Ceará
Biblioteca Universitária

Gerada automaticamente pelo módulo Catalog, mediante os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

F935i Freire, Valder Nogueira.

Influência de interação coulombiana entre portadores no espectro de luminescência de semicondutores de GAP direto / Valder Nogueira Freire. – 1984.
58 f. : il.

Dissertação (mestrado) – Universidade Federal do Ceará, Centro de Ciências, Programa de Pós-Graduação em Física, Fortaleza, 1984.

Orientação: Prof. Dr. Antônio José da Costa Sampaio.

1. Elétrons. 2. Semicondutores. 3. Luminescência. I. Título.

CDD 530

"A INFLUÊNCIA DA INTERAÇÃO COULOMBIANA ENTRE PORTADORES NO ESPECTRO
DE LUMINESCÊNCIA DE SEMICONDUTORES DE GAP DIRETO"

Valder Nogueira Freire

Dissertação apresentada ao Curso de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Ceará, como parte dos requisitos para a obtenção do Grau de Mestre em Física.

Comissão Julgadora:

~~Antonio José da Costa Sampaio (UFC)~~

~~Eliermes Arraes Meneses (UNICAMP)~~

~~Gil de Aquino Farias (UFC)~~

Aprovada em, 15 de Março de 1984.

C.350109
Reg. 619914

A INFLUÊNCIA DA INTERAÇÃO COULOMBIANA
ENTRE PORTADORES NO ESPECTRO DE LUMINESCÊNCIA
DE SEMICONDUTORES DE GAP DIRETO

Valder Nogueira Freire

Tese de Mestrado Apresentada ao
Departamento de Física da Univer
sidade Federal do Ceará.

D
530
F935i

N. Cham.: D 530 F935i
Autor: Freire, Valder Nogueira
Título: Influência de interação



619914

Ac. 15326

Ao Florentino (seu Nozinho) e Jura-
ci, por todas as condições que me proporcio-
naram.

À Rosaneiva e à pequena Déborah, pe-
la compreensão e dedicação a mim voltadas.

AGRADEÇO

- Ao Antonio José C. Sampaio pela orientação ao presente trabalho e, pelo incentivo constante, o meu reconhecimento:

- Ao Carlos Alberto Santos de Almeida pelo rico convívio estabelecido, útil nas dificuldades que se foram;

- Aos membros do Departamento de Física da UFC, dos quais minha compreensão da Física depende sobremaneira, em particular aos professores Francisco Alcides Germano, Lindberg Lima Gonçalves, Júlio Auto Neto, Gil de Aquino Farias, Orville Wayne Day Júnior e à compreensiva Bibliotecária Vera Maria Gomes de Almeida;

- Aos órgãos CNPq e CAPES, pelo financiamento do Curso e Tese de Mestrado.

R E S U M O

Analisa-se aspectos básicos da resposta ótica de um plasma de elétrons e buracos (EHP) em semicondutores altamente excitados (HES) e a influência da interação coulombiana entre os portadores no espectro de luminescência de semicondutores de gap direto na aproximação de bandas parabólicas.

Sem levar em conta o Teorema do Desacoplamento Assintótico, obtém-se uma cadeia de equações para as funções Green coletivas de dependência temporal dupla, cujo desacoplamento é feito utilizando-se a Aproximação das Fases Aleatórias (RPA), o que possibilita a obtenção da parte imaginária da Função Green de interesse de forma autoconsistente.

Como resultados básicos, destaca-se o deslocamento do pico da luminescência para regiões de mais baixa energia e o alargamento do espectro com o aumento da intensidade de excitação. Por outro lado, demonstra-se que além da renormalização do gap de energia, a interação coulombiana é responsável por uma estrutura no lado de mais alta energia do espectro de luminescência do EHP, mas que não se manifesta no espectro de ganho-absorção, em acordo com resultados experimentais.

A B S T R A C T

Basic aspects of the optical behaviour of an electron-hole plasma (EHP) in highly excited semiconductors and the influence of the Coulomb interaction between carriers on the luminescence spectrum of direct gap semiconductors (in the parabolic band approximation) are analysed.

A chain of equations for collective Double-Time Green functions are obtained without considering the Theorem of Asymptotical Decoupling (ADT). These are then decoupled in the Random Phase Approximation (RPA), what enables the obtention of the imaginary part of the relevant Green Function in a self-consistent way.

As basic results, one can point a shift of the luminescence peak to regions of lower energies and the broadening of the spectrum as the excitation intensity increases. On the other hand, it is also shown that, in addition to the energy gap renormalization, the Coulomb interaction is also responsible for a structure in the high energy side of the EHP luminescence spectrum, which, nevertheless, doesn't appear in the gain-absorption spectrum, in agreement with experimental results.

Í N D I C E

CAPÍTULO 1 - INTRODUÇÃO	01
CAPÍTULO 2 - A RESPOSTA ÓTICA DO PLASMA SEMICONDUTOR	07
2.1. Introdução	07
2.2. Caracterização do Sistema	08
2.3. Teoria Formal de Espalhamento em Sistemas Próximos ao Equilíbrio	11
2.4. Funções Green de Dependência Temporal Dupla...	14
2.5. A Luminescência e o Coeficiente de Absorção...	18
CAPÍTULO 3 - A FUNÇÃO DIELÉTRICA NA APROXIMAÇÃO DO CAMPO AU- TOCONSISTENTE	27
3.1. Preliminares	27
3.2. A Função Dielétrica no SCFA	28
3.3. Aplicação a Semicondutores de gap direto	31
CAPÍTULO 4 - ANÁLISES E CONCLUSÕES	33
APÊNDICE A	53
APÊNDICE B	54
BIBLIOGRAFIA	55

CAPÍTULO 1 - INTRODUÇÃO

Nos dois últimos decênios, considerável esforço experimental e teórico tem sido feito no sentido de uma compreensão mais profunda da física de semicondutores altamente excitados [1,2,3], principalmente no que se refere a propriedades óticas. Isto foi possível graças ao desenvolvimento da tecnologia do laser, que veio obter densidades de excitação da ordem de GW/cm^2 e pulsos em femto-segundos.

A excitação de qualquer semicondutor por laser potente faz surgir intensas modificações no espectro de luminescência "convencional", como aquele obtido por uma lâmpada de mercúrio a alta pressão ($I_{\text{exc}} \sim \text{mW}/\text{cm}^2$). Os processos físicos geradores destas modificações ocorrem na elevada concentração de portadores (que pode chegar a mais de 10^{19} portadores/ cm^3) criada pelo intenso campo eletromagnético; nestas condições bem especiais, surgem novas bandas de recombinação radiativa ou não-radiativa decorrentes das interações entre os portadores fotoexcitados, fônons, impurezas, etc (Fig. 1.1.).

A compreensão atual da física de semicondutores altamente excitados (HES) indica que em baixas densidades de excitação, os espectros de fotoluminescência de semicondutores corroboram com a hipótese da formação de um gás de excitons e biexcitons. Com o aumento da densidade de excitação e conseqüente aumento da densidade de excitons e biexcitons, este gás pode sofrer uma condensação do tipo Bose-Einstein, i.e., uma condensação no espaço dos momenta. Se ainda um maior aumento da densidade de excitação é imposto, sem danos à estrutura cristalina do semicondutor, a blindagem da interação coulombiana entre portadores se faz mais efetiva, provocando uma ionização dos excitons e biexcitons; tem-se então a formação de um plasma de elétrons e buracos (EHP) via transição de Mott. Tanto o plasma assim formado quanto o gás

de excitons e biexcitons podem ainda condensar-se em gotas, constituindo uma nova fase*.

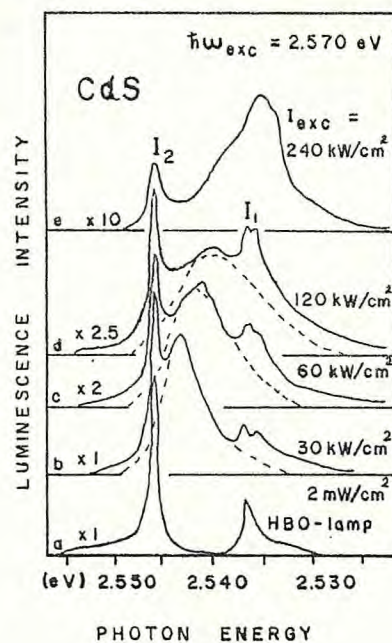


FIGURA 1.1. Espectro de Fotoluminescência do CdS em baixa temperatura para diferentes intensidades de excitação I_{exc} . (de Schrey e Klingshirn [3]).

* A ocorrência dos processos descritos neste parágrafo depende fundamentalmente dos parâmetros experimentais como, naturalmente, a densidade de excitação, a energia do fóton excitador e a temperatura da rede cristalina, entre outros; de influência não menos desprezível é a estrutura de bandas e massa efetiva de elétrons e buracos do semiconductor em questão.

Reconhece-se ainda que o processo de excitação não ressonante ($n\hbar\omega > \epsilon_g$, $n = 1, 2$) gerador do EHP leva à formação de um sistema de portadores fora do equilíbrio, com considerável excesso de energia. Inicialmente ocorre um processo de termalização interna dos portadores na escala de femtosegundos devido à forte interação coulombiana entre eles; disto resulta uma temperatura efetiva inicial T_{ef} para o sistema de portadores (que é bem maior do que a temperatura da rede) e uma estatística baseada na função de distribuição de Fermi-Dirac em 1ª aproximação, com potenciais químicos $\mu_{e,h}$. A subsequente relaxação intrabanda destes elétrons e buracos para níveis de energia mais baixos ocorre principalmente através de emissão de fônons, fazendo com que o sistema tenda ao equilíbrio com o reservatório em tempos bem posteriores.

Neste largo campo de pesquisa, volta-se aqui a atenção para o EHP em semicondutores de gap direto dos compostos III-V e II-VI, principalmente CdS e GaAs. Estes compostos oferecem boas condições à formação do EHP devido seu grande raio excitônico de Bohr e à fraca energia de ligação dos seus excitons. É em concentrações da ordem ou superiores a 10^{17} cm^{-3} que a blindagem da interação coulombiana faz-se mais efetiva, levando à instabilidade dos excitons [4].

As evidências experimentais mais marcantes da existência do EHP nestes diversos semicondutores foram obtidas através de análises dos espectros de ganho-absorção óticos em plaquetas cristalinas altamente excitadas. Na obtenção destes espectros, a elevada concentração de portadores é gerada através da ação de um laser excitador, enquanto um outro laser de menor intensidade e emissão sintonizável em toda a região espectral é utilizado para provar o sistema.

Os espectros de luminescência também apresentam informações sobre o plasma semiconductor, embora não sejam totalmente confiáveis devido aos processos de emissão estimulada que ocorrem no mesmo. Reconhece-se atualmente que densidades de excitação da ordem de $10^5 - 10^8 \text{ W/cm}^2$ para processos de absorção de dois fótons, bem como densidades de $10^3 - 10^6 \text{ W/cm}^2$ para os processos de absor -

ção a um fóton, fazem surgir a banda P na luminescência de EHP de gap direto; nestes níveis de excitação para cada processo de absorção, ela é interpretada como uma consequência da recombinação radiativa espontânea dos portadores no EHP [5,34].

Na realidade, estes espectros de luminescência e ganho-absorção do EHP em semicondutores de gap direto à baixas temperaturas levaram inicialmente a uma interpretação do plasma como um estado líquido de elétrons e buracos (EHL) [6,7]. A fundamentação básica foi principalmente a ausência de modificações na forma dos espectros frente à variações da intensidade de excitação, bem como a grande energia de ligação obtida para o plasma através do espectro de ganho-absorção e o decrescimento da densidade de portadores com o aumento da temperatura dos mesmos (Fig. 1.2). Entretanto, atualmente se reconhece a existência de um plasma de elétrons e buracos em elevadas densidades de portadores e excitação, com temperatura acima de T_c , limite crítico para estabilidade dos excitons. Por outro lado, muitas dúvidas sobre a formação do EHL em semicondutores de gap direto tem sido levantadas, com base tanto na não-obtenção experimental de diagramas de fase coerentes com a existência do EHL, bem como no pequeno tempo de vida dos portadores (da ordem de femtosegundos) que pode tornar a nucleação impossível [7,8,9,10].

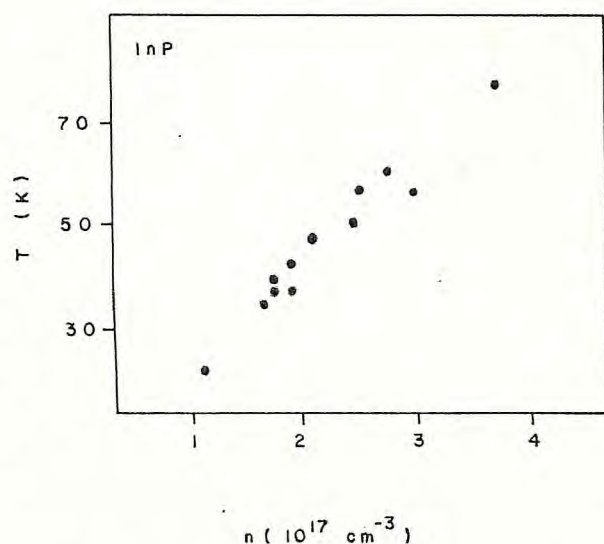


FIGURA 1.2. Relação densidade-temperatura para o EHP em InP. (de Forchel e outros [7]).

Em todo o enorme esforço que foi e está sendo! dispendido no intuito de um melhor entendimento da física do EKP [11, 12,13], uma contribuição efetiva foi o modelo teórico proposto há uma década por Menezes e Luzzi para explicação de observações experimentais de luminescência em CdS a altos níveis de excitação [14,15].

Neste modelo, assumiram inicialmente que os portadores fotoexcitados estão em condições de quasi-equilíbrio nas suas respectivas bandas, com populações caracterizadas pelos quasi-níveis de Fermi μ_e e μ_h ; levaram em conta as interações entre os portadores através de renormalização da energia dos mesmos via fator renormalizador $M(\vec{k})$, desprezando efeitos de vida média decorrentes das colisões entre portadores; finalmente, assumindo o Teorema do Desacoplamento Assintótico (ADT) [16], obtiveram a taxa de radiação espontânea como uma função do produto de correlações temporais para elétrons e buracos. Conseguiram com isto explicar tanto o surgimento da banda P como o seu deslocamento para regiões de baixa energia.

Uma extensão deste modelo com a inclusão da interação elétron-fônon veio explicar o alargamento do espectro de fotoluminescência na região de baixa energia [15,17]. Posteriormente, Luzzi e Miranda [2] afirmaram intuitivamente que este modo de tratamento dispensado à interação coulombiana elimina uma estrutura no lado de mais alta energia do espectro de luminescência.

No presente trabalho, não se leva em conta o ADT, mas considera-se a função Green coletiva de dependência temporal dupla [18,19, 20], o que acarreta um estudo mais detalhado da influência da interação coulombiana entre portadores no espectro de luminescência e ganho-absorção de semicondutores de gap direto; além disso, introduz-se a interação com fônons de forma fenomenológica através do parâmetro vida média dos estados foto induzidos $\tau = \hbar T^{-1}$.

O desacoplamento desta cadeia infinita de equações para as funções Green* coletivas é feito utilizando-se RPA. Em sequência, obtém-se de forma auto-consistente a parte imaginária da Função Green de interesse, fundamental para obtenção de expressões teóricas para a intensidade de luminescência e o coeficiente de absorção, o que leva ao aparecimento natural da constante dielétrica $\epsilon(\vec{q}, \omega)$ na Aproximação de Campo-Autoconsistente (SCFA) [21,22,23,24].

Os resultados assim obtidos são comparados com expressões teóricas já conhecidas [6,14,25] e utilizados em ajustes com dados experimentais [9,25,26].

* Entenda-se daqui em diante por Funções Green de Dependência Temporal Dupla.

CAPÍTULO 2 - A RESPOSTA ÓTICA DO EHP

2.1. Introdução

Os fenômenos físicos que ocorrem em semicondutores altamente excitados (HES) têm sido continuamente estudados através de novas e sensíveis técnicas experimentais como espectroscopia de pico-segundo, absorção de dois fótons (TPA) e confinamento por pressão, entre outras. Este progresso tem possibilitado, além do estudo da cinética de relaxação dos portadores, uma homogeneidade da densidade dos pares elétrons-buracos fotoexcitados que tem se aproximado do ideal teórico. Como consequência direta disto, os espectros de luminescência e ganho-absorção mostram-se agora um pouco mais detalhados e confiáveis, embora os efeitos de emissão estimulada, que podem modificar profundamente o espectro de emissão espontânea, ainda apresentem dificuldades de minimização [27].

Embora a existência do EHP em semicondutores de gap indireto remonte aos primórdios do estudo de HES [28], somente com este progresso mais recente tem-se afirmado com convicção que um EHP é criado em semicondutores de gap direto [5]. As densidades de excitação geradoras do plasma no semicondutor variam em 10^5 - 10^8 W/cm² para o processo de absorção de dois fótons (onde $2\hbar\omega \geq \epsilon_g$ e com o qual se consegue uma homogeneidade no sistema de portadores de volume compatível com a resolução espacial dos sistemas de detecção óticos atuais) e 10^3 - 10^6 W/cm² para o processo de absorção de um fóton (onde $\hbar\omega \geq \epsilon_g$ e com o qual se consegue densidades mais elevadas de portadores fotoexcitados, embora apresentando problemas de inhomogeneidade). Nestes níveis de excitação para cada processo, é reconhecido na prática que a presença da banda P no espectro de luminescência está diretamente relacionada à existência do EHP, com densidades de portadores variando entre 10^{17} cm⁻³ e 10^{19} cm⁻³.

Tem-se observado o EHP em muitos semicondutores de

gap direto. Os casos mais estudados são GaAs e CdS, com densidades de portadores típicas da ordem de $4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ e $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$; resultados similares ocorrem em ZnO, CdSe, InP, GaSb, ZnSe e há pouco tempo obteve-se evidência de EHP em CuCl com 10^{20} portadores / cm^{-3} [29] !

Diversos modelos teóricos têm sido propostos para descrever os espectros óticos do EHP (banda P) [2,3,6,14,30] em semicondutores de gap direto, envolvendo cada um determinada classe de correção. Embora uma análise quantitativa do mesmo seja obtida, o problema de uma análise quantitativa ainda está em aberto [3].

Com respaldo neste atual estado da arte, investiga-se aqui a influência da interação coulombiana na resposta ótica do EHP em semicondutores de gap direto através da modificação do modelo teórico anteriormente proposto por Menezes e Luzzi [14]. Isto é feito utilizando-se a Aproximação das Fases Aleatórias (RPA), que permite o desacoplamento da cadeia de equações para as funções Green coletivas.

2.2. Caracterização do Sistema

Considere-se que no plasma semiconductor, a elevada concentração de portadores gerada por excitação ótica, quasi-estacionária possa ser considerada homogênea, estando em quasi-equilíbrio térmico (veja-se Apêndice A).

Na verdade, a interação de pulsos de laser ultrarápidos com semicondutores é um problema da Mecânica Estatística de Não - Equilíbrio. Isto porque inicialmente os portadores recém-fotoexcitados têm energias que dependem dos diferentes mecanismos de excitação que cada um sofreu, de forma que a sua distribuição inicial é bem diferente das usuais funções de Fermi-Dirac; através da ação da interação coulombiana, uma uniformização do sistema de portadores é alcançada na ordem de femtosegundos, tornando possível a definição de uma temperatura efetiva ao sistema de portadores fotoexcitados (que é bem maior do que aquela do semiconductor) e a utilização da função de distribuição de Fermi-Dirac; a relaxação intra-

banda através principalmente da emissão de fônons finalmente leva os portadores ao equilíbrio térmico com o banho a que está submetido o semiconductor na ordem de nanosegundos. Além disto, todas as "etapas" deste processo podem não ocorrer já que a vida-média radiativa dos portadores é da ordem de nanosegundos.

A excitação estacionária (pulso de laser de duração temporal mais longa do que o tempo de vida dos portadores) poderia fornecer condições muito próximas de uma situação de equilíbrio, mas tem-se noticiado que mesmo em condições estacionárias ocorrem distribuições fora do equilíbrio [12]. No entanto, as teorias homogêneas (fundamentadas em equilíbrio espacial e temporal dos portadores) têm até agora sido utilizadas na análise dos espectros óticos de HES obtidos por espectroscopia ultrarápida, obtendo-se bons resultados. Isto se deve ao fato de que os modelos disponíveis fundamentados em uma estatística de não-equilíbrio exigem considerável esforço na obtenção de resultados práticos. Isto por si só seria suficiente para justificar o aperfeiçoamento de um modelo de quasi-equilíbrio obtido com este trabalho; entretanto, é extremamente válido enfatizar que todos os resultados aqui obtidos por este modelo aperfeiçoado podem ser diretamente generalizados a situações de não-equilíbrio, o que pode ser facilmente percebido em [34]. Assim, reconhecendo-se os elétrons de condução e valência como sistemas distintos, estes ficam caracterizados pelos quasi-níveis de Fermi μ_c e μ_v (veja-se Apêndice A), respectivamente, e uma temperatura efetiva $T = T_{ev} = T_{ec}$.

Faz-se conveniente de partida a utilização da representação de elétrons. Neste caso, o hamiltoniano do sistema semiconductor-laser excitador no formalismo de segunda quantização tem a forma:

$$H = H_0 + H_{\text{pert.}}$$

2.2.1.

H_0 descreve os elétrons na rede cristalina,

$$H_0 = \sum_{\alpha} E_{\alpha} c_{\alpha}^{\dagger} c_{\alpha} + \sum_{i,j,l,m} U(i,j|l,m) c_{i}^{\dagger} c_{j}^{\dagger} c_l c_m \quad 2.2.2.$$

$\{\alpha, i, j, l, m\} \equiv \{\vec{k}/c, v\}$ são índices que caracterizam elétrons na banda de condução c ou de valência v e momentum \vec{k} simultaneamente; c_{α}^{\dagger} e c_{α} são operadores de criação e aniquilação de elétrons em certa banda com determinado momentum e satisfazem às usuais relações de comutação de operadores fermiônicos;

$$U(i,j|l,m) = \langle i, j | \frac{e^2}{2\epsilon_0 |\vec{x} - \vec{y}|} | l, m \rangle =$$

$$= \frac{1}{2} \int \psi_i^*(\vec{x}) \psi_j^*(\vec{y}) \frac{e^2}{\epsilon_0 |\vec{x} - \vec{y}|} \psi_l(\vec{y}) \psi_m(\vec{x}) d^3\vec{x} d^3\vec{y}$$

2.2.3.

com $\psi_{\vec{k}}(\vec{x}) = u_{\vec{k}}(\vec{x}) \exp(i \vec{k} \cdot \vec{x}) / \sqrt{N}$, onde u_i são as funções de Bloch usuais e se levou em conta a polarização da rede e dos orbitais eletrônicos no limite quasi-estático através da blindagem do potencial coulombiano pela constante dielétrica estática ϵ_0 [1]; fazendo-se uso da aproximação das bandas parabólicas, tem-se

$$E_{\alpha} = \begin{cases} E_c(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c} + E_g - \mu_c & , \\ E_v(\vec{k}) = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_v} - \mu_v & , \end{cases} \quad 2.2.4.$$

onde ϵ_g é a energia de gap renormalizada [31].

$H_{\text{pert.}}$ descreve a interação do laser com o semicondutor, I.E.,

$$H_{\text{PERT.}} = \frac{e}{m c} \cdot \sum (\hat{A} \cdot p)_{ij} C_i^\dagger C_j$$

onde $\hat{A}(\vec{r})$ é o potencial vetor do campo excitador e \vec{p} o momentum cristalino dos elétrons*.

Efeitos da interação entre os portadores e outros subsistemas como fônons, impurezas, etc serão introduzidos posteriormente de forma fenomenológica (seção 2.5) através da inclusão do parâmetro T .

2.3. Teoria Formal de Espalhamento nos Sistemas em Quasi-Equilíbrio.

Quando fótons do laser de elevada densidade de excitação são absorvidos em quasi-ressonância por semicondutores ($\hbar\omega \gtrsim \epsilon_g$ ou $2\hbar\omega \gtrsim \epsilon_g$), pode-se simplificarmente afirmar que uma alta densidade de elétrons e buracos é gerada. O sistema assim criado tem suas propriedades óticas de ganho-absorção características, que são investigadas experimentalmente através da ação de um laser prova, cuja intensidade é mais fraca e tem frequência variável. Além disso, os portadores fotocriados estão sujeitos tanto a processos de recombinação radiativa (luminescência), quanto processos de recombinação não radiativa (efeito Auger). Será considerado aqui que os processos de recombinação não radiativa são de se-

* É válido afirmar aqui que a formulação acima permite uma fácil passagem para a representação de elétrons e buracos; iremos utilizá-la no momento mais conveniente, e ao fazer isto negligenciaremos os buracos mais leves.

gunda ordem e podem ser desprezados frente àqueles de recombinação radiativa.

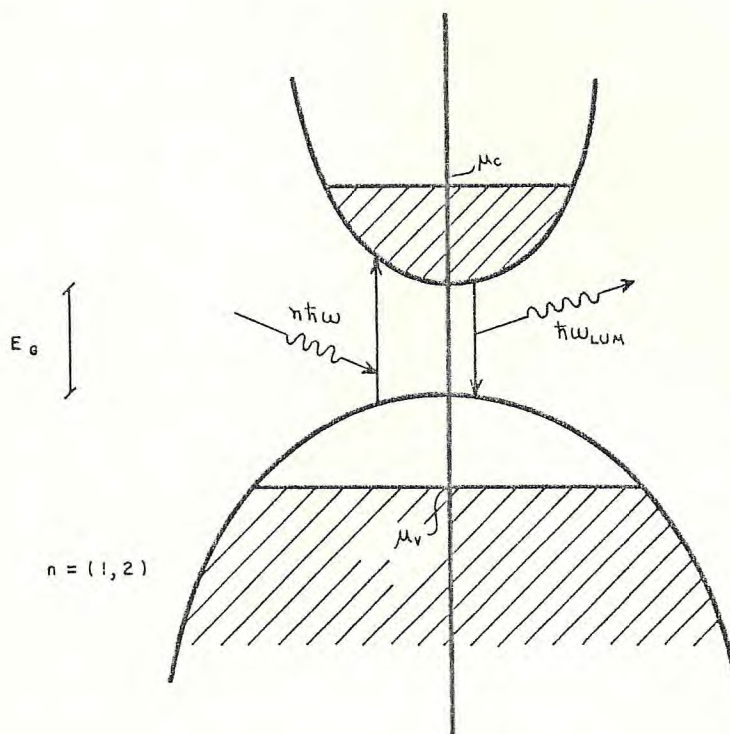


FIGURA 2 - Processos de Luminescência e Absorção.

O processo de recombinação radiativa dos portadores que dá origem à luminescência pode ser representado através do diagrama da Figura 3.

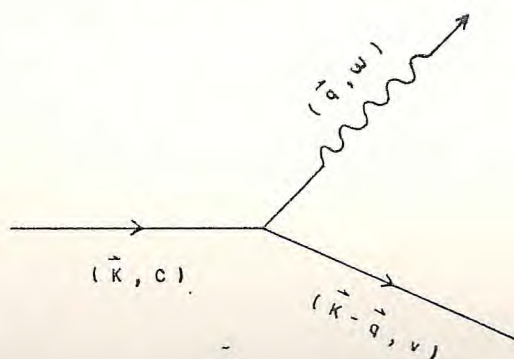


FIGURA 3

A probabilidade de ocorrência deste espalhamento é obtida através do uso da Regra de Ouro de Fermi e tem a forma [32, 33]

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle V^{\dagger}(0) V(t) \rangle \quad 2.3.1.$$

onde

$$\langle V^{\dagger}(0) V(t) \rangle = \langle V^{\dagger} V(t) \rangle = Z^{-1} \text{Tr} [\exp(-H_0/kT) V^{\dagger} V(t)] \quad 2.3.2.$$

$$V(t) = \sum_{\vec{k}, \vec{q}} G_j(\vec{k}, \vec{q}) C_{\vec{k}-\vec{q}, v}^{\dagger}(t) C_{\vec{k}, c}(t) \quad 2.3.3.$$

$$G_j(\vec{k}, \vec{q}) = \langle \vec{k}-\vec{q}, v | \frac{e}{mc} \vec{A} \cdot \vec{p} | \vec{k}, c \rangle \quad 2.3.4.$$

Fazendo-se uso de 2.3.2. em 2.3.1., obtém-se que

$$S(\omega) = \sum_{\vec{k}, \vec{q}} G_j^*(\vec{k}, \vec{q}) G_j(\vec{k}, \vec{q}) \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle C_{\vec{k}, c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, v} C_{\vec{k}-\vec{q}, v}^{\dagger}(t) C_{\vec{k}, c}(t) \rangle \quad 2.3.5.$$

Para o cálculo de funções de correlação como $\langle C_{\vec{k}, c}^{\dagger} C_{\vec{k}, c}(t) C_{\vec{m}, c}(t) \rangle$ tem-se mostrado conveniente o uso de funções de Green de dependência temporal dupla, assunto da próxima seção.

* Em [2, 14, 15] utiliza-se o ADT e faz-se $\langle C_{\vec{k}, c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, v} C_{\vec{k}-\vec{q}, v}^{\dagger}(t) C_{\vec{k}, c}(t) \rangle = \langle C_{\vec{k}, c}^{\dagger} C_{\vec{k}, c}(t) \rangle \cdot \langle C_{\vec{k}-\vec{q}, v} C_{\vec{k}-\vec{q}, v}^{\dagger}(t) \rangle$, associando posteriormente $\langle \rangle_c \in \langle \rangle_v$ a Funções Green de elétrons e buracos.

2.4. Funções Green de Dependência Temporal Dupla

A utilização das Funções Green de dependência temporal dupla [18,19,20] na investigação do problema de muitos corpos surgiu historicamente da interconexão entre a Mecânica Estatística e a Teoria de Campo Quântica via representação de segunda quantização; seu sucesso em parte se deve tanto à facilidade sistemática fornecida no cálculo de propriedades macroscópicas observáveis dos sistemas, quanto no de quantidades microscópicas.

Já por definição, as funções Green estão diretamente relacionadas às funções de correlação temporal pois

$$G_r(t,t') = \langle\langle A(t); B(t') \rangle\rangle_r = -i \theta(t-t') \langle [A(t), B(t')] \rangle \quad , \quad 2.4.1.$$

$$G_a(t,t') = \langle\langle A(t); B(t') \rangle\rangle_a = i \theta(t'-t) \langle [A(t), B(t')] \rangle \quad . \quad 2.4.2.$$

$G_{r,a}$ são as funções Green retardadas e avançadas ; $\theta(t-t')$ é a função de Heavside definida por

$$\theta(t-t') = \begin{cases} 1 & \text{se } t-t' > 0 \\ 0 & \text{se } t-t' < 0 \end{cases} \quad 2.4.3.$$

e que satisfaz às relações

$$\theta(t) = \int_{-\infty}^t e^{\epsilon t} \delta(t) dt \quad (\epsilon \rightarrow +0), \quad 2.4.4a.$$

$$\theta(t) = \frac{i}{2\pi} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-ixt}}{x + i\epsilon} dx \quad , \quad 2.4.4b.$$

$$\frac{d\theta(t)}{dt} = -\frac{d\theta(-t)}{dt} = \delta(t) \quad ; \quad 2.4.4c.$$

$\langle \dots \rangle$ representa uma média estatística sobre o ensemble grã-canônico, I.E.,

$$\langle \dots \rangle = Z^{-1} \text{Tr} [e^{-\beta \mathcal{H}} \dots] \quad 2.4.5.$$

onde $\beta = 1/KT$, $Z = \text{Tr}(e^{-\beta \mathcal{H}})$, $\mathcal{H} = H - \mu N$, K é a constante de Boltzmann, T é a temperatura do sistema, H é o operador Hamiltoniano independente do tempo, μ é o potencial químico e N o operador número total de partículas;

$A(t)$ e $B(t)$ nas equações 2.4.1,2 são operadores na representação de Heisenberg ($\hbar = 1$), I.E.,

$$A(t) = e^{i\mathcal{H}t} A(0) e^{-i\mathcal{H}t} \equiv e^{i\mathcal{H}t} A e^{-i\mathcal{H}t} \quad 2.4.7.$$

que satisfazem às equações de movimento do tipo

$$i \frac{dA(t)}{dt} = A(t) H - H A(t) \quad 2.4.8.$$

e são expressos ou como produto de funções de onda em segunda quantização ou como produto de operadores de criação e aniquilação;

$[A, B]_{\eta}$ indica o comutador ou anticomutador, I.E.,

$$[A, B] = AB - \eta BA \quad 2.4.9.$$

onde $\eta = +1$ para bósons e $\eta = -1$ para férmions.

No caso de equilíbrio estatístico, tem-se de imediato que $G_{r,a}(t, t') = G_{r,a}(t-t')$, o que pode ser facilmente demonstrado fazendo-se uso das propriedades cíclicas do traço.

Através da derivada temporal das equações de definição das funções Green, obtém-se uma cadeia infinita de equações acopladas para uma série de funções Green cada vez mais completas, i.e.,

$$i \frac{d G_{r,a}}{dt} = i \frac{d}{dt} \langle\langle A(t); B(t') \rangle\rangle_{r,a} = \delta(t-t') \langle [A(t), B(t')] \rangle + \langle\langle \{A(t)H - HA(t)\}; B(t') \rangle\rangle_{r,a}$$

2.4.10.

A solução desta cadeia de equações envolve necessariamente um desacoplamento da mesma e a imposição de condições de contorno. Estas condições são suplementadas por representações espectrais para as funções de correlação temporal e funções Green via uso da transformada de Fourier temporal destas. Assim,

$$\mathcal{F}_{BA}(t-t') = \langle B(t') A(t) \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} J(\omega) e^{-i\omega(t-t')} d\omega, \quad 2.4.11a.$$

$$\mathcal{F}_{AB}(t-t') = \langle A(t) B(t') \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} J(\omega) e^{\beta\omega} e^{-i\omega(t-t')} d\omega, \quad 2.4.11b.$$

são as representações espectrais para as funções de correlação temporal onde $\mathcal{F}C_{\nu} = E_{\nu} C_{\nu}$ e $J(\omega)$ é a intensidade espectral de \mathcal{F} da

* A presença de termos inhomogêneos tipo δ nesta cadeia justifica plenamente a denominação dada às Funções $G_{r,a}$!

da por

$$J(\omega) = \sum_{\nu, \mu} (C_{\nu}^* A(\omega) C_{\mu}) (C_{\mu}^* B(\omega) C_{\nu}) e^{-\beta E_{\mu}} \delta(E_{\mu} - E_{\nu} - \omega) \quad 2.4.12.$$

De forma semelhante, as transformadas de Fourier temporais das funções Green são

$$G_{r,a}(\Omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G_{r,a}(t) e^{i\Omega t} dt, \quad 2.4.13a$$

de maneira que

$$G_{r,a}(t-t') = \int_{-\infty}^{\infty} G_{r,a}(\Omega) e^{-i\Omega(t-t')} d\Omega. \quad 2.4.13b$$

As equações que $G_{r,a}(\Omega)$ satisfazem podem ser obtidas facilmente de 2.4.10. e têm a forma

$$\Omega G_{r,a}(\Omega) = \Omega \langle\langle A | B; \Omega \rangle\rangle = \frac{1}{2\pi} \langle [A, B] \rangle + \langle\langle [A, H] | B; \Omega \rangle\rangle \quad 2.4.14.$$

Através das equações

$$G(\omega + i\epsilon) - G(\omega - i\epsilon) = -i (e^{\beta\omega} - \eta) J(\omega) \quad 2.4.15a.$$

$$\delta(x) = \frac{1}{2\pi i} \left\{ \frac{1}{x - i\epsilon} - \frac{1}{x + i\epsilon} \right\} \quad 2.4.15b.$$

$$\frac{1}{E - \omega \pm i\epsilon} = P \frac{1}{E - \omega} \mp i\pi \delta(E - \omega) \quad 2.4.15c.$$

pode-se obter a identidade

$$G_{r,d}(\Omega) = \frac{1}{2\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} (e^{\beta\omega} - \eta) J(\omega) \frac{d\omega}{E - \omega} + \frac{i}{2} (e^{\beta\Omega} - \eta) J(\Omega)$$

2.4.16.

que relaciona as transformadas de Fourier das funções Green às suas representações espectrais.

2.5. A Luminescência e o Coeficiente de Absorção

Como foi afirmado anteriormente, os espectros de ganho-absorção e luminescência têm em si informações sobre HES frente às características tanto do laser excitador quanto do próprio semiconductor. Uma análise destes espectros constitui importante fonte de informação sobre o comportamento físico dos portadores fotoexcitados e das excitações elementares em HES.

Uma expressão para a luminescência $I(\omega)$ do EHP nos semicondutores de gap direto caracterizados na seção 2.2. pode ser obtida de forma direta através da probabilidade de transição eletrônica 2.3.1.; utilizando nesta seção unidades em que $\hbar = 1$, tem-se

$$I(\omega) \simeq \omega \cdot S(\omega)$$

$$\simeq \omega \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{q}} g^* g \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle b_{\vec{k}'}^+ b_{\vec{k}}(t) \rangle$$

2.5.1.

onde $b_{\vec{k}}(t) = C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^+(t) C_{\vec{k}, \nu}(t)$. Após as transformações $C_c(t) = e^{-it\mu_c} C_c(t)$ e $C_v(t) = e^{it\mu_v} C_v(t)$ faz-se uso da representação espectral para a função correlação de interesse

$$\langle b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}}(t) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} J(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad 2.5.2.$$

e como consequência da ligação de $J(\omega)$ com as funções Green retardadas (vide eq. 2.4.16.), reescreve-se a expressão para a intensidade de luminescência na forma

$$I(\omega) = -\omega \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{q}} g^* g \cdot \frac{2 \operatorname{Im} G_r(\bar{\omega})}{e^{\beta \bar{\omega}} - 1} \quad 2.5.3.$$

onde $\bar{\omega} = \omega - \mu_c + \mu_v$. Vê-se que a obtenção de uma expressão para a luminescência depende fundamentalmente da função Green $G_r(\bar{\omega})$. No caso em questão ela satisfaz à cadeia de equações no espaço das energias

$$\begin{aligned} \bar{\omega} G_r(\bar{\omega}) &= \bar{\omega} \langle\langle b_{\vec{k}} | b_{\vec{k}}^{\dagger}; \bar{\omega} \rangle\rangle \\ &= \frac{1}{2\pi} \langle [b_{\vec{k}}, b_{\vec{k}}^{\dagger}] \rangle + \langle\langle [b_{\vec{k}}, H_0] | b_{\vec{k}}^{\dagger}; \bar{\omega} \rangle\rangle \end{aligned}$$

2.5.4.

Utilizando a relação de anticomutação para operadores fermiônicos $a_{\vec{k},i}^{\dagger} a_{\vec{k},j} + a_{\vec{k}',j}^{\dagger} a_{\vec{k},i} = \delta_{\vec{k}\vec{k}'} \delta_{ij}$, obtém-se, sem muito trabalho,

$$[b_{\vec{k}}, b_{\vec{k}'}^{\dagger}]_- = \delta_{\vec{k}\vec{k}'} c_{\vec{k}-\vec{q},v}^{\dagger} c_{\vec{k}'-\vec{q},v} - \delta_{\vec{k}-\vec{q},\vec{k}'-\vec{q}} c_{\vec{k},c}^{\dagger} c_{\vec{k}',c} \quad 2.5.5a.$$

$$\begin{aligned}
[b_{\vec{k}}, H_0]_- = & \sum_{\alpha} E_{\alpha} \{ \delta_{\alpha, \vec{k}c} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_{\alpha} - \delta_{\alpha, \vec{k}-\vec{q}, \nu} C_{\alpha}^{\dagger} C_{\vec{k}, c} \} + \\
& + \sum_{i, j, l, m} U(i, j | l, m) \cdot \{ \delta_{i, \vec{k}c} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_j^{\dagger} C_l C_m + \\
& + \delta_{j, \vec{k}-\vec{q}, \nu} C_i^{\dagger} C_j^{\dagger} C_m C_{\vec{k}, c} + \delta_{m, \vec{k}-\vec{q}, \nu} C_j^{\dagger} C_i^{\dagger} C_l C_{\vec{k}, c} + \\
& + \delta_{l, \vec{k}c} C_i^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_l C_m \}
\end{aligned}$$

2.5.5b.

cuja substituição em 2.5.4. leva a

$$\begin{aligned}
\bar{n} \langle\langle C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_{\vec{k}c} | C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}; \bar{n} \rangle\rangle = & \frac{1}{2\pi} \{ \delta_{\vec{k}\vec{k}} \langle\langle C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu} \rangle\rangle - \delta_{\vec{k}-\vec{q}, \vec{k}-\vec{q}} \langle\langle C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}c} \rangle\rangle \} + \\
& + (E_{\vec{k}c} - E_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}) \cdot \langle\langle C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_{\vec{k}c} | C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}; \bar{n} \rangle\rangle + \\
& + \sum_{j, l, m} U(\vec{k}c, j | l, m) \cdot \langle\langle C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_j^{\dagger} C_l C_m | C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}; \bar{n} \rangle\rangle + \sum_{i, j, m} U(i, j | \vec{k}-\vec{q}, \nu, m) \cdot \\
& \cdot \langle\langle C_i^{\dagger} C_j^{\dagger} C_m C_{\vec{k}c} | C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}; \bar{n} \rangle\rangle + \sum_{i, j, l} U(i, j | l, \vec{k}-\vec{q}, \nu) \cdot \\
& \cdot \langle\langle C_j^{\dagger} C_i^{\dagger} C_l C_{\vec{k}c} | C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}; \bar{n} \rangle\rangle + \sum_{i, l, m} U(i, \vec{k}c | l, m) \cdot \\
& \cdot \langle\langle C_i^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_l C_m | C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}; \bar{n} \rangle\rangle
\end{aligned}$$

2.5.6.

O desacoplamento desta cadeia de equações é feito utilizando-se RPA [18]; não levando em conta termos de troca, a função Green de interesse assume a forma

$$\langle\langle C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}^{\dagger} C_{\vec{k}c} | C_{\vec{k}c}^{\dagger} C_{\vec{k}-\vec{q}, \nu}; \bar{n} \rangle\rangle = G_1(\vec{k}, \vec{k}; \bar{n}) + G_2(\vec{k}, \vec{k}; \bar{n})$$

2.5.7.

onde

$$G_1(\vec{k}, \vec{k}'; \bar{\Omega}) = \frac{\delta_{\vec{k}\vec{k}'}}{2\pi} \cdot \frac{f_{\vec{k}-\vec{q}_v} - f_{\vec{k}c}}{\bar{\Omega} + E_{\vec{k}-\vec{q}_v} - E_{\vec{k}c}} \quad 2.5.8a.$$

$$G_2(\vec{k}, \vec{k}'; \bar{\Omega}) = \frac{4(f_{\vec{k}-\vec{q}_v} - f_{\vec{k}c})}{\bar{\Omega} + E_{\vec{k}-\vec{q}_v} - E_{\vec{k}c}} \cdot \sum_{\vec{j}, m} U(\vec{j}, \vec{k}c | \vec{k}-\vec{q}_v, m) \langle\langle C_{\vec{j}}^+ C_m | C_{\vec{k}c}^+ C_{\vec{k}-\vec{q}_v}; \bar{\Omega} \rangle\rangle \quad 2.5.8b.$$

com $f_j = \langle C_j^+ C_j \rangle$. Utilizando-se aproximações sucessivas, obtém-se como resultado que

$$\langle\langle C_{\vec{k}-\vec{q}_v}^+ C_{\vec{k}c} | C_{\vec{k}c}^+ C_{\vec{k}-\vec{q}_v}; \bar{\Omega} \rangle\rangle = \frac{N(\bar{\Omega}, \vec{k}c, \vec{k}-\vec{q}_v)}{4\pi} \cdot \left\{ \delta_{\vec{k}\vec{k}'} + \right. \\ \left. + \frac{2 N(\bar{\Omega}, \vec{k}c, \vec{k}-\vec{q}_v) \cdot U(\vec{k}-\vec{q}_v, \vec{k}c | \vec{k}-\vec{q}_v, \vec{k}c)}{1 - 2 \sum_{\vec{j}, m} U(\vec{j}, m | \vec{j}, m) \cdot N(\bar{\Omega}, m, \vec{j})} \right\}$$

2.5.9.

onde $N(\bar{\Omega}, m, j) = 2(f_j - f_m) / (\bar{\Omega} + E_j - E_m)$. Introduzindo aqui o efeito de colisões entre os portadores através da transformação $\bar{\Omega} \rightarrow \Omega + i\Gamma^*$, obtém-se que

$$\langle\langle C_{\vec{k}-\vec{q}_v}^+ C_{\vec{k}c} | C_{\vec{k}c}^+ C_{\vec{k}-\vec{q}_v}; \bar{\Omega} \rangle\rangle = \left[\frac{N_R(\Omega, \vec{k}c, \vec{k}-\vec{q}_v) - i N_I(\Omega, \vec{k}c, \vec{k}-\vec{q}_v)}{4\pi} \right] \cdot \left\{ \delta_{\vec{k}\vec{k}'} + \right. \\ \left. + \frac{2 [N_R(\Omega, \vec{k}c, \vec{k}-\vec{q}_v) - i N_I(\Omega, \vec{k}c, \vec{k}-\vec{q}_v)] \cdot U(\vec{k}-\vec{q}_v, \vec{k}c | \vec{k}-\vec{q}_v, \vec{k}c)}{\epsilon_0 - \sum_{\vec{j}, m} 2 U(\vec{j}, m | \vec{j}, m) \cdot [N_R(\Omega, m, \vec{j}) - i N_I(\Omega, m, \vec{j})]} \right\}$$

2.5.10.

* De modo análogo ao que é feito no SCFA.

com

$$U(j, m | j, m) = \epsilon_0^{-1} U(j, m | j, m) \quad 2.5.11a.$$

$$N(\omega, \vec{k}_c, \vec{k}-\vec{q}_v) = N_R(\omega, \vec{k}_c, \vec{k}-\vec{q}_v) - i N_I(\omega, \vec{k}_c, \vec{k}-\vec{q}_v) = \frac{2\eta(\epsilon - i\pi)}{\epsilon^2 + \pi^2} \quad 2.5.11b.$$

$$\epsilon = \omega + E_{\vec{k}-\vec{q}_v} - E_{\vec{k}_c} \quad , \quad \epsilon' = \omega + E_{\vec{k}-\vec{q}_v} - E_{\vec{k}_c} \quad 2.5.11c.$$

$$\eta = f_{\vec{k}-\vec{q}_v} - f_{\vec{k}_c} \quad , \quad \eta' = f_{\vec{k}-\vec{q}_v} - f_{\vec{k}_c} \quad 2.5.11d.$$

O denominador da 2^a fração do lado direito da equação 2.5.10. tem justamente a forma da constante dielétrica no SCFA (veja-se próximo capítulo) pois

$$\begin{aligned} \epsilon(\vec{q}, \omega) &= \epsilon_1(\vec{q}, \omega) + i \epsilon_2(\vec{q}, \omega) \\ &= \epsilon_0 - \sum_{j,m} 2 U(j, m | j, m) \cdot [N_R(\omega, m, j) - i N_I(\omega, m, j)] \\ &= \epsilon_0 - \sum_{j,m} 4 U(j, m | j, m) \cdot \frac{f_j - f_m}{E_j - E_m + \omega + i\pi} \end{aligned} \quad 2.5.12.$$

de maneira que após um simples trato algébrico obtém-se

$$\begin{aligned} -\text{Im}[2\pi G_r(\vec{\omega})] &= \frac{(f_{\vec{k}-\vec{q}_v} - f_{\vec{k}_c}) \cdot \pi}{\epsilon^2 + \pi^2} \cdot \left\{ \delta_{\vec{k}\vec{k}} + \right. \\ &+ \left. \frac{4 U(\vec{k}-\vec{q}_v, \vec{k}_c | \vec{k}-\vec{q}_v, \vec{k}_c)}{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} \cdot \frac{\eta'}{\epsilon'^2 + \pi^2} \cdot [(\epsilon + \epsilon') \epsilon_1 + (\frac{\epsilon'}{\pi} - \frac{\pi}{\epsilon}) \epsilon \epsilon_2] \right\} \end{aligned}$$

Tendo em mãos a parte imaginária da função Green de interesse, volta-se à expressão 2.5.3., que por conveniência e importância é a seguir reescrita

$$I(\omega) = -\omega \cdot \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{q}} G_j^*(\vec{k}, \vec{q}) G_j(\vec{k}', \vec{q}) \cdot \frac{2 \operatorname{Im} G_r(\vec{\alpha})}{e^{\beta \vec{\alpha}} - 1} \quad 2.5.3.$$

Desprezando-se o momento \vec{q} dos fótons frente àquele dos elétrons (aproximação dipolar) e a dependência de G_j em \vec{k} , pode-se agora escrever

$$I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega) \quad 2.5.14.$$

O termo $I_1(\omega)$ não leva em conta a interação entre portadores e tem a forma

$$I_1(\omega) = L \cdot |G_j|^2 \cdot \omega^3 \cdot \sum_{\vec{k}, \vec{q}} \frac{f_{\vec{k}v} - f_{\vec{k}c}}{e^{\beta \Omega} - 1} \cdot \frac{\pi}{[E_{\vec{k}v} - E_{\vec{k}c} + \Omega]^2 + \pi^2} \quad 2.5.15.$$

onde L é uma constante multiplicativa; o segundo termo tem em si o efeito da interação coulombiana entre os portadores no espectro de luminescência do EHP em semicondutores de gap direto e sua forma é

$$I_2(\omega) = L \cdot |G_j|^2 \cdot \omega^3 \sum_{\vec{k}, \vec{q}} \frac{f_{\vec{k}v} - f_{\vec{k}c}}{e^{\beta \Omega} - 1} \cdot \frac{\pi}{\epsilon^2 + \pi^2} \cdot \frac{4U(\vec{k}v, \vec{k}c | \vec{k}v, \vec{k}c)}{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} \cdot \frac{n_i}{\epsilon_1^2 + \pi^2} \cdot \left[(\epsilon + \epsilon') \epsilon_1 + \left(\frac{\epsilon'}{\pi} - \frac{\pi}{\epsilon} \right) \epsilon \epsilon_2 \right] \quad 2.5.16.$$

Neste ponto é conveniente a mudança da representação

de elétrons nas banda de condução e valência para àquela de elétrons e buracos. Fazendo-se isto, assume-se os resultados já conhecidos [34]

$$|g|^2 \approx \text{CONST.} \times \omega^{-1} \quad 2.5.17a.$$

$$U(\vec{k}_v, \vec{k}_c | \vec{k}_v, \vec{k}_c) \approx \frac{4\pi e^2}{q^2 V} \cdot \left(\frac{q}{m\omega}\right)^2 \cdot |P_{cv}^M|^2 \quad 2.5.17b.$$

$$|P_{cv}^M|^2 \approx \frac{1}{4} \cdot E_g \cdot \frac{m_0^2}{M} \quad 2.5.17c.$$

$$\frac{1}{M} = m_e^{-1} + m_h^{-1} \quad 2.5.17d.$$

onde m_0 é a massa de repouso do elétron e $\hbar\omega$ a energia da radiação; como somente a luz emitida pelo cristal em certo ângulo sólido $d\Omega$ por intervalo $d\omega$ de frequência está sendo analisada, de tal modo que

$$\sum_{\vec{q}} \dots \longrightarrow \frac{V}{(2\pi)^3} \int \dots \frac{\omega^2}{c^3} d\Omega \quad 2.5.18.$$

obtem-se finalmente

$$I_1(\omega) = C_1 \cdot \omega^2 \cdot (M/m_0)^{3/2} \cdot \mathcal{R}_{1/2}(\omega) \quad 2.5.19.$$

$$I_2(\omega) = C_1 \cdot 296,2904 (M/m_0)^2 \cdot \frac{E_g}{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} \cdot \left\{ \mathcal{R}_{1/2}(\omega) \cdot [W_2(\omega) \mathcal{F}_{1/2}(\omega) - \right.$$

$$\left. - W_3(\omega) \mathcal{F}_{3/2}(\omega)] - \mathcal{R}_{3/2}(\omega) \cdot [W_3(\omega) \mathcal{F}_{1/2}(\omega) - \frac{\epsilon_2}{\pi} \mathcal{F}_{3/2}(\omega)] \right\} \quad 2.5.20.$$

onde

$$Q_s(\omega) = \epsilon_g^{-1} \cdot \int_0^{\infty} dE_k E_k^s f_h(ME_k/m_h) f_e(ME_k/m_e) \cdot \frac{\pi}{(\omega - \epsilon_g - E_k)^2 + \pi^2}, \quad 2.5.21a.$$

$$G_s(\omega) = \int_0^{\infty} dE_k E_k^s f_h(ME_k/m_h) f_e(ME_k/m_e) \cdot \frac{e^{\beta(E_k - \mu_e - \mu_h)} - 1}{(\omega - \epsilon_g - E_k)^2 + \pi^2}, \quad 2.5.21b.$$

$$W_2(\omega) = (\omega - \epsilon_g) \cdot \left[2\epsilon_1 + \frac{\epsilon_2}{\pi} (\omega - \epsilon_g) \right] - \pi \epsilon_2, \quad 2.5.22a.$$

$$W_3(\omega) = \epsilon_1 + \frac{\epsilon_2}{\pi} (\omega - \epsilon_g)^* \quad 2.5.22b.$$

A expressão acima obtida para a intensidade de luminescência relaciona-se diretamente com o coeficiente de absorção, já que somente a interação do sistema eletrônico com a radiação é diretamente levada em conta; sob o ponto de vista microscópico, o coeficiente de absorção de um meio óptico isotrópico é dado por [35,36].

$$\alpha(\omega) \sim \frac{e^{\beta(\omega - \epsilon_g - \mu_e - \mu_h)} - 1}{\omega^3 \cdot n(\omega)} \cdot I(\omega) \quad 2.5.23.$$

* Nas expressões 2.5.19 - 2.5.22b. a unidade de energia é o meV e $\epsilon_s = 1,2 = \epsilon_s(\omega, \vec{q} \rightarrow 0)$, como calculado na próxima seção.

onde $n(\omega)$ é o índice de refração dado por

$$n^2(\omega) = \frac{1}{2} \cdot [\epsilon_1 + (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2}] \quad . \quad 2.5.24.$$

CAPÍTULO 3 - A FUNÇÃO DIELÉTRICA NA APROXIMAÇÃO DO CAMPO-AUTO
CONSISTENTE (SCFA)

3.1. Preliminares

A função dielétrica ϵ está intimamente relacionada com a estrutura eletrônica de um sólido a partir de sua própria definição. Ela descreve a resposta do sistema a campos eletromagnéticos externos desde um ponto de vista microscópico. Desprezando efeitos não lineares, a relação entre \vec{D} e \vec{E} no espaço dos momentos tem a forma [37]

$$D_i = \sum_{j=1}^3 \epsilon^{ij}(\vec{q}, \omega) E_j, \quad 3.1.1.$$

onde $\epsilon^{ij}(\vec{q}, \omega)$ representa a resposta do sistema ao campo eletromagnético. Uma possível diferença de fase entre \vec{E} e \vec{D} é incluída através de valores complexos para ϵ^{ij} .

A expressão 3.1.1. torna-se bem mais simples quando se trata de sólidos cristalinos isotrópicos, já que neste caso a polarização e densidade da corrente induzida tem a mesma direção do campo elétrico que a gerou [23]. Assumindo-se que a variação do campo em uma célula unitária do cristal é desprezível, o tensor constante dielétrica transforma-se em um escalar, reescrevendo-se

$$\vec{D} = \epsilon(\omega, \vec{q} \rightarrow 0) \vec{E} = \epsilon(\omega) \vec{E} \quad 3.1.2.$$

com

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i \epsilon_2(\omega).$$

3.2. A Função Dielétrica no SCFA

Uma expressão para a constante dielétrica complexa $\epsilon(\vec{q}, \omega)$, em tudo equivalente àquela da aproximação RPA, pode ser obtida através do tratamento de Ehrenreich e Cohen [21, 22, 23, 24].

A idéia básica é que a perturbação externa gera uma redistribuição de cargas no sistema; a carga assim redistribuída produz então um potencial induzido V_{ind} cuja ação blindada o potencial externo original. O potencial auto-consistente V real é então a soma do potencial externo original V_{ext} àquele produzido pela indução, V_{ind} . Impõe-se finalmente que a distribuição final de carga no sistema seja consistente com o potencial real V .

Considere-se assim a resposta de um sólido cristalino isotrópico ao potencial autoconsistente $V(\vec{r}, t)$. A equação de Liouville para o operador densidade de uma partícula tem a forma

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] + i\hbar \left(\frac{d\rho}{dt} \right)_{coll}. \quad 3.2.1.$$

onde $H = H_0 + V(\vec{r}, t)$ é o Hamiltoniano da partícula com $H_0 = \mathbf{p}^2/2m + V_L(\vec{r})$ sendo a parte não perturbada; ela descreve um elétron de Bloch em um sólido caracterizado pelo potencial periódico $V_L(\vec{r})$ e satisfaz a equação $H_0 |\vec{k}\rangle = E_{\vec{k}} |\vec{k}\rangle$, sendo $|\vec{k}\rangle$ funções de Bloch usuais. O termo $i\hbar \left(\frac{d\rho}{dt} \right)_{coll}$ é responsável por efeitos de colisão.

É conveniente escrever a matriz densidade na forma $\rho = \rho_0 + \rho_1$, onde ρ_1 está associada à perturbação e ρ_0 ao Hamiltoniano H_0 de maneira que $\rho_0 |\vec{k}\rangle = f_{\vec{k}} |\vec{k}\rangle$, sendo $f_{\vec{k}}$ a função distribuição de Fermi-Dirac. Isto permite linearizar as equações, desprezando-se termos da ordem de $\rho_1 V(\vec{r}, t)$.

Assumindo que $\left(\frac{d\rho}{dt} \right)_{coll} = -\rho_1/\tau$ [22] e fazendo uma expansão de Fourier do potencial perturbativo obtém-se, tomando-se elementos matriciais com respeito às funções de Bloch

$|\vec{k}_2\rangle$ e $|\vec{k}_2 + \vec{q}_2'\rangle$, que

$$i\hbar \frac{d}{dt} \langle \vec{k}_2 | \rho_1 | \vec{k}_2 + \vec{q}_2' \rangle + (E_{\vec{k}_2 + \vec{q}_2'} - E_{\vec{k}_2}) \cdot \langle \vec{k}_2 | \rho_1 | \vec{k}_2 + \vec{q}_2' \rangle - (f_{\vec{k}_2 + \vec{q}_2'} - f_{\vec{k}_2}) \cdot$$

$$\cdot \langle \vec{k}_2 | \sum_{\vec{q}_1} V(\vec{q}_1, t) \exp(-i\vec{q}_1 \cdot \vec{r}) | \vec{k}_2 + \vec{q}_2' \rangle = -i\hbar \langle \vec{k}_2 | \frac{\rho_1}{\tau} | \vec{k}_2 + \vec{q}_2' \rangle$$

3.2.2.

Com uso da identidade demonstrada no Apêndice B e assumindo $\rho_1(t) = \rho_1 e^{i\omega t}$ e $V(\vec{q}_1, t) = V e^{i\omega t}$, obtém-se de 3.2.2. que

$$\langle \vec{k}_2 | \rho_1 | \vec{k}_2 + \vec{q}_2' \rangle = \frac{(f_{\vec{k}_2 + \vec{q}_2'} - f_{\vec{k}_2}) \cdot V(\vec{q}_1, t) \cdot (\vec{k}_2 | \vec{k}_2 + \vec{q}_2')}{E_{\vec{k}_2 + \vec{q}_2'} - E_{\vec{k}_2} - \hbar\omega - i\hbar/\tau}$$

3.2.3.

onde $(\vec{k}_2 | \vec{k}_2 + \vec{q}_2') \equiv \tau_a^{-1} \int_{cel} \mu_{\vec{k}_2}^*(\vec{r}) \mu_{\vec{k}_2 + \vec{q}_2'}(\vec{r}) d^3 \vec{r}$. 3.2.3.

é uma expressão para a matriz densidade induzida em termos do potencial autoconsistente V . A densidade eletrônica induzida está relacionada a esta matriz pois

$$\eta = \text{Tr} [\rho_1 \delta(\vec{r}_e - \vec{r})] = \sum_{\vec{k}_2} \langle \vec{k}_2 | \rho_1 \delta(\vec{r}_e - \vec{r}) | \vec{k}_2 \rangle \quad 3.2.4a.$$

$$= \sum_{\vec{k}_2, \vec{q}_2'} \langle \vec{k}_2 | \rho_1 | \vec{k}_2 + \vec{q}_2' \rangle \langle \vec{k}_2 + \vec{q}_2' | \vec{k}_2 \rangle \quad 3.2.4b.$$

$$= \Omega^{-1} \sum_{\vec{k}_2, \vec{q}_2'} e^{-i\vec{q}_2 \cdot \vec{r}} (\vec{k}_2 + \vec{q}_2' | \vec{k}_2) \langle \vec{k}_2 | \rho_1 | \vec{k}_2 + \vec{q}_2' \rangle \quad 3.2.4c.$$

Por outro lado, o potencial induzido relaciona-se com a densidade de elétrons pela equação de Poisson $\nabla^2 V_{ind} = -4\pi e^2 \eta$; fazendo uma expansão de Fourier do potencial induzido resulta que

$$V_{ind}(\vec{q}, t) = v_q \sum_{\vec{k}, \alpha, \alpha'} (\vec{k} + \vec{q}, \alpha' | \vec{k}, \alpha) \cdot \langle \vec{k}, \alpha | \rho_1 | \vec{k} + \vec{q}, \alpha' \rangle \quad 3.2.5.$$

onde $v_q = 4\pi e^2 / q^2 \Omega$. O uso de 3.2.4. permite reescrever 3.2.5. na forma

$$V_{ind}(\vec{q}, t) = V(\vec{q}, t) \cdot v_q \sum_{\vec{k}, \alpha, \alpha'} \frac{(\epsilon_{\vec{k} + \vec{q}, \alpha'} - \epsilon_{\vec{k}, \alpha}) \cdot |(\vec{k}, \alpha | \vec{k} + \vec{q}, \alpha')|^2}{E_{\vec{k} + \vec{q}, \alpha'} - E_{\vec{k}, \alpha} - \hbar\omega - i\hbar/\tau} \quad 3.2.6.$$

Pode-se agora obter uma expressão para a função dielétrica através do relacionamento entre o potencial autoconsistente V , o potencial externo V_{ext} e o potencial induzido V_{ind} . Como $V(\vec{q}, t) = V_{ext}(\vec{q}, t) + V_{ind}(\vec{q}, t)$ e $V(\vec{q}, t) = V_{ext}(\vec{q}, t) / \epsilon(\vec{q}, \omega)$, segue-se

$$V(\vec{q}, t) = V_{ind}(\vec{q}, t) \cdot [1 - \epsilon(\vec{q}, \omega)] \quad 3.2.7.$$

obtendo-se com uso de 3.2.5. que

$$\epsilon(\vec{q}, \omega) = 1 - v_q \sum_{\vec{k}, \alpha, \alpha'} \frac{(\epsilon_{\vec{k} + \vec{q}, \alpha'} - \epsilon_{\vec{k}, \alpha}) \cdot |(\vec{k}, \alpha | \vec{k} + \vec{q}, \alpha')|^2}{E_{\vec{k} + \vec{q}, \alpha'} - E_{\vec{k}, \alpha} - \hbar\omega - i\hbar/\tau} \quad 3.2.8.$$

3.3. Aplicação ao HES

Embora a expressão 3.2.8. tenha sido e continue sendo bastante utilizada [21,22,38 e referências nele citadas] para o cálculo da constante dielétrica de metais, isolantes e semicondutores, o interesse aqui está centrado em semicondutores na aproximação de bandas parabólicas (ver 2.2.4.) cujos portadores fotoexcitados obedecem à distribuição de Fermi-Dirac (Apêndice A).

As componentes da função dielétrica $\epsilon(\vec{q}, \omega) = \epsilon_1(\vec{q}, \omega) + i\epsilon_2(\vec{q}, \omega)$ têm as formas

$$\epsilon_1(\vec{q}, \omega) = 1 - v_q \sum_{\vec{k}, \lambda, \lambda'} |\langle \vec{k} \lambda | \vec{k} + \vec{q} \lambda' \rangle|^2 \frac{[f(E_{\vec{k} + \vec{q} \lambda'}) - f(E_{\vec{k} \lambda})] \cdot (E_{\vec{k} + \vec{q} \lambda'} - E_{\vec{k} \lambda} - \hbar\omega)}{(E_{\vec{k} + \vec{q} \lambda'} - E_{\vec{k} \lambda} - \hbar\omega)^2 + \Gamma^2} \quad 3.2.9a.$$

$$\epsilon_2(\vec{q}, \omega) = -v_q \Gamma \cdot \sum_{\vec{k}, \lambda, \lambda'} \frac{|\langle \vec{k} \lambda | \vec{k} + \vec{q} \lambda' \rangle|^2 \cdot [f(E_{\vec{k} + \vec{q} \lambda'}) - f(E_{\vec{k} \lambda})]}{(E_{\vec{k} + \vec{q} \lambda'} - E_{\vec{k} \lambda} - \hbar\omega)^2 + \Gamma^2} \quad 3.2.9b.$$

onde $\Gamma = \hbar/\tau$ e $f(E_{\vec{k} \lambda}) \equiv f_{\vec{k} \lambda}$. Utilizando-se a Teoria da Perturbação $\vec{k} \cdot \vec{p}$ [23], obtém-se no limite $\vec{q} \rightarrow 0$ a identidade

$$|\langle \vec{k} \lambda | \vec{k} + \vec{q} \lambda' \rangle|^2 = \delta_{\lambda \lambda'} + (1 - \delta_{\lambda \lambda'}) \cdot (q/m\omega_{\lambda \lambda'}) \cdot |P_{\lambda \lambda'}^M|^2 \quad 3.2.10.$$

onde $P_{\lambda \lambda'}^M = v_a^{-1} \int \mu_{\vec{k} \lambda'}^* p^M \mu_{\vec{k} \lambda} d^3\vec{r}$; $\mu_{\vec{k} \lambda}$ são as usuais funções de Bloch, p^M é o operador momentum associado à direção de propagação da onda \vec{q} e $\hbar\omega_{\lambda \lambda'} = E_{\vec{k} \lambda'} - E_{\vec{k} \lambda}$. Através desta iden

tidade e das expansões

$$E_{e,h}(\vec{k} \pm \vec{q}) = E_{e,h}(\vec{k}) \pm \vec{q} \cdot \partial_{\vec{k}} E_{e,h}(\vec{k}) + \frac{q^2}{2} \partial_{\vec{k}}^2 E_{e,h}(\vec{k}) \quad 3.2.11.$$

obtém-se as contribuições intrabanda ($\alpha = \alpha'$) para a função dielétrica

$$\epsilon_1^{\text{INTRA}}(\vec{q} \rightarrow 0, \omega) = 1 - \frac{4\pi e^2 n \hbar^2}{M} \cdot \frac{\hbar^2 \omega^2 - \Pi^2}{(\hbar^2 \omega^2 + \Pi^2)^2}, \quad 3.2.12a.$$

$$\epsilon_2^{\text{INTRA}}(\vec{q} \rightarrow 0, \omega) = \frac{8\pi e^2 n \hbar^2}{M} \cdot \frac{\Pi \hbar \omega}{(\hbar^2 \omega^2 + \Pi^2)^2}, \quad 3.2.12b.$$

bem como as contribuições interbanda ($\alpha \neq \alpha'$)

$$\epsilon_1^{\text{INTER}}(\vec{q} \rightarrow 0, \omega) = \frac{e^2 \epsilon_g (2M)^{1/2}}{\pi \hbar} \cdot \int_0^\infty dE_k E_k^{1/2} f_h(ME_k/m_h) f_e(ME_k/m_e).$$

$$\cdot \frac{e^{\beta(E_k - \mu_e - \mu_h)} - 1}{(E_k + \epsilon_g)^2} \cdot \left[\frac{E_k + \epsilon_g - \hbar\omega}{(E_k + \epsilon_g - \hbar\omega)^2 + \Pi^2} + \frac{E_k + \epsilon_g + \hbar\omega}{(E_k + \epsilon_g + \hbar\omega)^2 + \Pi^2} \right]$$

3.2.13a.

$$\epsilon_2^{\text{INTER}}(\vec{q} \rightarrow 0, \omega) = \frac{4e^2 \epsilon_g (2M)^{1/2}}{\pi \hbar} \cdot \int_0^\infty dE_k E_k^{1/2} f_h(ME_k/m_h) f_e(ME_k/m_e).$$

$$\cdot \frac{e^{\beta(E_k - \mu_e - \mu_h)} - 1}{E_k + \epsilon_g} \cdot \left\{ \frac{\hbar\omega \Pi}{[(E_k + \epsilon_g - \hbar\omega)^2 + \Pi^2] \cdot [(E_k + \epsilon_g + \hbar\omega)^2 + \Pi^2]} \right\}$$

3.2.13b.

CAPÍTULO 4 - ANÁLISES E CONCLUSÕES

Nos dois capítulos precedentes foram obtidas expressões para a intensidade de luminescência e o coeficiente de absorção do plasma de elétrons e buracos (EHP), em condições bem caracterizadas na seção 2.2. Para isto utilizou-se uma teoria de espalhamento para sistemas em quasi-equilíbrio e fez-se uso da técnica de funções Green de dependência temporal dupla no cálculo da função de correlação temporal de interesse; a cadeia infinita de equações para as funções Green foi desacoplada utilizando-se RPA e resolvida de forma autoconsistente.

Como pode ter sido notado, as expressões obtidas do modo delineado no parágrafo anterior são válidas para quaisquer semicondutor de gap direto submetido aos níveis de excitações geradores do plasma, para o qual se possa esperar que a aproximação de bandas parabólicas seja uma boa representação dos níveis de energia. Neste capítulo serão mostrados os resultados de aplicações feitas ao CdS e GaAs, cujos parâmetros utilizados na obtenção da luminescência e coeficiente de absorção foram retirados da Tabela 4.1.

Tabela 4.1. Parâmetros utilizados nos cálculos [2,9]

Semicondutor	$m_e (m_o)$	$m_h (m_o)$	ϵ_o
CdS	0.205	0.70	9.3
GaAs	0.067	0.50	12.91

A luminescência devido a processos de recombinação radiativa espontânea no EHP em semicondutores de gap direto tem sido intensamente estudada, mesmo nos dias atuais. Já em 1973, Kennes e Luzzi [14] obtiveram uma expressão para a luminescência que, para futura comparação com os resultados obtidos neste

trabalho e por conveniência do leitor, é a seguir destacada

$$I_{ML}(\omega) \sim \omega^2 \sum_{\vec{k}} f_e(\vec{k}) f_h(\vec{k}) \delta(\omega + E_v(\vec{k}) - E_c(\vec{k}) - M(\vec{k})) \quad 4.1.$$

Note-se que a presença da função delta indica que o tempo de vida média dos portadores não foi levado em conta. Convém ainda destacar aqui que Lysenko e outros [6] fazem uso de expressão formalmente semelhante no estudo do plasma em CdS.

Motisque [25] leva em conta de forma fenomenológica o tempo de vida média dos portadores de cada estado eletrônico induzido ($\tau = T^{-1}$ no caso) e através de [35] obtém a emissão espontânea na forma

$$I_{MO}(\omega) \sim \omega^2 \sum_{\vec{k}} f_e(\vec{k}_e) f_h(\vec{k}_h) \frac{k T}{[k\omega - E_g - E(\vec{k})]^2 + k^2 T^2} \quad 4.2.$$

Estas expressões e congêneres*, obtidas dentro de um ponto de vista de um quasi-equilíbrio termodinâmico, têm sido bastante utilizadas em ajustes de resultados experimentais

, os resultados são satisfatórios [14,6,25], embora somente a adição explícita ao hamiltoniano da interação fônon-portador possibilite um melhor ajuste na região de mais baixa energia da banda P luminescente.

A seguir se reescreve por conveniência a primeira contribuição obtida neste trabalho para a intensidade de luminescên-

*Vale destacar o trabalho de Zimmermann e Rösler [30]; nele se leva em conta a anisotropia das bandas de energia e obtém-se uma expressão para a luminescência cuja forma, infelizmente, não permite uma comparação imediata com aquelas em que aqui se tem interesse (4.1,4.2,4.3).

cia, que é o termo $I_1(\omega)$ (aqui $\hbar = 1$)

$$I_1(\omega) \sim \omega^2 \cdot \int_0^{\infty} dE_k E_k^{1/2} f_h(E_{kh}) f_e(E_{ke}) \cdot \frac{T}{(\omega - E_g - E_k)^2 + T^2} \quad 4.3.$$

Ele é idêntico àquela expressão obtida para a luminescência por Motisuke (4.2) e uma generalização daquela obtida por Meneses e Luzzi (4.1). Neste termo, a presença da interação coulombiana se faz notar somente na energia de gap renormalizada E_g . Assim, reobtem-se em primeira aproximação ($I(\omega) = I_1(\omega)$) todos aqueles resultados anteriormente estabelecidos:

- i) surgimento da banda P;
- ii) deslocamento do pico da banda para regiões de menor energia com o aumento da densidade de excitação;
- iii) alargamento do espectro com o aumento da densidade de excitação.

Isto pode ser visto claramente através da Fig. 4.1., em cuja obtenção fez-se uso da Tabela 4.1., do Apêndice B para o cálculo da densidade de portadores e da temperatura, T , potenciais químicos, etc obtidos neste trabalho através de ajustes do coeficiente de absorção aqui calculado (2.5.23) com aqueles espectros experimentais obtidos por Motisuke [25,2].

A segunda contribuição para a intensidade de luminescência é o termo $I_2(\omega)$ cuja forma está expressa nas equações 2.5.20-22b. Sua contribuição à intensidade de luminescência $I(\omega)$ é muito menor do que a do termo $I_1(\omega)$, o que pode ser visto facilmente nas figuras 4.2 e 4.3, que contém os gráficos de $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$, $I_1(\omega)$ e $I_2(\omega)$ para o CdS e GaAs. para a obtenção da Fig. 4.2. fez-se uso dos parâmetros obtidos neste trabalho no modo descrito no parágrafo anterior; na obtenção da Fig. 4.3. fez-se uso dos valores obtidos em [39] para os potenciais químicos, densidade de portadores e energia de gap renormalizada, tendo T sido aqui estimado em 12.5 meV.

O fato de $| I_1(\omega)/I_2(\omega) | \gg 1$ quase justifica plenamente a utilização do Teorema do Desacoplamento Assintótico (10), a não ser pelo fato do termo $I_2(\omega)$ ser o responsável por uma estrutura luminescente no lado de mais alta energia do espectro de luminescência, que está situada além do potencial químico $\mu = \mathcal{E}_g + \mu_e + \mu_n$. Indicações de evidências experimentais da existência desta estrutura parecem estar presentes nas figuras 4.4-5.

É interessante notar que a estrutura observada na Fig. 4.2. não é observada através de espectros de ganho-absorção; isto se deve ao fato de sua presença ser totalmente encoberta pela variação abrupta do coeficiente de absorção na vizinhança da transição da região de ganho para a de absorção. Isto pode ser notado na Fig. 4.11a., que foi obtida da expressão 2.5.23 e cujos valores dos parâmetros T_{ef}, T, n e \mathcal{E}_g (idênticos àqueles utilizados na Fig. 4.2.) são obtidos através de ajuste com um dos resultados experimentais de Motisuke [25] presentes na Fig. 4.6.

Como última aplicação, o resultado de uma série de ajustes dos resultados experimentais de Motisuke para o coeficiente de absorção do CdS em diversos níveis de excitação é apresentado nas Figs. 4.7-13. Uma dependência linear da temperatura efetiva dos portadores fotoexcitados com a concentração dos mesmos é mostrada na Fig. 4.14; ela indica a existência de um EHP nestes níveis de excitação e não um EHL (como afirmado por Motisuke [25] com base em uma variação do índice de refração). No entanto, para um melhor esclarecimento dos limites de existência do EHL e EHP do ponto de vista experimental, faz-se necessário a obtenção de densidades de portadores ainda mais homogêneas e um controle do processo de difusão dos mesmos. Do ponto de vista teórico, talvez somente o desenvolvimento de um modelo capaz de conter uma transição de fase EHL \leftrightarrow EHP (e que descreva ainda o sistema altamente excitado tanto no regime da existência de excitons como no regime de plasma) possa trazer a resposta final a esta questão.

Em conclusão; pode-se dizer que ficou aqui demonstrado que além de uma renormalização no gap de energia, a interação coulombiana é responsável por uma estrutura luminescente no lado de

mais alta energia do espectro de luminescência do EHP, mas que não se manifesta no espectro de ganho-absorção.

Finalmente, a utilização do modelo desenvolvido neste trabalho em ajustes dos resultados experimentais de Motisuke para a absorção indica a existência de um EHP no CdS em intensidades de excitação entre 2.26 e 13.2 MW/cm² ou superiores às mesmas.

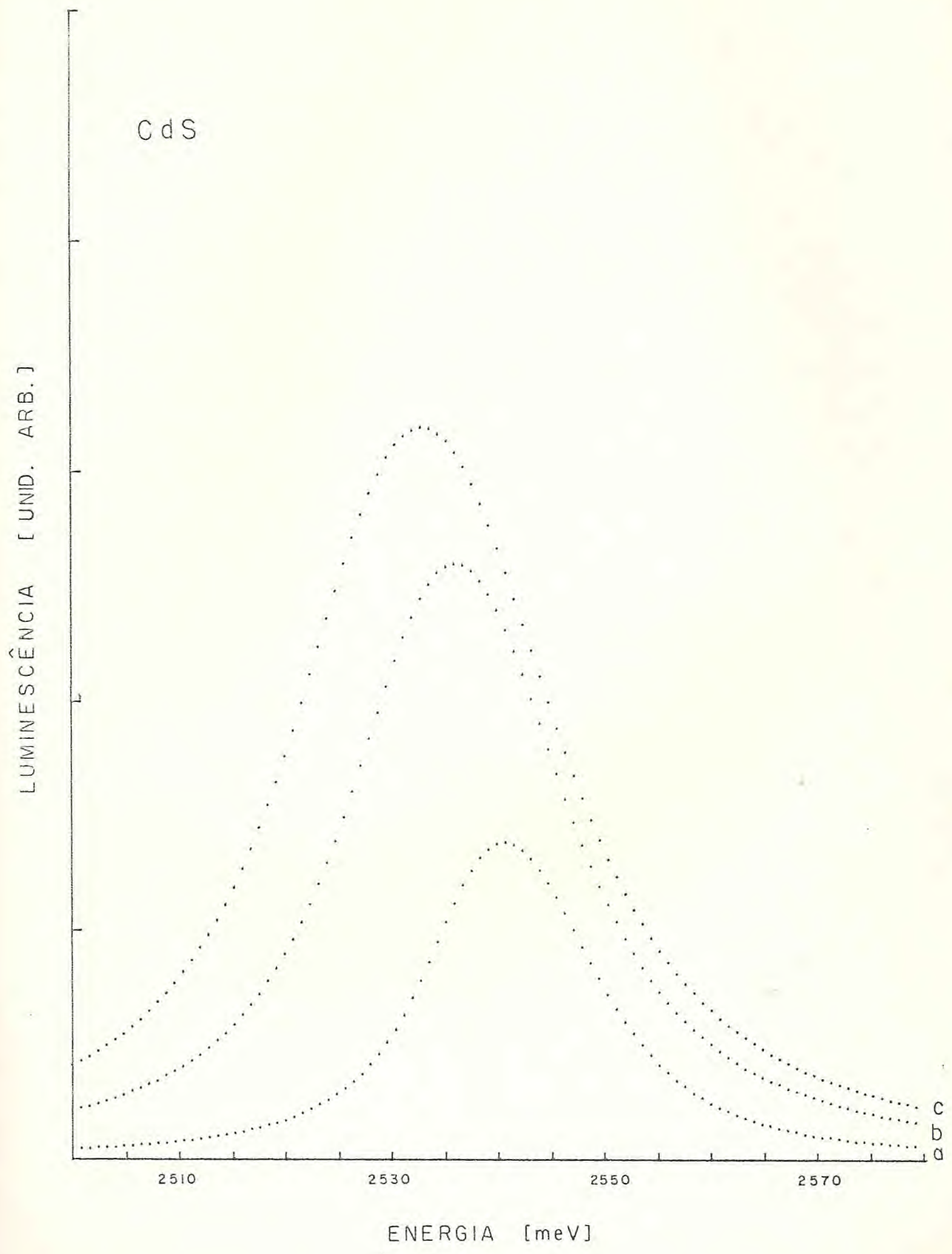


Fig. 4.1. Intensidade de Luminescência $I(\omega) = I_1(\omega)$ para crescentes densidades de Excitação: (a) $0.47 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$; (b) $4.0 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$; (c) $8.6 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$.

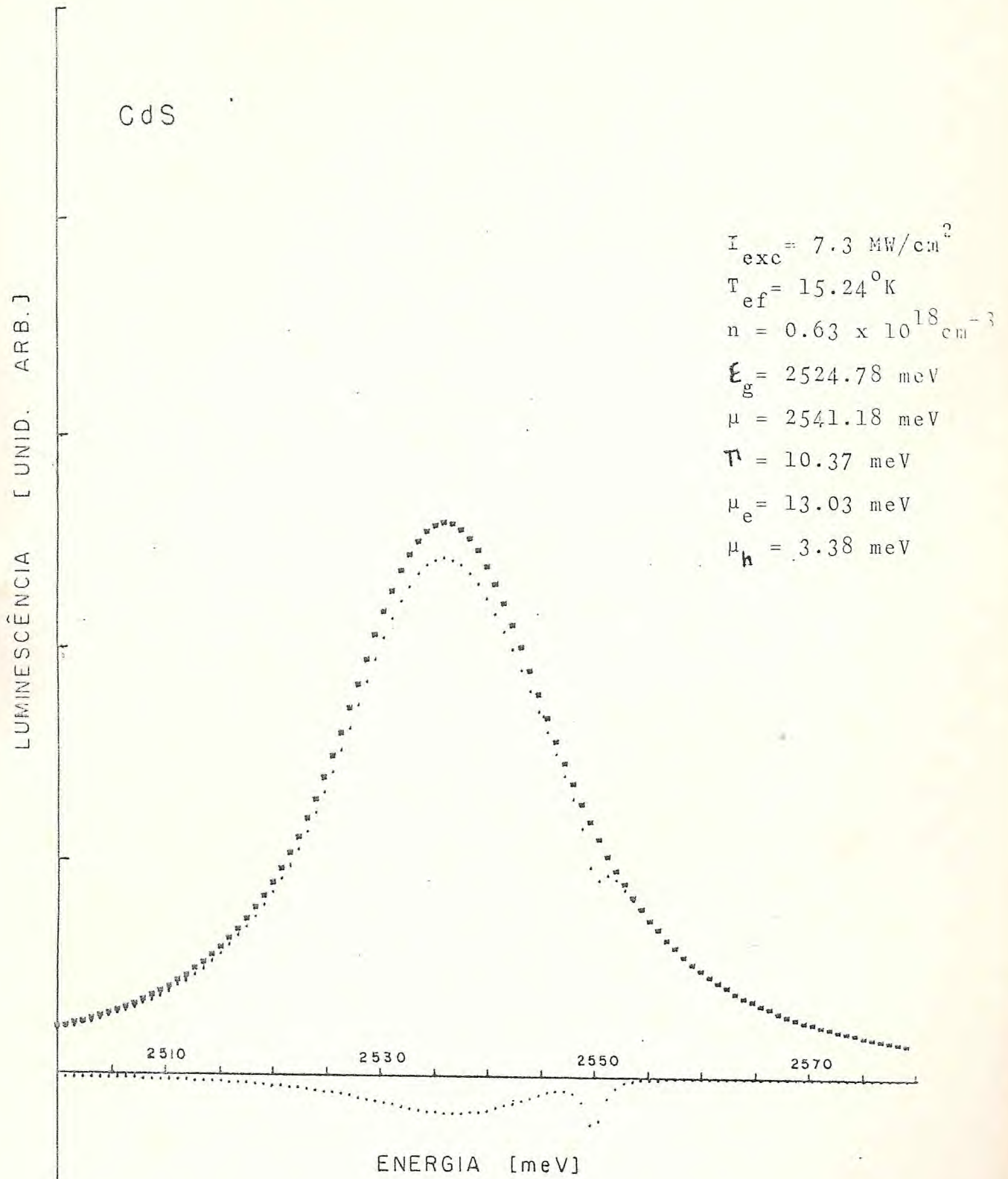


Fig. 4.2. Intensidades de Luminescência obtidas para CdS:
 (x) $I_1(\omega)$; (. superiores) $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$; (. inferiores) $I_2(\omega)$

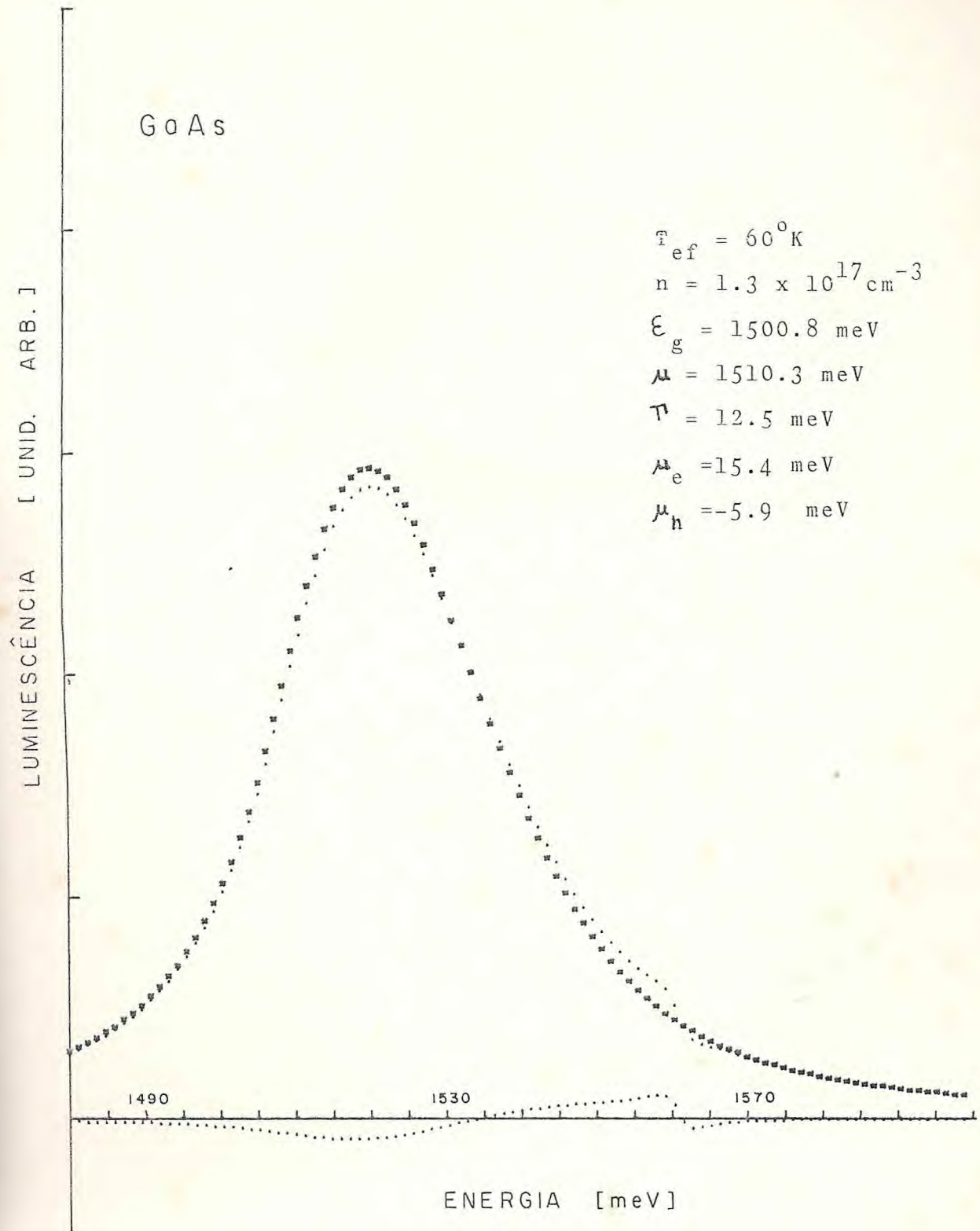


Fig. 4.3. Intensidades de Luminescência obtidas para GaAs.
 (x) $I_1(\omega)$; (. superiores) $I(\omega)$; (. inferiores) $I_2(\omega)$

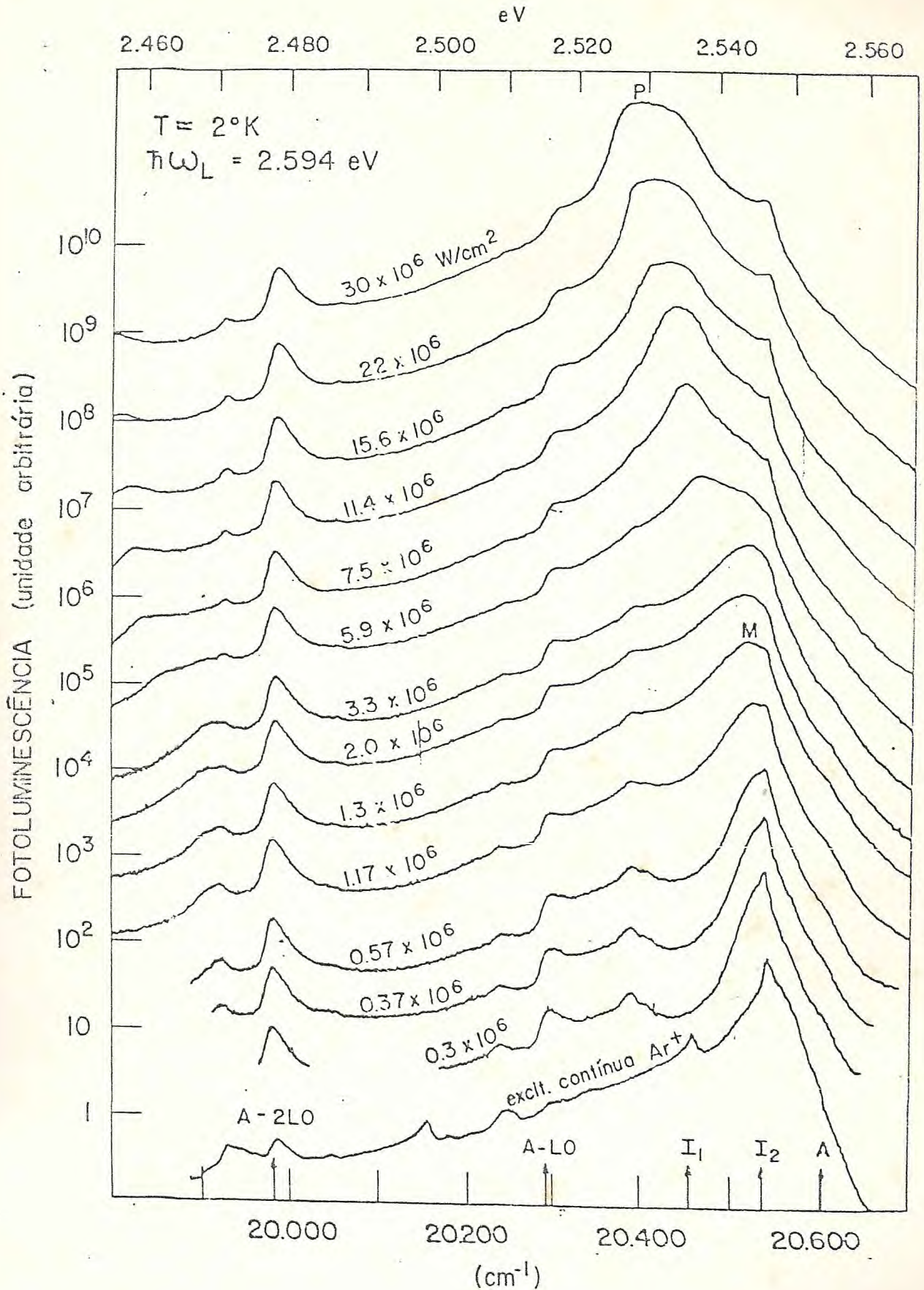


Fig. 4.4. Evolução dos Espectros de Luminescência em amostras de CdS como função das densidades de excitações indicadas. A temperatura do banho foi de $T \approx 2^\circ\text{K}$ e a energia do fóton excitador foi de $\hbar\omega = 2.594 \text{ eV}$ (de Motisuke [25]).

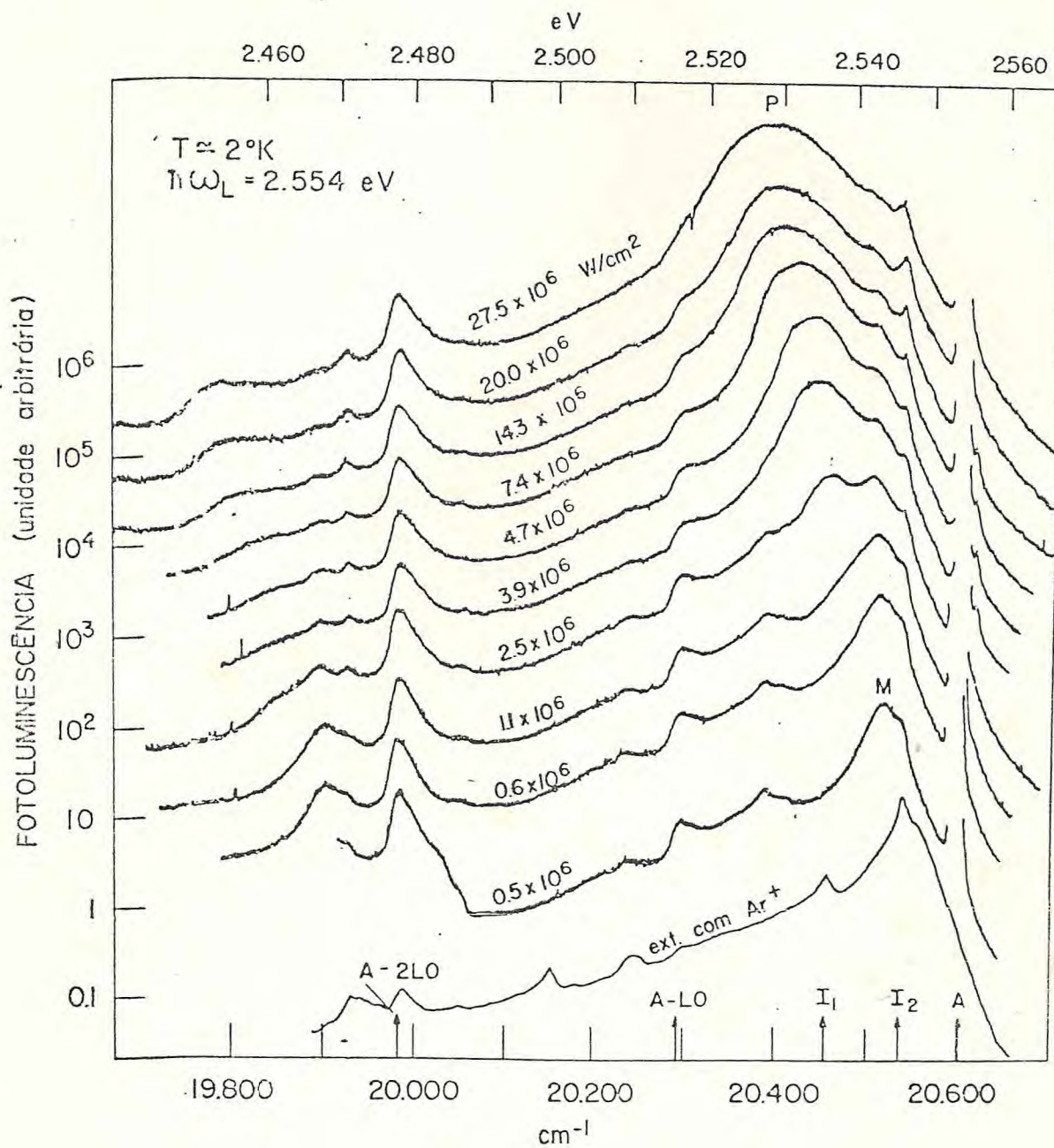


Fig. 4.5. Evolução dos Espectros de Fotoluminescência em amostras de CdS como função das densidades de excitações indicadas. A temperatura foi de $T = 2^\circ\text{K}$ e a energia do fóton excitador foi de $\hbar\omega = 2.554 \text{ eV}$ (de Motisuke [25]).

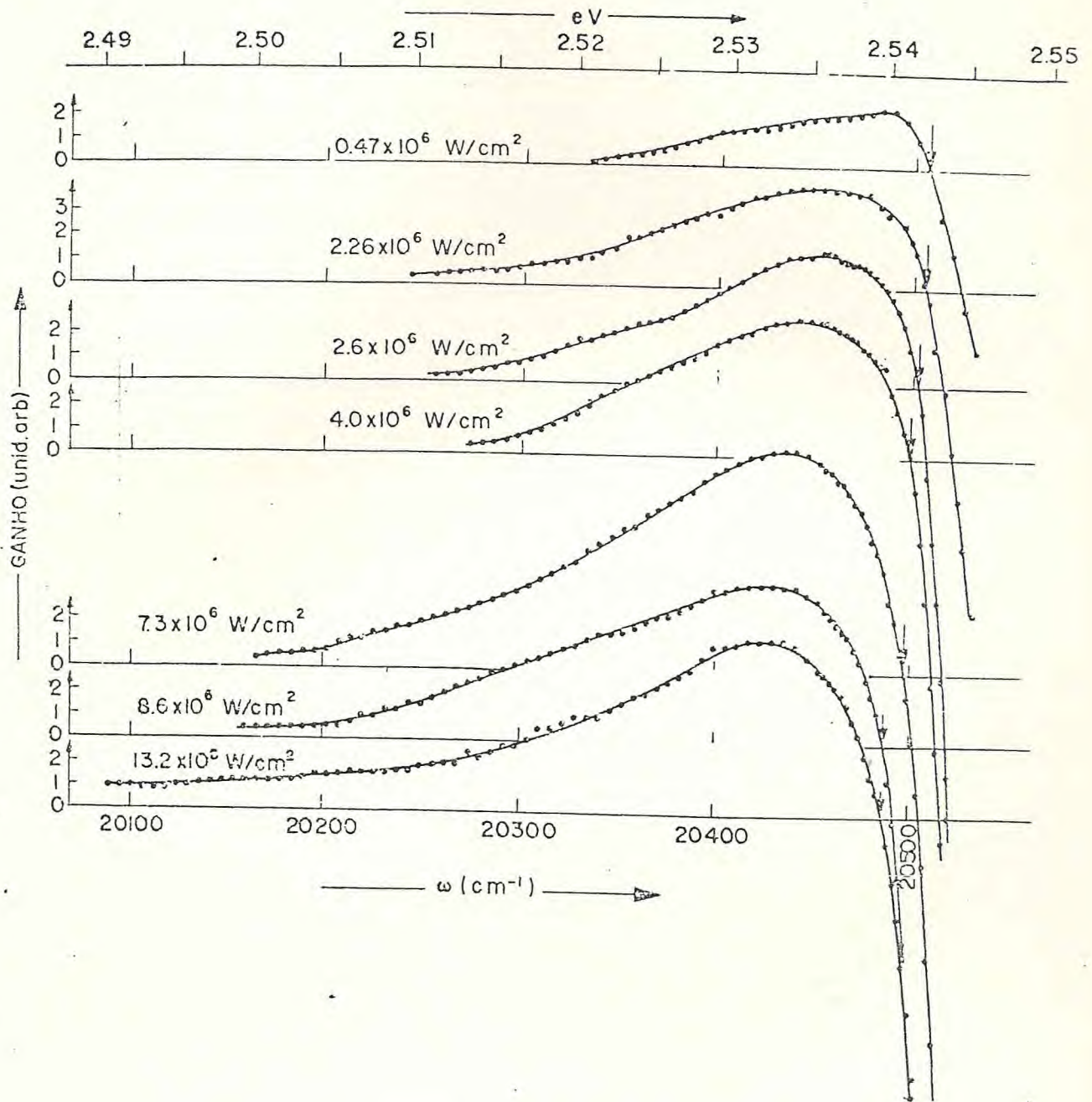


Fig. 4.6. Espectros de ganho-absorção para diferentes densidades de excitações. Os pontos de transição ganho-absorção em cada espectro estão indicados por uma seta. Note-se o aparecimento de uma longa cauda nos espectros que se estende para energias menores, principalmente nas mais altas excitações (de Motisuke [25]).

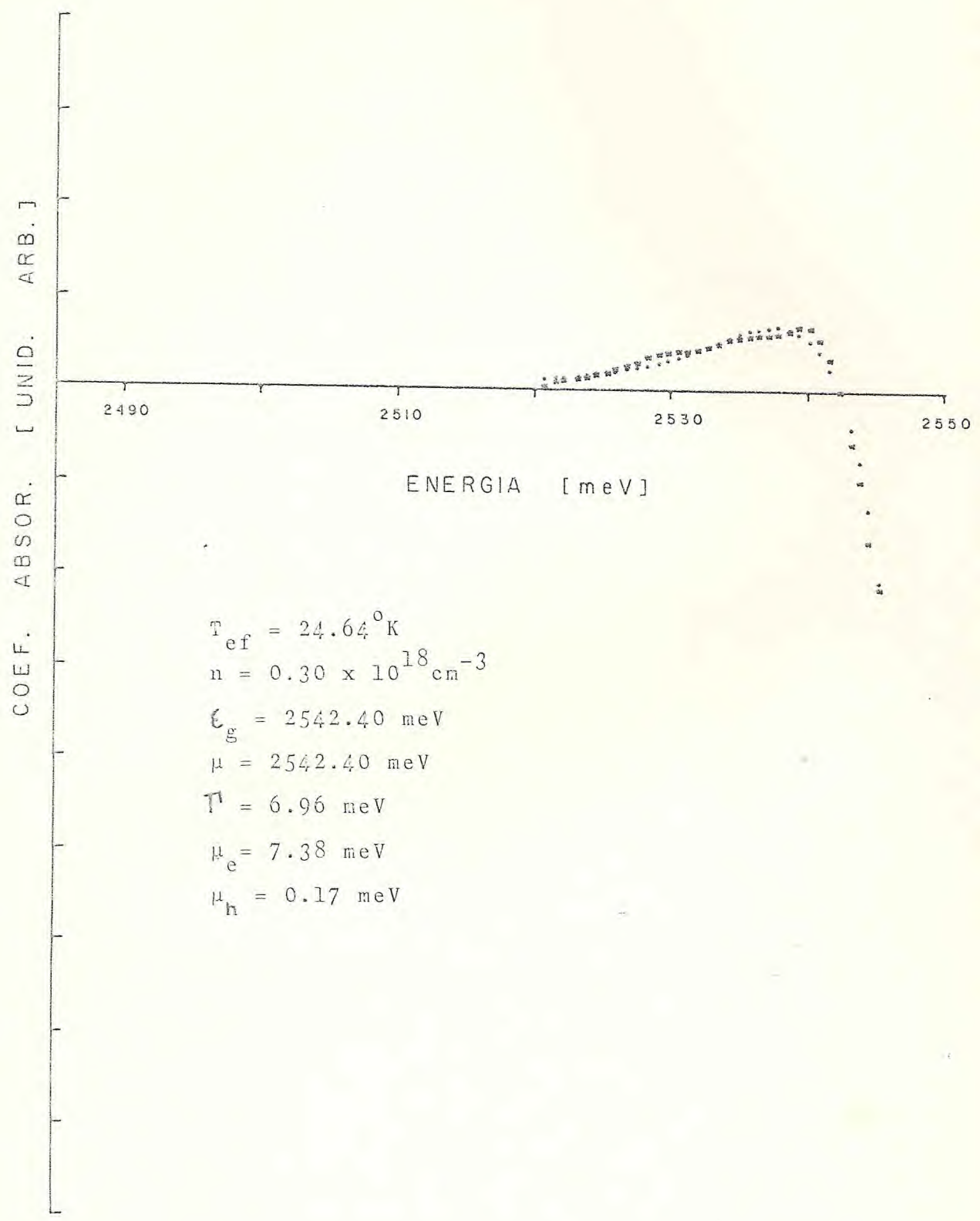


Fig. 4.7. Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 0.47 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23 com $\bar{I}(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$. (.) valôres teóricos; (x) valôres experimentais.

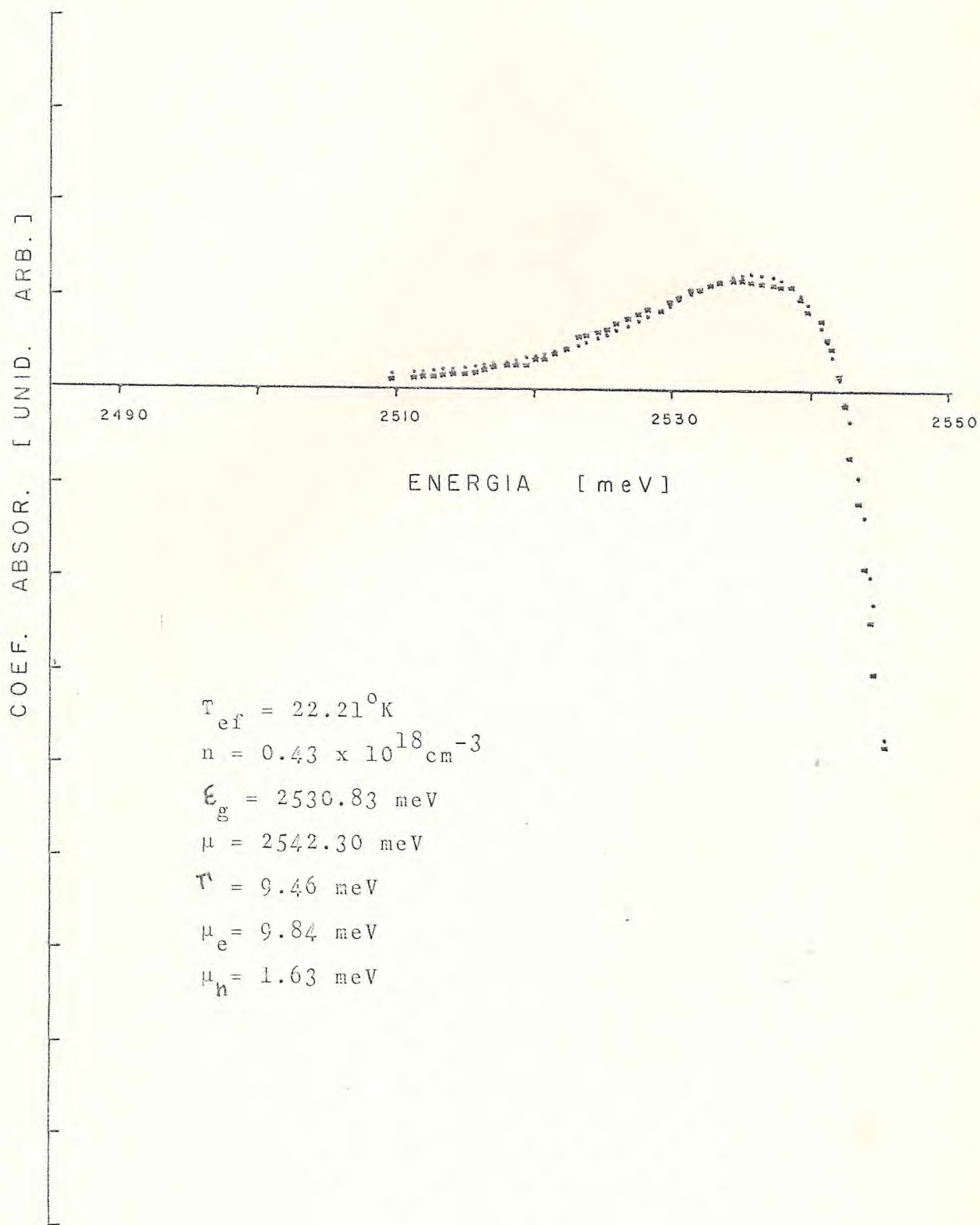


Fig. 4.8 . Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 2.26 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23 com $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$. (.) valores teóricos; (x) valores experimentais.

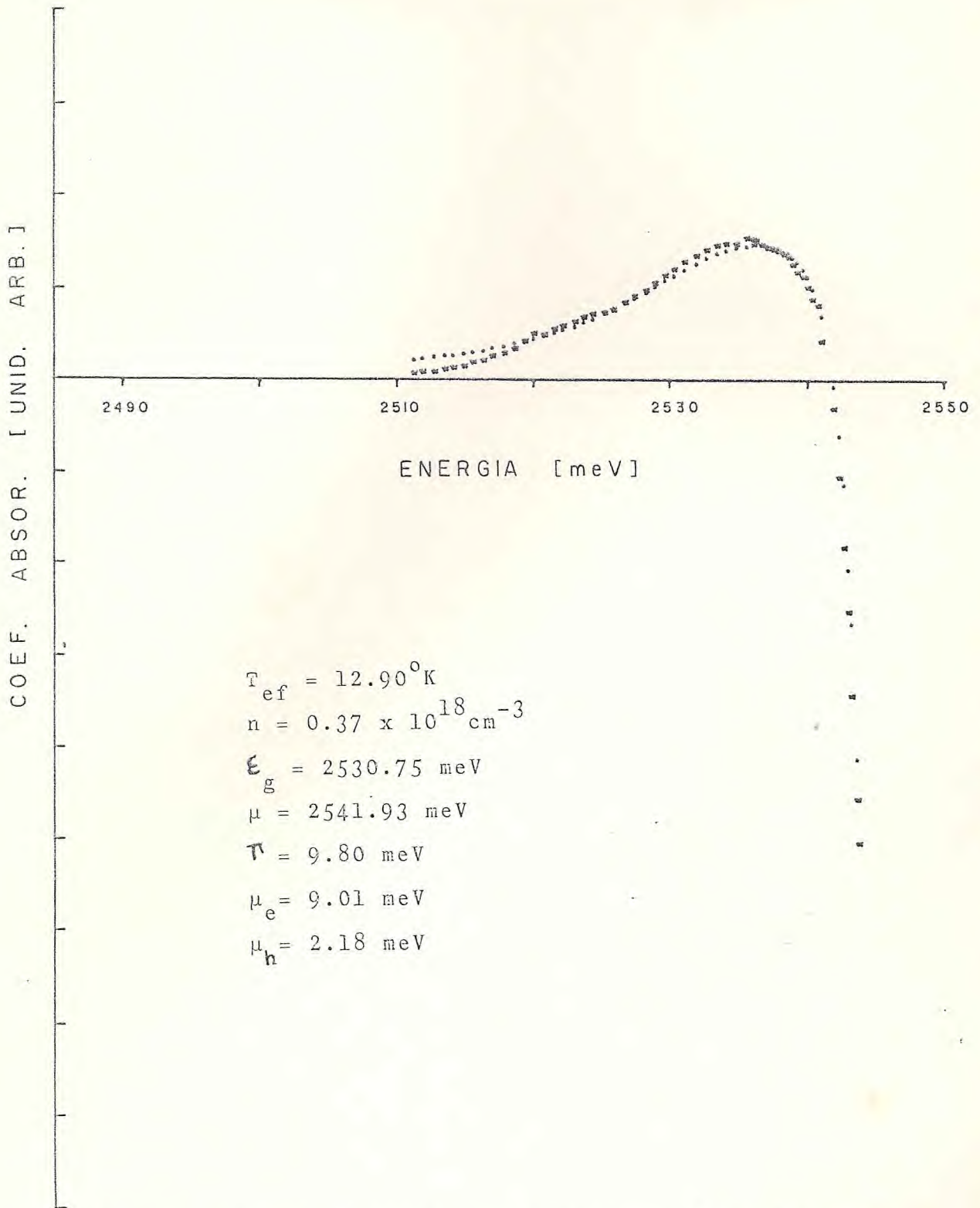


Fig. 4.9. Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 2.6 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23 com $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$. (.) valores teóricos; (x) valores experimentais.

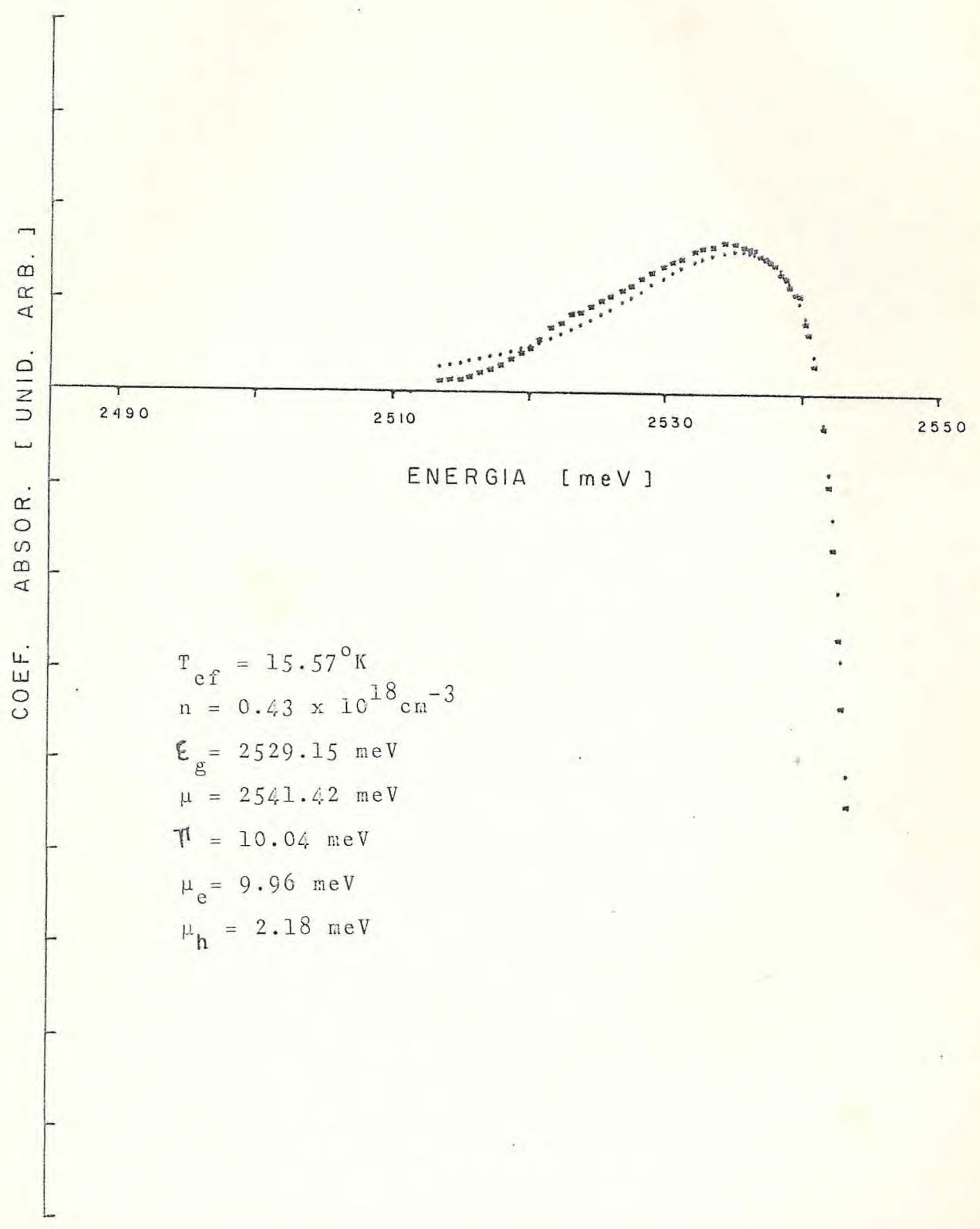


Fig. 4.10. Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 4.0 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23 com $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$. (.) valores teóricos; (x) valores experimentais.

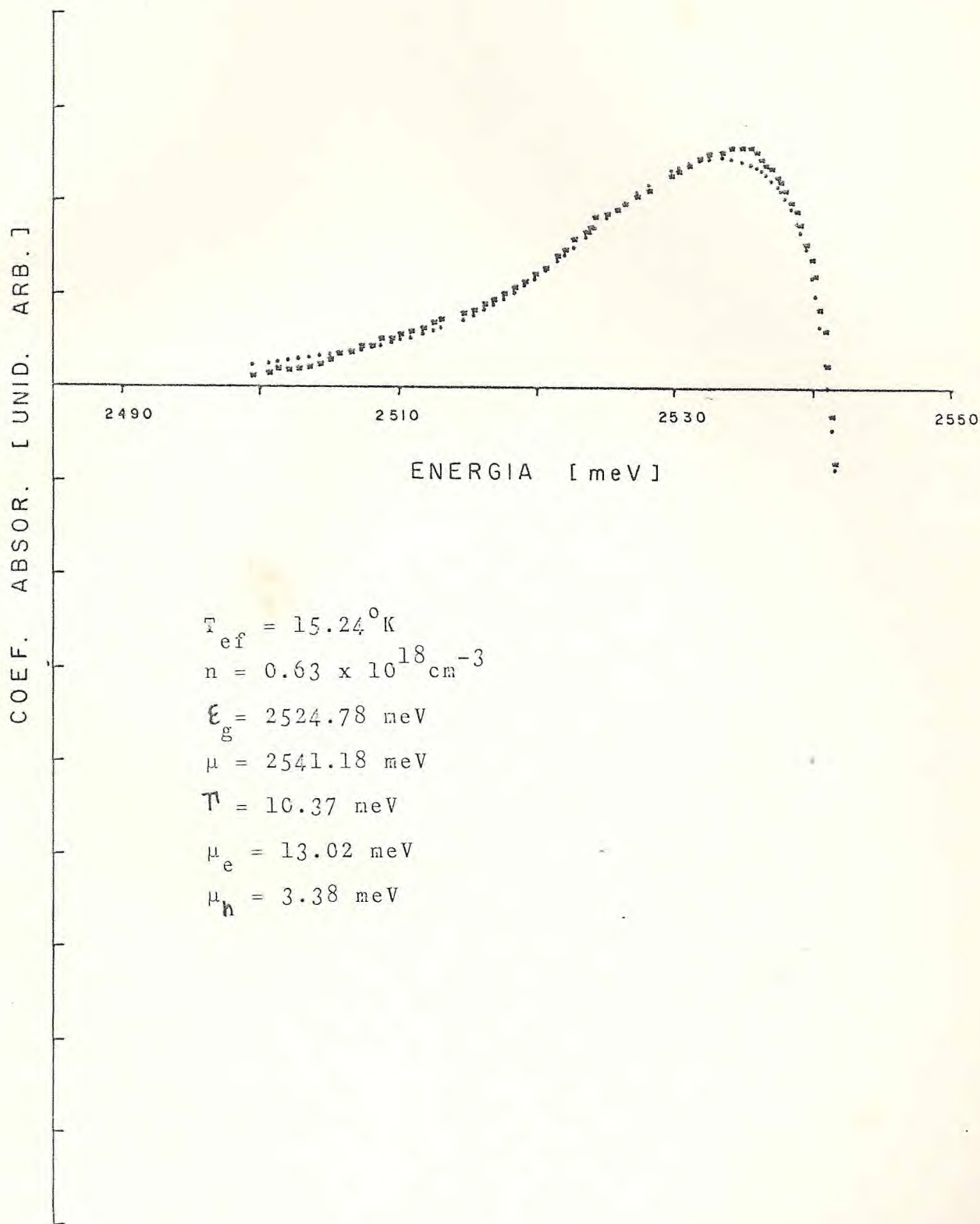


Fig. 4.11a. Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 7.3 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23 com $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$. (.) valores teóricos; (x) valores experimentais.

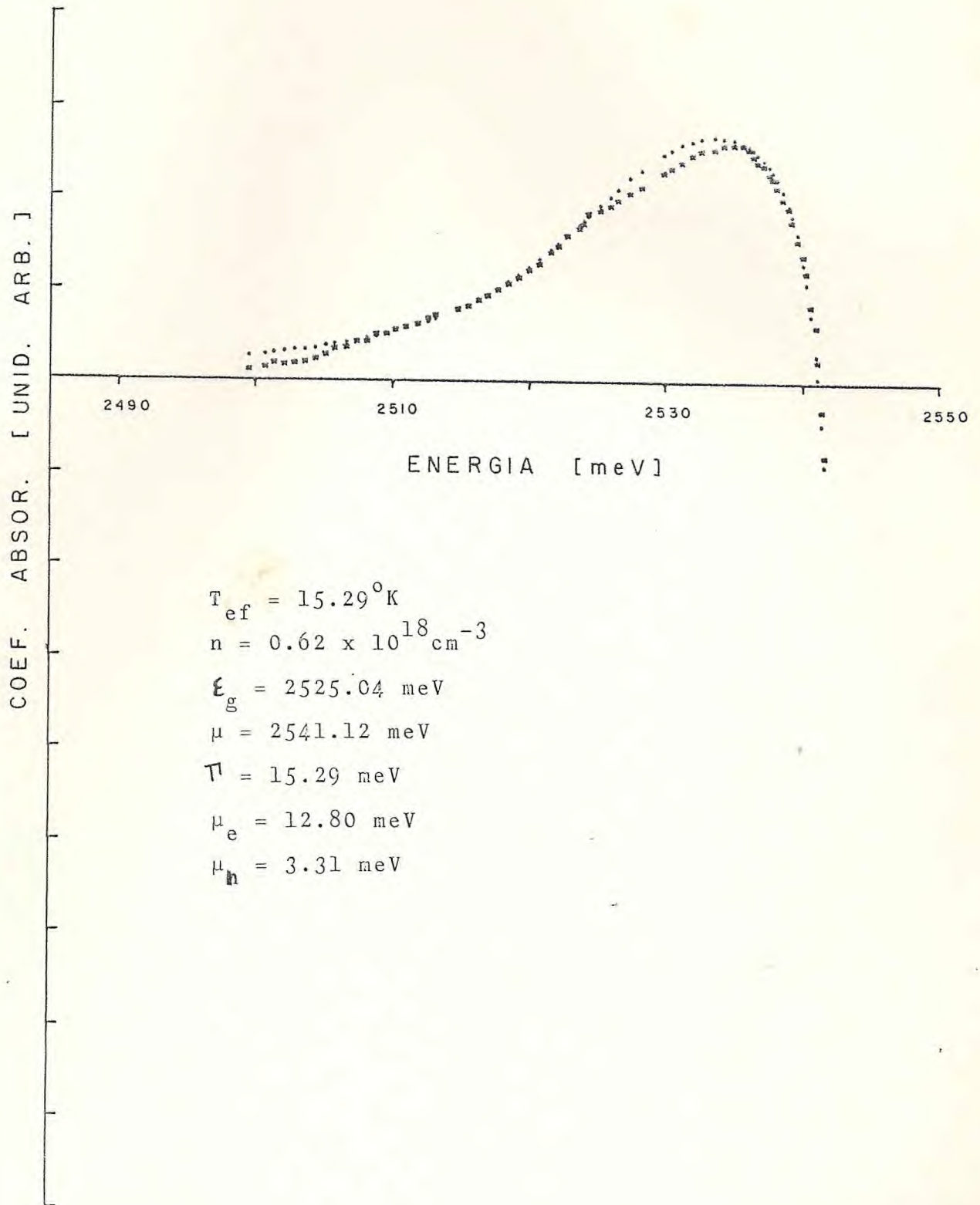


Fig. 4.11b. Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 7.3 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23 com $I(\omega) = I_1(\omega)$. (.) valores teóricos ; (x) valores experimentais.

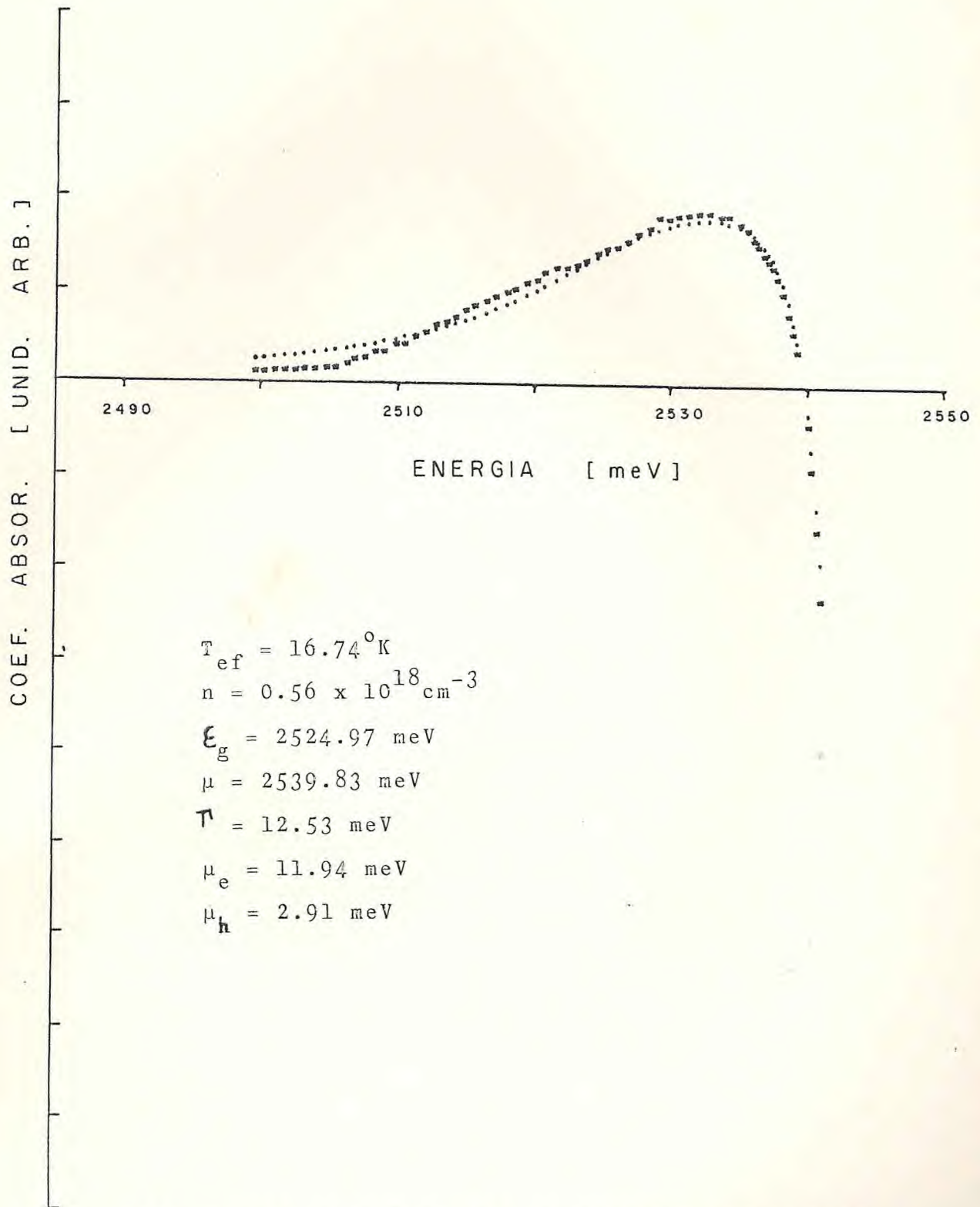


Fig. 4.12. Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 8.6 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23 com $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$. (.) valores teóricos; (x) valores experimentais.

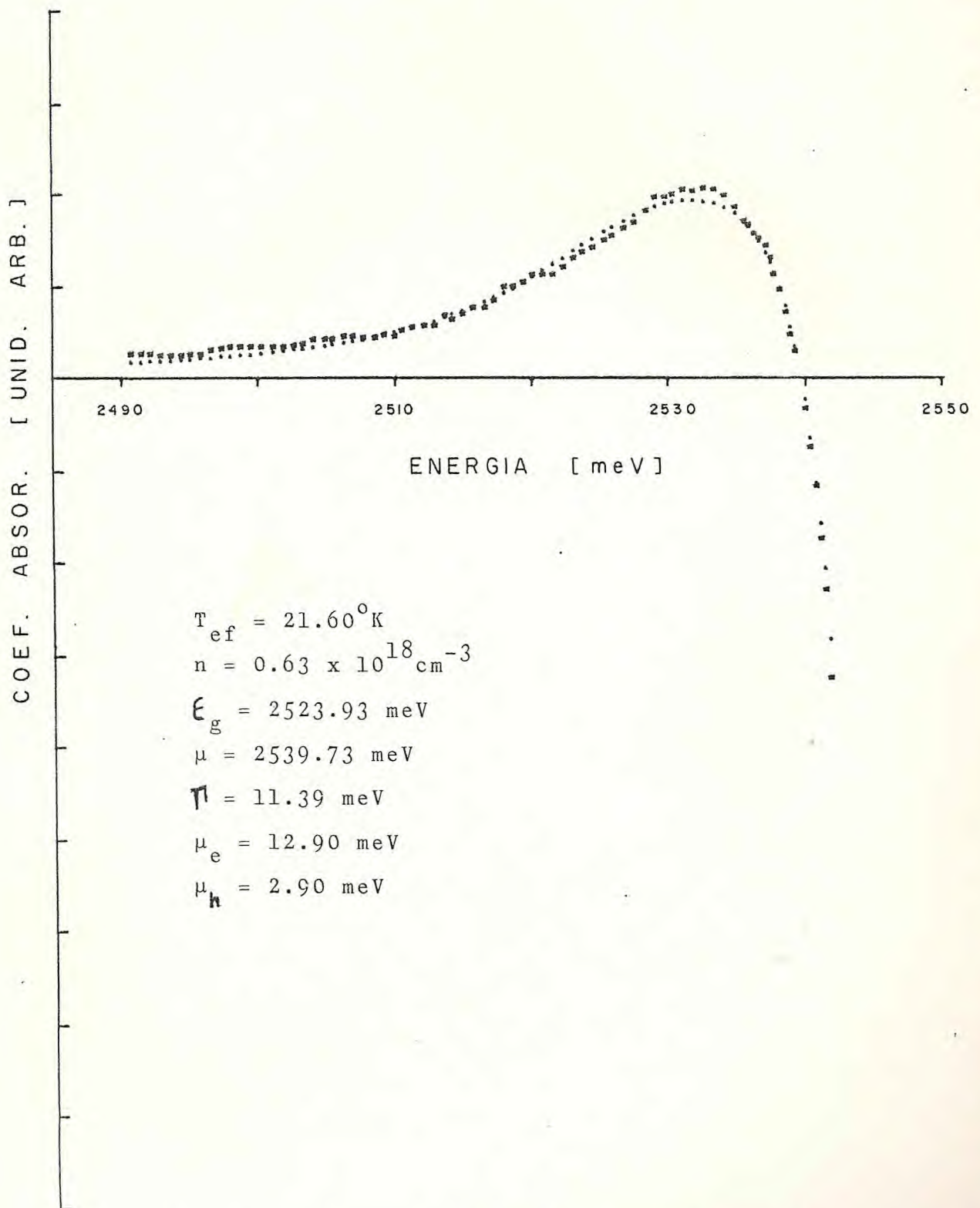


Fig. 4.13. Ajuste do coeficiente de absorção do CdS para $I_{exc} = 13.2 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ com valores teóricos obtidos da equação 2.5.23. com $I(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega)$. (.) valores teóricos; (x) valores experimentais.

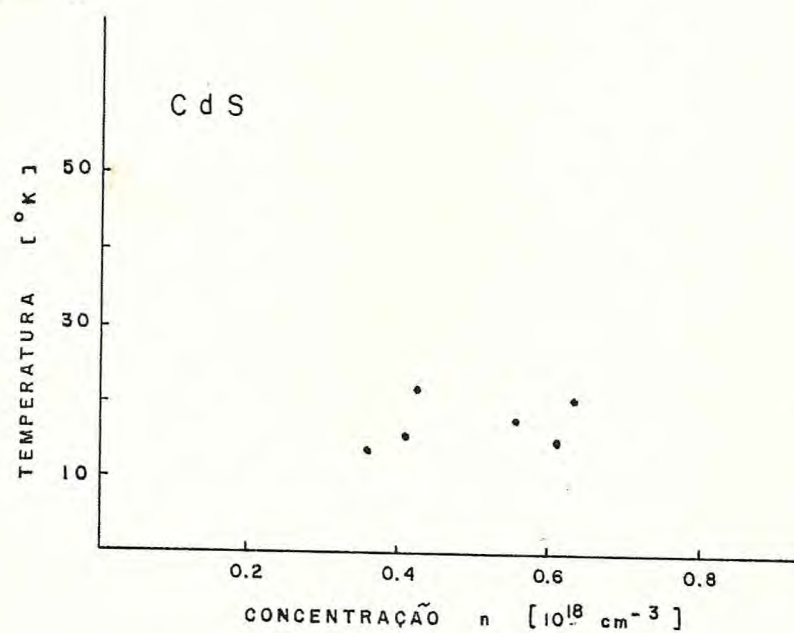


Fig. 4.14. Relação densidade-temperatura para o CdS utilizando-se os resultados dos ajustes do coeficiente de absorção das Figs. 4.7-13

APÊNDICE A [4¹]

O preenchimento das bandas de energia supostas parabólicas obedece à função distribuição de Fermi-Dirac

$$f_{e,h}(\vec{k}) = \frac{1}{1 + \exp\{\beta \cdot [E_{e,h}(\vec{k}) - \mu_{e,h}]\}} \quad \text{B.1}$$

onde $\mu_{e,h}$ são determinados impondo que o nº de estados ocupados seja igual ao nº total de e-elétrons (h-buracos) presentes, I.E.,

$$n_{e,h} = \int_{-\infty}^{\infty} f_{e,h}(E) g_{e,h}(E) dE \quad \text{B.2}$$

Adotando $g_{e,h}(E) = 4\pi (2 m_{e,h}/h^2)^{3/2} \cdot (E - \epsilon_g)^{1/2}$ e passando a uma notação adimensional fazendo $\epsilon = \beta(E - \epsilon_g)$ e $\eta_{e,h} = \beta(\mu_{e,h} - \epsilon_g)$ obtém-se

$$n_{e,h} = N_{e,h} \cdot \mathcal{F}_{1/2}(\eta_{e,h}) \quad \text{B.3}$$

onde

$$N_{e,h} = 2 \cdot \left[\frac{2\pi m_{e,h}}{\beta h^2} \right]^{3/2} \quad \text{B.4.a.,}$$

$$\mathcal{F}_j(\eta_{e,h}) = \frac{1}{\Gamma(j+1)} \cdot \int_0^{\infty} \frac{\epsilon^j d\epsilon}{1 + \exp(\epsilon - \eta_{e,h})} \quad \text{B.4.b.}$$

APÊNDICE B [23]

De imediato tem-se

$$\begin{aligned}
 T &= \langle \vec{k} \Omega | \sum_{\vec{q}} V(\vec{q}, t) \exp(-i \vec{q} \cdot \vec{r}) | \vec{k} + \vec{q} \Omega \rangle \\
 &= \sum_{\vec{q}} V(\vec{q}, t) \Omega^{-1} \int \exp[i(\vec{q} - \vec{q}') \cdot \vec{r}] \mu_{\vec{k}}^*(\vec{r}) \mu_{\vec{k} + \vec{q}'}(\vec{r}) d^3 \vec{r}
 \end{aligned}$$

C.1

Devido à periodicidade de μ , a integral em C.1 pode ser expressa como uma soma de integrais sobre células unitárias. Seja \vec{r}_n a origem destas células e \vec{r} um vetor com origem na extremidade de \vec{r}_n , e que determina pontos na célula; segue-se que

$$T = \sum_{\vec{q}, n} V(\vec{q}, t) \exp[i(\vec{q} - \vec{q}') \cdot \vec{r}_n] \cdot \Omega^{-1} \cdot \int_{\text{CEL}} \mu_{\vec{k}}^*(\vec{r}) \mu_{\vec{k} + \vec{q}'} \exp[i(\vec{q} - \vec{q}') \cdot \vec{r}] d^3 \vec{r}$$

Como $\sum_n \exp[i(\vec{q} - \vec{q}') \cdot \vec{r}_n] = \delta_{\vec{q}, \vec{q}'} N_c$, onde N_c é o nº de células unitárias no cristal, tem-se finalmente

$$T = V(\vec{q}, t) \cdot \Omega^{-1} \int_{\text{CEL}} \mu_{\vec{k}}^*(\vec{r}) \mu_{\vec{k} + \vec{q}}(\vec{r}) d^3 \vec{r}$$

com $\Omega = \Omega / N_c$.

BIBLIOGRAFIA

1. E. Hanamura and H. Haug
Physics Reports 33, n° 4 (1977) 209-284
2. R. Luzzi and L.C. Miranda
Physics Reports 43, n° 11 (1978) 423-453
3. C. Klingshirn and H. Haug
Physics Reports 70, n° 5 (1981) 315-398
4. G. Beni and T.M.Rice
Phys. Review B18, n° 2 (1978) 768-785
5. M.V. Lebedev and V.G.Lysenko
Sov. Phys. Solid State 25(4), April 1983
6. V.G. Lysenko, V.I. Revenko, T.G. Tratas and V.B. Timofeev
Sov. Phys. JETP 41, n° 1 (1975) 163-168
7. A. Forchel, H. Schweizer, H. Nather, K. M.Romanek, J.Fischer
and G. Mahler.
Proc. Int. Conf. Phys. Semic. 1982, Physica B+C 117/118
(1983) 336-338.
8. H. Yoshida and S. Shionoya
Phys. Stat. Sol. (b) 115, 203 (1983) 203-208.
9. O. Hildebrand, E. O.Goebel, K.M. Romanek and H. Weber
Phys. Rev. B17, n° 12 (1978) 4775-4787.
10. G. Mahler, G. Maier, B. Laurich, H. Sanwald and W. Schmid
Phys. Rev. Lett. 47 (1981) 1855-1858.
11. Antonio J. C. Sampaio and R. Luzzi
J. Phys. Chem. Solids 44, n° 6 (1983) 479-488.

12. J. Collet, T. Amand and M. Pagnet
Phys. Lett. 96A, n° 7 (1983) 368-374.
13. L.J. Schowalter, F.M. Steranka, M.B. Salamon and J.P. Wolfe
Solid State Comm. 44, n° 6 (1982) 795-799.
14. E.A. Meneses and R. Luzzi
Solid State Comm. 12, n° 6 (1973) 447-450.
15. Eliermes A. Meneses
PhD Thesis (1973-unpublished)
16. V.L. Bonch Bruevich
Proc. Int. Sch. Phys. "Enrico Fermi", Rend. SIF 34, Ed. J. Tauc (Academic Press, New York, 1969).
17. J.G. Ramos and R. Luzzi
Solid State Comm. 14, n° 12 (1974) 1275-1278.
18. D.N. Zubarev
Sov. Phys. Uspekhi 3, n° 3 (1960) 320-345.
19. S.V. Tyablikov
Methods in the Quantum Theory of Magnetism, Plenum Press, New York (1967).
20. S.V. Tyablikov and V.L. Bonch-Bruevich
Adv. in Phys. 11 (1962) 317-348.
21. H. Ehrenreich and M.H. Cohen
Phys. Rev. 115, n° 4 (1959) 786-790.
22. H.R. Philipp and H. Ehrenreich
Phys. Rev. 129, n° 4 (1963) 1550-1560.

23. Optical Properties of Solids
Frederick Wooten
Academic Press, 1972.
24. Ultraviolet Optical Properties
H.R. Philipp and H. Ehrenreich
Semiconductors and Semimetals 3, Academic Press, INC. (1967).
25. Paulo Motisuke
PhD Thesis (1977-unpublished).
26. P. Motisuke, C.A.Arguello and R.C.C.Leite
Solid State Comm. 16, 763 (1975).
27. A. Cornet, T. Amand, M. Pugnet and M. Brousseau
Solid State Comm. 43, n° 2 (1982) 147-151.
28. L.V. Keldysh
Proc. 9th Intern. Conf. Phys. Semiconductors (Moscow,1968)
1303.
29. Philoppe Nozières
Proc. Intern. Phys. Semiconductors 1982, Physica B+C 117/
118 (1983) 16-22.
30. R. Zimmermann and M. Rösler
Phys. Stat. Sol. (b) 75, 633-645.
31. W.F. Brinkmann and T.M.Rice
Phys. Rev. B7 (1973) 1508
32. L. Van Hove
Phys. Rev. 95, 249 (1954)
33. Condensed Matter Physics-Dynamic Correlations
S.W. Lovesey, The Benjamin/Cummings Publishing Company
(1980).
34. Antonio José C. Sampaio
PhD Thesis (1983-unpublished).

35. Gordon Lasher and Frank Stern
Phys. Rev. 133A, n° 2 (1964) 553-563.
36. Photoluminescence I: Theory
H. Barry Bebb and E.W. Williams
Semiconductors and Semimetals 8, Academic Press, INC. (1972).
37. Optical Absorption and Dispersion in Solids
J.N. Hodgson, Chapman and Hall Ltd (1970).
38. A.C. Sharma and S. Auluck
Phys. Lett. 96A, n° 5 (1983) 255-258.
39. O. Hildebrand, B.O. Faltermeier and M.H. Pilkuhn
Solid State Comm. 19, n° 9 (1976) 841-844.
40. Semiconductor Statistics
J.S. Blakemore
Pergamon Press, N.Y. (1962).