

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

**Leonarde do Nascimento Rodrigues**

**Sobre a natureza das excitações de partícula independente em gás de  
elétrons bidimensional via espectroscopia Raman ressonante**

Juiz de Fora

2016

Leonarde do Nascimento Rodrigues

Sobre a natureza das excitações de partícula independente em gás de elétrons bidimensional via espectroscopia Raman ressonante

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de Juiz de Fora, como requisito parcial para obtenção do título de Doutor em Física.

Orientador: Virgílio de Carvalho dos Anjos

Juiz de Fora

2016

Ficha catalográfica elaborada através do Modelo Latex do CDC da UFJF  
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

Rodrigues, Leonarde do Nascimento.

Sobre a natureza das excitações de partícula independente em gás de elétrons bidimensional via espectroscopia Raman ressonante / Leonarde do Nascimento Rodrigues. – 2016.

87 f. : il.

Orientador: Virgílio de Carvalho dos Anjos

Tese (Doutorado) – Universidade Federal de Juiz de Fora, Instituto de Ciências Exatas. Programa de Pós-Graduação em Física, 2016.

1. Poço quântico. 2. Poço quântico estreito. 3. Espalhamento Raman eletrônico. 4. Excitações de partícula independente. 5. Excitações coletivas.  
I. Anjos, Virgílio de Carvalho dos, orient. II. Título.

Leonarde do Nascimento Rodrigues

**Sobre a natureza das excitações de partícula independente em gás de elétrons bidimensional via espectroscopia Raman ressonante**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de Juiz de Fora, como requisito parcial para obtenção do título de Doutor em Física.

Aprovada em:

BANCA EXAMINADORA

---

Prof. Dr. Virgílio de Carvalho dos Anjos - Orientador  
Universidade Federal de Juiz de Fora

---

Professor Dr. ??  
Universidade ???

---

Professor Dr. ??  
Universidade ??

## AGRADECIMENTOS

A toda minha família, em especial, aos meus heróis, meu pai Victor e mãe Jacqueline, por tanta amizade, tanto amor e tanta doação. Luzes de respeito, caráter, de amabilidade e de coragem. À minha companheira Débora, pelo total apoio e por não soltar as minhas mãos.

A meu orientador Professor Virgílio e a Professora Maria José, pela confiança, oportunidade, apoio, amizade e por me direcionar a caminhos certos. Exemplos de uma conduta íntegra e honesta para o âmbito acadêmico, exemplos de professores, pesquisadores...

A meus amigos pelos momentos de descontração e pelas doses de entusiasmo. A meus colegas de pós-graduação, professores e funcionários da UFJF, que influenciaram direta ou indiretamente a realização deste trabalho e pelas trocas de saberes. Ao Domingos, pela dedicação e pelo caro exemplo.

Aos órgãos financiadores, CAPES, CNPq e FAPEMIG.

“É preciso sonhar, mas com a condição de crer em nosso sonho, de observar com atenção a vida real, de confrontar a observação com nosso sonho, de realizar escrupulosamente nossas fantasias. Sonhos, acredite neles.”

Lênin

## RESUMO

O espalhamento inelástico de luz tem sido extensivamente utilizado no estudo de materiais semicondutores e se tornou uma técnica indispensável para o entendimento de processos físicos fundamentais. Os efeitos das interações em sistemas eletrônicos quantizados como o gás de elétrons bidimensional foram investigados por meio do espalhamento inelástico de luz, o qual permite entender a natureza das excitações coletivas que são conhecidas como excitações de densidade de carga (CDE) e excitações de densidade de spin (SDE). CDE são oscilações plasmônicas resultantes do acoplamento entre as flutuações de carga via interações de Coulomb e correlação e troca, enquanto SDE ocorrem apenas em decorrência da presença dos efeitos de correlação e troca. CDE são ativas quando a energia do *laser* é ressonante com o *gap* óptico do semicondutor (regime de ressonância próxima) e as polarizações da luz incidente e espalhada são paralelas entre si. SDE é também ativa em condições de ressonância próxima e possui polarizações da luz incidente e espalhada perpendiculares entre si. Todavia, tal cenário rompe quando a luz do *laser* coincide com as energias das transições interbandas do material (regime de ressonância extrema). Em adição as excitações coletivas emergem transições anômalas de gás de elétrons tipo não interagente conhecidas como excitações de partícula independente (SPE). A física envolvida em tais transições ainda parece não ser completamente entendida. Neste trabalho, são apresentados resultados experimentais e teóricos via espalhamento Raman eletrônico oriundos de gás de elétrons bidimensional realizados a partir de poços quânticos simples com o intuito de compreender a natureza das excitações de partícula independente. A medida experimental e os cálculos presentes na tese consistem de um poço quântico simples de 250Å de GaAs (arseneto de gálio) com dopagem modular e densidade eletrônica total de  $8.81 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ . Também foi considerado o acoplamento das flutuações de densidade de carga com o fônon óptico longitudinal do GaAs. Em adição, é realizado um cálculo teórico de uma estrutura de poço quântico simples considerado estreito de 100Å de GaAs com dopagem modular e densidade eletrônica total de  $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ . Portanto, o objetivo deste trabalho é mostrar em um caminho claro e transparente a situação física da existência das excitações eletrônicas em gás de elétrons. O trabalho mostrou que, no regime de extrema ressonância, as oscilações de plasma se dividem em duas contribuições: um conjunto de excitações coletivas renormalizadas (plasmons) e transições eletrônicas não renormalizadas (SPE). A fim de alcançar esse propósito, o trabalho evidenciou que o espalhamento Raman eletrônico pertence a uma mesma classe de problemas como o oscilador harmônico amortecido, acoplado e forçado assim como o estado supercondutor na teoria BCS de metais normais. A comparação entre os dados experimentais e teóricos mostrou um excelente acordo.

Palavras-chave: Poço quântico. Poço quântico estreito. Espalhamento Raman eletrônico. Excitações de partícula independente. Excitações coletivas.

## ABSTRACT

The inelastic light scattering has been widely used in the study of the semiconductor materials and it has become an indispensable technique for the understanding of fundamental physical processes. The effects of the electronic interactions on quantized electronic systems as two-dimensional electron gas are investigated through means of Raman scattering which allows understand the nature of collective excitations which are known as charge density excitations (CDE) and spin density excitations (SDE). CDE are plasmonic oscillations arising from the coupling between charge fluctuations via Coulombian and exchange-correlation interactions while SDE occur only when exchange-correlation effects are present. CDE is active when the laser energy is resonant with a semiconductor optical gap (near resonance regime) and the incoming and outgoing light polarizations are parallel to each other and SDE has incoming and outgoing light polarizations perpendicular to each other. Nevertheless, such a picture breaks down when the laser matches interband transitions energies of the material (extreme resonance regime). In addition to the collective excitations emerge anomalous transitions of the electron gas noninteracting-like known as single-particle excitations (SPE). The physics of such transitions is still not completely understood. In this work, were present experimental and theoretical results via electronic Raman scattering originating from the two-dimensional electron gas carried out from single quantum wells with the aim of understand the nature of the single-particle excitations. The experimental measures and calculations present in the thesis consists of the GaAs (gallium arsenide) single quantum well of a 250Å wide with modulation-doped and total electronic density of  $8.81 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ . It was also considered the coupling of the charge fluctuations with the longitudinal optical phonon of GaAs. In addition, it is performed a theoretical calculation of a structure of the GaAs single quantum well considered narrow of a 100Å wide with modulation-doped and and total electronic density of  $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ . However, the goal of this work is to show in a clear and transparent way the physical situation of the existence of electronic excitaions in electron gas. The work showed that, in extreme resonance regime, the plasma oscillations splits into two contributions: a set of renormalized collective excitations (plasmons) and unrenormalized electronic transitions (SPE). In order to accomplish this purpose, the study showed that electronic Raman scattering belongs to the same class of problems such as a set of forced, coupled and damped harmonic oscillators or formation of the superconducting state in BCS theory of normal metals. Comparison between experiment and theory shows an excellent agreement.

Key-words: Quantum well. Narrow quantum well. Electronic Raman scattering. Single-particle excitations. Collective excitations.

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

- Figura 1 – **(A)** Espectro obtido a partir da geometria depolarizada considerando vários valores de vetor de onda de espalhamento  $k$ . A inserção superior corresponde a geometria de espalhamento do experimento, juntamente com a expressão para  $k$ . **(B)** Espectro obtido a partir da geometria polarizada considerando vários valores de vetor de onda de espalhamento  $k$ . A inserção superior corresponde a dependência das excitações coletivas com o vetor de onda de espalhamento. Figura retirada da referência [11]. . . . . 16
- Figura 2 – **(A)** Estrutura cristalina do Arseneto de gálio (GaAs) com parâmetro de rede  $a$ . **(B)** Primeira zona de Brillouin da rede recíproca: octaedro truncado. Figura adaptada de [2]. . . . . 20
- Figura 3 – Estrutura de banda para o GaAs. A quebra da degenerescência da banda de valência devido ao acoplamento spin-órbita resulta no aparecimento da banda de buraco pesado e buraco leve (quadrupletto  $\Gamma_8$ ) assim como a banda de splitt-off (dupletto  $\Gamma_7$ ).  $E_{\text{gap}}$  representa a energia no *gap* fundamental e  $E_{\text{gap SO}}$  representa a energia de separação entre as bandas de valência. Outros pontos de simetria e seus respectivos *gaps* de energias são mostrados simbolicamente. Figura adaptada de [27]. . . . . 22
- Figura 4 – Perfil do potencial da banda de condução e da banda de valência da heteroestrutura AlGaAs-GaAs. **(A)** Perfil da dopagem modular. Parte da barreira AlGaAs é dopada com Si que doa um elétron para a rede. **(B)** Perfil das discontinuidades do potencial do AlGaAs e GaAs. O AlGaAs tem um *gap* de energia  $E_{\text{gap}}$  maior que a energia do GaAs.  $\Delta E_C = 0.67\%$  e  $\Delta E_V = 0.33\%$  correspondem, respectivamente, a descontinuidade da banda de condução e da banda de valência. **(C)** No equilíbrio os elétrons associados aos doadores são transferidos para estados de energia mais baixo na região do poço quântico. A separação espacial entre os elétrons e os doadores ionizados causam uma curvatura nas bandas de condução e valência. . . . . 23
- Figura 5 – **(A)** Perfil do potencial da estrutura do poço quântico e suas respectivas sub-bandas de energia  $E_1$  e  $E_2$ . Ilustração da função de onda na aproximação da função envelope descrita no texto. **(B)** No plano  $xy$  as sub-bandas podem ser representadas por parábolas, ou seja,  $E = E_1 + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m^*$  e  $E = E_2 + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m^*$ . **(C)** Densidade de estados para o sistema bidimensional. Apenas uma sub-banda está ocupada se o nível de Fermi assume um valor abaixo de  $E_F^{(1)}$ . . . . . 25

Figura 6 – Origem dos processos de espalhamento de luz. A radiação incidente causa excitação do sistema em seu estado fundamental a um estado intermediário e subsequente reemissão de um fóton ao decair para uma estado de menor energia. Se o sistema é excitado a partir de seu estado fundamental e retorna a ele pela emissão de um fóton é chamado espalhamento Rayleigh. Caso o sistema retorne a um estado de menor energia é chamado espalhamento Raman Stokes. Se o sistema já se encontra em um estado excitado e é excitado a partir dele e retorna para seu estado fundamental pela emissão de um fóton é chamado espalhamento Raman <i>anti-Stokes</i> . Os processos ressonantes são análogos. No entanto possuem uma intensificação da ordem de $10^5$ vezes em relação aos anteriores. . . . .	31
Figura 7 – <b>(A)</b> Ilustração de transições de partícula independente intersub-bandas ( $q, q_1$ ) e intrassub-bandas ( $q_2$ ) para uma gás de elétron bidimensional com dispersão parabólica. <b>(B)</b> Contínuo de excitações de partícula independente e localização simbólica das transições intersub-bandas e intrassub-bandas. Figura adaptada de [2]. . . . .	33
Figura 8 – Geometria de retroespalhamento adotada nos experimentos de espalhamento inelástico de luz. <b>(A)</b> A luz se propaga no interior do material próxima à normal do plano do sistema. <b>(B)</b> A geometria adotada permite que não haja transferência de momentum lateral e $\mathbf{k}_\lambda = -\mathbf{k}_s$ . Figura adaptada de [2, 47] . . . . .	35
Figura 9 – Ilustração do experimento ao utilizar a geometria de retroespalhamento. A luz espalhada pela amostra é coletada em um ângulo de sólido $\Omega$ e limitada pela área da lente da objetiva do microscópio que coleta essa luz. Figura adaptada de [48] . . . . .	36
Figura 10 – <b>(A)</b> Ilustração do mecanismo de espalhamento inelástico de luz de segunda ordem para uma gás de elétrons bidimensional, o qual envolve duas transições ópticas interbandas. <b>(B)</b> Ilustração do mecanismo de espalhamento inelástico de luz de terceira ordem, o qual envolve transições ópticas interbandas (passos 1 e 3) e transições intersub-bandas induzidas por interações de Coulomb entre pares elétron-buraco (ou exciton) e o mar de Fermi (passo 2). <b>(C)</b> Excitação resultante no regime de ressonância próxima. <b>(D)</b> Excitação resultante no regime de ressonância extrema. . . . .	38

- Figura 11 – Ilustração do perfil do potencial da banda de valência e da banda de condução em um poço quântico simples e seus correspondentes níveis de energia. **(A)** *Gap* fundamental ( $\Gamma_8$ ) e o *gap* de *split-off* ( $\Gamma_7$ ) com energia  $E_{\alpha(\beta)}$  na banda de condução ( $\Gamma_6$ ) e energia de buraco (*holes*)  $E_h$  na banda de valência. **(B)** Duas transições ópticas em virtude do espalhamento inelástico de luz quando a ressonância é com a transição interbanda  $E_{h0} \rightarrow E_f$ . Os estados no espaço  $\mathbf{k}$  possuem relação de dispersão  $E_f = E_\beta + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m_c^*$  e  $E_v = E_h + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m_{so}^*$ . Figura adaptada de [47] . . . . . 41
- Figura 12 – **(A)** Ilustração macroscópica das excitações de densidade de carga (CDE). Todos os elétrons estão oscilando em fase. **(B)** Ilustração macroscópica das excitações de densidade de spin (SDE). Os elétrons oscilam com diferença de fase. **(C)** Ilustração microscópica das SDE, as quais configuram transições eletrônicas sem *spinflip* acopladas via interação de Coulomb. **(D)** Ilustração microscópica das SDE, as quais configuram transições eletrônicas com ou sem *spin-flip* acopladas via a parte de correlação e troca da interação de Coulomb. Figura adaptada de [2]. . . . . 45
- Figura 13 – Sistema T64000 Horiba Jobin Yvo com espectrômetro na configuração triplo subtrativo. Figura adaptada de [48]. A linha de excitação do laser passa por um alinhamento externo e é direcionada para o microscópio através da óptica interna do equipamento e incide na amostra. A luz espalhada segue para o estágio duplo subtrativo, o qual define a região espectral pela movimentação das redes de difração e funciona como um filtro sintonizável, o que permite a separação otimizada da luz espalhada elasticamente a partir do sinal Raman de baixa intensidade. O espectrógrafo irá dispersar a luz resultante no estágio anterior e enviar para o detector CCD. A movimentação das grades de difração é controlada pelo *software* existente no computador que também compõe o espectro. . . . . 55
- Figura 14 – Esboço óptico do sistema microRaman confocal. Figura adaptada de [48, 65, 66]. **(A)** O *pinhole* confocal recebe a luz espalhada proveniente da amostra e funciona como um filtro espacial, o que possibilita bloquear a luz espalhada que esteja fora de foco. O enxerto ilustra a área focada pelo laser que possui um perfil gaussiano. **(B)** O *pinhole* confocal é colocado sobre o plano da imagem do microscópio, o que limita a superfície analisada e a profundidade do foco. O microscópio confocal aumenta as resoluções espaciais, laterais e de profundidade para os limites de difração. . . . . 56

- Figura 15 – **(A)** Ilustração da separação dos comprimentos de onda por intermédio da rotação da grade de difração. A grade decompõe a imagem em diferentes comprimentos por difração e focaliza a imagem no segundo espelho plano. A fenda de saída exerce a função de filtro espacial, o que permite a seleção de qual comprimento de onda sairá e qual será bloqueado. **(B)** Equação geral que determina pela rotação da grade de difração o comprimento de onda de saída. Figura adaptada de [63]. **(C)** Funcionamento do modo triplo subtrativo, em que no estágio duplo subtrativo a radiação policromática espalhada passa através da F1 e é dispersada pela G1 do primeiro monocromador e recombinada pela G2 do segundo monocromador. Essa radiação policromática passa através da F3 limitada entre  $\lambda_1$  e  $\lambda_2$  e é dispersada novamente na G3 do espectrógrafo. O sinal resultante é enviado para o detector CCD. Figura adaptada de [65]. **(D)** Para uma dada posição do espectrógrafo, o *software* associa uma coluna específica de pixel da CCD a uma faixa espectral. . . . . 57
- Figura 16 – **(A)** Perfil do potencial da banda de condução e da banda de valência calculados de forma autoconsistente e distribuição da densidade eletrônica no interior do poço. **(B)** Forças do oscilador para transições oriundas de apenas um estado ocupado abaixo do nível de Fermi e funções de onda. . . . . 60
- Figura 17 – **(A)** Espectro Raman de segunda ordem em teoria de perturbação para um poço quântico de  $250\text{\AA}$ , densidade eletrônica  $5,3 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$  e energia do laser incidente de  $1880 \text{meV}$ . **(B)** Espectro Raman de terceira ordem em teoria de perturbação para um poço quântico de  $250\text{\AA}$ , densidade eletrônica  $5,3 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$  e energia do laser incidente de  $1880 \text{meV}$ . Em ambas as Figuras há um deslocamento para uma maior energia em relação a SPE em virtude das interações de Coulomb direta ( $U^H$ ) e correlação e troca ( $U^{XC}$ ) e um deslocamento para uma menor energia em razão apenas das interações de correlação e troca. . . . . 61
- Figura 18 – **(A)** Espectro Raman experimental coletivo na geometria polarizada (CDE) para o poço quântico simples de GaAs de  $250\text{\AA}$  e densidade eletrônica total  $8.81 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ . **(B)** Espectro Raman teórico coletivo na geometria polarizada para o mesmo poço quântico. Ambos com a energia do laser ressonante com a *gap* fundamental do GaAs ( $1.600 \text{meV}$ ). 62
- Figura 19 – Espectro Raman coletivo calculado na geometria polarizada para o poço quântico simples de  $250\text{\AA}$  com e sem a inclusão do acoplamento plasmon-fônon LO. O acoplamento é introduzido via função dielétrica da rede dependente da frequência. . . . . 63

Figura 20 – (A) Espectro Raman experimental coletivo na geometria depolarizada (SDE) para o poço quântico simples de GaAs de 250Å e densidade eletrônica total $8.81 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ . (B) Espectro Raman teórico coletivo na geometria depolarizada para o mesmo poço quântico. Ambos com a energia do laser ressonante com o <i>gap</i> fundamental do GaAs (1.600meV).	65
Figura 21 – (A) Espectro Raman coletivo calculado na geometria polarizada (CDE) e depolarizada (SDE) para o poço quântico simples de GaAs de 100Å e densidade eletrônica $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ . (B) O mesmo espectro anterior com um fator de amortecimento compilado da largura de linha Raman encontrado na referência [68]. Ambos com a energia do laser incidente igual a 2000meV.	66
Figura 22 – Espectro Raman experimental para o poço quântico simples de GaAs de 100Å e densidade eletrônica $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ compilado da referência [68]. Espectro polarizado ( $\parallel$ ) e depolarizado ( $\perp$ ).	67
Figura 23 – Espectro Raman experimental para o poço quântico simples de GaAs de 100Å e densidade eletrônica $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ compilado da referência [68] para várias energias de <i>laser</i> incidente. Espectro polarizado ( $\parallel$ ) e depolarizado ( $\perp$ ).	68
Figura 24 – (A) Espectro Raman coletivo calculado na geometria polarizada (CDE) para o poço quântico simples de GaAs de 100Å e densidade eletrônica $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ para várias energias de <i>laser</i> incidente. (B) O mesmo cálculo anterior na geometria depolarizada.	69
Figura 25 – Correspondência entre o espalhamento Raman eletrônico ressonante e a formação do estado supercondutor na teoria BCS. ((A) Mecanismo de espalhamento inelástico de luz de segunda ordem envolvendo a banda de valência BV e a banda de condução BC. As transições eletrônicas $\alpha \rightarrow \beta$ e $\delta \rightarrow \gamma$ são degeneradas (E) e acopladas via interação de Coulomb $\Pi_{\beta\alpha,\delta\gamma}$ . (B) Formação do estado supercondutor na teoria BCS, em que $\mathbf{k}(\mathbf{k}')$ representam os estados com as configurações de spin $\uparrow(\downarrow)$ . A interação elétron-fônon $\Pi_{-\mathbf{k}'\mathbf{k}',-\mathbf{k}\mathbf{k}}$ na superfície de Fermi é responsável por um acoplamento degenerado entre os dois pares de elétrons (pares de Cooper).	70
Figura 26 – Pêndulo de Newton. Análogo mecânico para o Raman eletrônico. No regime de ressonância extrema, aparecem $N - 1$ modos com pequenas amplitudes (SPE) e um modo que recebe a maior parte da energia (excitações coletivas).	70

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO . . . . .</b>	<b>14</b>
1.1	OBJETIVOS . . . . .	19
<b>2</b>	<b>FUNDAMENTOS DA HETEROESTRUTURA SEMICONDU- TORA . . . . .</b>	<b>20</b>
2.1	CARACTERÍSTICAS DA HETEROESTRUTURA AlGaAs-GaAs . . .	20
2.2	SOLUÇÃO AUTOCONSISTENTE DA EQUAÇÃO DE SCHRÖDINGER	24
<b>3</b>	<b>ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ: O EFEITO RA- MAN . . . . .</b>	<b>28</b>
3.1	CONCEITOS FUNDAMENTAIS . . . . .	28
3.2	TEORIA DO ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ . . . . .	32
3.2.1	Excitações elementares eletrônicas . . . . .	32
3.2.2	Seção de choque de espalhamento inelástico de luz e as regras de seleção para as excitações elementares eletrônicas . . . . .	35
3.2.3	Aproximação de campo autoconsistente generalizada para um sistema de muitos elétrons . . . . .	46
3.2.4	O acoplamento entre o plasmon e o fônon óptico da heteroes- trutura . . . . .	51
3.2.5	Função resposta das excitações eletrônicas para o espalhamento inelástico de luz . . . . .	52
3.3	CONFIGURAÇÃO EXPERIMENTAL RAMAN . . . . .	54
3.4	MATERIAL E CÁLCULOS TEÓRICOS . . . . .	59
<b>4</b>	<b>RESULTADOS E CONCLUSÃO . . . . .</b>	<b>60</b>
4.1	RESULTADOS . . . . .	60
4.2	CONCLUSÃO . . . . .	71
	<b>REFERÊNCIAS . . . . .</b>	<b>73</b>
	<b>APÊNDICE A – Função resposta via teorema de flutuação e dissipação (<math>T = 0K</math>) e a equação de movi- mento (método autoconsistente) . . . . .</b>	<b>79</b>
	<b>APÊNDICE B – Amortecimento das flutuações de carga . . .</b>	<b>84</b>

APÊNDICE C – Lista de publicações . . . . .	87
---	----

## 1 INTRODUÇÃO

Não há dúvida de que o século XX foi evidenciado por uma notável revolução tecnológica, cujo protagonista foi a descoberta do transistor. O transistor é um dispositivo fundamental para um circuito eletrônico e, com a invenção do circuito integrado, foi possível manipular milhões de transistores em um único substrato, o que possibilitou um avanço substancial no âmbito da tecnologia digital. O trabalho de William Shockley, John Bardeen e Walter Brattain, contemplado com o prêmio Nobel de Física em 1956 pela descoberta do transistor [1], estabeleceu as bases para a informação moderna e para a tecnologia de comunicação. Tais pesquisadores foram, portanto, cruciais para a revolução da eletrônica.

A miniaturização e o alto desempenho de dispositivos eletrônicos são consequência do conhecimento sobre os materiais semicondutores nanoestruturados. Nesse viés, o considerável avanço científico e tecnológico resultam da importância de se compreender a física fundamental das heteroestruturas semicondutoras [1].

A Física da matéria condensada desenvolveu um grande interesse em sistemas quânticos semicondutores de baixa dimensionalidade como os poços quânticos (sistemas bidimensionais, 2D), fios quânticos (sistemas unidimensionais, 1D) e pontos quânticos (sistema de dimensão zero, 0D) [2]. O estudo teórico e experimental desses sistemas eletrônicos interagentes de dimensão reduzida permite a investigação de propriedades fundamentais como as interações de muitos corpos. Esses materiais são responsáveis por fenômenos fascinantes como, por exemplo: o efeito Hall quântico fracionário [3], em que efeitos fortemente correlacionados no sistema eletrônico bidimensional originam partículas de carga fracionária; o efeito Hall quântico de spin [4], em que um estado da matéria com diferentes propriedades topológicas de isolantes convencionais é obtido em poços quânticos.

O prêmio Nobel de Física de 1985 e 1998 foi concedido pela descoberta do efeito Hall quântico e o efeito quântico Hall fracionário. Esses fenômenos que envolvem o confinamento de elétrons em duas dimensões não poderiam acontecer sem o desenvolvimento de heteroestruturas semicondutoras [1].

A espectroscopia Raman é uma técnica muito versátil e tem sido extensivamente utilizada para o estudo de diversos materiais [5, 6]. A partir de 1970, com o surgimento do *laser* (do inglês, *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*, ou seja, amplificação da luz por emissão estimulada de radiação) como fonte de excitação, o espalhamento inelástico de luz se tornou uma prática experimental muito aplicada na investigação de excitações elementares de um cristal, as quais incluem fônons ópticos e acústicos, polarons, magnons, plasmons, entre outras [6].

O sinal Raman das excitações coletivas de gases de elétrons (plasmons) apresenta forte dependência com condições ressonantes, em que a energia do laser está próxima da

energia de um *gap* óptico do semicondutor. Em 1979, E. Burstein, A. Pinczuk e S. Buchner [7] propuseram que, por efeito desse comportamento ressonante, o espalhamento de luz seria sensível o suficiente para que as excitações eletrônicas em sistemas 2D pudessem ser observadas. G. Abstreiter e K. Ploog [8], juntamente com A. Pinczuk, H.L. Störmer, R. Dingle, J. M. Worlock, W. Wiegmann e A. C. Gossard [9] foram os primeiros a observarem excitações eletrônicas em sistemas eletrônicos bidimensionais via espalhamento ressonante de luz realizado em heteroestruturas formadas a partir de elementos do grupo III-V da tabela periódica ( $\text{GaAs} - \text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ,  $x = \% \text{Al}$ ). Nos anos seguintes, foi predominante a ideia de que as excitações elementares em gases de elétrons se ramificavam em duas categorias: excitações de densidade de carga (CDE, do inglês *charge density excitations*) e excitações de densidade de spin (SDE, do inglês *spin density excitations*). As oscilações coletivas do plasma (CDE) eram observadas quando as polarizações incidente e espalhada da luz eram paralelas entre si (geometria polarizada) e eram deslocadas em energia com relação as SDE em razão das interações de Coulomb. SDE eram observadas quando as polarizações incidente e espalhada da luz eram perpendiculares entre si (geometria depolarizada) e, *a priori*, essas excitações não apresentavam campos elétricos macroscópicos e os efeitos de muitos corpos (interação de correlação e troca) eram assumidos muito pequenos, o que indicava que essas flutuações de carga manifestavam uma caráter de partícula independente [10] pois a sua energia possuía um valor igual ao espaçamento entre as sub-bandas de energia do poço quântico. Surpreendentemente, em 1989, A. Pinczuk, S. Schmitt-Rink, G. Danan, J. P. Valladares, L. N. Pfeiffer e K. W. West publicaram um trabalho pioneiro que não corroborava com as interpretações anteriores. O autores investigaram amostras de poço quântico com alta mobilidade eletrônica de arseneto de gálio (GaAs) [11] e observaram o surgimento de uma estrutura que exibia o caráter de partícula independente separada das SDE. Face a isso, foram interpretadas como excitações de partícula independente (SPE, do inglês *single-particle excitations*). Esse novo comportamento não apresentou dependência com as regras de seleção associadas a polarização da luz (geometria polarizada ou depolarizada) e exibia o comportamento de um gás de elétrons tipo não interagente por possuir a sua energia igual a energia de uma transição eletrônica entre as sub-bandas de energia do poço quântico.

A Figura 1 apresenta os resultados obtidos em [11] para vários valores de vetor de onda de espalhamento  $k$ . No espectro Raman depolarizado, as excitações coletivas SDE são deslocadas para uma menor energia em relação as excitações de partícula independente SPE em razão apenas das interações de correlação e troca (Figura 1A). Por outro lado, no espectro polarizado, as excitações coletivas CDE são deslocadas para uma maior energia em relação as SPE em virtude das interações de Coulomb assim como as interações de correlação e troca (Figura 1B). A pequena ilustração inserida na parte superior da Figura 1A corresponde a geometria de retroespalhamento do experimento com vetor de onda incidente (*laser*)  $\mathbf{k}_L$  e vetor de onda espalhado (*scattered*)  $\mathbf{k}_S$ . A pequena ilustração

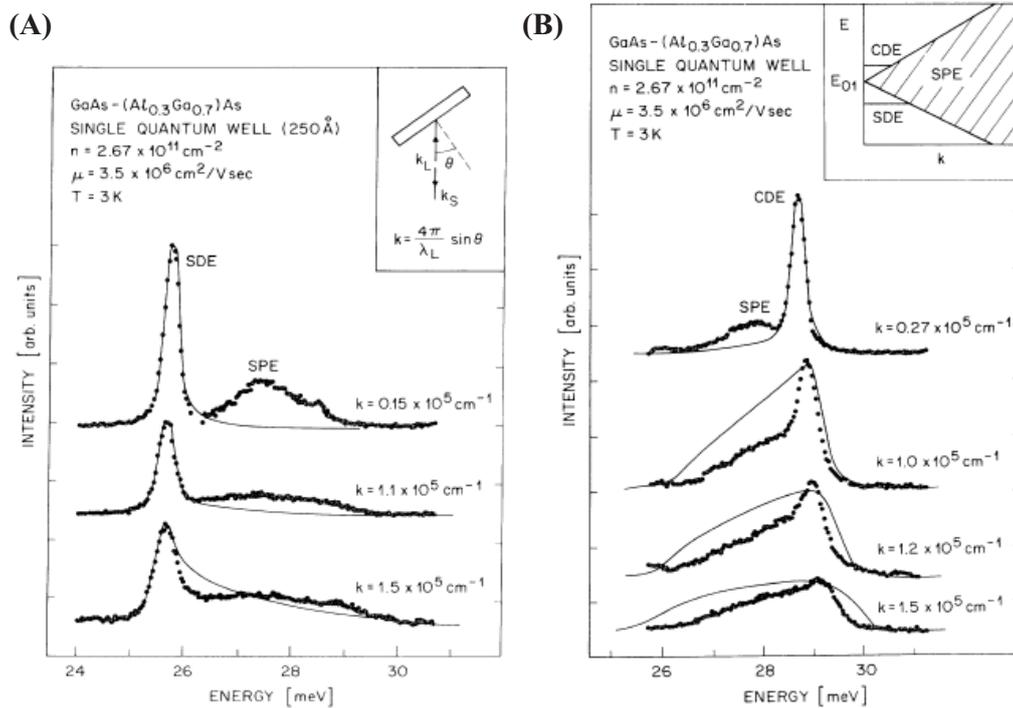


Figura 1 – (A) Espectro obtido a partir da geometria depolarizada considerando vários valores de vetor de onda de espalhamento  $k$ . A inserção superior corresponde a geometria de espalhamento do experimento, juntamente com a expressão para  $k$ . (B) Espectro obtido a partir da geometria polarizada considerando vários valores de vetor de onda de espalhamento  $k$ . A inserção superior corresponde a dependência das excitações coletivas com o vetor de onda de espalhamento. Figura retirada da referência [11].

inserida na parte superior da Figura 1B apresenta a dependência das excitações eletrônicas com  $k$ . Com o aumento de  $k$  as excitações coletivas interceptam um contínuo de excitações de partícula independente e são amortecidas pelo *damping de Landau* (amortecimento de Landau).

As excitações eletrônicas (CDE e SDE), em especial, as excitações de partícula independente são observadas experimentalmente em sistemas eletrônicos quantizados em uma direção (poço quântico), em duas direções (fio quântico) ou em três direções (ponto quântico) [2]. À vista disso, o espalhamento Raman eletrônico viabiliza o entendimento de processos físicos fundamentais, já que permite obter informações sobre os efeitos de muitos corpos em sistemas eletrônicos interagentes. Atualmente, é aceito que as SPE emergem no espectro Raman apenas sob um regime de ressonância extrema [12, 13, 14]. Tal condição considera uma situação de ressonância completa, em que a energia da fonte de excitação (energia do laser) é da ordem das energias das transições interbandas do material. Dessa forma, a banda de valência, isto é, a estrutura eletrônica do semiconductor deve ser incluída de forma detalhada. Considerando-se um regime de ressonância próxima, no qual o papel exercido pela banda de valência é negligenciado e a radiação *laser* interage com os elétrons

na banda de condução, apenas as excitações coletivas CDE e SDE surgem no espectro Raman. Tal condição tem a energia do *laser* coincidindo de forma aproximada a energia do *gap* do semiconductor. A origem física das SPE vem sendo discutidas ao longo dos anos de forma controversa. Ademais, alguns autores afirmam que a sua natureza reflete uma física descrita pelo modelo de líquido de Fermi [12, 15] e outros pelo modelo de líquido de Luttinger [16, 17] ao considerar o caso de um fio quântico.

No modelo de líquido de Fermi [18], as excitações elementares de um sistema eletrônico interagente são quase partículas que possuem os mesmos números quânticos que os elétrons livres. Os férmions são “vestidos” pelas interações com o meio. Em virtude dessas interações, há efeitos de renormalização que concedem, por exemplo, uma massa efetiva aos elétrons. Um sistema de muitos férmions interagentes tem propriedades semelhantes a de férmions não interagentes. Os sistemas eletrônicos unidimensionais realizados em fios quânticos tem sido objetos de intenso debate sobre o seu caráter como líquidos de Fermi ou líquidos de Luttinger <sup>1</sup>. No modelo de líquido de Luttinger [19], o sistema eletrônico unidimensional não apresenta uma superfície de Fermi bem definida e não há descontinuidade na função de distribuição na superfície de Fermi a temperatura 0K. O espectro de energia segue uma relação de dispersão linear em torno de pontos de Fermi  $\pm k_F$ . As excitações de spin e carga exibem um fenômeno de separação spin - carga, tornando-se independentes. As interações são arbitrariamente fortes (fora do regime perturbativo) e a Hamiltoniana de Luttinger 1D pode ser diagonalizada mediante um processo chamado bosonização, em que o problema de férmions é traduzido a um problema de bósons livres.

C. Schüller, G. Biese, K. Keller, C. Steinebach, D. Heitmann, P. Grambow e K. Eberl [14] investigaram as excitações eletrônicas a partir de heteroestruturas de fio quântico e ponto quântico ( $\text{GaAs} - \text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ) por meio da espectroscopia Raman ressonante e para os autores o comportamento das SPE sob condições de ressonância extrema indicam flutuações de densidade de energia, as quais são responsáveis por transições de partícula independente não blindadas. Maura Sasseti e Bernhard Kramer [16] apresentaram uma teoria baseada no modelo de líquido de Luttinger para interpretar os dados experimentais obtidos por espalhamento inelástico de luz em fios quânticos [20]. Para os autores em [16], as SPE podem ser interpretadas com uma assinatura das excitações coletivas de densidade de spin (SDE) em gás de elétrons 1D e, então, os dados experimentais disponíveis podem indicar a separação spin - carga prevista pelo modelo de líquidos de Luttinger e para o caráter de não líquidos de Fermi (*non-Fermi liquid*) de um gás de elétrons 1D. S. Das Sarma e Daw-Wei Wang [12, 15] utilizaram os mesmos dados experimentais de fios quânticos [20] interpretados anteriormente a partir do ponto de vista da física dos líquidos de Luttinger [16] para apresentar uma teoria baseada no modelo de líquido de Fermi. Os

<sup>1</sup> O modelo de líquido de Luttinger não será abordado nessa tese. A teoria que será apresentada segue um modelo baseado no modelo de líquido de Fermi.

autores em [12, 15] relataram uma teoria de aproximação de fase aleatória ressonante interbanda generalizada em que as energias das excitações eletrônicas são determinadas pelos pólos da função dielétrica dinâmica do sistema. Sem evidenciar de forma clara uma interpretação física para as SPE, S. Das Sarma e Daw-Wei Wang enfatizaram que os seus cálculos teóricos tinham um excelente acordo com os resultados experimentais disponíveis. Para os autores, a natureza do fenômeno envolvia princípios fundamentais do espalhamento Raman ressonante e não dependiam de detalhes experimentais como a dimensionalidade do sistema e, portanto, a teoria proposta dependia apenas da natureza ressonante do experimento. Afirmaram também que os resultados são similares para sistemas unidimensionais, bidimensionais e tridimensionais. D.W. Wang, A. J. Millis e S. Das Sarma [21, 22] apresentaram uma teoria baseada no modelo de líquido de Luttinger que não corroborava com a proposta do trabalho [16], cujo modelo utilizado foi equivalente. Um dos trabalhos possui um título curioso, isto é: “Where is the Luttinger Liquid in One-Dimensional Semiconductor Quantum Wire Structures?”. Ou seja: “Onde está o líquido de Luttinger em estruturas de fio quântico semicondutoras unidimensionais?” ([21], tradução nossa). Os autores afirmam que a teoria proposta por Maura Sasseti e Bernhard Kramer é logicamente inconsistente porque não é válida quando se considera uma situação muito próxima da ressonância e trata a banda de condução do sistema eletrônico como líquido de Fermi mas as excitações como líquido de Luttinger. D.W. Wang, A. J. Millis e S. Das Sarma [21] afirmam derivar uma teoria correta do ponto de vista de líquidos de Luttinger e argumentam que os resultados experimentais [20] não provam o comportamento de líquido de Luttinger como previsto em [16]. Os autores acreditam que os sistemas de fios quânticos não estão dentro do regime em que os efeitos de líquidos de Luttinger são importantes e reiteram o resultado de seu trabalho de teoria Raman ressonante a partir do modelo de líquido de Fermi desenvolvido na referência [21]. Embora algumas teorias tenham sido apresentadas, a natureza das excitações de partícula independente ainda não são completamente entendidas como afirma alguns autores que exploraram o assunto após o surgimento das teorias comentadas anteriormente. C. Schüller, C. Steinebach e D. Heitmann [23] em um trabalho de revisão sobre investigações teóricas e experimentais de excitações eletrônicas em pontos quânticos de GaAs-AlGaAs escreveram o seguinte: “However, the origin of the SPE, which seems to be unaffected by the particle-particle interaction, has posed a puzzle”. Ou seja: “No entanto, a origem das SPE, a qual parece não ser afetada pela interação partícula-partícula, tem representado um enigma” ([23], tradução nossa). P. Giudici, A. R. Goñi, C. Thomsen, P. G. Bolcatto, C. R. Proetto e K. Eberl [24] escreveram, em um trabalho sobre medidas de espalhamento inelástico de luz de excitações elementares de gás de elétrons bidimensional formado a partir de um poço quântico simples de GaAs, que: “Although the observation of the SPE under extreme resonance conditions is an experimental fact reported for many systems and in different dimensions, the reason for it is still not completely understood [...]”. Ou seja, “Embora a

observação das SPE sob condições de ressonância extrema seja uma fato reportado para muitos sistemas e em diferentes dimensões, a razão para isso ainda não é completamente entendida [...]” ([24], tradução nossa). Recentemente (2012), Manvir S. Kushwaha [25] em um trabalho com um formato de revisão sobre o espalhamento inelástico de luz de poços quânticos simples também escreve que: “The complexity regarding the SPE peaks between the RRS experiments and the theoretical excitation spectrum is an old puzzle which dates back (almost) four decades [...]”. Ou seja: “A complexidade em relação aos picos de SPE entre os experimentos de espalhamento Raman ressonante (RRS) e espectros de excitação teóricos é um enigma antigo, que remonta (quase) quatro décadas [...]” ([25], tradução nossa).

## 1.1 OBJETIVOS

O objetivo da tese é evidenciar de forma clara e transparente a natureza da física da existência das excitações coletivas de densidade de carga e de densidade de spin, juntamente com as excitações de partícula independente a partir de um gás de elétrons bidimensional. O formalismo apresentado aqui foi previamente aplicado à super-redes com dopagem delta [13].

Realizar uma comparação entre resultados experimentais e teóricos do espalhamento inelástico de luz de um poço quântico simples de GaAs com largura de  $250\text{\AA}$  e dopagem modular lateral. Também será considerado o acoplamento das excitações coletivas com o fônon longitudinal óptico do GaAs.

Comparar resultados teóricos de um poço quântico estreito de GaAs com largura de  $100\text{\AA}$  com resultados experimentais disponíveis na literatura.

## 2 FUNDAMENTOS DA HETEROESTRUTURA SEMICONDUTORA

### 2.1 CARACTERÍSTICAS DA HETEROESTRUTURA AlGaAs-GaAs

A estrutura de banda de um semicondutor cristalino desempenha um papel imprescindível para o desenvolvimento de conceitos físicos que contribuem para a descrição de propriedades fundamentais como processos de absorção, emissão e espalhamento de luz [26]. O Arseneto de gálio (GaAs), composto semiconductor do grupo III-V, possui ligações covalentes e parcialmente iônicas tal que os átomos apresentam uma simetria tetraédrica (Figura 2A). A primeira zona de Brillouin é um octaedro truncado (Figura 2B) e se cristaliza na estrutura tipo blenda de zinco formada por duas redes cúbicas de face centrada, onde cada uma delas apresenta um único tipo de átomo e são deslocadas entre si por um quarto da diagonal principal. Alguns pontos de alta simetria estão indicados na Figura 2B, como o ponto  $\Gamma$  e o ponto X.

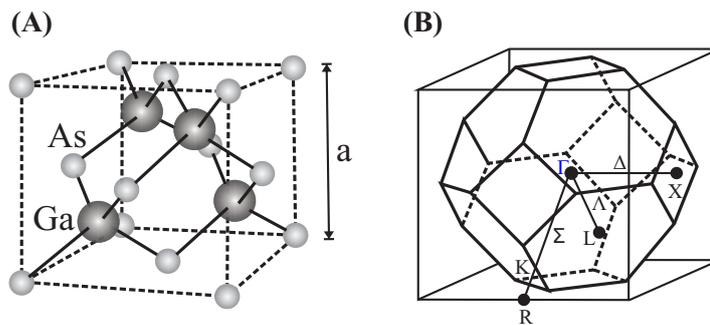


Figura 2 – (A) Estrutura cristalina do Arseneto de gálio (GaAs) com parâmetro de rede  $a$ . (B) Primeira zona de Brillouin da rede recíproca: octaedro truncado. Figura adaptada de [2].

Para os composto semicondutores do grupo III-V há oito elétrons por célula unitária, os quais contribuem para a ligação química entre os átomos vizinhos. As configurações dos elétrons de valência dos elementos Ga e As são, respectivamente, dadas por:  $4s^24p^1$  e  $4s^24p^3$ . Portanto, o Ga contribui com três elétrons e o As com cinco elétrons. As função de onda dos átomos vizinhos se superpõem e, dessa forma, os orbitais tipo  $s$  e  $p$  se hibridizam e dois novos orbitais surgem: um orbital ligante e outro antiligante. Como em um cristal há um número muito grande de células unitárias, os orbitais ligantes e antiligantes formam bandas de energia. Os orbitais ligantes são ocupados por elétrons e as bandas que são formadas por orbitais antiligantes são desocupadas.

A banda de condução do material é formada por orbitais antiligantes tipo  $s$  duplamente degeneradas na ausência de campo magnético externo. Na ausência da interação entre o spin e o movimento orbital do elétron (interação spin-órbita), as três bandas de valência oriundas de orbitais ligantes tipo  $p$  são degeneradas no ponto de alta

simetria  $\Gamma$ , onde há maior probabilidade de ocorrência dos processo ópticos. Dessa forma, as funções de Bloch  $|S\rangle$  que descrevem a banda de condução, juntamente com as funções de Bloch  $|X\rangle$ ,  $|Y\rangle$  e  $|Z\rangle$  que descrevem a banda de valência, são autoestados do momento angular orbital  $\mathbf{L}$ . Devido ao acoplamento spin-órbita, há uma quebra de degenerescência e, então, as novas funções devem ser autofunções do momento angular total  $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ , em que  $\mathbf{S}$  representa o número quântico do spin. O modelo que descreve essas funções foi idealizado por Kane como descrito em [28] e são formadas por combinações lineares das funções anteriores. Nessa nova base, o momento angular total  $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$  assim como a sua projeção ao longo da direção  $z$  ( $J_z$ ) são diagonais. Para a banda tipo  $s$  a adição de  $L = 0$  e  $S = 1/2$ , resulta em  $J = 1/2$  (simetria  $\Gamma_6$ ). Para a banda tipo  $p$ ,  $L = 1$  e  $S = 1/2$ , resulta em  $J = 3/2$  ou  $J = 1/2$ . Em compostos semicondutores do grupo III-V, o quadrupeto  $J = 3/2$  (simetria  $\Gamma_8$ ) é sempre maior em energia do que o dupletto  $J = 1/2$  (simetria  $\Gamma_7$ ). A Figura 3 ilustra o diagrama de banda para um material do grupo III-V. As funções de bloch na representação de Kane são dadas por [28]:

$$\Gamma_6 = \begin{cases} \left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right) \equiv |S \uparrow\rangle \\ \left(\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right) \equiv |S \downarrow\rangle, \end{cases}$$

$$\Gamma_8 = \begin{cases} \left(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\right) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}|(X + iY) \uparrow\rangle \\ \left(\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right) \equiv \frac{1}{\sqrt{6}}|(X + iY) \downarrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}}|Z \uparrow\rangle \\ \left(\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\right) \equiv -\frac{1}{\sqrt{6}}|(X - iY) \uparrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}}|Z \downarrow\rangle \\ \left(\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\right) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}|(X - iY) \downarrow\rangle, \end{cases}$$

$$\Gamma_7 = \begin{cases} \left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right) \equiv \frac{1}{\sqrt{3}}|(X + iY) \downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|Z \uparrow\rangle \\ \left(\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\right) \equiv -\frac{1}{\sqrt{3}}|(X - iY) \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|Z \downarrow\rangle. \end{cases}$$

Nas equações acima, os números entre parênteses correspondem aos autovalores  $J$  e  $J_z$  e as configurações de spin são representadas como  $\uparrow$  para spin para cima e  $\downarrow$  para spin para baixo.

O avanço na fabricação de materiais semicondutores e a produção de dispositivos semicondutores de alto desempenho dependem de técnicas modernas de crescimento de materiais. Entre as técnicas de crescimento mais sofisticadas, destaca-se o crescimento por epitaxia molecular (MBE, *Molecular Beam Epitaxy*) [2], a qual permite fabricar heteroestruturas semicondutoras multicamadas com o controle de crescimento e composição de camada por camada.

A liga ternária AlGaAs é formada pela substituição de uma fração de átomos de alumínio (Al) na rede cristalina do GaAs. O AlAs ( $a = 5.6611\text{\AA}$ ) e o GaAs ( $a = 5.6533\text{\AA}$ )

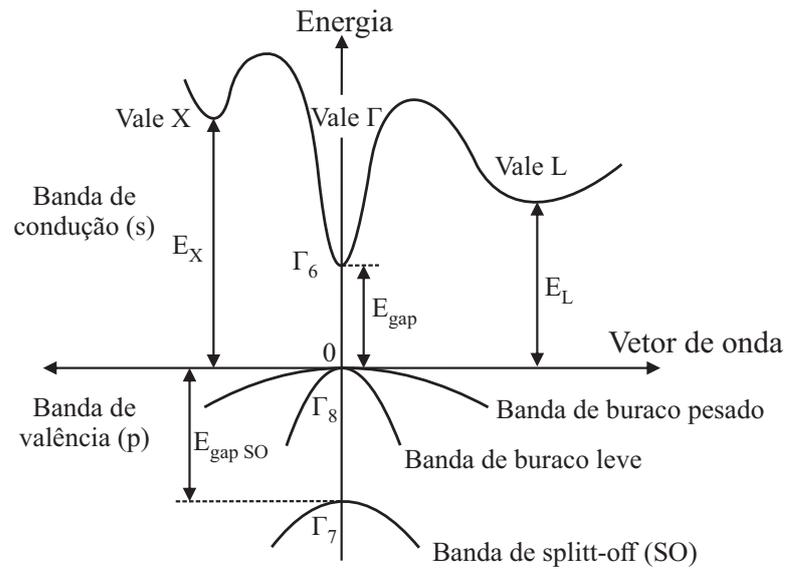


Figura 3 – Estrutura de banda para o GaAs. A quebra da degenerescência da banda de valência devido ao acoplamento spin-órbita resulta no aparecimento da banda de buraco pesado e buraco leve (quadrupletto  $\Gamma_8$ ) assim como a banda de splitt-off (dupletto  $\Gamma_7$ ).  $E_{\text{gap}}$  representa a energia no *gap* fundamental e  $E_{\text{gap SO}}$  representa a energia de separação entre as bandas de valência. Outros pontos de simetria e seus respectivos *gaps* de energias são mostrados simbolicamente. Figura adaptada de [27].

possuem parâmetros de rede muito próximos [29] o que determina um crescimento com pouca deformação entre a transição de um material para o outro. A figura 4 ilustra de maneira simples o crescimento de uma heteroestrutura AlGaAs-GaAs-AlGaAs descrita a seguir. A energia do *gap* da banda AlGaAs é maior que a energia do *gap* do GaAs, o que permite a fabricação de poços quânticos mediante um crescimento adequado de camada por camada. O *gap* da banda do  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  depende da fração  $x$  de átomos de alumínio por célula unitária e permanece um semiconductor de *gap* direto para valores de  $x < 45\%$ . Os estados em um poço quântico estão ocupados até a energia de Fermi, cujo nível está localizado na metade da distância entre a banda de valência e a banda de condução para um sistema não dopado. Introduzindo-se impurezas intencionalmente no material é possível alterar o nível de Fermi. Usualmente, os semicondutores do grupo III-V são dopados com silício (Si), o que causa um excesso de elétrons no material (dopagem tipo  $n$ ) ou com carbono (C), o que causa um excesso de buracos (dopagem tipo  $p$ ).

Uma técnica comum que melhora as propriedades elétricas da nanoestrutura é a dopagem modular ou dopagem seletiva [2, 30]. Nesse contexto, uma camada fina de AlGaAs da estrutura é dopada com silício (Figura 4A). O Si é um elemento do grupo IV da tabela periódica e, portanto, possui quatro elétrons de valência. Dessa forma, substituindo-se o Ga na célula unitária do AlGaAs, o Si doa um elétron para a rede cristalina. A descontinuidade do potencial entre as interfaces de cada material (Figura

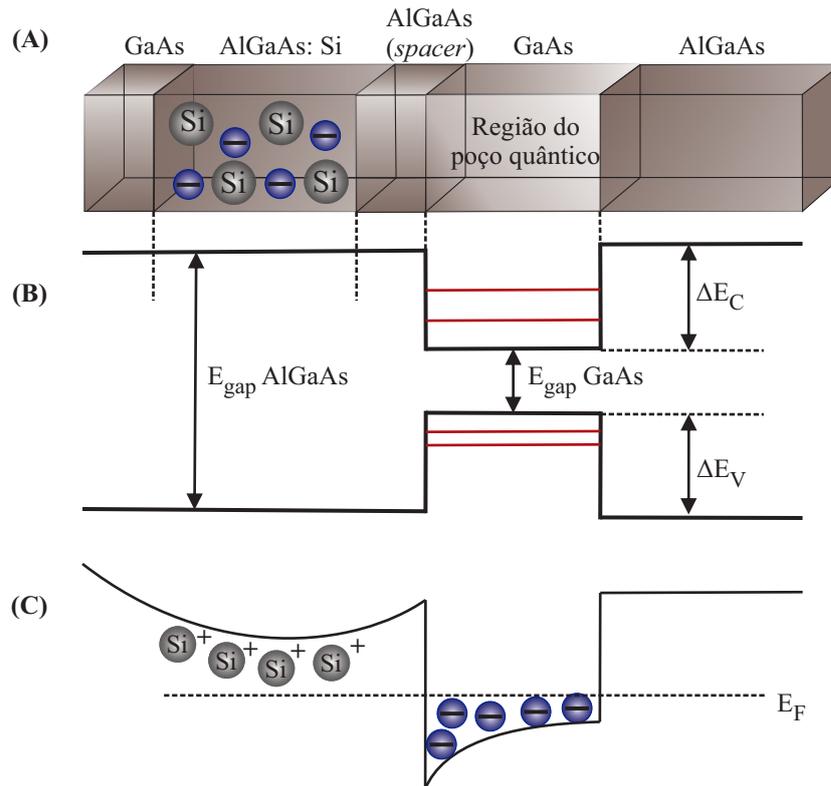


Figura 4 – Perfil do potencial da banda de condução e da banda de valência da heteroestrutura AlGaAs-GaAs. **(A)** Perfil da dopagem modular. Parte da barreira AlGaAs é dopada com Si que doa um elétron para a rede. **(B)** Perfil das discontinuidades do potencial do AlGaAs e GaAs. O AlGaAs tem um *gap* de energia  $E_{\text{gap}}$  maior que a energia do GaAs.  $\Delta E_C = 0.67\%$  e  $\Delta E_V = 0.33\%$  correspondem, respectivamente, a descontinuidade da banda de condução e da banda de valência. **(C)** No equilíbrio os elétrons associados aos doadores são transferidos para estados de energia mais baixo na região do poço quântico. A separação espacial entre os elétrons e os doadores ionizados causam uma curvatura nas bandas de condução e valência.

4B) permite a transferência de elétrons para o poço quântico, o que forma um gás de elétrons quase bidimensional (Figura 4C). O movimento do elétron passa a ser quantizado em uma direção que será adotada como a direção de crescimento da amostra  $z$  e livre no plano  $xy$  paralelo ao plano de dopantes de Si. As bandas de energia formam subbandas bidimensionais (alargamento dos níveis de energia dos elétrons no poço real). As impurezas ficam espacialmente separadas do poço quântico por uma camada de separação não dopada chamada *spacer*, o que reduz o espalhamento por impurezas e aumenta a mobilidade eletrônica. A separação espacial entre os doadores ionizados na barreira e os elétrons acumulados no poço quântico produz um campo elétrico governado pela equação de Poisson, o que promove uma distorção na curvatura da banda da barreira e também no perfil do potencial do poço quântico [30] como ilustrado na Figura 4C.

## 2.2 SOLUÇÃO AUTOCONSISTENTE DA EQUAÇÃO DE SCHRÖDINGER

A solução para o problema do gás de elétrons abrange um problema de muitos corpos e, dessa forma, torna-se inviável a sua resolução sem recorrer a aproximações devido ao grande número de elétrons interagentes envolvidos no problema. Considerando-se a aproximação de campo médio, a função de onda do sistema de muitos corpos é tratada como o produto das funções de onda de um elétron. Portanto, o problema de muitos corpos passa a ser considerado um problema de um corpo na presença de um potencial efetivo  $V_H(\mathbf{r})$  (potencial de Hartree). O potencial de Hartree é uma média do potencial de todos os elétrons que aborda a interação clássica de Coulomb dos elétrons entre si, juntamente com as impurezas do sistema.

Os efeitos de muitos corpos devido a natureza fermiônica dos elétrons e correções quânticas do potencial de Coulomb são incluídos por intermédio da aproximação de densidade local (LDA, *Local Density Approximation*) mediante a teoria do funcional de densidade [31]. Considerando-se essa aproximação, a equação de Schrödinger é resolvida para o elétron se movendo sob um potencial efetivo que corresponde a soma das contribuições de correlação e troca  $V_{xc}(\mathbf{r})$  e o potencial de Hartree. A descrição do potencial cristalino da rede possui uma grande complexidade e, portanto, é utilizado a aproximação da massa efetiva [26], em que o potencial cristalino  $V_0$  é embutido na massa do elétron. A equação de Schrödinger para o elétron sob um potencial efetivo é dada por:

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V_{\text{LDA}}(\mathbf{r}) + V_{\text{conf}}(\mathbf{r}) \right\} \Psi_n(\mathbf{r}) = E_n \Psi_n(\mathbf{r}). \quad (2.1)$$

Em que  $V_{\text{LDA}}(\mathbf{r}) = V_{xc}(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r})$ ,  $V_{\text{conf}}(\mathbf{r})$  é o potencial de confinamento e  $m^*$  é a massa efetiva do elétron.

O movimento eletrônico é livre no plano  $xy$  e quantizado na direção  $z$  para o poço quântico e, portanto, a estrutura eletrônica pode ser descrita por meio da aproximação da função envelope [28]. A função de onda tridimensional eletrônica é composta pela função de Bloch com oscilação rápida e periodicidade da rede  $u(\mathbf{r})$  e uma função  $f$  de variação lenta em comparação com a dimensão dos parâmetros da rede (onda plana) como ilustrado na Figura 5A. A parte de oscilação lenta é chamada de função envelope [2]. Dentro de cada material A ou B, as funções de onda são expandidas em termos da parte periódica das funções de Bloch em torno no ponto de simetria  $\Gamma(k = 0)$  sobre a quantidade de bandas (l) desejadas:

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_1 f_1^{(A)}(\mathbf{r}) u_{1,0}^{(A)}(\mathbf{r}), \quad \Psi(\mathbf{r}) = \sum_1 f_1^{(B)}(\mathbf{r}) u_{1,0}^{(B)}(\mathbf{r}). \quad (2.2)$$

A parte periódica é assumida ser igual para ambos os materiais da heteroestrutura, ou

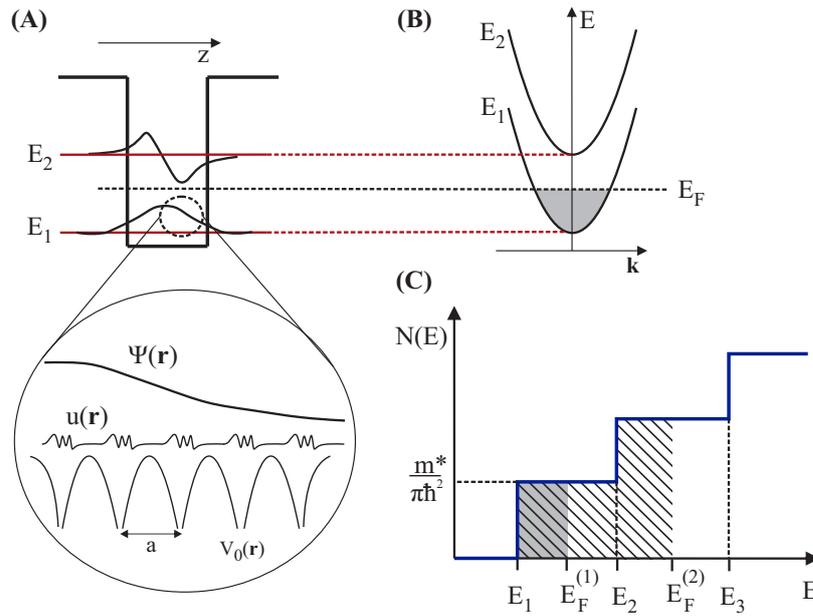


Figura 5 – (A) Perfil do potencial da estrutura do poço quântico e suas respectivas sub-bandas de energia  $E_1$  e  $E_2$ . Ilustração da função de onda na aproximação da função envelope descrita no texto. (B) No plano  $xy$  as sub-bandas podem ser representadas por parábolas, ou seja,  $E = E_1 + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m^*$  e  $E = E_2 + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m^*$ . (C) Densidade de estados para o sistema bidimensional. Apenas uma sub-banda está ocupada se o nível de Fermi assume um valor abaixo de  $E_F^{(1)}$ .

seja,  $u_{1,0}^{(A)}(\mathbf{r}) \equiv u_{1,0}^{(B)}(\mathbf{r})$  e, dessa forma, tem-se:

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_1 f_1^{(A,B)}(\mathbf{r}) u_{1,0}(\mathbf{r}). \quad (2.3)$$

Deve-se determinar a função  $f_1^{(A,B)}(\mathbf{r})$ . As funções  $f_1$  devem satisfazer a condição de contorno em  $z = z_0$ , isto é,  $f_1^{(A)}(\mathbf{r}, z_0) = f_1^{(B)}(\mathbf{r}, z_0)$ , em que  $\mathbf{r}$  pertence ao plano  $xy$ . Com os valores dos parâmetros da rede muito próximos, a heteroestrutura possui invariância translacional no plano  $xy$  e a função envelope pode ser fatorizada [28] como se segue:

$$\psi(\mathbf{r}) = f_1^{(A,B)}(\mathbf{r}, z) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \psi^{A,B}(z). \quad (2.4)$$

Em que  $S$  é a superfície da amostra (área) e  $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$  é um vetor bidimensional no plano  $xy$ .

Considerando-se que a massa efetiva seja isotrópica na curvatura de cada sub-banda com um comportamento parabólico (Figura 5B), a equação de Schrödinger a ser resolvida

será dada por:

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2}{dz^2} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*} + V_{\text{LDA}}(z) + V_{\text{conf}}(z) \right\} \psi_n(z) = E_n(\mathbf{k}) \psi_n(z). \quad (2.5)$$

Em que cada sub-banda possui uma dispersão parabólica, ou seja:

$$E_n(\mathbf{k}) = E_{n,z} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*}. \quad (2.6)$$

O potencial de Hartree é resolvido via equação de Poisson:

$$\frac{d^2 V_H(z)}{dz^2} = \frac{4\pi e}{\varepsilon} [n(z) - N_d(z) + N_A(z)]. \quad (2.7)$$

Em que  $n(z)$  é a densidade eletrônica,  $N_d(z)$  é a densidade de doadores,  $N_A(z)$  é a distribuição de aceitadores provocada por impurezas residuais de carbono e  $\varepsilon$  é a constante dielétrica do GaAs. A densidade eletrônica é dada por:

$$n(z) = \sum_n N_n |\psi_n(z)|^2. \quad (2.8)$$

A densidade eletrônica bidimensional  $N_n$  pode ser determinada [26] a partir da distribuição de Fermi-Dirac  $f(E, E_F)$ :

$$N_n = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \int_{E_{n,z}}^{\infty} f(E, E_F) dE = \frac{m^* k_B T}{\pi \hbar^2} \ln \left[ 1 + \exp \left( \frac{E_F - E_{n,z}}{k_B T} \right) \right]. \quad (2.9)$$

Na qual  $k_B$  é a constante de Boltzmann,  $T$  é a temperatura e  $E_F$  é a energia de Fermi. A equação para  $N_n$  pode ser simplificada no limite em que  $T \rightarrow 0\text{K}$  (Figura 5C), pois a distribuição de Fermi-Dirac será aproximada por uma função de Heaviside ou função degrau  $\Theta$  [26, 28]:

$$N_n = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \sum_n (E_F - E_{n,z}) \Theta(E_F - E_{n,z}). \quad (2.10)$$

Uma vez determinado  $n(z)$ , o potencial de Hartree é resolvido via a equação de Poisson mediante o uso de uma função de Green discreta proposta em [32]. Para o potencial de correlação e troca foi utilizado a parametrização em termos de Rydberg efetivo  $Ry^*$  e raio de Bohr efetivo  $a_B^*$  obtida por Hedin e Lundqvist [33]:

$$V_{xc}(z) = -\frac{2}{\pi r_s} \left( \frac{9\pi}{4} \right)^{1/3} \left[ 1 + 0.0368 r_s \ln \left( 1 + \frac{21}{r_s} \right) \right] Ry^*, \quad (2.11)$$

$$r_s = \left[ \frac{4}{3} \pi (a_B^*)^3 n(z) \right]^{-1/3}, \quad a_B^* = \frac{\varepsilon \hbar^2}{m^* e^2}.$$

A equação de Schrödinger é diagonalizada seguindo o método de diferenças finitas descrito em [34] com uma discretização uniforme. O potencial de Hartree depende da solução  $\psi(z)$  da equação de Schrödinger via teoria do funcional de densidade, que depende do potencial de Hartree dado pela equação de Poisson. Portanto, a solução deve ser determinada de forma autoconsistente até que o critério de convergência estabelecido seja alcançado. O cálculo da estrutura eletrônica é realizado por meio da linguagem de programação FORTRAN 90. Todos os parâmetros para os cálculos realizados aqui foram compilados da referência [30].

### 3 ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ: O EFEITO RAMAN

#### 3.1 CONCEITOS FUNDAMENTAIS

O efeito Raman acontece devido ao espalhamento inelástico da luz que incide sobre um material. O fenômeno recebeu o nome em homenagem ao físico indiano Chandrasekhara Venkata Raman que o descobriu experimentalmente em 1928 [35, 36]. C. V. Raman observou que uma pequena fração de luz espalhada com comprimento de onda no visível mudava em relação a luz incidente. A mudança de cor de uma pequena parte da luz dependia da estrutura química do material responsável pelo espalhamento e independia da frequência da luz incidente. A. Smekal previu o efeito teoricamente mas não o investigou de forma detalhada, G. Landsberg e L. Mandelstam descobriram o mesmo efeito em quartzo independentemente de C. V. Raman [37]. Entretanto, C. V. Raman foi quem recebeu o prêmio Nobel de Física em 1930 pela descoberta por apresentar um estudo mais minucioso. A espectroscopia Raman não foi amplamente utilizada até os anos 1960. No entanto, a partir de 1960, com a descoberta e disponibilidade do uso de *laser* como fonte de excitação, o espalhamento Raman se tornou uma técnica largamente empregada para o desenvolvimento da ciência e tecnologia. Atualmente, existem mais de 25 modalidades de espectroscopia baseadas no efeito Raman [38].

O espalhamento Raman pode ser compreendido, por exemplo, a partir de uma abordagem macroscópica da interação do campo elétrico da luz com as vibrações quantizadas de uma rede cristalina (fônons) [39, 40, 41]. Do ponto de vista macroscópico, os momentos dipolares individuais atômicos na teoria clássica se combinam para formar uma polarização macroscópica. Considere que o campo elétrico macroscópico da radiação incidente de comprimento de onda  $\lambda$  tem a forma  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_i(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda)\cos(\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r} - \omega_\lambda t)$ , em que  $\mathbf{E}_i(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda)$  é a amplitude da onda de vetor de onda  $\mathbf{k}_\lambda$  e frequência angular da radiação incidente  $\omega_\lambda$ . Um meio material com susceptibilidade elétrica  $\chi$ , ao interagir com tal campo elétrico, origina uma polarização induzida dada por:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda)\cos(\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r} - \omega_\lambda t) = \chi(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda)\mathbf{E}_i(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda)\cos(\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r} - \omega_\lambda t) \quad (3.1)$$

A polarização elétrica corresponde à resposta do meio devido a presença do campo elétrico. A princípio, as propriedades ópticas do material são determinadas por um tensor susceptibilidade elétrica  $\overset{\leftrightarrow}{\chi}$ . Todavia, a fim de mostrar de maneira simples o efeito Raman, será considerado que o meio seja isotrópico e, então, a susceptibilidade pode ser representada por um escalar tal que as componentes do tensor segue a relação  $\chi_{ij} = \chi\delta_{ij}$ . As frequências em que a estrutura oscila podem ser expressas em termos de modos normais, os quais são independentes uns dos outros. Os modos normais da vibração da rede de um semicondutor são quantizados em fônons. O deslocamento atômico  $\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t)$  associado com

um fônon pode ser expresso na forma  $\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{Q}(\mathbf{q}, \omega_q)\cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega_q t)$  com vetor de onda  $\mathbf{q}$  e frequência  $\omega_q$ . A vibração da rede irá modificar a susceptibilidade. Considerando-se que as frequências que determinam  $\chi$  são muito maiores que  $\omega_q$  e que as amplitudes dessas vibrações são pequenas em relação aos parâmetros da rede, pode-se escrever  $\chi$  como função de  $\mathbf{Q}$ , expandi-la em série de Taylor e aproximar pelos termos de primeira ordem devido à pequena variação de  $\mathbf{q}$  em torno da posição de equilíbrio (subscrito zero), ou seja:

$$\chi(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda, \mathbf{Q}) \cong \chi_0(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda) + \left( \frac{d\chi}{d\mathbf{Q}} \right)_0 \mathbf{Q}(\mathbf{r}, t). \quad (3.2)$$

Dessa forma, substituindo-se a equação 3.2 na equação 3.1 e com o uso de  $\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t)$  e a relação  $2\cos(a)\cos(b) = [\cos(a+b) + \cos(a-b)]$ , a expressão 3.1 será reescrita como:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t, \mathbf{Q}) &= \chi_0(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda) \mathbf{E}_i(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda) + \\ &+ \frac{1}{2} \left( \frac{d\chi}{d\mathbf{Q}} \right)_0 \mathbf{Q}(\mathbf{q}, \omega_q) \mathbf{E}_i(\mathbf{k}_\lambda, \omega_\lambda) \{ \cos[(\mathbf{k}_\lambda + \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r} - (\omega_\lambda + \omega_q)t] + \cos[(\mathbf{k}_\lambda - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r} - (\omega_\lambda - \omega_q)t] \}. \end{aligned} \quad (3.3)$$

O primeiro termo ao lado direito da equação 3.3 é a polarização vibrando em fase com a radiação e representa o espalhamento Rayleigh (espalhamento elástico) pois a radiação espalhada tem a mesma frequência da radiação incidente. O segundo e o terceiro termo ao lado direito da equação 3.3 correspondem, respectivamente, ao espalhamento Raman anti-Stokes ( $\omega_{AS} = \omega_\lambda + \omega_q$  e  $\mathbf{k}_{AS} = \mathbf{k}_\lambda + \mathbf{q}$ ) e ao espalhamento Raman Stokes<sup>1</sup> ( $\omega_S = \omega_\lambda - \omega_q$  e  $\mathbf{k}_S = \mathbf{k}_\lambda - \mathbf{q}$ ). Portanto, a equação 3.3 apresenta a condição necessária para que ocorra o espalhamento Raman. Essa condição é a variação na susceptibilidade elétrica durante a vibração, ou seja,  $(d\chi/d\mathbf{Q})_0 \neq 0$ . Desse modo, como a intensidade Raman é proporcional a polarização da radiação espalhada, isto é,  $I \propto |\mathbf{P}|^2$ , se a radiação incidente e espalhada tem polarização dada, respectivamente, por  $\mathbf{e}_i$  e  $\mathbf{e}_s$ , a intensidade de luz espalhada pode ser escrita como  $I_s \propto |\mathbf{e}_i \cdot \mathfrak{R} \cdot \mathbf{e}_s|^2$ , em que  $\mathfrak{R} = (\partial\chi_{ij}/\partial\mathbf{Q})_0 \mathbf{Q}(\mathbf{q}, \omega_q)$  é definido como o tensor Raman. Esse tensor é usado para calcular as regras de seleção baseado em propriedades de simetria do material e, então, determinar se tal simetria corresponde a um modo Raman permitido [41]. A derivação realizada em termos da susceptibilidade é equivalente a usarmos a polarizabilidade (definida para campos elétricos

<sup>1</sup> A nomenclatura Stokes para o efeito Raman foi adotada em homenagem a George Gabriel Stokes devido ao seu trabalho pioneiro com o fenômeno da fluorescência em 1852. A diminuição da frequência no espalhamento Raman em relação a fonte de excitação assemelhasse a fluorescência [42]. Entretanto, o efeito Raman e a fluorescência tem origem em princípios fundamentalmente diferentes. Portanto, essa analogia não é adequada e não deve implicar em uma possível equivalência entre os dois fenômenos.

locais<sup>2</sup>) no caso de moléculas [38, 39, 40, 42, 43]. Por conseguinte, classicamente, as linhas Raman Stokes e *anti-Stokes* deveriam ter a mesma intensidade. No entanto, observa-se experimentalmente que a componente Raman Stokes é mais intensa do que a *anti-Stokes*. Para explicar esse comportamento é preciso recorrer a um modelo quântico.

A figura 6 ilustra os processos envolvidos no espalhamento de luz descritos a seguir. Um sistema, como um grupo de átomos no sólido ou moléculas, ao interagir com uma fonte de excitação monocromática de energia  $\hbar\omega_\lambda$  (laser), absorve a energia do fóton incidente e, então, é excitado a partir do seu estado fundamental a um estado intermediário virtual. Uma vez que o estado intermediário não corresponde a nenhum nível quantizado estacionário, a população nesse estado irá decair rapidamente emitindo (espalhando) um fóton. No espalhamento Rayleigh o sistema retorna ao seu estado fundamental inicial sem alterar a energia do fóton espalhado. No processo Raman Stokes, a população de átomos é excitada a partir de seu estado fundamental a um estado intermediário virtual ao interagir com o fóton incidente e decai para um estado excitado espalhando um fóton. O processo Raman *anti-Stokes* é análogo ao processo Stokes, de modo que a população é excitada já a partir de um estado excitado e retorna ao estado fundamental. Considerando-se uma distribuição de Boltzmann para a população que se encontra em estados excitados, deve-se esperar que a linha Stokes seja mais intensa que a *anti-Stokes* [39, 40]. A probabilidade de transição para o espalhamento Stokes é muito maior que a do espalhamento *anti-Stokes*, já que uma maior fração das moléculas são encontradas no estado fundamental. Além disso, o espalhamento Rayleigh tem uma maior probabilidade de ocorrência em relação ao espalhamento Raman pois o evento mais provável é que o sistema seja excitado a partir do estado fundamental e retorne a esse mesmo estado. Dessa forma, a linha Rayleigh tem uma maior intensidade em relação a linha Raman. Embora o sinal Raman seja um sinal fraco, se a energia da radiação incidente coincidir com uma transição eletrônica do material, o sinal pode ser intensificado por um fator da ordem de  $10^5$  vezes [39]. Esse comportamento é conhecido como efeito Raman ressonante e será o fenômeno explorado nessa tese. Vale ressaltar, que a componente Stokes será utilizada por ser mais intensa. Os processos ressonantes são análogos aos descritos anteriormente e também são ilustrados na Figura 6.

As expressões matemáticas para intensidade Raman a partir de uma teoria semiclássica, inclusive, levando-se em consideração o tensor polarizabilidade, podem ser encontradas nas referências [38, 42, 43] e não serão abordadas aqui. Os fundamentos da mecânica quântica da teoria Raman foram dados por uma série de artigos publicados por Rodney Loudon [44, 45, 46]. As probabilidades de transição e, portanto, as intensidades são calculadas por meio da teoria de perturbação de terceira ordem. O modelo proposto por R. Loudon considera a Hamiltoniana do sistema dada por  $H = H_0 + H_1$  em que  $H_0$  é

<sup>2</sup> Veja, por exemplo: MACHADO, K. D. **Teoria do eletromagnetismo**: Volume 1. Ponta Grossa: UEPG, 2000. cap. 10, p. 641-740.

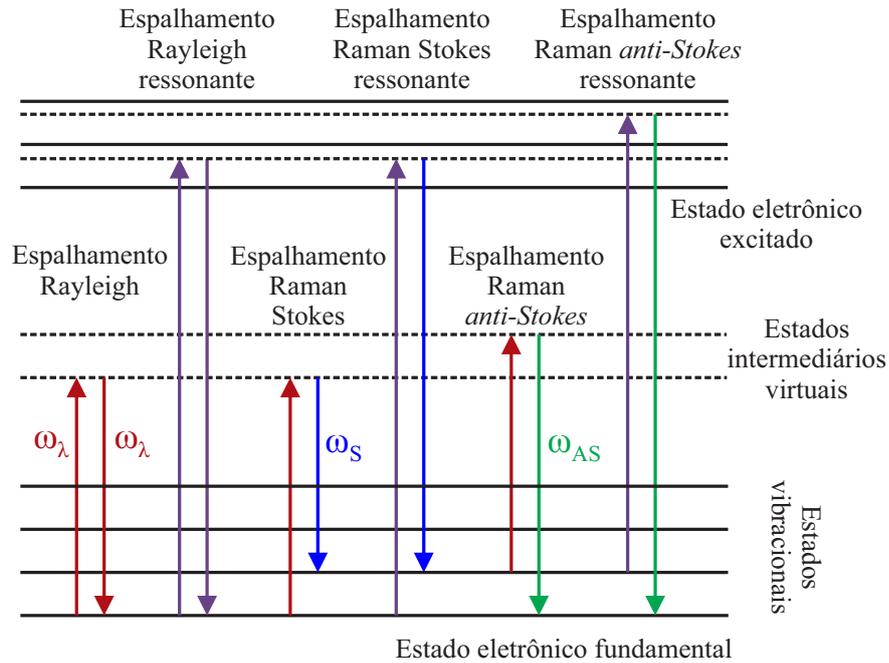


Figura 6 – Origem dos processos de espalhamento de luz. A radiação incidente causa excitação do sistema em seu estado fundamental a um estado intermediário e subsequente reemissão de um fóton ao decair para um estado de menor energia. Se o sistema é excitado a partir de seu estado fundamental e retorna a ele pela emissão de um fóton é chamado espalhamento Rayleigh. Caso o sistema retorne a um estado de menor energia é chamado espalhamento Raman Stokes. Se o sistema já se encontra em um estado excitado e é excitado a partir dele e retorna para seu estado fundamental pela emissão de um fóton é chamado espalhamento Raman *anti-Stokes*. Os processos ressonantes são análogos. No entanto possuem uma intensificação da ordem de  $10^5$  vezes em relação aos anteriores.

a Hamiltoniana do material mais a Hamiltoniana do campo da radiação (Hamiltoniano não perturbado) e  $H_1$  é o Hamiltoniano que envolve a interação da radiação com a rede do material (elétrons do cristal mais o campo da radiação) mais o Hamiltoniano da interação entre o elétron e o fônon (elétrons mais as vibrações quantizadas da rede). Dessa forma,  $H_1$  é tratada com uma perturbação ao sistema. Um fóton de energia  $\hbar\omega_\lambda$  interage com a rede do material e cria um par elétron-buraco. A transição para o estado intermediário ocorre com a destruição de um fóton. Por meio da interação entre o par elétron-buraco e o fônon, pode ocorrer a transição do par elétron-buraco para outro estado e o par ceder energia ao sistema criando um fônon (processo Stokes) ou ganhar energia pela destruição de um fônon (processo *anti-Stokes*) de energia  $\hbar\omega_q$ . Por último, uma transição para um estado de menor energia pode ocorrer quando o elétron se recombinar com o buraco. Isso acontece devido a criação de um fóton. Essa radiação emitida tem energia que corresponde a diferença de energia após a interação com o fônon.

Em vista dos conceitos apresentados, entende-se que o espalhamento inelástico de

luz ou espalhamento Raman é o espalhamento de luz por um meio material, onde excitações elementares são criadas ou destruídas. Considerando-se um sólido, essas excitações podem ser, por exemplo, fônons ou, como será considerado no decorrer da tese, excitações elementares do gás de elétrons<sup>3</sup> (excitações eletrônicas). Em tal caso, um fóton de energia  $\hbar\omega_\lambda$  e momento  $\mathbf{k}_\lambda$  é espalhado pela criação ou destruição de uma excitação elementar com energia  $\hbar\omega_q$  e momentum  $\mathbf{q}$ . O fóton espalhado<sup>4</sup> pela interação tem energia  $\hbar\omega_s$  e momentum  $\mathbf{k}_s$ . A representação para esse processo é dado pelas equações a seguir:

$$\hbar\omega_s = \hbar\omega_\lambda \pm \hbar\omega_q \quad e \quad (3.4)$$

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_\lambda \pm \mathbf{k}_q. \quad (3.5)$$

Na equação 3.4 o sinal  $-(+)$  corresponde ao processo Stokes (*anti-Stokes*) e na equação 3.5 o sinal  $+(-)$  corresponde ao processo Stokes (*anti-Stokes*). As equações 3.4 e 3.5 equivalem a cinemática do processo de espalhamento inelástico de luz e expressam, respectivamente, a conservação de energia e momentum.

## 3.2 TEORIA DO ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ

### 3.2.1 Excitações elementares eletrônicas

As excitações coletivas visualizadas por meio do espalhamento Raman eletrônico em gás de elétrons são oscilações macroscópicas de densidade de carga (plasmons). As excitações com um caráter de partícula independente possuem energias próximas ao espaçamento entre duas sub-bandas de um sistema não interagente e, portanto, podem ser imaginadas como transições eletrônicas naturais de um sistema eletrônico ideal não interagente. Ambas constituem as excitações elementares de um gás de elétrons estudadas via espalhamento inelástico de luz. O conjunto de excitações eletrônicas constituem um sistema eletrônico interagente, dessa forma, apesar do espectro Raman apresentar um conjunto de excitações de partícula independente e um conjunto de excitações coletivas, essas excitações devem possuir um comportamento de um sistema de muitos corpos, ou seja, todo o gás de elétrons está interagindo de forma coletiva. Em um tratamento

<sup>3</sup> Historicamente [2], o espalhamento por fônons ópticos ou as vibrações quantizadas de uma molécula é chamado espalhamento Raman. O espalhamento inelástico de luz por ondas acústicas foi primeiro proposto por Brillouin e, então, o espalhamento devido a fônons acústicos é adotado o termo espalhamento Brillouin [41]. Para o caso de excitações eletrônicas, encontra-se na literatura o termo espalhamento Raman eletrônico ou espalhamento inelástico de luz.

<sup>4</sup> Nesse caso, o subscrito “s” que aparece na energia do fóton espalhado ( $\hbar\omega_s$ ) é uma abreviação da palavra *scattered*, que traduzido para o português significa espalhado. A partir de agora, esse subscrito será adotado quando houver referência a processos de espalhamento com o intuito de estar em concordância com as abreviações utilizados na literatura.

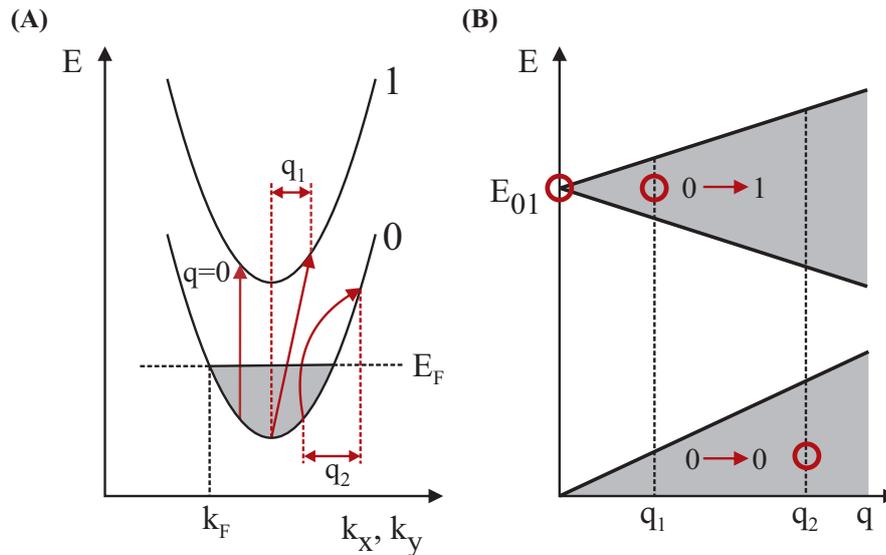


Figura 7 – (A) Ilustração de transições de partícula independente intersub-bandas ( $q, q_1$ ) e intrassub-bandas ( $q_2$ ) para uma gás de elétron bidimensional com dispersão parabólica. (B) Contínuo de excitações de partícula independente e localização simbólica das transições intersub-bandas e intrassub-bandas. Figura adaptada de [2].

mais adequado, essas transições de partícula independente são excitações de um sistema eletrônico interagente que não sofrem uma renormalização pela interação Coulombiana.

A Figura 7 ilustra um sistema eletrônico bidimensional de partículas independentes com duas sub-bandas. A Figura 7A ilustra transições intersub-bandas e intrassub-bandas. Cada estado confinado do sistema bidimensional está associado com uma sub-banda no espaço do vetor de onda bidimensional para o movimento do elétron no plano  $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ . Note que apenas a sub-banda de menor energia está ocupada com elétrons até o nível de Fermi  $E_F$  (temperatura  $T = 0K$ ).

As excitações a partir do mar de Fermi incluem transições intersub-bandas ( $0 \rightarrow 1$ ) entre duas sub-bandas com energias diferentes e transições intrassub-bandas ( $0 \rightarrow 0$ ) dentro de uma sub-banda ocupada como ilustrado na Figura 7. Essas transições ocorrem a partir de um estado ocupado abaixo do nível de Fermi para um estado desocupado acima do nível de Fermi. Pode-se observar que as transições intersub-bandas ocorrem verticalmente ( $q = 0$ ) e com uma transferência finita de vetor de onda de espalhamento (transições não verticais,  $q \neq 0$ ), enquanto as transições intrassub-bandas tem energia diferente de zero apenas se  $q \neq 0$ . A Figura 7B ilustra qualitativamente as posições das transições esboçadas na Figura 7A. Observe que a Figura 7 ilustra apenas as transições de uma gás de elétrons tipo não interagente, ou seja, a interação de Coulomb está sendo negligenciada. Todos os possíveis valores para as transições de partícula independente com dependência com o vetor de onda formam um contínuo de excitações.

A borda superior do contínuo de excitações intrassub-bandas pode ser descrita dentro da aproximação parabólica como [2]:

$$E(k_F + q) - E(k_F) = \frac{\hbar^2(k_F + q)^2}{2m^*} - \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m^*} = \frac{\hbar^2 q k_F}{m^*} + \frac{\hbar^2 q^2}{2m^*} \cong \frac{\hbar^2 q k_F}{m^*}. \quad (3.6)$$

Em que o vetor de onda de Fermi  $k_F$  é grande quando comparado ao vetor de onda de espalhamento ( $k_F \gg q$ ). Como ilustrado na Figura 7A, um sistema bidimensional pode ser descrito por um parabolóide no plano  $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ , em que  $\mathbf{k}$  simboliza o momentum do elétron. Portanto, uma transição intrassub-banda que ocorre a partir de algum estado ocupado abaixo do nível de Fermi para qualquer ponto do parabolóide em  $k_x$  e  $k_y$  logo acima do nível de Fermi ( $q < 2k_F$ ) sugere excitações intrassub-bandas com energias muito pequenas. Para as transições intersub-bandas nas bordas superior e inferior do contínuo de excitações, as energias são escritas como [2]:

$$E_{01} + E(k_F \pm q) - E(k_F) = E_{01} \pm \frac{\hbar^2 q k_F}{m^*} + \frac{\hbar^2 q^2}{2m^*}. \quad (3.7)$$

Em que  $E_{01} = E_1 - E_0$  é a diferença de energia entre as duas sub-bandas para cada  $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$ .

De acordo com a equação 3.7, para transições verticais ( $q = 0$ ), obtém-se um espectro discreto para as excitações de partícula independente intersub-bandas com energias igualmente espaçadas ao longo de  $\mathbf{k}$  e energia zero para excitações de partícula independente intrassub-bandas. Essa situação, conhecida como geometria de retroespalhamento (do inglês, *backscattering*), implica que não há uma transferência de momentum lateral e é frequentemente considerada nos experimentos de espalhamento Raman eletrônico de sistemas de baixa dimensionalidade [2] assim como será utilizada no decorrer da tese.

A Figura 8 esboça a geometria de espalhamento. A luz se propaga no interior da amostra em uma direção próxima à normal do plano do sistema bidimensional de uma forma quase paralela à direção de crescimento da amostra (Figura 8A). A geometria de retroespalhamento mais convencional utilizada garante que  $\vartheta + \varphi = 0$  e o ângulo da luz incidente e o ângulo da luz espalhada coincidem com a normal (Figura 8B). Essa situação não está longe da realidade, já que muitos materiais semicondutores possuem índice de refração alto (3-5). O GaAs possui índice de refração  $n \cong 3,6$  na região espectral do visível [47]. Dessa forma, considerando-se que a energia da luz do *laser* incidente é muito maior que a energia da excitação criada, as equações 3.4 e 3.5 podem ser aproximadas, ou seja,  $\hbar\omega_\lambda \cong \hbar\omega_q$  e  $|\mathbf{k}_s| \cong |\mathbf{k}_\lambda|$ , em que  $|\mathbf{k}_\lambda| = \frac{2\pi}{\lambda_i}$  e  $|\mathbf{k}_s| = \frac{2\pi}{\lambda_s}$  ( $\lambda_i \cong \lambda_s$ ). O vetor de onda de espalhamento é dado pela diferença entre  $\mathbf{k}_\lambda$  e  $\mathbf{k}_s$  e é usual dividir o momentum transferido para as excitações em um momentum  $\mathbf{q}_\perp$  na direção de crescimento da amostra e um momentum  $\mathbf{q}_\parallel$  na direção lateral como ilustrado na Figura 8B. O valor absoluto

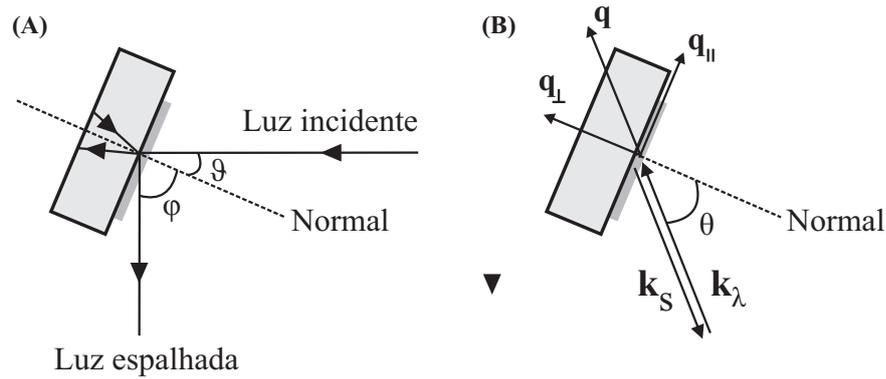


Figura 8 – Geometria de retroespalhamento adotada nos experimentos de espalhamento inelástico de luz. (A) A luz se propaga no interior do material próxima à normal do plano do sistema. (B) A geometria adotada permite que não haja transferência de momentum lateral e  $\mathbf{k}_\lambda = -\mathbf{k}_s$ . Figura adaptada de [2, 47].

de  $\mathbf{q}_\perp$  e  $\mathbf{q}_\parallel$  dependem do ângulo de incidência  $\Theta$  sobre a amostra e, em geral, apenas o valor absoluto de  $\mathbf{q}_\parallel$  é de interesse pois é possível causar a sua alteração continuamente de acordo com a configuração do experimento. Portanto, de acordo com a Figura 8B ( $\mathbf{k}_\lambda \cong -\mathbf{k}_s$ ) o vetor de onda transferido paralelo ao poço quântico pode ser dado por:

$$|\mathbf{q}_\parallel| = 2|\mathbf{k}_\lambda| \sin \Theta. \quad (3.8)$$

Utilizando-se uma luz na região do visível, isto é,  $\lambda_i = 500\text{nm}$ , o momentum transferido  $q_\parallel$  pode variar entre  $\approx 10^4\text{cm}^{-1}$  até um valor máximo de  $\approx 2 \times 10^5\text{cm}^{-1}$  [47]. Esse valor é muito menor que a extensão típica da zona de Brillouin  $2\pi/a \cong 10^8\text{cm}^{-1}$  de um semiconductor, o que reitera a geometria de retroespalhamento ( $q \cong 0$ ).

### 3.2.2 Seção de choque de espalhamento inelástico de luz e as regras de seleção para as excitações elementares eletrônicas

A detecção de espectros Raman significa determinar a função:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \equiv \text{seção de choque diferencial espectral}. \quad (3.9)$$

A seção de choque é definida como a taxa de remoção de energia a partir do feixe incidente como resultado de seu espalhamento em um volume  $\nu$  em um elemento de ângulo sólido  $d\Omega$  com frequência espalhada entre  $\omega_s$  e  $\omega_s + d\omega_s$  [40]. Possui dimensão de área dividido por um ângulo de sólido  $\Omega$  e frequência  $\omega_s$ . A área da seção transversal do feixe de espalhamento na Figura 9 é  $A = \nu/L$ , em que  $\nu$  é o volume de uma parte da amostra que

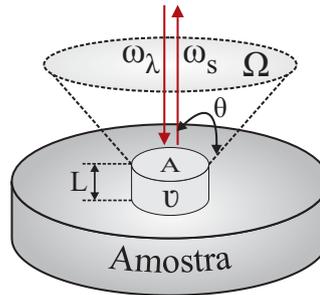


Figura 9 – Ilustração do experimento ao utilizar a geometria de retroespalhamento. A luz espalhada pela amostra é coletada em um ângulo de sólido  $\Omega$  e limitada pela área da lente da objetiva do microscópio que coleta essa luz. Figura adaptada de [48] .

contribui para a luz espalhada detectada. Conforme a equação 3.9, de acordo com [40], a seção de choque diferencial espectral pode ser definida como:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_s} = \frac{\omega_\lambda}{\omega_s} \frac{\nu}{L} \frac{d^2\bar{I}_s}{d\Omega d\omega_s} \frac{1}{\bar{I}_\lambda}. \quad (3.10)$$

Em que a taxa de fluxo de energia do feixe espalhado é dado por  $(\nu/L)\bar{I}_s$ .  $\bar{I}_\lambda$  e  $\bar{I}_s$  são, respectivamente, a intensidade média do feixe incidente e espalhado. Como ilustrado na Figura 9, a luz espalhada é coletada em um ângulo de sólido  $\Omega$  e limitada pela área da lente da objetiva do microscópio que coleta essa luz. Portanto, observa-se que a seção de choque diferencial carrega toda a informação referente ao alvo de incidência da luz e define a intensidade do sinal Raman, o que a torna uma quantidade chave para a conexão entre teoria e os experimentos de espalhamento de luz.

O problema microscópico geral das excitações eletrônicas descreve a transição de um fóton a partir de um estado  $(\omega_\lambda, \mathbf{k}_\lambda, \mathbf{e}_i)$  com frequência  $\omega_\lambda$ , momentum  $\mathbf{k}_\lambda$  e polarização incidente  $\mathbf{e}_i$  para um estado  $(\omega_s, \mathbf{k}_s, \mathbf{e}_s)$  com frequência  $\omega_s$ , momentum  $\mathbf{k}_s$  e polarização da luz espalhada  $\mathbf{e}_s$ . A seção de choque diferencial para descrever o espalhamento inelástico de luz devido as excitações eletrônicas presentes em um gás de elétrons bidimensional segue o trabalho de F. A. Blum [49], D. C. Hamilton e A. L. Mcwhorter [50]. A expressão para o espalhamento inelástico de luz é dada por:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = r_0^2 \left( \frac{\omega_s}{\omega_\lambda} \right) \left\langle \sum_F |\langle F | \hat{V}_{\text{eff}} | I \rangle|^2 \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) \right\rangle_I, \quad (3.11)$$

na qual  $r_0^2 = e^2/mc^2$  é o raio clássico do elétron,  $c$  é a velocidade da luz,  $m$  é a massa do elétron livre,  $\langle \rangle_I$  representa uma média sobre todos os estados eletrônicos iniciais de muitos corpos,  $\omega_s$  e  $\omega_\lambda$  correspondem, respectivamente, a frequência do fóton espalhado e incidente e  $\omega = \omega_\lambda - \omega_s$ . Na equação 3.11,  $\hat{V}_{\text{eff}}$  constitui o operador efetivo de espalhamento que configura a transição a partir de um estado de muitos corpos  $|I\rangle$  com energia  $E_I$  para

um estado final  $|F\rangle$  com energia  $E_F$ . O operador efetivo de espalhamento é escrito em termos de operadores de criação  $\hat{C}^\dagger$  e destruição  $\hat{C}$  de férmions para um estado de partícula independente inicial (i) e final (f) na banda de condução como [49, 50]:

$$\hat{V}_{\text{eff}} = \sum_{if} V_{if}^{\text{ext}} \hat{C}_f^\dagger \hat{C}_i. \quad (3.12)$$

Em que  $V_{if}^{\text{ext}}$  é o elemento de matriz responsável pela amplitude de espalhamento, ou seja, o fator ressonante associado a energia do laser. A solução para o problema de estados de muitos corpos não é conhecida e, então, é preciso recorrer a aproximações.

Um resultado muito importante e útil é a aplicação do teorema da flutuação-dissipação [51, 52]. Por meio dele, é possível calcular propriedades de não equilíbrio de um sistema em termos das médias sobre todos os estados em equilíbrio [53]. Para o caso do espalhamento de luz, as seções de choque podem ser expressas em termos da transformada de Fourier de funções de correlação e, portanto, pode-se relacionar a seção de choque para o espalhamento inelástico de luz à parte imaginária de uma função resposta (Apendice A) do sistema eletrônico como:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = r_0^2 \left( \frac{\omega_S}{\omega_\lambda} \right) \left( -\frac{\hbar}{\pi} \right) \text{Im} \langle \hat{V}_{\text{eff}}^\dagger(0) \rangle_\omega. \quad (3.13)$$

A equação 3.13 traduz a solução do espalhamento inelástico de luz ao cálculo da média sobre o estado fundamental de muitos corpos que poderá ser descrito em termos de função de onda de um corpo.

O acoplamento da interação da radiação com o sistema eletrônico é realizado via substituição do operador momentum eletrônico  $\hat{\mathbf{p}}$  por  $\hat{\mathbf{p}} \rightarrow \hat{\mathbf{p}} + e\hat{\mathbf{A}}/c$  na Hamiltoniana do sistema não perturbado  $H_0 = \sum_j \frac{\hat{\mathbf{p}}_j^2}{2m}$ . Dessa forma, a Hamiltoniana<sup>5</sup> para o sistema de muitos corpos será dada por:

$$H = H_0 + \sum_j \left[ -\frac{e}{mc} \hat{\mathbf{p}}_j \cdot \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_j, t) + \frac{e^2}{2mc^2} \hat{\mathbf{A}}^2(\mathbf{r}_j, t) \right] + \hat{V}_{e-e} + \hat{V}_{e-\text{fônnon}}, \quad \text{em que} \quad (3.14)$$

$$\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_j, t) = \sum_{\mathbf{k}_\lambda, \mathbf{e}_i} N \boldsymbol{\varepsilon}_{\mathbf{k}_\lambda, \mathbf{e}_i} [\hat{\mathbf{a}}_{\mathbf{k}_\lambda, \mathbf{e}_i} e^{i(\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r} - \omega_\lambda t)} + \hat{\mathbf{a}}_{\mathbf{k}_\lambda, \mathbf{e}_i}^\dagger e^{-i(\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r} - \omega_\lambda t)}] \quad (3.15)$$

<sup>5</sup> Observe que foi utilizada a definição  $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$  e o termo  $\hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{A}}$  foi expresso como  $(\hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{A}})f(\mathbf{r}) = \hat{\mathbf{A}} \cdot (-i\hbar\nabla)f + (-i\hbar\nabla \cdot \hat{\mathbf{A}})f$ . A partir do calibre de Coulomb  $\nabla \cdot \hat{\mathbf{A}} = 0$ , pode-se adotar que  $\hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{A}} = \hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}}$ . Para detalhes além do que foi tratado aqui, veja por exemplo: GREINER, W. **Quantum Mechanics: Special Chapters**. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1998.

SAKURAI, J. J. **Advanced Quantum Mechanics**. Pearson Education India, 1967.

é o operador potencial do campo da radiação com operador de criação  $\hat{a}^\dagger$  e destruição  $\hat{a}$  de fótons, vetor de onda de polarização  $\varepsilon_{\mathbf{k}\lambda}$ , e  $N$  um fator de normalização. O processo de espalhamento é um processo de dois fótons, logo os termos que contribuem para o processo devem conter produtos dos operadores de criação e destruição de fótons. A Hamiltoniana 3.14 depende de  $\hat{\mathbf{A}}$  de forma linear por meio do termo  $(-e/mc)\hat{\mathbf{p}}_j \cdot \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_j, t)$  e de forma quadrática por meio do termo  $(e^2/2mc^2)\hat{\mathbf{A}}^2(\mathbf{r}_j, t)$ . Portanto, apenas  $\hat{\mathbf{A}}^2$  contribui para o processo de espalhamento em primeira ordem em teoria de perturbação dependente do tempo e está associado a excitações intrassub-bandas não ressonantes. Embora o termo  $\hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}}$  não faça contribuição em primeira ordem, considerando-se teoria de perturbação dependente do tempo em segunda ordem, a interação dupla  $(\hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}})(\hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}})$  contribui para o processo de espalhamento e está associado a excitações intrassub-bandas e intersub-bandas. O potencial de interação de Coulomb  $\hat{V}_{e-e}$  assim como o potencial de interação de elétron-fônon  $\hat{V}_{e-f\text{onon}}$  contribuem para o processo de espalhamento em terceira ordem. A contribuição  $\hat{V}_{e-f\text{onon}}$  não será discutida aqui.

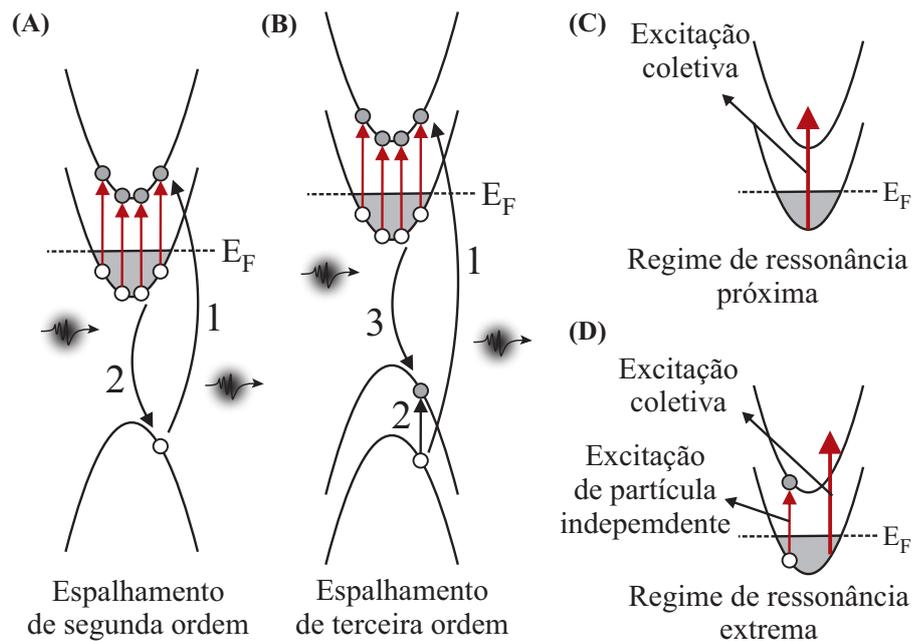


Figura 10 – (A) Ilustração do mecanismo de espalhamento inelástico de luz de segunda ordem para uma gás de elétrons bidimensional, o qual envolve duas transições ópticas interbandas. (B) Ilustração do mecanismo de espalhamento inelástico de luz de terceira ordem, o qual envolve transições ópticas interbandas (passos 1 e 3) e transições intersub-bandas induzidas por interações de Coulomb entre pares elétron-buraco (ou exciton) e o mar de Fermi (passo 2). (C) Excitação resultante no regime de ressonância próxima. (D) Excitação resultante no regime de ressonância extrema.

A Figura 10 ilustra os processos de segunda e terceira ordem em teoria de perturbação para o espalhamento inelástico de luz. No primeiro (1) passo do processo de segunda ordem  $n$  fótons, ao interagir com o semiconductor (destruição de fótons), excitam

$N$  elétrons a partir da banda de valência para um estado desocupado acima do nível de Fermi na banda de condução criando pares elétrons - buracos (Figura 10A). No segundo (2) passo  $N$  elétrons do mar de Fermi sentem os buracos deixados na banda de valência e recombinaem com esses buracos emitindo radiação (criando fótons). No processo de terceira ordem (Figura 10B), o primeiro (1) e o terceiro (3) passo são análogos ao processo de segunda ordem. Todavia, um par elétron-buraco (ou um exciton) pode ser espalhado para um outro estado como, por exemplo, um buraco pode ser espalhado na banda de valência (Figura 10B). Isso ocorre devido a interação Coulombiana do par elétron-buraco (ou exciton) com o mar de Fermi por intermédio de flutuações de densidade de carga. O efeito líquido de ambos os processos é a criação de excitações coletivas na banda de condução como ilustrado na Figura 10C. Como já mencionado, essas excitações coletivas (plasmons) aparecem em um regime de ressonância próxima, na qual a energia do laser é ressonante com o *gap* óptico do semiconductor. No entanto, em um regime de ressonância extrema, no qual a energia do laser é ressonante com as transições interbandas do material, além das excitações coletivas, emergem as transições com caráter de gás não interagente denominadas excitações de partícula independente (Figura 10D). Um dos propósitos suportados aqui é que independente do processo ser de segunda ou terceira ordem, a física envolvida é equivalente e o resultado será o apresentado na Figura 10C-D.

Abordando-se apenas situações ressonantes,  $V_{if}^{ext}$  de segunda (2) e terceira (3) ordem são dados [2, 49, 50, 54, 55], respectivamente, por:

$$V_{if}^{ext(2)} = \frac{1}{m} \sum_v \frac{\langle f | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_\lambda | v \rangle \langle v | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_s | i \rangle}{E_f - E_v - \hbar\omega_\lambda} \quad e \quad (3.16)$$

$$V_{if}^{ext(3)} = \sum_{vv'} \frac{\langle f | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_\lambda | v' \rangle \langle v' | \widehat{V}_{e-e} | v \rangle \langle v | \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_s | i \rangle}{(E_f - E_{v'} - \hbar\omega_\lambda)(E_i - E_v - \hbar\omega_s)}. \quad (3.17)$$

Em que  $|v\rangle$  e  $|v'\rangle$  são estados intermediários de partícula independente,  $E_{i,f,v,v'}$  são as energias relacionadas a cada estado,  $\mathbf{A}_\lambda$  e  $\mathbf{A}_s$  são, respectivamente, os potenciais vetores da luz incidente (*laser*) e da luz espalhada e  $\mathbf{p}$  é o momentum do elétron. Como já mencionado no capítulo 2, a banda de valência do GaAs é degenerada no ponto  $\Gamma$  e essa degenerescência é removida devido ao acoplamento spin-órbita. Como resultado, a banda de valência se divide nas bandas de buraco leve, buraco pesado e *split-off*. As duas primeiras permanecem degeneradas no ponto  $\Gamma$ , o que pode promover uma espalhamento de terceira ordem. Isso é alcançado quando a energia do *laser* é ressonante com a energia do *gap* fundamental do GaAs. Contorna-se o problema garantindo que a energia do *laser* seja ressonante com a energia do *gap* da banda de *split-off*. Dessa forma, pode-se considerar um problema de espalhamento em segunda ordem em teoria de perturbação.

A Figura 11A ilustra um poço quântico simples e os estados derivados da banda de condução  $\Gamma_6$ , da banda de valência de buraco leve e pesado  $\Gamma_8$  e da banda de *split-off*  $\Gamma_7$ .

A transição interssub-banda mostrada é oriunda a partir de apenas um estado ocupado abaixo do nível de Fermi para um estado acima do nível de Fermi. A Figura 11B ilustra os respectivos níveis de energia para o poço quântico simples e as duas transições interbandas ópticas devido a aproximação de segunda ordem para o espalhamento inelástico de luz. Ambas as figuras anteriores proporcionam um suporte para o entendimento das condições de ressonância. Se a radiação da energia incidente tem um valor próximo da energia do *gap* do material semiconductor, então, o denominador da equação 3.16 pode ser substituído por um denominador médio de tal forma que  $E_f - E_v \cong E_{\text{gap}}$  como ilustrado na Figura 11. Essa situação é denominada regime de ressonância próxima e permite eliminar os estados intermediários da banda de valência na equação 3.16 por intermédio da relação de completeza, o que torna a expressão 3.16 mais simples, no entanto, a conservação do momentum entre os fótons incidentes e espalhados da mesma forma que alguns detalhes da estrutura eletrônica não são considerados de forma correta. Nessa situação, apenas as excitações coletivas (plasmons) estarão presentes no espectro Raman. Se a energia do *laser* incidente coincidir com as energias das transições interbandas do material (Figura 11), então, os estados da banda de valência não poderão ser negligenciados, desempenhando um papel fundamental na estrutura do problema. Essa situação é denominada regime de ressonância extrema. Tal condição é responsável pelo surgimento das excitações coletivas, juntamente com as excitações de partícula independente, cujo motivo ainda não é completamente compreendido. O cálculo para o regime de extrema ressonância será realizado a seguir.

As transições eletrônicas provenientes do espalhamento inelástico de luz podem ser descritas por meio de funções de onda de um corpo, as quais incluem as funções de Bloch  $u_b^{(\sigma_b)}(\mathbf{r})$  dentro do modelo de Kane, as funções envelope  $\psi_b(z)$  do poço quântico na direção do crescimento assim como ondas planas  $e^{i\mathbf{k}_b \cdot \mathbf{r}}$  normalizadas pela área  $A$  que representam o movimento livre do elétron no plano  $xy$ , ou seja,  $\langle \mathbf{r} | b \rangle = \langle \mathbf{r} | b, \mathbf{k}_b, u_b^{(\sigma_b)} \rangle = \psi_b(z) e^{i\mathbf{k}_b \cdot \mathbf{r}} u_b^{(\sigma_b)}(\mathbf{r}) / \sqrt{A}$ . O subíndice  $b$  se refere a banda de condução ou banda de valência,  $\sigma_b$  configura os diferentes estados de spin ( $\uparrow$  ou  $\downarrow$ ) para sua respectiva banda  $b$  em que  $|\uparrow\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$  e  $|\downarrow\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ . Dessa forma, o estado  $|i\rangle$  na banda de condução, por exemplo, fica da seguinte forma:

$$\langle \mathbf{r} | i \rangle = \langle \mathbf{r} | \alpha, \mathbf{k}_\alpha, u_\alpha^{(\sigma_\alpha)} \rangle = \frac{1}{\sqrt{A}} \psi_\alpha(z) e^{i\mathbf{k}_\alpha \cdot \mathbf{r}} u_\alpha^{(\sigma_\alpha)}(\mathbf{r}). \quad (3.18)$$

Observe que os dois processos ópticos na Figura 11B são virtuais pois representam estados intermediários em teoria de perturbação. O processo mensurável com conservação de energia é a excitação na banda de condução a partir de um estado ocupado  $|i\rangle = |\alpha, \mathbf{k}_\alpha, u_\alpha^{(\sigma_\alpha)}\rangle$  para um estado desocupado  $|f\rangle = |\beta, \mathbf{k}_\beta + \mathbf{q}, u_\beta^{(\sigma_\beta)}\rangle$  como ilustrado na Figura 11A. Os estados de buraco na banda de valência  $|v\rangle = |h, \mathbf{k}_h, u_h^{(\sigma_h)}\rangle$  exercem a função de

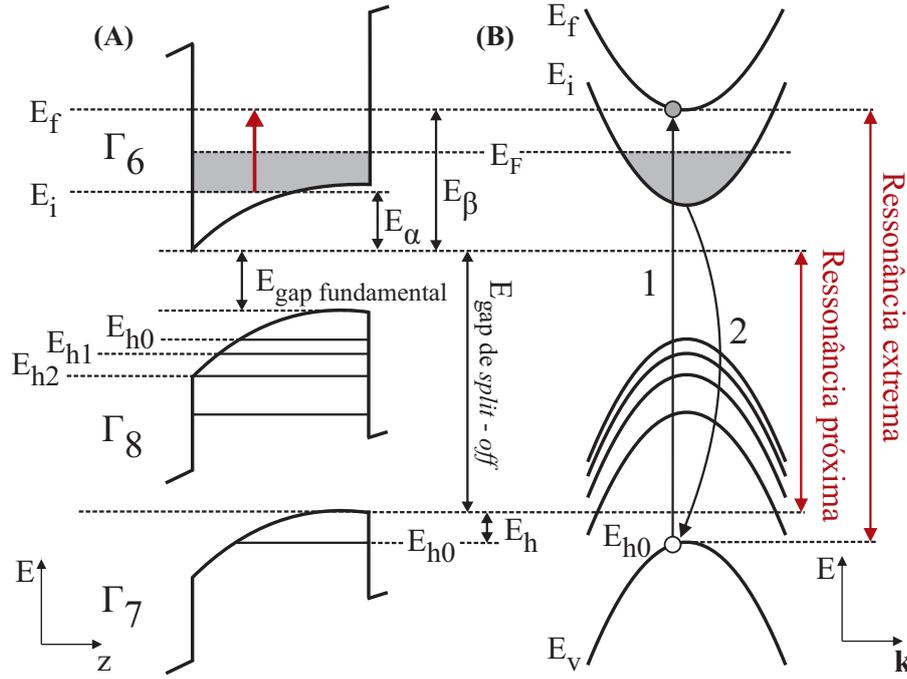


Figura 11 – Ilustração do perfil do potencial da banda de valência e da banda de condução em um poço quântico simples e seus correspondentes níveis de energia. (A) *Gap* fundamental ( $\Gamma_8$ ) e o *gap* de *split-off* ( $\Gamma_7$ ) com energia  $E_{\alpha(\beta)}$  na banda de condução ( $\Gamma_6$ ) e energia de buraco (*holes*)  $E_h$  na banda de valência. (B) Duas transições ópticas em virtude do espalhamento inelástico de luz quando a ressonância é com a transição interbanda  $E_{h0} \rightarrow E_f$ . Os estados no espaço  $\mathbf{k}$  possuem relação de dispersão  $E_f = E_\beta + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m_e^*$  e  $E_v = E_h + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m_{so}^*$ . Figura adaptada de [47]

estados intermediários. Uma vez que  $\mathbf{p}$  atua somente em  $u_b^{(\sigma_b)}(\mathbf{r})$  e  $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_\lambda = \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} e^{i\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r}}$ ,  $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_s = \mathbf{e}_s \cdot \mathbf{p} e^{i(-\mathbf{k}_s) \cdot \mathbf{r}}$ , a equação 3.16 poderá ser reescrita como:

$$V_{\alpha\beta}^{\text{ext}(2)} = \frac{1}{m} \sum_{u_h} \langle u_\beta^{(\sigma_\beta)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(\sigma_h)} \rangle \langle u_h^{(\sigma_h)} | \mathbf{e}_s \cdot \mathbf{p} | u_\alpha^{(\sigma_\alpha)} \rangle \sum_h \frac{\langle \beta | e^{i\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r}} | h \rangle \langle h | e^{i(-\mathbf{k}_s) \cdot \mathbf{r}} | \alpha \rangle}{E_{\text{gap}} + E_\beta + E_h + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2\mu^*} - \hbar\omega_\lambda + i\zeta}. \quad (3.19)$$

Em que o denominador no segundo membro ao lado direito da equação 3.19 representa o denominador ressonante em regime de ressonância extrema como ilustrado na Figura 11,  $\zeta$  é um fator de amortecimento fenomenológico relacionado ao tempo de vida no estado intermediário,  $E_f = E_\beta + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m_e^*$  e  $E_v = E_h + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m_{so}^*$  são, respectivamente, as relações de dispersão para os estados de partícula independente da banda de condução e da banda de valência de *split-off* com  $\mathbf{k}$  representando o vetor de onda bidimensional,  $m_e^*$  a massa efetiva dos elétrons na banda de condução,  $m_{so}^*$  a massa efetiva dos buracos na banda de valência e  $1/\mu^* = 1/m_e^* + 1/m_{so}^*$  a massa reduzida efetiva. Agora, os estados  $|\alpha\rangle$ ,  $|\beta\rangle$  e  $|h\rangle$  na equação 3.19 configuram estados de onda plana e funções envelope, isto é,  $\langle \mathbf{r} | b \rangle = \langle \mathbf{r} | b, \mathbf{k}_b \rangle = \psi_b(z) e^{i\mathbf{k}_b \cdot \mathbf{r}} / \sqrt{A}$  com  $b = \alpha, \beta$  ou  $h$ .

Na representação de Kane, as funções de onda de Bloch para a banda de condução e para a banda de valência de *split-off* são dadas, respectivamente, por:

$$\Gamma_6 : \begin{cases} |u_\alpha^{(\uparrow)}\rangle = |u_\beta^{(\uparrow)}\rangle \equiv i|S \uparrow\rangle \\ |u_\alpha^{(\downarrow)}\rangle = |u_\beta^{(\downarrow)}\rangle \equiv i|S \downarrow\rangle, \end{cases} \quad (3.20)$$

$$\Gamma_7 : \begin{cases} |u_h^{(1)}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{3}}|(X + iY) \downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|Z \uparrow\rangle \\ |u_h^{(2)}\rangle \equiv -\frac{1}{\sqrt{3}}|(X - iY) \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|Z \downarrow\rangle. \end{cases} \quad (3.21)$$

Substituindo-se as equações 3.20 e 3.21 no primeiro membro ao lado direito da equação 3.19 para as diferentes configurações de spin, obtêm-se:

$$\begin{aligned} V_{\uparrow\uparrow} &= \frac{1}{m} \sum_{u_h} \langle u_\beta^{(\sigma_\beta)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(\sigma_h)} \rangle \langle u_h^{(\sigma_h)} | \mathbf{e}_s \cdot \mathbf{p} | u_\alpha^{(\sigma_\alpha)} \rangle \\ &= \frac{1}{m} \sum_{u_h=u_h^{(1)}, u_h^{(2)}} \left( \langle u_\beta^{(\uparrow)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(1)} \rangle \langle u_h^{(1)} | \mathbf{e}_s \cdot \mathbf{p} | u_\alpha^{(\uparrow)} \rangle + \langle u_\beta^{(\uparrow)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(2)} \rangle \langle u_h^{(2)} | \mathbf{e}_s \cdot \mathbf{p} | u_\alpha^{(\uparrow)} \rangle \right). \end{aligned} \quad (3.22)$$

Os elementos de matriz  $\langle u_\beta^{(\uparrow)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(1)} \rangle$  e  $\langle u_\beta^{(\uparrow)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(2)} \rangle$  são dados por:

$$\langle u_\beta^{(\uparrow)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(1)} \rangle = -i \langle S \uparrow | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | \frac{1}{\sqrt{3}}|(X + iY) \downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|Z \uparrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -i \langle S | p_z | Z \rangle \end{pmatrix}, \quad (3.23)$$

$$\langle u_\beta^{(\uparrow)} | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | u_h^{(2)} \rangle = -i \langle S \uparrow | \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{p} | -\frac{1}{\sqrt{3}}|(X - iY) \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|Z \downarrow\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} i \langle S | p_x | X \rangle \\ i(-i) \langle S | p_y | Y \rangle \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (3.24)$$

Em que  $P_{cv} \equiv -i \langle S | p_x | X \rangle = -i \langle S | p_y | Y \rangle = -i \langle S | p_z | Z \rangle$  é definido como o elemento de matriz de momentum interbanda. Sabe-se que para um operador hermitiano  $\hat{O}^\dagger = \hat{O}$ ,

$\langle u_j | \hat{O} | u_j \rangle = \langle u_j | \hat{O} | u_i \rangle^*$ . Dessa forma, ao usar as equações 3.23 e 3.24, tem-se:

$$\begin{aligned}
V_{\uparrow\uparrow} &= \frac{1}{\sqrt{3}} \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ P_{cv} \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{3}} \mathbf{e}_s \begin{pmatrix} 0 & 0 & P_{cv} \end{pmatrix} + \frac{1}{\sqrt{3}} \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} -P_{cv} \\ iP_{cv} \\ 0 \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{3}} \mathbf{e}_s \begin{pmatrix} -P_{cv} & -iP_{cv} & 0 \end{pmatrix} \\
&= \frac{1}{3} \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{cv}^2 \end{pmatrix} \mathbf{e}_s + \frac{1}{3} \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} P_{cv}^2 & iP_{cv}^2 & 0 \\ -iP_{cv}^2 & -i^2P_{cv}^2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \mathbf{e}_s \\
&= \frac{P_{cv}^2}{3} \left[ \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \mathbf{e}_s + \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} 1 & i & 0 \\ -i & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \mathbf{e}_s \right] = \frac{P_{cv}^2}{3} \left[ \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \mathbf{e}_s + \mathbf{e}_i \begin{pmatrix} 0 & i & 0 \\ -i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \mathbf{e}_s \right].
\end{aligned} \tag{3.25}$$

O que permite escrever<sup>6</sup> a equação 3.22 como:

$$V_{\uparrow\uparrow} = \frac{P_{cv}^2}{3} [(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_s) + i(\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_s)_z]. \tag{3.27}$$

O cálculo é realizado de forma análoga para as demais configurações de spin, ou seja:

$$\begin{aligned}
V_{\uparrow\downarrow} &= \frac{P_{cv}^2}{3} [(\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_s)_y + i(\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_s)_x], \\
V_{\downarrow\downarrow} &= V_{\uparrow\uparrow}^*, \\
V_{\downarrow\uparrow} &= -V_{\uparrow\downarrow}^*.
\end{aligned} \tag{3.28}$$

As equações 3.27 e 3.28 estabelecem explicitamente que a parte que contém o produto escalar entre a polarização da luz incidente  $\mathbf{e}_i$  e a polarização da luz espalhada  $\mathbf{e}_s$  é não nula apenas se  $\sigma_\alpha = \sigma_\beta$ . Introduzindo-se convenientemente a notação abaixo para as matrizes de Pauli:

$$\boldsymbol{\sigma} = \left( \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \right) = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z). \tag{3.29}$$

---

6

$$\begin{aligned}
(\mathbf{e}_i^x \ \mathbf{e}_i^y \ \mathbf{e}_i^z) \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{e}_s^x \\ \mathbf{e}_s^y \\ \mathbf{e}_s^z \end{pmatrix} &= (\mathbf{e}_i^x \ \mathbf{e}_i^y \ \mathbf{e}_i^z) \begin{pmatrix} \mathbf{e}_s^x \\ \mathbf{e}_s^y \\ \mathbf{e}_s^z \end{pmatrix} = (\mathbf{e}_i^x \mathbf{e}_s^x + \mathbf{e}_i^y \mathbf{e}_s^y + \mathbf{e}_i^z \mathbf{e}_s^z) = \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_s, \\
(\mathbf{e}_i^x \ \mathbf{e}_i^y \ \mathbf{e}_i^z) \begin{pmatrix} 0 & i & 0 \\ -i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{e}_s^x \\ \mathbf{e}_s^y \\ \mathbf{e}_s^z \end{pmatrix} &= (-i\mathbf{e}_i^y \ i\mathbf{e}_i^x \ 0) \begin{pmatrix} \mathbf{e}_s^x \\ \mathbf{e}_s^y \\ \mathbf{e}_s^z \end{pmatrix} = i(\mathbf{e}_i^x \mathbf{e}_s^y - \mathbf{e}_i^y \mathbf{e}_s^x) = i(\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_s)_z.
\end{aligned} \tag{3.26}$$

Ao reunir as equações 3.27 e 3.28, a equação 3.19 assume a forma:

$$V_{\alpha\beta}^{\text{ext}(2)} = \left[ (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_s) \delta_{\sigma_\alpha, \sigma_\beta} + i(\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_s) \langle \sigma_\alpha | \boldsymbol{\sigma} | \sigma_\beta \rangle \right] \frac{P_{\text{cv}}^2}{3m} \sum_{\mathbf{h}} \frac{\langle \beta | e^{i\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r}} | \mathbf{h} \rangle \langle \mathbf{h} | e^{i(-\mathbf{k}_s) \cdot \mathbf{r}} | \alpha \rangle}{E_{\text{gap}} + E_\beta + E_{\mathbf{h}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2\mu^*} - \hbar\omega_\lambda + i\zeta}. \quad (3.30)$$

A equação 3.30 engloba a regras de seleção associadas à polarização da luz para as excitações coletivas do gás de elétrons. Portanto, as flutuações de densidade eletrônico se dividem em duas componentes em relação a polarização da luz. O primeiro termo do segundo membro ao lado direito da equação 3.30 é responsável pelas excitações de densidade de carga (CDE), as quais se manifestam quando a luz incidente do *laser* e a luz espalhada são paralelas entre si (espectro polarizado). O segundo termo do segundo membro ao lado direito da equação 3.30 é responsável pelas mudanças nos graus de liberdade do spin, as excitações de densidade de spin (SDE), as quais se manifestam quando a luz incidente do *laser* e a luz espalhada são perpendiculares entre si (espectro depolarizado). Ambos são oscilações coletivas do plasma bidimensional na heteroestrutura. As excitações que não seguem as regras de seleção associadas à polarização da luz foram interpretadas como excitações de partícula independente (SPE).

Na situação de retroespalhamento, a luz incide perpendicular ao semiconductor com vetor de onda incidente  $\mathbf{k}_\lambda \hat{\mathbf{z}}$  e polarização  $\mathbf{e}_x$  e é espalhada com vetor de onda  $-\mathbf{k}_s \hat{\mathbf{z}}$  e polarização  $\mathbf{e}_x$ . Essa situação corresponde à configuração de espectro polarizado. Usa-se a notação  $\mathbf{k}_\lambda(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_s)\mathbf{k}_s$ , ou seja,  $z(x, x)\bar{z}$ . Considerando-se apenas excitações intersub-bandas, adota-se  $|\mathbf{k}_\lambda| = |\mathbf{k}_s| = q/2$  como o momento transferido pela luz ao longo do eixo  $z$ . Ao inserir a parte da equação 3.30 que contém o produto escalar, juntamente com os diferentes estados de spin possíveis  $(\sigma_\alpha, \sigma_\beta) = (\uparrow, \uparrow), (\downarrow, \downarrow)$  na equação 3.12, chega-se a:

$$\hat{V}_{\text{eff}} = \sum_{\alpha\beta} V_{\alpha\beta}^{\text{ext}} \left( \hat{c}_{\beta\uparrow}^\dagger \hat{c}_{\alpha\uparrow} + \hat{c}_{\beta\downarrow}^\dagger \hat{c}_{\alpha\downarrow} \right). \quad (3.31)$$

As funções de onda de um corpo que descrevem o gás de elétrons bidimensional são escolhidas tal que a direção  $z$  é a direção de quantização do spin. Não há campo magnético sendo aplicado, dessa forma a direção de quantização de spin pode ser escolhida arbitrariamente. A situação que corresponde à configuração depolarizada é  $z(x, y)\bar{z}$ . Ao inserir a parte que contém o produto vetorial da equação 3.30, considerando a componente  $\sigma_z$  das matrizes de Pauli e  $(\sigma_\alpha, \sigma_\beta) = (\uparrow, \uparrow), (\downarrow, \downarrow)$ , chega-se a:

$$\hat{V}_{\text{eff}} = -i \sum_{\alpha\beta} V_{\alpha\beta}^{\text{ext}} \left( \hat{c}_{\beta\uparrow}^\dagger \hat{c}_{\alpha\uparrow} - \hat{c}_{\beta\downarrow}^\dagger \hat{c}_{\alpha\downarrow} \right). \quad (3.32)$$

Em que:

$$V_{\alpha\beta}^{\text{ext}}(\mathbf{k}) = \sum_{\mathbf{h}} \frac{\langle \beta | e^{i\mathbf{qz}/2} | \mathbf{h} \rangle \langle \mathbf{h} | e^{i\mathbf{qz}/2} | \alpha \rangle}{E_{\text{gap}} + E_{\beta} + E_{\mathbf{h}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2\mu^*} - \hbar\omega_{\lambda} + i\zeta}. \quad (3.33)$$

Em conformidade com as equações 3.31 e 3.32, a expressão 3.13 será dada por:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = r_0^2 \left( \frac{\omega_S}{\omega_{\lambda}} \right) \left( -\frac{\hbar}{\pi} \right) \text{Im} \sum_{\alpha\beta} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* \left\langle \hat{c}_{\alpha\uparrow}^{\dagger} \hat{c}_{\beta\uparrow} \pm \hat{c}_{\alpha\downarrow}^{\dagger} \hat{c}_{\beta\downarrow} \right\rangle_{\omega}. \quad (3.34)$$

Em que, define-se:

$$\hat{V}_{\text{eff}}(0) = \sum_{\alpha\beta} V_{\alpha\beta}^{\text{ext}} \left( \hat{c}_{\beta\uparrow}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha\uparrow} \pm \hat{c}_{\beta\downarrow}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha\downarrow} \right). \quad (3.35)$$

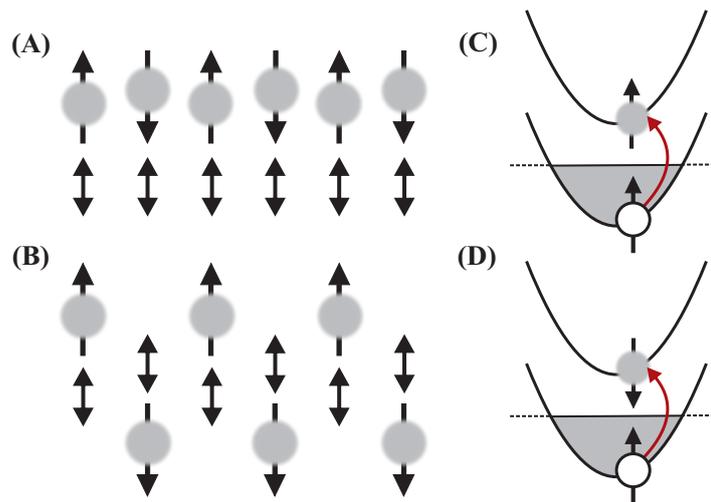


Figura 12 – (A) Ilustração macroscópica das excitações de densidade de carga (CDE). Todos os elétrons estão oscilando em fase. (B) Ilustração macroscópica das excitações de densidade de spin (SDE). Os elétrons oscilam com diferença de fase. (C) Ilustração microscópica das SDE, as quais configuram transições eletrônicas sem *spinflip* acopladas via interação de Coulomb. (D) Ilustração microscópica das SDE, as quais configuram transições eletrônicas com ou sem *spin-flip* acopladas via a parte de correlação e troca da interação de Coulomb. Figura adaptada de [2].

Em vista das expressões apresentadas, pode-se compreender o significado físico de ambos os mecanismos das excitações coletivas. De acordo com a equação 3.34, o operador de densidade de carga é somado para as duas configurações de spin, o que produz uma flutuação resultante de carga igual a soma das duas contribuições. Esse mecanismo está associado a interação de Coulomb direta mais os efeitos de muitos corpos devido a interação de correlação e troca e origina as excitações de densidade de carga (CDE).

Do ponto de vista macroscópico todos os elétrons estão oscilando em fase como ilustrado na Figura 12A. Por outro lado, o sinal negativo na equação 3.34 corresponde a uma oscilação com diferença de fase  $\pi$  como ilustrado na Figura 12B. Como consequência, essas oscilações coletivas do plasma não estão sujeitas a efeitos de um campo elétrico macroscópico. Esse mecanismo corresponde as excitações de densidade de spin (SDE) e está associado apenas a interações de correlação e troca. Do ponto de vista microscópico, as excitações coletivas equivalem a transições intersub-bandas acopladas via interação de Coulomb como ilustrado na Figura 12C-D. Observa-se, então, que a ação do potencial externo  $V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}$  (fator ressonante) é ocasionar flutuações de carga induzida para cada par de excitação  $\alpha\beta$ , isto é, induzir flutuações de carga para cada par de criação e destruição de operadores de férmions  $\hat{c}_{\alpha\uparrow}^\dagger\hat{c}_{\beta\uparrow}(\hat{c}_{\alpha\downarrow}^\dagger\hat{c}_{\beta\downarrow})$ .

### 3.2.3 Aproximação de campo autoconsistente generalizada para um sistema de muitos elétrons

Como indicado na equação 3.34, sob a ação de um potencial externo perturbador, o sistema eletrônico induz uma flutuação de densidade de carga como resposta ao potencial aplicado. Essa flutuação está associada a um novo potencial que, por sua vez, atua novamente sobre o sistema eletrônico e induz uma nova densidade eletrônica, e assim sucessivamente *ad infinitum*. Em outras palavras, pode-se dizer que o processo é autoconsistente. A expressão que representa essa situação é dada por:

$$V^{\text{eff}}(\mathbf{r}, t) = V^{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) + V^{\text{ind}}(\mathbf{r}, t) \quad (3.36)$$

Em que  $V^{\text{eff}}(\mathbf{r}, t)$  é o potencial efetivo ou total,  $V^{\text{ext}}(\mathbf{r}, t)$  é o potencial externo e  $V^{\text{ind}}(\mathbf{r}, t)$  é o potencial induzido devido a flutuação de carga induzida. Para um potencial que varie harmonicamente, pode-se esperar que a resposta do sistema eletrônico também seja harmônica. Portanto, o potencial efetivo assim como o potencial externo e o induzido são da forma  $V^{\text{eff}}(\mathbf{r}, t) = V^{\text{eff}}(\mathbf{r}, \omega)e^{-i\omega t}e^{\eta t}$  e, considerando-se o gás de elétrons bidimensional, a transformada de Fourier de  $V^{\text{eff}}(\mathbf{r}, t)$  é escrita como:

$$V^{\text{eff}}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} V^{\text{eff}}(\mathbf{q}, z, \omega)e^{i(\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}-\omega t)}e^{\eta t}. \quad (3.37)$$

O termo  $e^{\eta t}$  ( $\eta \rightarrow 0$ ) corresponde a condição adiabática que garante que a perturbação seja considerada fraca,  $\mathbf{r}$  pertence ao plano  $xy$  e  $\mathbf{q}$  pertence a  $k_x k_y$ . O elemento de matriz para os potenciais entre os estados  $\alpha$  e  $\beta$ , em que  $\langle \mathbf{r} | b \rangle = \langle \mathbf{r} | b, \mathbf{k}_b \rangle = \psi_b(z)e^{i\mathbf{k}_b \cdot \mathbf{r}}/\sqrt{A}$  ( $b = \alpha, \beta$ ),

serão dados por:

$$\begin{aligned}
V^{\text{eff}}(\mathbf{r}, t) &= \langle \beta | V^{\text{eff}}(\mathbf{q}, z, \omega) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} | \alpha \rangle \\
&= \langle \beta | \int dR | R \rangle \langle R | V^{\text{eff}}(\mathbf{q}, z, \omega) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \int dR' | R' \rangle \langle R' | | \alpha \rangle \\
&= \int dR \langle R | | \beta \rangle^* V^{\text{eff}}(\mathbf{q}, z, \omega) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \int dR' \delta(R - R') \langle R' | | \alpha \rangle \\
&= \frac{1}{A} \int d\mathbf{r} e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{k}_\beta + \mathbf{k}_\alpha) \cdot \mathbf{r}} \int dz \psi_\beta^*(z) V^{\text{eff}}(\mathbf{q}, z, \omega) e^{-i\omega t} \psi_\alpha(z) \\
&= \langle \beta | V^{\text{eff}}(\mathbf{q}, z, \omega) | \alpha \rangle e^{-i\omega t} \delta_{\mathbf{k}_\beta, \mathbf{k}_\alpha + \mathbf{q}} = V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}.
\end{aligned} \tag{3.38}$$

O mesmo raciocínio deverá ser aplicado à equação 3.36. Note que, os estados  $|\alpha\rangle$  e  $|\beta\rangle$  se tornaram estados de funções envelope.

A aproximação mais comum para calcular a resposta do gás de elétrons sob um potencial efetivo é a aproximação de fase aleatória (RPA, *Random Phase Aproximation*) [56]. No entanto, o método escolhido segue o formalismo baseado na aproximação de densidade local dependente do tempo (TDLDA, *time dependent local density approximation*) [57, 58]. A ideia central das duas aproximações é a mesma. Em RPA, a interação de Coulomb é tratada classicamente e os efeitos de muitos corpos devido a interação de correlação e troca são negligenciados. As energias das excitações coletivas são calculadas por meio dos pólos da função dielétrica dependente da frequência  $\epsilon(\omega, \mathbf{q})$  [56, 59]. Já em TDLDA há a inclusão de efeitos de correlação e troca com a inclusão de um potencial dentro da aproximação de densidade local. Esse potencial induzido é dado por:

$$V^{\text{ind}}(\mathbf{r}, t) = \int \left[ \frac{e^2}{\epsilon_\infty |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + U_{\text{exc}}(\mathbf{r}) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \right] \delta\hat{\rho}_e(\mathbf{r}', t) d\mathbf{r}'. \tag{3.39}$$

Em que o primeiro termo do lado direito da equação 3.39 representa a interação de Coulomb direta (termo de Hartree) com contante dielétrica  $\epsilon_\infty$  e o segundo termo inclui as interações de correlação e troca  $U_{\text{exc}}$ . O valor médio da flutuação de densidade induzida  $\rho(\mathbf{r}', t)$  é escrita em segunda quantização na representação de coordenada em termos de operadores de campo  $\hat{\Psi}^\dagger$  e  $\hat{\Psi}$  como [56, 60]:

$$\langle \delta\hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t) \rangle = \langle \hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r}, t) \hat{\Psi}(\mathbf{r}, t) \rangle_t = \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{c}_{\beta\uparrow} \pm \hat{c}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{c}_{\beta\downarrow} \rangle_t. \tag{3.40}$$

A expressão para o valor esperado para o par de excitação  $\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle$  é derivada a partir da equação de movimento de Heisenberg [56, 59] e será dada (Apêndice A) por:

$$\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_t = \frac{1}{\hbar} \left( \frac{f_\alpha - f_\beta}{\omega - \omega_{\beta\alpha}} \right) V_{\beta\alpha}^{\text{ef}}. \tag{3.41}$$

Na equação acima  $f_\alpha(f_\beta)$  corresponde a distribuição de Fermi-Dirac e  $\omega_{\beta\alpha} = (E_\beta - E_\alpha)/\hbar$  é a frequência de Bohr associada com a transição  $(\alpha, \beta)$ .

Um sistema eletrônico real possui efeitos dissipativos e, portanto, a resposta do sistema submetido a uma perturbação externa deverá abranger o amortecimento das transições ocasionado por centros espalhadores. Para a inclusão de um amortecimento correto, deve-se levar em consideração a equação da continuidade e garantir a conservação do número de partículas, ou seja:

$$\nabla \cdot \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) + \frac{\partial \hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0. \quad (3.42)$$

Para cada par de transição  $(\alpha, \beta)$  associado as suas energias  $E_\alpha$  e  $E_\beta$ , deve-se considerar o par de transição  $(\alpha^*, \beta^*)$ , os quais possuem as mesma energias. Isso garante a invariância temporal da equação de Schrödinger. Na ausência de amortecimento, as equações de movimento, sem tornar explícito os graus de liberdade de spin (Apêndice B), são dadas por:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha} \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t, \quad (3.43)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha} \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t + 2(f_\alpha - f_\beta)V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}. \quad (3.44)$$

Com o intuito de incluir o amortecimento, adiciona-se um termo à equação 3.44, isto é:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha} \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t + 2(f_\alpha - f_\beta)V_{\beta\alpha}^{\text{eff}} - i\hbar\gamma_{\beta\alpha} \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t. \quad (3.45)$$

Em que  $\gamma_{\beta\alpha}$  está associado ao amortecimento das transições  $(\alpha, \beta)$ . Para o sistema não perturbado não há flutuação na densidade eletrônica inicial  $\rho_0$ . No entanto, a aplicação de um potencial perturbador ao sistema eletrônico produz uma variação não nula em sua densidade tal que  $\rho_e = \rho_0 + \delta\rho_e$ . Conseqüentemente:

$$\frac{\partial \hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -i\frac{\omega}{2} \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r})\psi_\beta(\mathbf{r}) \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t. \quad (3.46)$$

Utilizando-se o operador densidade em segunda quantização [56], obtém-se:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) &= \frac{\hbar}{2mi} \left[ \Psi^\dagger(\mathbf{r})\nabla\Psi(\mathbf{r}) - \Psi(\mathbf{r})\nabla\Psi^\dagger(\mathbf{r}) \right] \\ \nabla \cdot \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) &= \frac{i}{2} \sum_{\alpha\beta} \omega_{\beta\alpha} \psi_\alpha^*(\mathbf{r})\psi_\beta(\mathbf{r}) \left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t. \end{aligned} \quad (3.47)$$

A partir das equações 3.46 e 3.47, pode-se demonstrar que a equação 3.43 corresponde a conservação da corrente local para cada par de transição  $(\alpha, \beta)$ . Resolvendo-se o sistema de equações 3.43 e 3.44 para  $(\alpha, \beta)$  e  $(\alpha^*, \beta^*)$  e com as equações 3.46 e 3.47 (Apêndice B), tem-se:

$$\left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t = \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha}(f_\alpha - f_\beta)}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}. \quad (3.48)$$

A inclusão do amortecimento da maneira que foi realizado na equação acima obedece a regra da soma como demonstrado na referência [61] e proporciona uma relação entre a função resposta do sistema e o número de partículas.

Em conformidade com a relação 3.48, a flutuação de densidade de carga é reescrita como:

$$\delta\hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r})\psi_\beta(\mathbf{r}) \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha}N_{\beta\alpha}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}. \quad (3.49)$$

Em que  $N_{\beta\alpha} = 2f_\alpha(1 - f_\beta)$  e o fator 2 é devido as configurações de spin. Observe que o potencial  $V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}$  é composto pelo potencial externo mais o potencial induzido. O potencial induzido irá depender do potencial total e, dessa maneira, deve-se resolver um problema de equações autoconsistentes como descrito anteriormente. Como a perturbação induz uma flutuação de densidade, essa flutuação entre o par  $(\alpha, \beta)$  induz um novo potencial que, por sua vez, induz um nova flutuação de carga associada ao par  $(\gamma, \delta)$  e, desse modo, os pares se acoplam via interação de Coulomb. Considerando-se um sistema bidimensional, o elemento de matriz para o potencial induzido será dado por:

$$\begin{aligned} \langle \beta | V^{\text{ind}}(\mathbf{q}, z, \omega) | \alpha \rangle e^{-i\omega t} &= \sum_{\gamma\delta} U_{\beta\alpha, \gamma\delta} \frac{2\hbar\omega_{\gamma\delta}N_{\gamma\delta}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\gamma\delta}^2 + i\gamma_{\gamma\delta}\omega)} \langle \gamma | V^{\text{eff}}(\mathbf{q}, z, \omega) | \delta \rangle e^{-i\omega t}, \\ V_{\beta\alpha}^{\text{ind}} &= \sum_{\gamma\delta} U_{\beta\alpha, \gamma\delta} \frac{2\hbar\omega_{\gamma\delta}N_{\gamma\delta}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\gamma\delta}^2 + i\gamma_{\gamma\delta}\omega)} V_{\gamma\delta}^{\text{eff}}. \end{aligned} \quad (3.50)$$

O elemento de matriz  $U_{\beta\alpha, \gamma\delta}$  é constituído pela soma das contribuições da interação de Coulomb direta ou termo de Hartree  $U_{\beta\alpha, \gamma\delta}^{\text{H}}$  e a interação de correlação e troca  $U_{\beta\alpha, \gamma\delta}^{\text{XC}}$ , ou seja,  $U_{\beta\alpha, \gamma\delta} = U_{\beta\alpha, \gamma\delta}^{\text{H}} + U_{\beta\alpha, \gamma\delta}^{\text{XC}}$ , e as expressões para cada termo são dadas [62], respectivamente, por:

$$U_{\beta\alpha, \gamma\delta}^{\text{H}}(\mathbf{q}) = \frac{2\pi e^2}{Aq\epsilon_\infty} \int dz \int dz' \psi_\alpha^*(z')\psi_\beta(z') e^{-q(z-z')} \psi_\gamma^*(z)\psi_\delta(z), \quad (3.51)$$

$$U_{\beta\alpha, \gamma\delta}^{\text{XC}} = \int dz \int dz' \psi_\alpha^*(z')\psi_\beta(z') U_{\text{exc}}(z)\delta(z-z')\psi_\gamma^*(z)\psi_\delta(z). \quad (3.52)$$

Em que  $q = |\mathbf{k}_\lambda - \mathbf{k}_s| = 0.685 \times 10^6 \text{cm}^{-1}$  e  $U_{\text{exc}}(z)$  corresponde aos funcionais de correlação e troca a serem utilizados para as excitações de densidade de carga (CDE) e excitações de densidade de spin (SDE). Para o caso das excitações de densidade de spin, apenas a expressão 3.52 deve ser considerada. As expressões explícitas para o funcionais  $U_{\text{exc}}(z)$  de CDE e SDE são encontradas a partir dos dados de gás de elétrons uniforme [62]:

$$\begin{aligned} U_{\text{exc}}^{\text{CDE}}(z) &= -1.706r_s^2 a_B^*{}^3 \left( 1 + \frac{0.6213r_s}{11.4 + r_s} \right) R_{Y^*} \\ U_{\text{exc}}^{\text{SDE}}(z) &= -1.706r_s^2 a_B^*{}^3 \left( 1 - 0.036r_s + \frac{1.36r_s}{1 + 10r_s} \right) R_{Y^*} \\ r_s &= [4\pi a_B^*{}^3 n(z)/3]^{-1/3} \end{aligned} \quad (3.53)$$

Definindo-se uma coordenada harmônica  $x_{\beta\alpha}$  para cada par de transição  $(\alpha, \beta)$ , isto é:

$$\chi_{\beta\alpha} \equiv \frac{\sqrt{2N_{\beta\alpha}\hbar\omega_{\beta\alpha}}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}. \quad (3.54)$$

Em que  $N_{\beta\alpha} = 2 \sum_{\mathbf{k}} f_\alpha(\mathbf{k}) [1 - f_\beta(\mathbf{k})]$ . A partir dessa definição, a equação autoconsistente  $V_{\beta\alpha}^{\text{eff}} = V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} + V_{\beta\alpha}^{\text{ind}}$  pode ser colocada na seguinte forma:

$$\begin{aligned} \frac{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)}{\sqrt{2N_{\beta\alpha}\hbar\omega_{\beta\alpha}}} \chi_{\beta\alpha} &= V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} + \sum_{\gamma\delta} U_{\beta\alpha,\gamma\delta} \frac{2N_{\gamma\delta}\hbar\omega_{\gamma\delta}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\gamma\delta}^2 + i\gamma_{\gamma\delta}\omega)} \frac{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\gamma\delta}^2 + i\gamma_{\gamma\delta}\omega)}{\sqrt{2N_{\gamma\delta}\hbar\omega_{\gamma\delta}}} \chi_{\gamma\delta}, \\ \hbar^2(\omega^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)\chi_{\beta\alpha} &= \sqrt{2N_{\beta\alpha}\hbar\omega_{\beta\alpha}} V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} + \sum_{\gamma\delta} \Pi_{\beta\alpha,\gamma\delta} \chi_{\gamma\delta}, \text{ em que} \\ \Pi_{\beta\alpha,\gamma\delta} &\equiv U_{\beta\alpha,\gamma\delta} \sqrt{4N_{\beta\alpha}\hbar\omega_{\beta\alpha}N_{\gamma\delta}\hbar\omega_{\gamma\delta}} + (\hbar\omega_{\beta\alpha})^2 \delta_{\beta\alpha,\gamma\delta}. \end{aligned} \quad (3.55)$$

A equação 3.55 é equivalente a equação de movimento de um conjunto de osciladores harmônicos acoplados, amortecidos e forçados. O problema clássico de uma partícula de massa  $m$  sujeita à uma força harmônica  $F = -kx$ , uma força de atrito  $F = -bv$  e uma força externa é descrito pela equação de movimento  $\ddot{\mathbf{x}}(t) + 2\gamma\dot{\mathbf{x}}(t) + \omega_0^2\mathbf{x}(t) = \mathbf{F}(t)/m$ , na qual  $\gamma = b/2m$  indica o amortecimento e  $\omega_0^2 = k/m$  é a frequência natural do oscilador em torno de sua posição de equilíbrio. Com  $\mathbf{x}(t) = \mathbf{x}_0 e^{i\omega t}$ , a solução no domínio da frequência é dada por  $(\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\gamma\omega)\mathbf{x}(\omega) = \mathbf{F}(\omega)/m$ . Levando-se em consideração essa abordagem, entende-se que o *laser* atua como um potencial externo perturbado identificado como  $V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}$ . O gás de elétrons oscila periodicamente devido ao potencial externo periódico e o espalhamento em virtude da presença de impurezas na heteroestrutura proporciona um amortecimento  $\gamma_{\beta\alpha}$  ao conjunto de transições eletrônicas. Cada excitação eletrônica interage com todas as outras, o que implica em um sistema acoplado mediante a interação de Coulomb  $\Pi_{\beta\alpha,\gamma\delta}$ . Portanto, o espalhamento Raman eletrônico pode ser mapeado por um

problema de um conjunto infinito de osciladores harmônicos. Nesse sentido,  $\chi_{\beta\alpha}$  representa o “deslocamento” dos osciladores.

### 3.2.4 O acoplamento entre o plasmon e o fônon óptico da heteroestrutura

Em semicondutores polares, o campo elétrico macroscópico associado ao fônon óptico longitudinal LO pode interagir via Hamiltoniana de Fröhlich [56] às excitações coletivas do plasma, o que resulta em modos acoplados com um comportamento misto entre o plasmon e o fônon. A partir do ponto de vista do fônon, as oscilações dos íons são acompanhadas por uma nuvem eletrônica e, dessa forma, a nuvem eletrônica pode blindar o campo de polarização produzido pelo fônon. A partir do ponto de vista do elétron, a interação elétron-elétron envolve interações mediadas por fônons.

As excitações de densidade de spin ocorrem apenas devido as interações de correlação e troca pois não possuem campos elétricos macroscópicos resultantes, já que as flutuações de densidade de carga de spin para cima e spin para baixo se anulam. De maneira oposta, as excitações de densidade de carga estão associadas a campos elétricos macroscópicos longitudinais tal que há um acoplamento dessas flutuações com o fônon LO. Em sistemas de baixa densidade, com a energia do plasmon muito menor que a energia do fônon, pode-se negligenciar esse acoplamento. Para sistemas com densidade eletrônica alta, com a energia do plasma maior que a energia do fônon, há um acoplamento LO-plasmon e suas energias são renormalizadas tal que surge um modo acoplado que assume um comportamento de fônon e um modo acoplado que apresenta um comportamento do tipo plasmon. Se as energias entre o plasmon e o fônon são comparáveis, a interação será responsável por modos acoplados isentos de um comportamento distinto.

O acoplamento entre as excitações intersub-bandas coletivas e as vibrações quantizadas da rede são determinadas pela função dielétrica da rede para o GaAs [52], a qual inclui a frequência do fônon óptico longitudinal  $\omega_{LO}$  assim como a frequência do fônon óptico transversal  $\omega_{TO}$ :

$$\frac{1}{\varepsilon_L(\omega)} = \frac{1}{\varepsilon_\infty} \frac{(\omega_{TO}^2 - \omega^2)}{(\omega_{LO}^2 - \omega^2)}. \quad (3.56)$$

Portanto, faz-se necessário substituir  $\varepsilon_\infty$  na equação 3.51 por  $\varepsilon_L(\omega)$ , ou seja:

$$U_{\beta\alpha,\gamma\delta}^H(\mathbf{q}) = \frac{2\pi e^2}{Aq\varepsilon_L(\omega)} \int dz \int dz' \psi_\alpha^*(z') \psi_\beta(z') e^{-q(z-z')} \psi_\gamma^*(z) \psi_\delta(z). \quad (3.57)$$

### 3.2.5 Função resposta das excitações eletrônicas para o espalhamento inelástico de luz

A função resposta do sistema eletrônico que integra a seção de choque de espalhamento 3.34 pode ser obtida a partir da equação 3.48:

$$\langle \hat{V}_{\text{eff}}^\dagger(0) \rangle_\omega = \sum_{\alpha\beta} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* \left\langle \hat{c}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{c}_{\beta\uparrow} \pm \hat{c}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{c}_{\beta\downarrow} \right\rangle_\omega = \sum_{\alpha\beta} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} V_{\beta\alpha}^{\text{eff}} \quad (3.58)$$

Com o propósito de entender a natureza das excitações de partícula independente, o potencial efetivo será substituído via transformação  $V_{\beta\alpha}^{\text{eff}} = V_{\beta\alpha}^{\text{eff}} + V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} - \langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} \rangle$ . Como previamente discutido na seção terciária 3.2.2, no regime de ressonância próxima, o denominador de energia do fator ressonante  $V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}$  é substituído por uma média em virtude da eliminação dos estados intermediários mediante a relação de completeza. Dessa forma, toda dependência do potencial externo em  $\mathbf{k}$  é perdida e, então,  $\langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} \rangle = V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}$ , o que mantém a situação original. Em vista da transformação do potencial efetivo, juntamente com a definição da coordenada harmônica 3.54, a função resposta será reescrita como se segue:

$$\begin{aligned} \left\langle \hat{V}_{\text{eff}}^\dagger(0) \right\rangle_\omega &= \sum_{\alpha\beta} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} (V_{\beta\alpha}^{\text{eff}} + V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} - \langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} \rangle) \\ &= \sum_{\alpha\beta} \left( \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} \frac{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)}{\sqrt{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}}} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* \chi_{\beta\alpha} \right. \\ &\quad \left. + \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} - \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* \langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} \rangle \right) \\ \left\langle \hat{V}_{\text{eff}}^\dagger(0) \right\rangle_\omega &= \sum_{\alpha\beta} \left[ \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha} (\langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}2} \rangle - \langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} \rangle^2)}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} + \sqrt{2\hbar\omega_{\beta\alpha} N_{\beta\alpha}} [V_{\beta\alpha}^{\text{ext}}]^* \chi_{\beta\alpha} \right] \quad (3.59) \end{aligned}$$

O primeiro termo ao lado direito da equação 3.59 corresponde as excitações de partícula independente (SPE), em razão de possuir pólos nas frequências das transições não acopladas. O segundo termo ao lado direito da equação 3.59 representa as excitações coletivas (CDE e SDE), uma vez que possui pólos na frequências do sistema acoplado devido a sua dependência com a coordenada harmônica. O numerador do termo de partícula independente expressa uma variância e, portanto, a sua origem é revelada como resultado de um desvio a partir do valor médio do potencial externo. Em virtude das considerações apresentadas, é-se levado a depreender que, *a priori*, o gás de elétrons responde ao potencial

externo de forma coletiva. Todavia, apenas no regime de ressonância extrema, o qual  $\langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}^2} \rangle - \langle V_{\beta\alpha}^{\text{ext}} \rangle^2 \neq 0$ , as excitações coletivas se dividem em duas contribuições: um conjunto de oscilações coletivas renormalizadas pela interação Coulombiana (plasmons) e um conjunto de oscilações coletivas não renormalizadas como indicado na equação 3.59. A equação 3.55 será resolvida por meio da decomposição LU e, conseqüentemente, a seção de choque será determinada.

Em adição, A. O. Govorov [54, 55] sugeriu em seus trabalhos um elemento de matriz de terceira ordem em teoria de perturbação para o espalhamento inelástico de luz quando o processo envolve pares elétron-buraco ou excitons. A expressão relacionado ao par elétron-buraco é dada por:

$$V_{\alpha\beta}^{\text{ext}(3)}(\mathbf{k}) = \frac{\tilde{P}_{cv}^2 B_{\alpha\beta}^h}{2} \left\{ \frac{(\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_s) [2U_{\beta\alpha,\gamma\delta}^H(q) - 2U_{CV}(q) - U_{\beta\alpha,\gamma\delta}^{XC}(q)]}{\left(E_{\text{gap}} + E_\beta + E_h + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2\mu^*} - \hbar\omega_\lambda + i\zeta\right)^2} + \frac{2i\sigma_i [\mathbf{e}_i \times \mathbf{e}_s]_z U_{\beta\alpha,\gamma\delta}^{XC}(q)}{\left(E_{\text{gap}} + E_\beta + E_h + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2\mu^*} - \hbar\omega_\lambda + i\zeta\right)^2} \right\} \delta_{\sigma_i, \sigma_f}, \quad (3.60)$$

$$U_{CV}(q) = \frac{2\pi e^2}{Aq\epsilon_L(\omega)} \int dz \int dz' \psi_c^*(z') \psi_c(z') e^{-q(z-z')} \psi_v^*(z) \psi_v(z),$$

$$B_{\alpha\beta}^h = \sum_h \langle \beta | e^{i\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r}} | h \rangle \langle h | e^{i(-\mathbf{k}_s) \cdot \mathbf{r}} | \alpha \rangle.$$

Em que  $U_{CV}$  é a interação de Coulomb entre o buraco na banda de valência e o mar de Fermi,  $\sigma_i = \sigma_f = \pm 1/2$  e  $\tilde{P}_{cv}$  é o elemento de matriz interbanda no modelo de Kane. O subscrito C e V correspondem, respectivamente, a banda de condução e valência. A expressão acima é válida para ressonância com a banda de valência relacionada ao buraco leve e a banda de split-off.

### 3.3 CONFIGURAÇÃO EXPERIMENTAL RAMAN

O modelo do equipamento disponível no Laboratório de Espectroscopia de Materiais - LEM é o espectrômetro<sup>7</sup> T64000 da Horiba Jobin Yvon equipado com um detector CCD - *Charge Coupled Device*, que traduzido para o português, refere-se a dispositivo de carga acoplada e um microscópio confocal Olympus modelo BX41. A configuração experimental para a obtenção de espectros Raman é a configuração básica, isto é, um estágio duplo subtrativo juntamente com um espectrógrafo como ilustrado na Figura 13. Essa configuração é chamada de triplo subtrativo e possui um triplo monocromador com um comprimento focal de 640mm e grade de difração de 1800 linhas/milímetro, uma cobertura espectral de 0 – 950nm com uma acurácia espectral de  $\pm 1\text{cm}^{-1}$ . Espectrógrafos<sup>8</sup> são instrumentos ópticos que formam imagens separadas para diferentes comprimentos de onda da radiação incidente. Essa dispersão espectral pode ser alcançada por intermédio de grades (ou redes) de difração. Os monocromadores são compostos por grades de difração, espelhos côncavos e planos. A entrada e a saída de luz é controlada por meio de fendas. Como ilustrado na Figura 13, a luz originada por uma fonte de laser é alinhada externamente ao equipamento. Para fontes de laser que não possuem elementos intracavidade para a seleção de comprimento de onda, as linhas de plasma do laser são eliminadas mediante o uso de filtros de interferência. Esses filtros bloqueiam as linhas de plasma e permitem a passagem apenas da linha com o comprimento de onda de interesse e a polarização pode ser ajustada com uma placa  $\lambda/2$ . Em seguida, a luz passa através de filtros de densidade neutra para que não haja saturação na câmera de vídeo devido a forte luminosidade da linha de laser. Um espelho plano direciona a luz verticalmente. Após essa etapa, a luz é focalizada em um pequeno orifício (*pinhole*) e incide em um divisor de feixe que auxilia o alinhamento da entrada do laser no equipamento como ilustrado na Figura 13. A luz segue para o microscópio onde o feixe é focalizado sobre a amostra. A luz inelasticamente espalhada retorna através de um sistema confocal e passa por um primeiro estágio de dois monocromadores (duplo subtrativo) que recebe o nome de *foremonochromator* e, em seguida, por um estágio (espectrógrafo) com um terceiro monocromador que recebe o

<sup>7</sup> Essa seção não tem como objetivo derivar as equações que determinam o funcionamento do equipamento. A intenção é indicar o funcionamento básico do equipamento Raman T64000 Horiba Jobin Yvon. Para um detalhamento criterioso, pode-se consultar, por exemplo: LERNER, J. M.; THEVENON, A. *The optics of Spectroscopy: a tutorial*. Disponível em: <<http://www.horiba.com/us/en/scientific/products/optics-tutorial/>>. Acesso em: 03 mar. 2016.

DEMTRÖDER, W. **Laser Spectroscopy**: Vol. 1: Basic Principles. 4.ed. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008.

<sup>8</sup> Espectrógrafos e monocromadores são distinguidos de acordo com o tipo de detecção. O espectrógrafo registra uma medida experimental por meio de um sensor de imagem eletrônico (CCD) e o monocromador utiliza como detector um sinal fotoelétrico (fotomultiplicadora). Na literatura espectroscópica o nome espectrômetro é frequentemente utilizado para ambos os tipos de instrumentos.

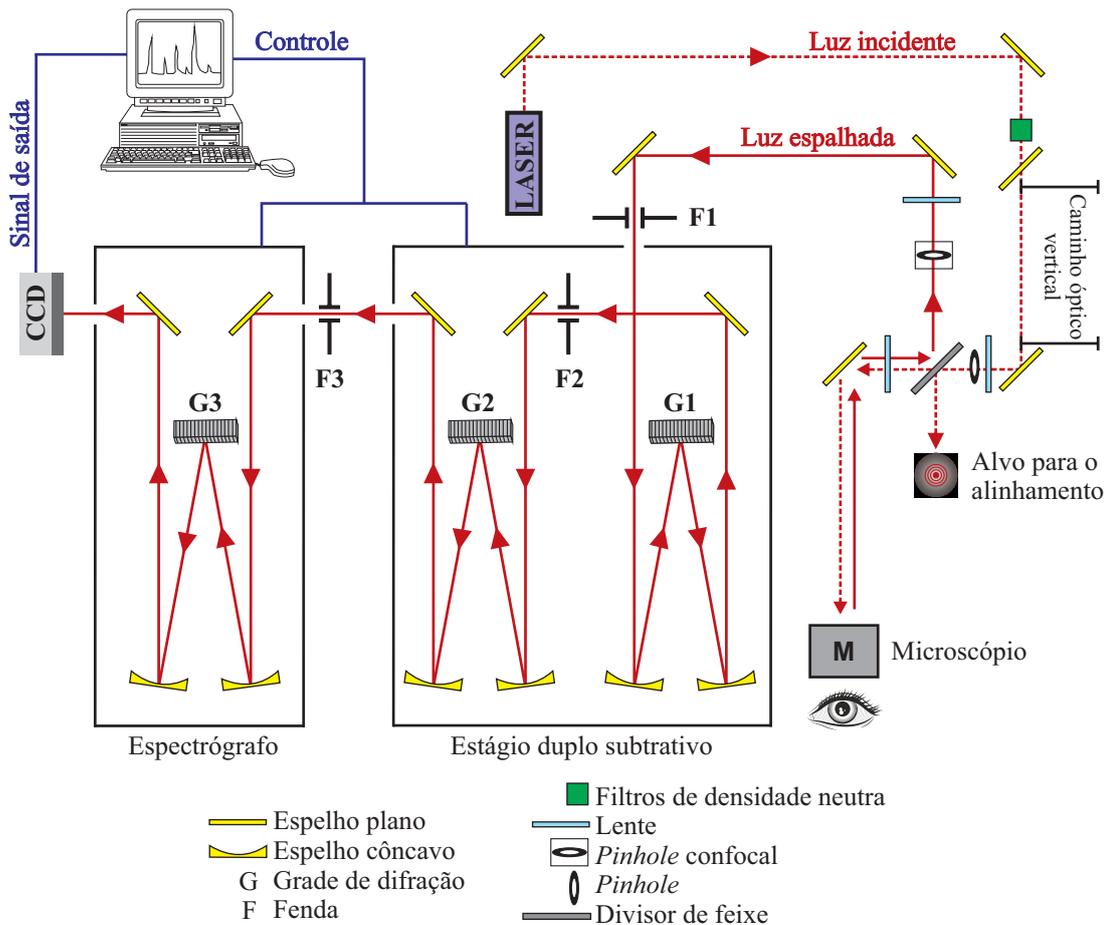


Figura 13 – Sistema T64000 Horiba Jobin Yvo com espectrômetro na configuração triplo subtrativo. Figura adaptada de [48]. A linha de excitação do laser passa por um alinhamento externo e é direcionada para o microscópio através da óptica interna do equipamento e incide na amostra. A luz espalhada segue para o estágio duplo subtrativo, o qual define a região espectral pela movimentação das redes de difração e funciona como um filtro sintonizável, o que permite a separação otimizada da luz espalhada elasticamente a partir do sinal Raman de baixa intensidade. O espectrógrafo irá dispersar a luz resultante no estágio anterior e enviar para o detector CCD. A movimentação das grades de difração é controlada pelo *software* existente no computador que também compõe o espectro.

nome de *spectrometer*. Finalmente, a luz é enviada para o detector (CCD) através do espectrógrafo.

A luz inelasticamente espalhada é coletada na geometria de retroespalhamento através de um sistema microRaman confocal (Figura 14) de resolução espacial micrométrica ( $\mu\text{m}$ ) equipado com objetivas que permitem um aumento de 10x, 50x e 100x e possuem abertura numérica (N.A., do inglês, *numerical aperture*) dada por 0.25, 0.55 e 0.95, respectivamente. No interior do microscópio há um divisor de feixe que permite a transmissão e reflexão da luz. O acessório confocal é composto por dois pequenos orifícios

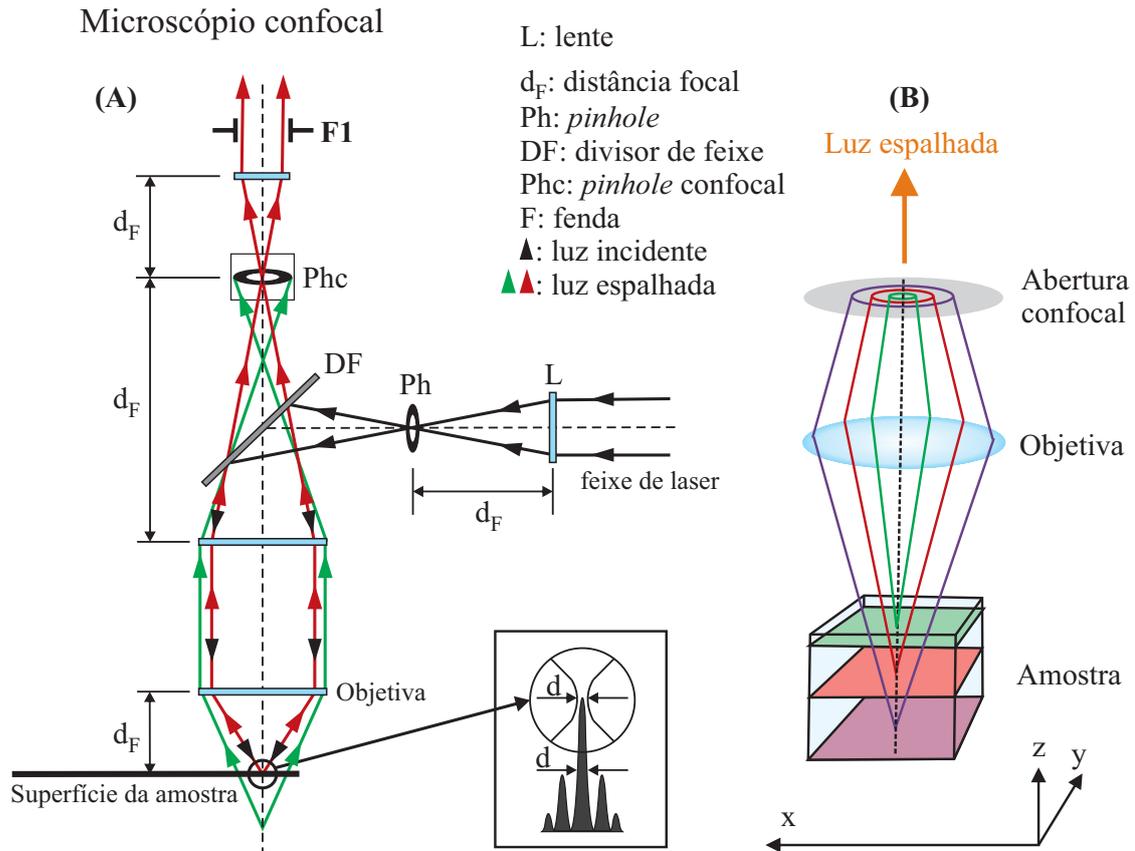


Figura 14 – Esboço óptico do sistema microRaman confocal. Figura adaptada de [48, 65, 66].  
 (A) O *pinhole* confocal recebe a luz espalhada proveniente da amostra e funciona como um filtro espacial, o que possibilita bloquear a luz espalhada que esteja fora de foco. O enxerto ilustra a área focada pelo laser que possui um perfil gaussiano. (B) O *pinhole* confocal é colocado sobre o plano da imagem do microscópio, o que limita a superfície analisada e a profundidade do foco. O microscópio confocal aumenta as resoluções espaciais, laterais e de profundidade para os limites de difração.

que funcionam como filtros espaciais (Figura 14A). O primeiro *pinhole* é colocado no caminho do feixe de laser para que proporcione uma melhor distribuição gaussiana da luz incidente. O segundo é colocado sobre o plano da imagem do microscópio, o que limita a superfície analisada e a profundidade do foco (Figura 14B). Dessa forma, a abertura confocal (*pinhole* confocal) permite que a luz espalhada fora de foco seja bloqueada como ilustrado na Figura 14A. A área focada pelo laser possui um perfil gaussiano (enxerto da Figura 14A) com um diâmetro mínimo iluminado dado pela largura à meia altura do primeiro máximo do pico de difração e está relacionado com a abertura numérica, isto é,  $d = \lambda_{\text{laser}} \sqrt{\frac{1}{(\text{N.A.})^2} - 1}$ , em que  $\lambda_{\text{laser}}$  é o comprimento de onda da linha do laser.

O estágio duplo subtrativo é utilizado como um filtro sintonizável, o qual define a região espectral pela movimentação das redes de difração. O espectrógrafo tem como função dispersar a luz limitada no estágio anterior e enviar para o detector CCD como

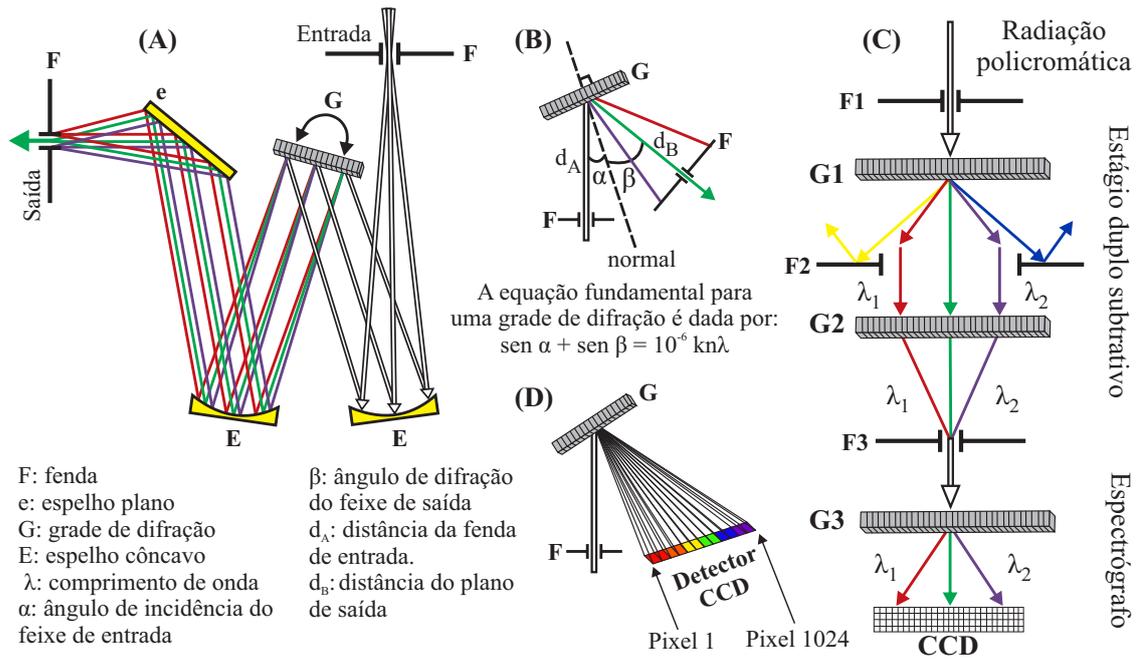


Figura 15 – (A) Ilustração da separação dos comprimentos de onda por intermédio da rotação da grade de difração. A grade decompõe a imagem em diferentes comprimentos por difração e focaliza a imagem no segundo espelho plano. A fenda de saída exerce a função de filtro espacial, o que permite a seleção de qual comprimento de onda sairá e qual será bloqueado. (B) Equação geral que determina pela rotação da grade de difração o comprimento de onda de saída. Figura adaptada de [63]. (C) Funcionamento do modo triplo subtrativo, em que no estágio duplo subtrativo a radiação policromática espalhada passa através da F1 e é dispersada pela G1 do primeiro monocromador e recombinada pela G2 do segundo monocromador. Essa radiação policromática passa através da F3 limitada entre  $\lambda_1$  e  $\lambda_2$  e é dispersada novamente na G3 do espectrógrafo. O sinal resultante é enviado para o detector CCD. Figura adaptada de [65]. (D) Para uma dada posição do espectrógrafo, o *software* associa uma coluna específica de pixel da CCD a uma faixa espectral.

ilustrado na Figura 13. A luz espalhada incide na primeira fenda F1 que está localizada no foco do primeiro espelho côncavo do primeiro monocromador do estágio duplo subtrativo e, dessa forma, o espelho côncavo colima a imagem sobre a rede de difração como ilustrado na Figura 13. A rede de difração dispersa a radiação em seus comprimentos de onda constituintes sobre o segundo espelho côncavo que focaliza a imagem da fenda de entrada sobre o plano da fenda de saída que isola espacialmente diferentes imagens em seus respectivos comprimentos de onda (Figura 15A). A separação dos comprimentos de onda é estabelecida por difração, a qual ocorre mediante a rotação da rede de difração conforme a equação geral [63, 64]  $\text{sen}(\alpha) + \text{sen}(\beta) = 10^{-6} \text{ kn}\lambda$ , em que  $\alpha$  e  $\beta$  são os ângulos de incidência e de difração em relação a normal da rede de difração (Figura 15B), respectivamente.  $10^{-6}$  é uma constante referente à construção da rede,  $k$  é a ordem da difração,  $n$  é o número de ranhuras por milímetro e  $\lambda$  é o comprimento de onda difratado. Essa equação geral sugere que há diversos valores de  $\lambda$  para um mesmo ângulo de difração  $\beta$ . A fenda de saída exerce

a função de filtro espacial, o que possibilita a seleção de qual comprimento de onda será focalizado e qual será bloqueado como ilustrado na Figura 15A e na Figura 15B. Portanto, como mostrado na Figura 13 e na Figura 15C, no estágio duplo subtrativo a luz espalhada pela amostra entra no monocromador através da primeira fenda F1 e é dispersada pela grade de difração G1. A fenda de saída F2 do primeiro monocromador (ou fenda de entrada do segundo monocromador) permite a passagem de luz limitada entre o intervalo de comprimento de onda  $\lambda_1$  e  $\lambda_2$ . A grade G2 do segundo monocromador recombina toda a luz dispersada sobre a fenda F3. Essa radiação policromática limitada entre a faixa espectral  $\lambda_1$  e  $\lambda_2$  será novamente dispersada na grade de difração G3 pertencente ao espectrógrafo e enviada ao detector CCD (Figura 15C). Os dois estágios presentes no modo triplo subtrativo descritos sobre o espectrômetro T64000 possibilitam a discriminação otimizada da luz do laser espalhada elasticamente a partir do sinal Raman de baixa intensidade. Nesse sentido, a principal função da fenda F2 (Figura 13 e Figura 15C) é evitar a linha Rayleigh. O detector CCD [67] é uma matriz de elementos fabricados a partir de um material semicondutor sensíveis a luz e funciona por meio do efeito fotoelétrico. Essa matriz é formada por elementos detectores individuais chamados *pixel* (contração de *picture element*, ou seja, elemento de imagem). Um fóton ao cair sobre um elemento registrador do detector libera um elétron e, dessa forma, o detector CCD irá transformar impulsos luminosos em dígitos. Esse processo produz uma imagem digital. A luz dispersada pela grade de difração G3 na Figura 15C é projetada sobre a matriz CCD resfriada a nitrogênio líquido (125 – 130°C) formado por 1024 colunas de 256 pixels (1024 x 256) e com uma resolução melhor que 2 pixels. Cada pixel possui um tamanho de 26 $\mu$ m x 26 $\mu$ m. A rotação da rede de difração irá relacionar cada pixel a um comprimento de onda e, por conseguinte, a quantidade de luz recebida por cada pixel irá compor o espectro (Figura 15D).

O equipamento T64000 ainda permite mais duas configurações não disponíveis atualmente no LEM. O espectrógrafo único direto ou modo simples e o espectrógrafo triplo aditivo. No modo espectrógrafo único não há o estágio duplo subtrativo. A luz espalhada é enviada diretamente para o espectrógrafo. A luz espalhada elasticamente deve ser bloqueada por meio de filtros especiais (filtro *notch* holográfico). Esse modo tem um menor caminho óptico, o que melhora a relação sinal/ruído. No entanto, cada filtro é específico para um comprimento de onda. A alteração do comprimento de onda da linha do laser de excitação exige também a troca do filtro de acordo com o comprimento de onda que se deseja utilizar. Dessa forma, apenas medidas com largura do sinal Raman maior que a largura de corte do filtro serão possíveis. No modo triplo aditivo a fenda F3 é aberta de forma análoga a fenda F2 (Figura 15C) e, portanto, cada etapa contribui para a dispersão da luz. Essa configuração permite obter um sinal de alta resolução e de baixa intensidade. A dispersão do modo triplo aditivo é equivalente a de um espectrógrafo de comprimento focal de 1.92m enquanto o modo triplo subtrativo é equivalente a um

comprimento focal de 0.64m. O Laboratório de Espectroscopia de Materiais possui um sistema de baixa temperatura que funciona por meio de um circuito fechado de gás hélio. O criostato recebe líquidos criogênicos como nitrogênio líquido e hélio líquido e alcança temperaturas em torno de 10 – 13K.

### 3.4 MATERIAL E CÁLCULOS TEÓRICOS

A medida experimental e os cálculos presentes na tese consistem de um poço quântico de 250Å de GaAs com dopagem modular (Si, tipo  $n$ ) da barreira de  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  com 400Å, uma camada de 200Å não dopada de  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  a partir do poço quântico e densidade eletrônica  $8.81 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$ . O espectro Raman foi obtido a uma temperatura igual a 12K com um laser contínuo de titânio-safira.

Em adição, é realizado um cálculo teórico de uma estrutura de poço quântico de GaAs/AlAs. A estrutura consiste de um poço quântico de 100Å de GaAs, uma camada de  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  com dopagem modular (Si, tipo  $n$ ), uma camada não dopada de 40Å de  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ , uma camada não dopada de 60Å de AlAs e densidade eletrônica  $1.2 \times 10^{12}\text{cm}^{-2}$ . Esse cálculo tem como objetivo comparar o resultado teórico obtido com o resultado experimental encontrado na referência [68], em que para um poço quântico estreito, o espectro Raman eletrônico é mais influenciado pelas excitações de partícula independente.

## 4 RESULTADOS E CONCLUSÃO

### 4.1 RESULTADOS

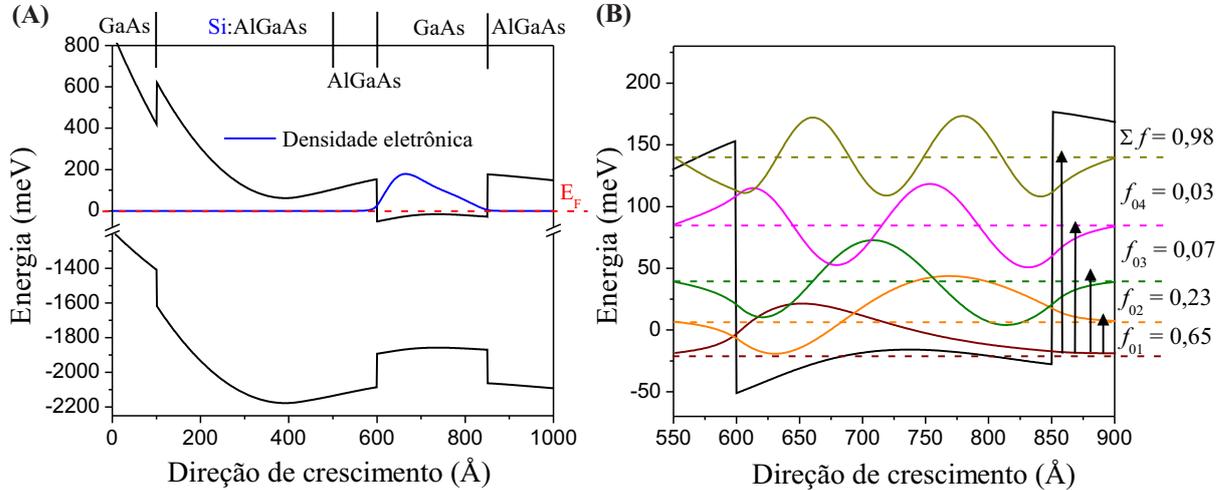


Figura 16 – (A) Perfil do potencial da banda de condução e da banda de valência calculados de forma autoconsistente e distribuição da densidade eletrônica no interior do poço. (B) Forças do oscilador para transições oriundas de apenas um estado ocupado abaixo do nível de Fermi e funções de onda.

A Figura 16 apresenta uma estrutura típica de um poço quântico simples de  $250\text{\AA}$  com uma densidade eletrônica bidimensional de  $5,3 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$ . A regra da soma [34] é um teste importante para um sistema sujeito a uma perturbação periódica. As energias e os estados relacionados a cada transição obedecem a essa regra. A partir da regra da soma, pode-se associar uma força de oscilador [34] para cada transição tal que  $\sum_{\alpha\beta} f_{\alpha\beta}^{\text{osc}} = 1$ . O cálculo de estrutura eletrônica indica que existe apenas um estado ocupado abaixo do nível de Fermi. Toda a densidade eletrônica se encontra dentro do poço como mostra a Figura 16A. O cálculo para a banda de valência é equivalente ao cálculo da banda de condução, exceto pela não inclusão de efeitos de muitos corpos (potencial de correlação e troca). O número de estados da banda de valência a ser utilizado segue o teste de completudeza  $\sum_{\text{h}} \langle \psi_{\text{n}}^{(\text{c})} | \psi_{\text{h}}^{(\text{v})} \rangle \langle \psi_{\text{h}}^{(\text{v})} | \psi_{\text{n}}^{(\text{c})} \rangle = 1$ , já que os autoestados da banda de condução são normalizados  $\langle \psi_{\text{n}}^{(\text{c})} | \psi_{\text{n}}^{(\text{c})} \rangle = 1$  e  $\sum_{\text{h}} | \psi_{\text{h}}^{(\text{v})} \rangle \langle \psi_{\text{h}}^{(\text{v})} | = 1$  para os estados da banda de valência. A Figura 16B apresenta as forças de oscilador para transições oriundas do estado fundamental. O poço quântico simples pode sofrer uma transição de fase de primeira ordem quando um estado excitado começa a ser populado em decorrência do nível de Fermi entrar em ressonância com o primeiro estado excitado pela aplicação de uma voltagem na heteroestrutura. A assinatura dessa transição é observada pela abrupta renormalização da energia da subbanda por consequência de efeitos de renormalização de *gap* da banda em gases de elétrons em razão de correções da energia de correlação e troca. A renormalização da energia

intersub-banda  $E_{01}$  em consequência da ocupação da segunda sub-banda revela uma instabilidade termodinâmica do sistema eletrônico relacionada, principalmente, a interação de Coulomb de troca, tornando-a uma propriedade fundamental em sistemas eletrônicos com mais de uma sub-banda ocupada. Esse fenômeno foi estudado experimentalmente e teoricamente, por exemplo, nas referências [24, 69], em que os autores tratam a interação de troca de maneira exata e não será contabilizado aqui.

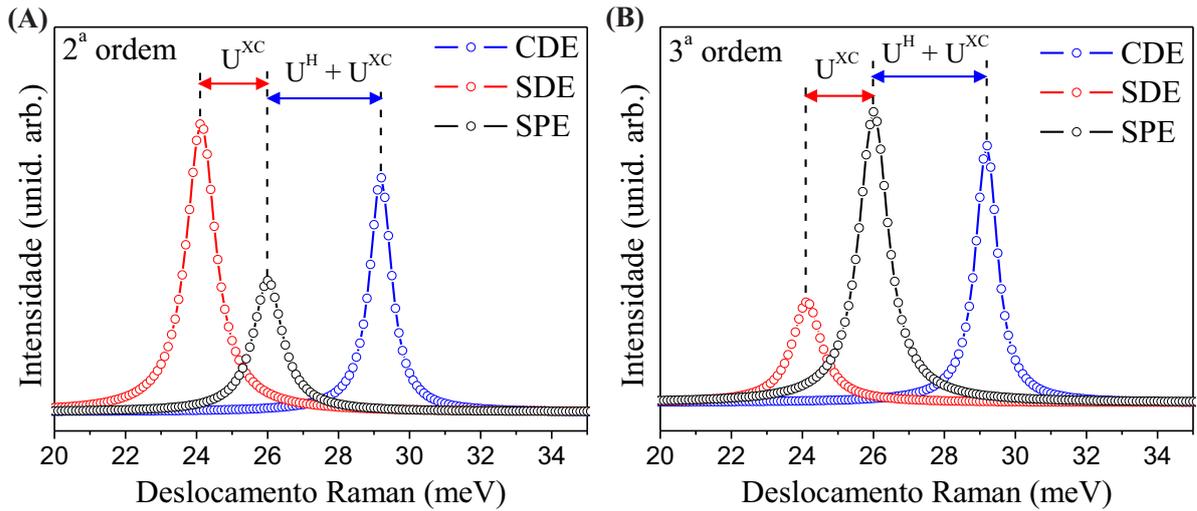


Figura 17 – (A) Espectro Raman de segunda ordem em teoria de perturbação para um poço quântico de  $250\text{\AA}$ , densidade eletrônica  $5,3 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$  e energia do laser incidente de  $1880\text{meV}$ . (B) Espectro Raman de terceira ordem em teoria de perturbação para um poço quântico de  $250\text{\AA}$ , densidade eletrônica  $5,3 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$  e energia do laser incidente de  $1880\text{meV}$ . Em ambas as Figuras há um deslocamento para uma maior energia em relação a SPE em virtude das interações de Coulomb direta ( $U^H$ ) e correlação e troca ( $U^{XC}$ ) e um deslocamento para uma menor energia em razão apenas das interações de correlação e troca.

Com descrito previamente na seção 3.2.2, o espalhamento inelástico de luz em estruturas eletrônicas pode ser descrito a partir de uma teoria de perturbação dependente do tempo de segunda ou terceira ordem. A Figura 17A e a Figura 17B apresentam, respectivamente, o resultado para o cálculo do espalhamento Raman eletrônico de segunda e terceira ordem em teoria de perturbação para um poço quântico simples de  $250\text{\AA}$  e densidade eletrônica  $5,3 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$ . Ambos os cálculos foram feitos com a energia do laser ( $1880\text{meV}$ ) ressonante com o *gap* de split-off do GaAs em regime de ressonância extrema. A natureza do aparecimento das SPE em ressonância extrema ainda não é entendido completamente. O mérito do cálculo apresentado é desacoplar o termo de partícula independente via a definição de uma coordenada harmônica e uma transformação do potencial induzido como discutido na seção 3.2.5. A Figura 17 apresenta o espectro coletivo polarizado e depolarizado desacoplado das SPE. De acordo com a Figura 17, pode-se comparar o comportamento das excitações elementares em gás de elétrons observadas

pela primeira vez por [11]. As excitações de densidade de carga (geometria polarizada) sofrem um deslocamento para uma maior energia em relação as excitações de partícula independente em razão das interações de correlação e troca ( $U^H + U^{XC}$ ) enquanto as excitações de densidade spin (geometria depolarizada) sofrem um deslocamento para uma menor energia em relação as SPE em decorrência apenas das interações de correlação e troca ( $U^{XC}$ ). O aparecimento das SPE não segue nenhuma regra de seleção associada a polarização da luz como já discutido no decorrer da tese. O regime de ressonância extrema significa que a energia do *laser* é da ordem das transições interbandas do material (transições envolvendo estados na banda de condução e na banda de valência mais o *gap* do material). O *gap* a ser utilizado pode ser o *gap* fundamental ou o *gap* de *split-off*. A utilização do *gap* fundamental acarreta em um fator adicional, isto é, problemas que envolvem processos intrassub-banda na banda de valência. Pode ocorrer, por exemplo, transições de buraco na banda de buraco pesado. O problema ao ser abordado em segunda (*gap* de *split-off*) ou terceira ordem (*gap* fundamental) em teoria de perturbação envolve uma física equivalente. Independentemente da ordem do processo, a forma de linha Raman teórica estará de acordo com o experimento. O fator ressonante é importante em experimentos de eficiência Raman [70, 71], em que é estudado o perfil ressonante das excitações. Vale ressaltar que, o interesse é reforçar a teoria, a qual consegue explicar melhor a origem das SPE. Portanto, será considerado apenas a expressão de segunda ordem nos cálculos a seguir.

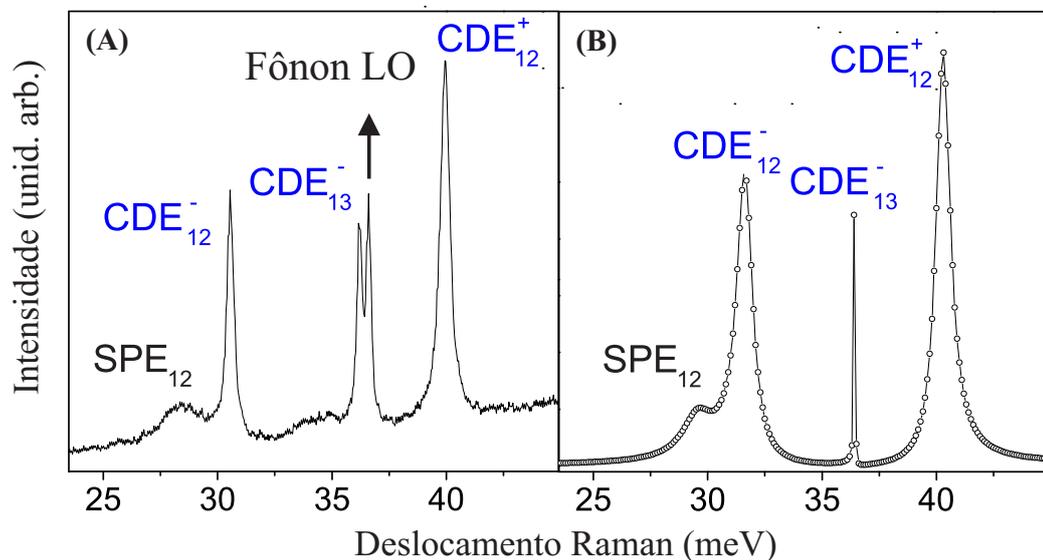


Figura 18 – (A) Espectro Raman experimental coletivo na geometria polarizada (CDE) para o poço quântico simples de GaAs de 250Å e densidade eletrônica total  $8.81 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . (B) Espectro Raman teórico coletivo na geometria polarizada para o mesmo poço quântico. Ambos com a energia do laser ressonante com o *gap* fundamental do GaAs (1.600meV).

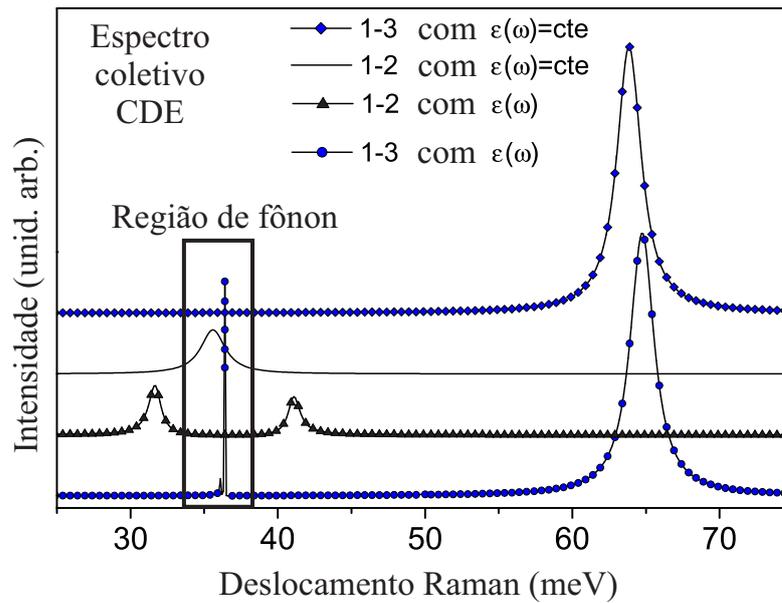


Figura 19 – Espectro Raman coletivo calculado na geometria polarizada para o poço quântico simples de 250Å com e sem a inclusão do acoplamento plasmon-fônon LO. O acoplamento é introduzido via função dielétrica da rede dependente da frequência.

A Figura 18A é o resultado da medida experimental do espalhamento Raman ressonante na configuração polarizada para o poço quântico simples de GaAs de 250Å com dopagem modular (Si, tipo  $n$ ) da barreira de  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  de um lado, uma camada *spacer* de 200Å a partir do poço quântico e densidade eletrônica  $8.81 \times 10^{11}\text{cm}^{-2}$  e a Figura 18B é o seu espectro Raman calculado. A primeira estrutura de baixa energia corresponde a transição de partícula independente a partir da primeira sub-banda ( $\text{SPE}_{12}$ ). Com exceção da excitação que representa o fônon LO da camada “tampão” do GaAs com energia em 36.6meV (Figura 18A), os outros perfis espectrais correspondem as excitações coletivas de densidade de carga. Em virtude do campo elétrico macroscópico associado com as flutuações de densidade de carga (plasmons), há um acoplamento entre os plasmons e o fônon LO do GaAs do poço quântico. Esse acoplamento é realizado mediante a inclusão da função dielétrica da rede 3.56 no termo de interação de Coulomb direto 3.57 (termo de Hartree).

O fenômeno de acoplamento foi objeto de estudo de um grupo de pesquisadores [72, 73, 74], cuja interpretação divergiu entre os próprios autores. A partir da Figura 18B, pode-se observar o efeito do acoplamento. A energia do fônon está muito próxima do plasmon, o que indica um acoplamento forte. Como resultado, surgem dois modos acoplados plasmon-fônon LO. Nesse contexto, as estruturas em torno de 30meV e 40meV são identificadas como  $\text{CDE}_{12}^-$  e  $\text{CDE}_{12}^+$ . O modo acoplado  $\text{CDE}_{13}^-$  com uma energia ligeiramente abaixo do fônon LO corresponde a excitações intersub-bandas superiores e foi alvo de discussões por alguns anos como comentado acima. Inicialmente, os autores

em [72] associaram essa estrutura apenas as excitações de densidade de carga (CDE). Em um trabalho posterior, destinado a explorar esse acoplamento, os autores relacionaram a formação de tal estrutura a um tipo de modo LO blindado pelo acoplamento com as excitações de densidade de carga de baixa energia equivalente a estrutura  $CDE_{12}^-$  [74] na Figura 18. Após seis anos, os autores retornaram ao assunto [74]. O acoplamento com as excitações de densidade de carga seria responsável por um modo blindado LO. Os elétrons enxergam um potencial perturbador quase estático gerado pela estrutura de fônons e blindam o campo elétrico gerado pela vibração da rede polar. Essa blindagem reduz a energia do fônon. O fônon renormalizado foi identificado pelos autores como  $LO_R$ . Em oposição, aqui, acredita-se que seja todos modos acoplados plasmon-fônon LO. A Figura 19 mostra esse comportamento. Considerando-se a função dielétrica constante, tem-se apenas o modo plasmon correspondente as sub-bandas 1–3. Incluindo-se uma dependência completa com a função dielétrica da rede dependente da frequência, o comportamento do efeito de acoplamento é revelado. Como indicado na Figura 19, a energia do modo coletivo é muito maior que a energia do fônon LO, o que implica em um acoplamento fraco. Como resultado, surgem dois modos acoplados plasmon-fônon  $CDE_{13}^-$  e  $CDE_{13}^+$ .  $CDE_{13}^-$  é deslocado para uma energia ligeiramente mais baixa que o fônon e, portanto, pode-se interpretar a formação dessa estrutura como um quase fônon. O oposto ocorre com o modo  $CDE_{13}^+$ , cuja energia está próxima do plasmon, o que sugere um comportamento de quase plasmon. Nesse sentido, faz-se necessário ressaltar que,  $CDE_{13}^+$  não é observado na medida experimental por efeito do forte sinal de luminescência. A partir da Figura 19, pode-se observar também o acoplamento forte entre  $CDE_{12}^-$  e  $CDE_{12}^+$  quando a função dielétrica é incluída no cálculo. Com a função dielétrica constante, tem-se apenas um plasmon com a energia muito próxima às energias correspondente à região de fônon.

A Figura 20A é o resultado da medida experimental do espalhamento Raman ressonante na configuração depolarizada para o poço quântico simples de GaAs de 250Å e densidade eletrônica  $8.81 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$  e a Figura 18B é o seu espectro Raman calculado. Note que, na Figura 18B, é mostrado o espectro coletivo, juntamente com as excitações de partícula independente (seção de choque total) e o espectro das SPE desacopladas das excitações de densidade de spin. Na faixa de energia apresentada há duas estruturas. A transição de menor energia é relatada como excitações de densidade de spin  $SDE_{12}$ . O deslocamento em relação a  $SPE_{12}$  ocorre em consequência de efeitos de correlação e troca. A comparação entre a diferença de energia teórica e experimental das duas estruturas também é mostrada na Figura 18A-B. Essa diferença é dada por 0.68meV. Isso indica que a parametrização utilizada subestima o valor dos efeitos de correlação e troca, os quais corroboram com os resultados obtidos em [62]. Ademais, pode-se compreender as pequenas discrepâncias na posição da energia das estruturas coletivas CDE originadas pelas primeiras duas sub-bandas (18). No que diz respeito a discrepância da energia da SPE (1.3meV), pode-se vincular ao fato de que o cálculo realizado aqui não contabiliza os

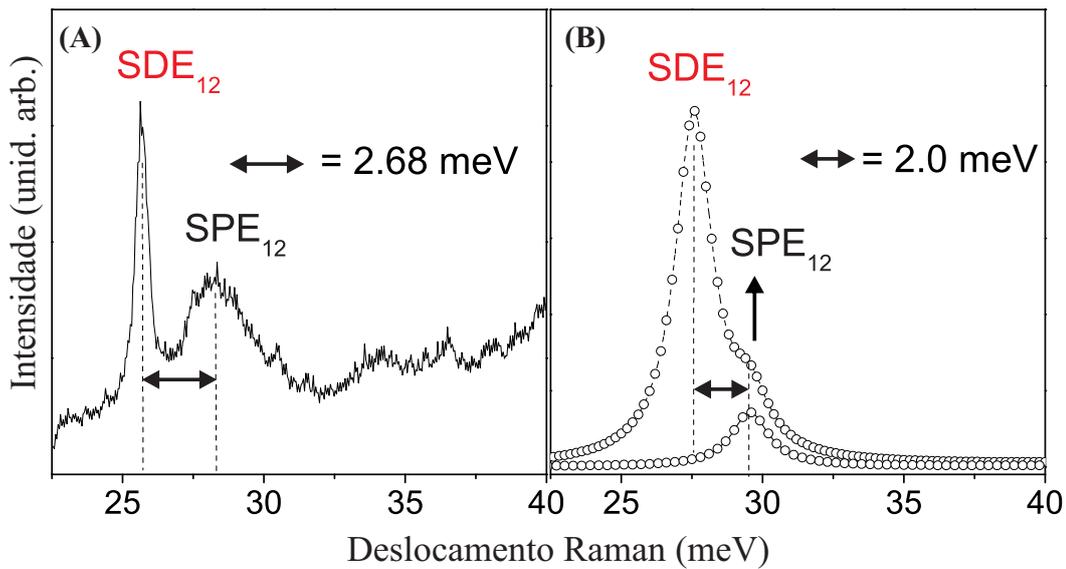


Figura 20 – (A) Espectro Raman experimental coletivo na geometria depolarizada (SDE) para o poço quântico simples de GaAs de 250Å e densidade eletrônica total  $8.81 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ . (B) Espectro Raman teórico coletivo na geometria depolarizada para o mesmo poço quântico. Ambos com a energia do laser ressonante com o *gap* fundamental do GaAs (1.600meV).

efeitos do *laser* na densidade eletrônica, ou seja, o perfil do potencial pode ser modificado assim como a renormalização do *gap* da banda.

A Figura 21 apresenta o espectro Raman calculado para um poço quântico simples considerado estreito (100Å) e densidade eletrônica total  $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ . Os autores na referência [68] consideraram em seus experimentos que a energia do *laser* provavelmente estaria ressonante com o *gap* de energia entre o primeiro estado excitado e a banda de valência de buraco pesado. A Figura 21 evidencia as excitações coletivas desacopladas das excitações de partícula independente.

Como resultado do cálculo de espalhamento inelástico de luz, as excitações coletivas foram encontradas em 144.10meV (CDE) e 131.50meV (SDE) como mostra a Figura 21A. Entretanto, os autores em [68] não conseguiram observar experimentalmente esses modos coletivos via espectroscopia Raman em virtude de serem pequenos ou fracos como mostra a Figura 22. Apenas as SPE foram medidas no espectro Raman. No entanto, em um trabalho posterior [75], para o mesmo poço quântico simples de 100Å, por meio de medidas de absorção no infravermelho intersub-banda, os autores encontraram um modo em 142.20meV, cuja assinatura foi associada às CDE. Esse resultado difere 1.9meV dos resultados apontados aqui. As transições de partícula independente foram encontradas em 130.00meV e 130.20meV por [68]. No espectro da Figura 21A as SPE estão situadas em 135.57meV. A Figura 21B exibe o espectro calculado que evidencia o comportamento observado experimentalmente para o poço quântico simples estreito. Inserindo-se um fator

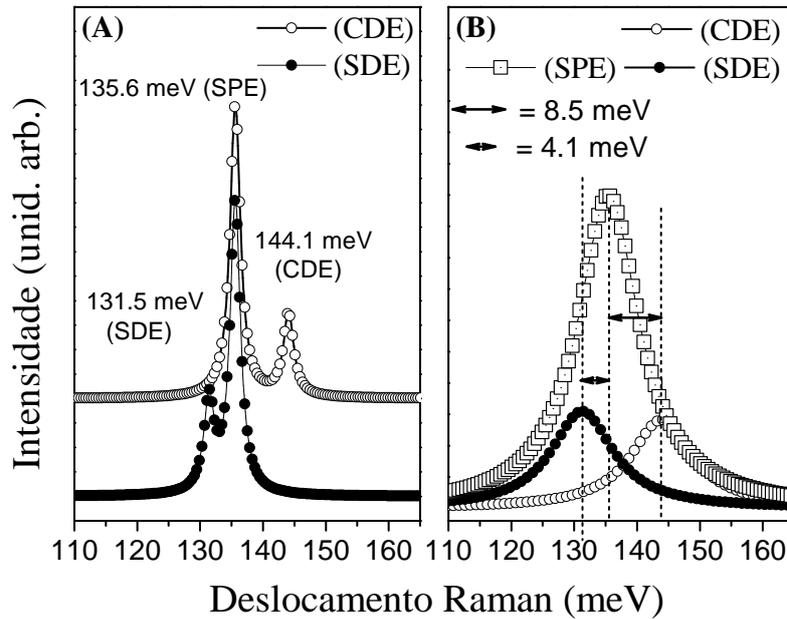


Figura 21 – (A) Espectro Raman coletivo calculado na geometria polarizada (CDE) e depolarizada (SDE) para o poço quântico simples de GaAs de  $100\text{\AA}$  e densidade eletrônica  $1.2 \times 10^{12}\text{cm}^{-2}$ . (B) O mesmo espectro anterior com um fator de amortecimento compilado da largura de linha Raman encontrado na referência [68]. Ambos com a energia do laser incidente igual a  $2000\text{meV}$ .

de amortecimento compilado dos dados experimentais (Figura 22) do espalhamento Raman eletrônico, as excitações coletivas são sobrepostas pelas amplas excitações de partícula independente. Dessa forma, o comportamento encontrado na Figura 22 é reproduzido pelo cálculo apresentado na Figura 21B. Além disso, os deslocamentos por efeito de muitos corpos é apontado na Figura 21B. Para o deslocamento das SDE a partir das SPE para uma menor energia em virtude das interações de correlação e troca, o valor encontrado é  $4.1\text{meV}$ , enquanto que para o deslocamento das CDE a partir das SPE para uma maior energia em razão das interações de Coulomb direta e correlação e troca foi encontrado o valor de  $8.5\text{meV}$ . Face a isso, o deslocamento das CDE difere  $0.5\text{meV}$  dos valores experimentais e o deslocamento das SDE corroboram com valores teóricos [75]. Aqui, para o efeito de comparação, utilizou-se dados experimentais a partir de uma combinação de medidas de absorção no infravermelho intersub-banda e espalhamento inelástico de luz encontrados em [68, 75].

A Figura 23 apresenta o espectro Raman experimental para o poço quântico simples de GaAs de  $100\text{\AA}$  e densidade eletrônica  $1.2 \times 10^{12}\text{cm}^{-2}$  compilado da referência [68] para várias energias de *laser* incidente e a Figura 24 mostra o espectro Raman calculado para es excitações coletivas e excitações de partícula independente na geometria polarizada e depolarizada para o poço quântico simples de  $100\text{\AA}$  para várias energias de *laser* incidente.

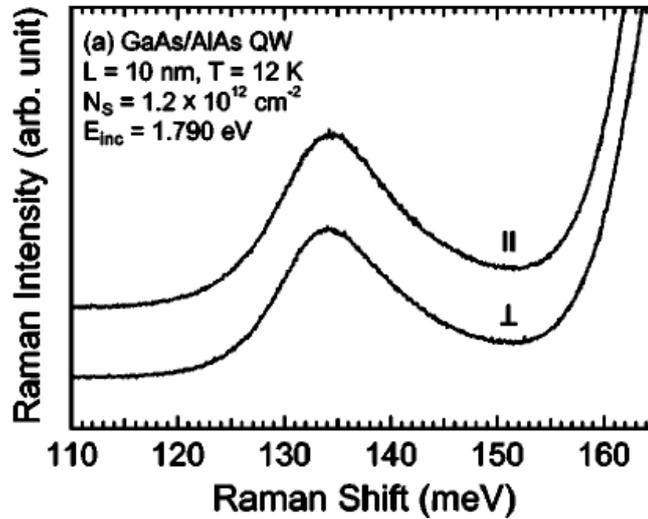


Figura 22 – Espectro Raman experimental para o poço quântico simples de GaAs de 100Å e densidade eletrônica  $1.2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$  compilado da referência [68]. Espectro polarizado (||) e depolarizado ( $\perp$ ).

Em tal situação, o espectro Raman eletrônico exibe um comportamento assimétrico. Na referência [68], os autores atribuíram a assimetria observada no espectro a um possível relaxamento da regra de conservação do vetor de onda no plano. Por outro lado, os resultados aqui indicam que variando a energia do *laser*, independente da existência de transições não verticais ( $\mathbf{q} \neq 0$ ), a forma de linha Raman teórica produz tal assimetria (Figura 24A-B). A partir dos resultados apresentados aqui, a assimetria acontece em decorrência da entrada e saída dos modos coletivos sobrepostos pelas SPE da ressonância.

Uma outra maneira de entender fisicamente porque o conjunto de equações apresentadas aqui originam as excitações coletivas e as excitações de partícula independente é a correspondência formal entre o espalhamento Raman eletrônico e o fenômeno que conduz a formação do estado supercondutor mediante a teoria BCS de metais normais. Como afirmado por Cooper em seu *Nobel Lecture* [76]: “The fundamental qualitative difference between the superconducting and normal ground state wave function is produced when the large degeneracy of the single particle electron levels in the normal state is removed”. Ou seja: “a diferença qualitativa entre a função de onda do estado fundamental normal e o supercondutor é produzido quando a grande degenerescência dos níveis eletrônicos de partícula independente no estado normal é removido” ([76], tradução nossa). Para a configuração de metais normais, a Hamiltoniana que resulta da interação atrativa de dois corpos possui elementos da diagonal formados por pares de Cooper degenerados com energia  $E$ , enquanto os elementos fora da diagonal são constantes e representam a interação atrativa mediada por fônons. Para o estado supercondutor a interação elétron-fônon é

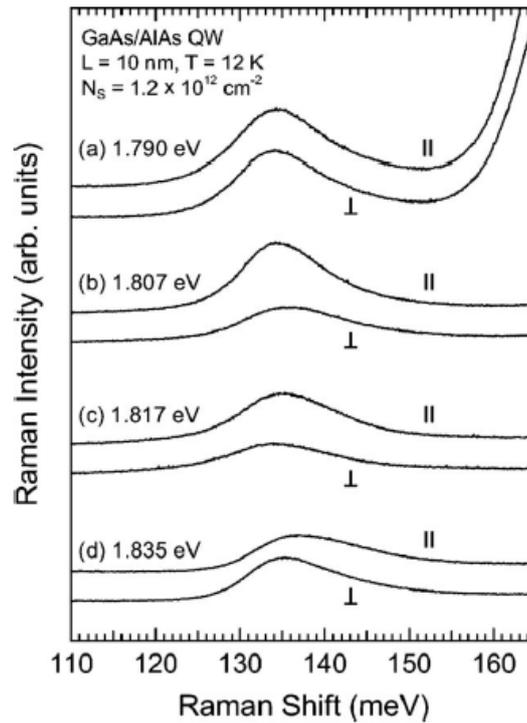


Figura 23 – Espectro Raman experimental para o poço quântico simples de GaAs de  $100\text{\AA}$  e densidade eletrônica  $1.2 \times 10^{12}\text{cm}^{-2}$  compilado da referência [68] para várias energias de *laser* incidente. Espectro polarizado ( $\parallel$ ) e depolarizado ( $\perp$ ).

responsável por um acoplamento degenerado entre os pares de Cooper. Ao diagonalizar essa matriz, o resultado será um único nível identificado com o estado supercondutor e outros  $N - 1$  autovalores degenerados que correspondem ao estado de metal normal, isto é:

$$\begin{pmatrix} E & -\Pi & \cdots & -\Pi \\ -\Pi & E & \cdots & -\Pi \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ -\Pi & -\Pi & \cdots & E \end{pmatrix} \mapsto \begin{pmatrix} E - (N - 1)\Pi & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & E & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & E \end{pmatrix}. \quad (4.1)$$

Tal analogia é apresentada na Figura 25 e considera excitações envolvendo as duas primeiras sub-bandas. Na Figura 25A, o oscilador  $\alpha \rightarrow \beta$  representa uma excitação na banda de condução. Os osciladores são acoplados por intermédio da interação de Coulomb (CDE e SDE). Considerando-se processos em que não há transferência de momentum lateral pela luz, assegura-se que todas as transições ao longo de  $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$  são degeneradas em energia e igualmente acopladas ( $U$  na Figura 25A) pela equação 3.55 para qualquer que seja os pares envolvidos nas duas sub-bandas. Portanto, tem-se um problema de  $N$  osciladores com termos diagonais degenerados ( $E$ ) e todos os elementos fora da diagonal igualmente acoplados ( $\Pi$ ) como mostra a matriz 4.1. O mesmo ocorre com os pares de Cooper mediados pela interação com o fônon na superfície de Fermi de um metal em um supercondutor

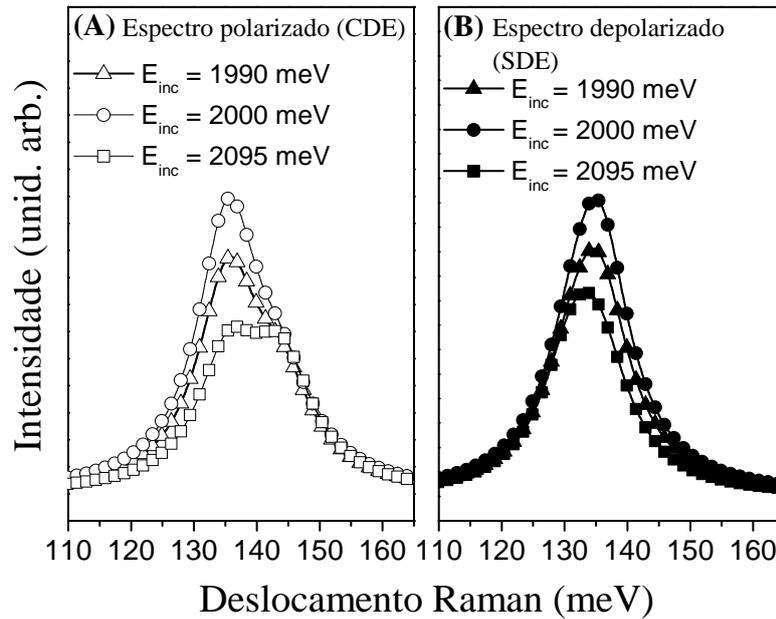


Figura 24 – (A) Espectro Raman coletivo calculado na geometria polarizada (CDE) para o poço quântico simples de GaAs de  $100\text{\AA}$  e densidade eletrônica  $1.2 \times 10^{12}\text{cm}^{-2}$  para várias energias de *laser* incidente. (B) O mesmo cálculo anterior na geometria depolarizada.

(Figura 25B). Eles são separados por  $E = 2E_F$ . O potencial BCS ( $\Pi_{\mathbf{k}'\mathbf{k},-\mathbf{k}\mathbf{k}}$ ) corresponde ao potencial SDE ( $\Pi_{\beta\alpha,\delta\gamma}$ ), ou seja, atrativo. Para o potencial CDE o comportamento é oposto, isto é, repulsivo. Em ambos os casos a matriz a ser diagonalizada tem a estrutura apresentada em 4.1. Para uma matriz  $N \times N$ , a diagonalização resultante produz um estado com a energia renormalizada pelo produto  $(N-1)\Pi$ . Esse estado corresponde às excitações coletivas coerentes de spin ou de carga ou, seguindo-se analogia realizada aqui, corresponde ao estado superconductor. Os  $N-1$  estados remanescentes não são renormalizados. As SPE correspondem a esses estados assim como o estado de um metal normal. O ponto crucial é que as excitações de partícula independente são reveladas apenas na condição de ressonância extrema. Apenas nessa circunstância, as SPE terão força de oscilador não negligenciável como abordado em [13]. Caso o bombeamento externo seja igual para todos os osciladores, a força de oscilador será toda transferida para a parte coletiva do sistema e, portanto, o caráter de partícula independente do sistema será blindado. Ademais, enquanto o número de elétrons  $N$  que contribuem para a transição é proporcional a área, a matriz  $\Pi$  depende do inverso da área da amostra. Por conseguinte, as excitações coletivas, por dependerem do produto entre  $N$  e  $\Pi$ , são resultados de uma renormalização independente da área, isto é, são finitas.

Em adição, o problema pode ser mapeado com o pêndulo de Newton como mostra a Figura 26. Pode-se pensar como um análogo mecânico para o espalhamento Raman no

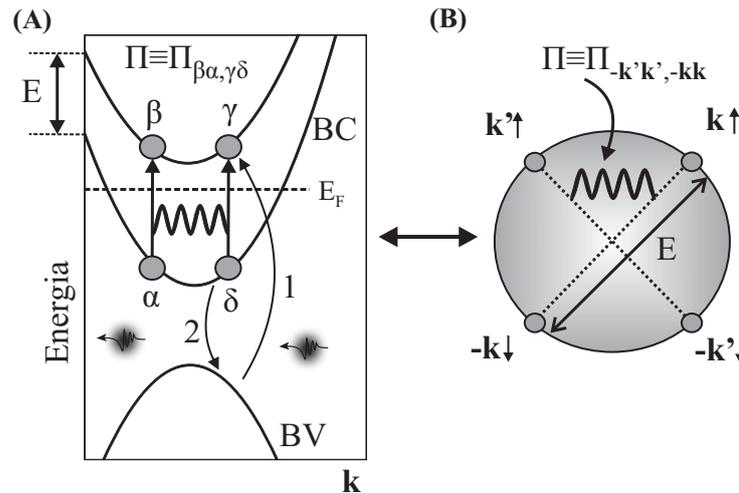


Figura 25 – Correspondência entre o espalhamento Raman eletrônico ressonante e a formação do estado supercondutor na teoria BCS. ((A) Mecanismo de espalhamento inelástico de luz de segunda ordem envolvendo a banda de valência BV e a banda de condução BC. As transições eletrônicas  $\alpha \rightarrow \beta$  e  $\delta \rightarrow \gamma$  são degeneradas ( $E$ ) e acopladas via interação de Coulomb  $\Pi_{\beta\alpha, \delta\gamma}$ . (B) Formação do estado supercondutor na teoria BCS, em que  $\mathbf{k}(\mathbf{k}')$  representam os estados com as configurações de spin  $\uparrow(\downarrow)$ . A interação elétron-fônon  $\Pi_{-k'k', -kk}$  na superfície de Fermi é responsável por um acoplamento degenerado entre os dois pares de elétrons (pares de Cooper).

regime de extrema ressonância para o gás de elétrons bidimensional. A energia potencial gravitacional corresponde ao bombeio do *laser*. Ao transferir essa energia para o sistema, surgem dois tipos de oscilações:  $N - 1$  oscilações com pequenas amplitudes identificadas como as transições de partícula independente; e uma oscilação que recebe a maior parte da energia e momentum transferidos. O análogo para essa excitação é o plasmon bidimensional (excitação coletiva : CDE e SDE).

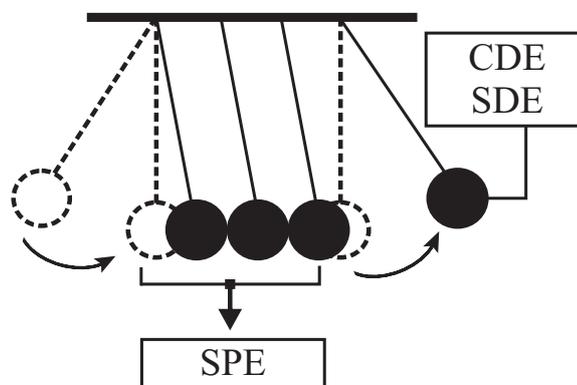


Figura 26 – Pêndulo de Newton. Análogo mecânico para o Raman eletrônico. No regime de ressonância extrema, aparecem  $N - 1$  modos com pequenas amplitudes (SPE) e um modo que recebe a maior parte da energia (excitações coletivas).

Tendo em vista os aspectos abordados sobre a natureza das transições de partícula independente, entende-se que o sistema eletrônico interagente tem um comportamento coletivo. No entanto, no regime de ressonância extrema, as excitações coletivas se dividem em um conjunto de excitações coletivas renormalizadas pela interação de Coulomb e um conjunto de excitações não renormalizadas associadas as transições naturais do sistema. As excitações coletivas são as excitações de densidade de carga (CDE) e as excitações de densidade de spin (SDE). As excitações não renormalizadas são identificadas como as excitações de partícula independente (SPE).

## 4.2 CONCLUSÃO

O modelo apresentado utiliza uma teoria autoconsistente e permite observar que:

- A teoria apresentada no decorrer da tese agrega informações mais fundamentadas sobre o aparecimento das excitações coletivas e das excitações de partícula independente em virtude de abordar o problema de tal forma que ele pertença a uma classe de problemas como o oscilador harmônico forçado e amortecido e a supercondutividade normal (teoria BCS);
- A investigação realizada sobre a origem das excitações intersub-bandas em poços quânticos com dopagem modular evidencia um excelente acordo ao comparar os resultados experimentais com os resultados teóricos, o que permite compreender a natureza das excitações de partícula independente e associar a sua origem à três condições: regime de ressonância extrema, existência de excitações intersub-bandas degeneradas e interação entre os pares de excitações (interação de Coulomb direta e correlação e troca) degeneradas. Face a isso, buscou-se o entendimento claro para as transições eletrônicas em gás de elétrons ao comparar resultados teóricos e experimentais de heteroestruturas semicondutores, o que tornou realizável na presente tese a reprodução de fenômenos como o aparecimento de apenas excitações de partícula independente em poços quânticos estreitos assim como o surgimento de modos acoplados em decorrência do acoplamento das flutuações de densidade de carga com o fônon longitudinal da rede do GaAs;
- Ao desacoplar o termo de partícula independente do termo coletivo na seção de choque de espalhamento inelástico de luz, a natureza das excitações de partícula independente é revelada como um desvio da média do potencial externo com pólos nas transições não acopladas do sistema, enquanto as excitações coletivas possuem pólos nas frequências do sistema acoplado. Isso indica que no regime de ressonância extrema, as excitações coletivas se dividem em duas contribuições: um conjunto de excitações renormalizadas (CDE e SDE) de caráter coletivo; e um conjunto de excitações não renormalizadas em relação as transições eletrônicas (SPE) de

caráter de partícula independente. Pode-se enfatizar que essa abordagem é geral, possibilitando-se a sua aplicação em gás de elétrons com diferentes dimensionalidades.

## REFERÊNCIAS

- [1] VENEMA, L. Fathers of electronic revolution are rewarded. **Nature**, v. 407, n. 6805, p. 662-662, 2000.
- [2] SCHÜLLER, C. **Inelastic Light Scattering of Semiconductor Nanostructures: Fundamentals and Recent Advances**. Berlin: Springer Berlin Heidelberg, 2006. 178p. (Springer Tracts in Modern Physics, v. 219).
- [3] STORMER, L. H.; TSUI, D. C.; GOSSARD, A. C. The fractional quantum Hall effect. **Reviews of Modern Physics**, v. 71, n. 2, p. S298-S305, 1999.
- [4] KÖONIG, M.; WIEDMANN, S.; BRÜNE, C.; ROTH, A.; BUHMANN, H.; MOLENKAMP, L. W.; QI, X. L.; ZHANG, S. C. Quantum Spin Hall Insulator State in HgTe Quantum Wells. **Science**, v. 318, n. 5851, p. 766-770, 2007.
- [5] FERRARI, A. C.; BASKO, D. M. Raman spectroscopy as a versatile tool for studying the properties of graphene. **Nature Nanotechnology**, v. 8, n. 4, p. 235-246, 2013.
- [6] CARDONA, M. (Ed.). **Light Scattering in Solids I: Introductory Concepts**. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1983. 349 p. (Topics in Applied Physics, v. 8)
- [7] BURSTEIN, E.; PINCZUK, A.; BUCHNER, S. Resonant Inelastic light Scattering by Charge Carriers at Semiconductor Surfaces. In: WILSON, B. L. H. (Ed.). **Physics of Semiconductors**. London: The Institute of Physics, 1979. p. 1231-1234. (Institute of Physica Conference Series, v. 43).
- [8] ABSTREITER, G.; PLOOG, K. Inelastic Light Scattering from a Quasi- Two-Dimensional Electron System in GaAs – Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As Heterojunctions. **Physical Review Letters**, v. 42, n. 19, p. 1308-1311, 1979.
- [9] PINCZUK, A.; STÖRMER, H. L.; DINGLE, R.; WORLOCK, J. M.; WIEGMANN, W.; GOSSARD, A. C. Observation of intersubband excitations in a multilayer two dimensional electron gas. **Solid State Communications**, v. 32, n. 11, p. 1001-1003, 1979.
- [10] CARDONA, M.; GÜNTHERODT, G. (Ed.). **Light Scattering in Solids V: Superlattices and Other Microstructures**. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1989. 335 p. (Topics in Applied Physics, v. 66/1)
- [11] PINCZUK, A.; SCHMITT-RINK, S.; DANAN, G.; VALLADARES, J. P.; PFEIFFER, L. N.; WEST, K. W. Large Exchange Interactions in the Electron Gas of GaAs Quantum Wells. **Physical Review Letters**, v. 63, n. 15, p. 1633-1636, 1989.
- [12] SARMA, S. DAS.; WANG, D-W. Resonant Raman Scattering by Elementary Electronic Excitations in Semiconductor Structures. **Physical Review Letters**, v. 83, n. 4, p. 816-819, 1999.
- [13] ANJOS, V.; IORIATTI, L. Collective and single-particle excitations in Raman scattering of multilayer  $\delta$ -doped systems. **Physical Review B**, v. 63, n. 3, p. 035404, 2000.

- [14] SCHÜLLER, C.; BIESE, G.; KELLER, K.; STEINEBACH, C.; HEITMANN, D.; GRAMBOW, P.; EBERL, K. Single-particle excitations and many-particle interactions in quantum wires and dots. **Physical Review B**, v. 54, n. 24, p. R17 304-R17 307, 2001.
- [15] WANG, D-W.; SARMA, S. DAS. WANG, Daw-Wei; SARMA, S. Das. Resonant Raman scattering by charge-density and single-particle excitations in semiconductor nanostructures: A generalized interband-resonant random-phase-approximation theory. **Physical Review B**, v. 65, n. 12, p. 125322, 2002.
- [16] SASSETTI, M.; KRAMER, B. Resonant Raman Scattering by Collective Modes of the One-Dimensional Electron Gas. **Physical Review Letters**, v. 80, n. 7, p. 1485-1488, 1998.
- [17] SASSETTI, M.; NAPOLI, F.; KRAMER, B. Theory of resonant Raman scattering from intra- and inter-band collective excitations in two-band quantum wires. **Microelectronic Engineering**, v. 47, n. 1, p. 301-303, 1999.
- [18] PINES, D.; NOZIÈRES, P. **The Theory of Quantum Liquids**. New York: WA Benjamin, 1966.
- [19] GIAMARCHI, T. **Quantum Physics in One Dimension**. Oxford university press, 2003.
- [20] GOÑI, A. R.; PINCZUK, A.; WEINER, J. S.; CALLEJA, J. M.; DENNIS, B. S.; PFEIFFER, L. N.; WEST, K. W. One-dimensional plasmon dispersion and dispersionless intersubband excitations in GaAs quantum wires. **Physical Review Letters**, v. 67, n. 23, p. 3298-3301, 1991.
- [21] WANG, D. W.; MILLIS, A. J.; SARMA, S. DAS.; Where is the Luttinger Liquid in One-Dimensional Semiconductor QuantumWire Structures? **Physical Review Letters**, v. 85, n. 21, p. 4570-4573, 2000.
- [22] WANG, D. W.; MILLIS, A. J.; SARMA, S. DAS.; Collective modes and Raman scattering in one dimensional electron systems. **Solid State Communications**, v. 131, n. 9, p. 637-645, 2004.
- [23] SCHÜLLER, C.; STEINEBACH, C.; HEITMANN, D. Spin- and charge-density excitations in quantum dots: a Raman study. **Solid State Communications**, v. 119, n. 4-5, p. 323-331, 2001.
- [24] GIUDICI, P.; GOÑI, A. R.; THOMSEN, C.; BOLCATTO, P. G.; PROETTO, C. R.; EBERL, K. Effects of the exchange instability on collective spin and charge excitations of the two-dimensional electron gas. **Physical Review B**, v. 70, n. 23, p. 235418-3301, 2004.
- [25] KUSHWAHA, M. S. Inelastic electron and light scattering from the elementary electronic excitations in quantum wells: Zero magnetic field. **AIP Advances**, v. 2, n. 3, p. 032104, 2012.
- [26] DAVIES, J. H. **The Physics of Low Dimensional Semiconductors**. New York: Cambridge University Press, 2005.

- [27] Ioffe - Physico Technical Institute. New Semiconductor Materials. Characteristics and Properties. Disponível em: <<http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaAs/bandstr.html>>. Acesso em: 10 nov. 2015.
- [28] BASTARD, G. **Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures**. Paris: Les Edition de Physique, 1990.
- [29] ADACHI, S. A New GaAs, AlAs, and  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ : Material parameters for use in research and device applications. **Journal of Applied Physics** , v. 58, n. 3, p. R1-R29, 1985.
- [30] SINGH, J. **Physics of Semiconductors and Their Heterostructures**. Singapura: McGraw-Hill College, 1993.
- [31] KOHN, W.; VASHISHTA, P. General Density Functional Theory. In: LUNDQVIST, S.; MARCH, N. H. (Ed.). **Theory of the Inhomogeneous Electron Gas**. New York: Springer Science+Business Media, LLC, 1983. p. 79-147. (Physics of Solids and Liquids).
- [32] MAKLER, S. S.; RITTER, C. F.; LIMA, I. C. da Cunha. A spin polarizer made of a diluted magnetic semiconductor quantum well. **Physica B: Physics of Condensed Matter**, v. 398, n. 2, p. 389-392, 2007.
- [33] LUNDQVIST, B. I.; HEDIN, L. Explicit local exchange-correlation potentials. **Journal of Physics C: Solid State Physics** , v. 4, n. 14, p. 2064-2083, 1971.
- [34] GONÇALVES, Alison Arantes. Excitações coletivas em sistemas eletrônicos quasi-2D via espalhamento inelástico de luz. 2012. Dissertação (Mestrado em Física)-Programa de Pós-Graduação em Física, Universidade Federal de Juiz de Fora, Juiz de Fora, 2012.
- [35] RAMAN, C. V. A new radiation. **Indian Journal of Physics**, v. 2, p. 387-398, 1928.
- [36] RAMAN, C. V.; KRISHNAN, K. S. A New Type of Secondary Radiation. **Nature**, v. 121, n. 3048, p. 501-502, 1928.
- [37] RAMAN, C. V. The Raman Effect. **Nature**, v. 125, n. 3145, p. 205-207, 1930.
- [38] LONG, D. A. **The Raman Effect: A Unified Treatment of the Theory of Raman Scattering by Molecules**. West Sussex, England: John Wiley & Sons Ltd, 2008.
- [39] SALA, O. **Fundamentos da Espectroscopia Raman e no Infravermelho**. 2. ed. São Paulo: Editora UNESP, 2008.
- [40] WILLIAM, H.; LOUDON, R. **Scattering of light by crystals**. New York: John Wiley & Sons, 1978.
- [41] YU, P. Y.; CARDONA, M. **Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties**. 4th ed. Springer Heidelberg Dordrecht London New York, 2010.
- [42] SZYMANSKI, H. A. (Ed.). **Raman Spectroscopy: Theory and Practice**. New York: Plenum Press, 1967.

- [43] SZYMANSKI, H. A. (Ed.). **Volume 2 Raman Spectroscopy: Theory and Practice**. New York: Plenum Press, 1970.
- [44] LOUDON, R. Theory of the First-Order Raman Effect in Crystals. **Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences**, v. 275, n. 1361, p. 218-232, 1963.
- [45] LOUDON, R. The Raman effect in crystals. **Advances in Physics**, v. 13, n. 52, p. 423-482, 1964.
- [46] LOUDON, R. Theory of the resonance Raman effect in crystals. **Journal de Physique**, v. 26, n. 11, p. 677-683, 1965.
- [47] PINCZUK, A.; ABSTREITER, G. Spectroscopy of Free Carrier Excitations in Semiconductor Quantum Wells. In: CARDONA, M.; GÜNTHERODT, G. (Ed.). **Light Scattering in Solids V: Superlattices and Other Microstructures**. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1989. p. 153-211. (Topics in Applied Physics, v. 66/1)
- [48] CANÇADO, Luiz Gustavo de Oliveira Lopes. **Raman Spectroscopy of Nanographites**. 2006. Tese (Doutorado em Física) - Departamento de Física, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 2006. Disponível em: <<http://www.fisica.ufmg.br/posgrad/>>. Acesso em: 15 jan. 2016.
- [49] BLUM, F. A. Inelastic Light Scattering from Semiconductor Plasmas in a Magnetic Field. **Physical Review B**, v. 1, n. 3, p. 1125-1135, 1970.
- [50] HAMILTON, D. C.; MCWHORTER, A. L. Raman Scattering from Spin-Density Fluctuations in n-GaAs. In: WRIGHT, G. B. (Ed.). **Light Scattering Spectra of Solids: Proceedings of the International Conference on Light Scattering Spectra of Solids held at New York University**. New York: Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1969. p. 309-316.
- [51] KLEIN, M. V. Electronic Raman Scattering. In: CARDONA, M. (Ed.). **Light Scattering in Solids I: Introductory Concepts**. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1983. p. 147-204. (Topics in Applied Physics, v. 8)
- [52] ABSTREITER, G.; CARDONA, M.; PINCZUK, A.; Light Scattering by Free Carrier Excitations in Semiconductors. In: CARDONA, M.; GÜNTHERODT, G. (Ed.). **Light Scattering in Solids IV: Electronic Scattering, Spin Effects, SERS, and Morphic Effects**. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1984. p. 5-150. (Topics in Applied Physics, v. 54).
- [53] LUZZI, R.; VASCONCELLOS, A. R.; RAMOS, J. V. **Predictive Statistical Mechanics: A Nonequilibrium Ensemble Formalism**. Springer Science+Business Media Dordrecht, 2002. 304p. (Fundamental Theories of Physics, v. 122).
- [54] GOVOROV, A. O. Resonant light scattering induced by Coulomb interaction in semiconductor microstructures. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v. 9, n. 22, p. 4681-4690, 1997.
- [55] GOVOROV, A. O. Inelastic light scattering by electron excitations with large wave vectors in a 2D magnetoplasma. **Journal of Experimental and Theoretical Physics**, v. 85, n. 3, p. 1041-1054, 1997.

- [56] MAHAN, G. D. **Many-Particle Physics**. 3th ed. New York: Kluwer Academic/Plenum Publishers, 2000.
- [57] ZANGWILL, A.; SOVEN, P. Density-functional approach to local-field effects in finite systems: Photoabsorption in the rare gases. **Physical Review A**, v. 21, n. 5, p. 1561-1572, 1980.
- [58] ZANGWILL, A.; SOVEN, P. Resonant Photoemission in Barium and Cerium. **Physical Review Letters**, v. 45, n. 3, p. 204-207, 1980.
- [59] EHRENREICH, H.; COHEN, M. H. Self-Consistent Field Approach to the Many-Electron Problem\*. **Physical Review**, v. 115, n. 4, p. 786-790, 1959.
- [60] GROSS, E. K. U.; RUNGE, E. **Many-Particle Theory**. Adam Hilger, 1991.
- [61] ANJOS, Virgílio de Carvalho dos. **Excitações coletivas e de partícula independente em sistemas multicamadas de GaAs  $\delta$  dopadas**. 1998. Tese (Doutorado em Física) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 1998. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/>>. Acesso em: 18 nov. 2014.
- [62] GAMMON, D.; SHANABROOK, B. V.; RYAN, J. C.; KATZER, D. S. Spin-density waves in a quasi-two-dimensional electron gas. **Physical Review B**, v. 41, n. 17, p. 12311-12314, 1990.
- [63] LERNER, J. M.; THEVENON, A. The optics of Spectroscopy: a tutorial. Disponível em: <<http://www.horiba.com/us/en/scientific/products/optics-tutorial/>>. Acesso em: 03 mar. 2016.
- [64] DEMTRÖDER, W. **Laser Spectroscopy: Vol. 1: Basic Principles**. 4.ed. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008.
- [65] HORIBA JOBIN YVON. T64000 User's Training Course. França: HORIBA Jobin Yvon, [199-?]. 128p.
- [66] HORIBA JOBIN YVON. T64000 System User Manual. França: HORIBA Jobin Yvon, 2009. 80p.
- [67] SMITH, G. E. The invention and early history of the CCD. **Journal of Applied Physics**, v. 109, n. 10, p. 102421, 2011.
- [68] UNUMA, T.; KOBAYASHI, K.; YAMAMOTO, A.; YOSHITA, M.; HASHIMOTO, Y.; KATSUMOTO, S.; IYE, Y.; KANEMITSU, Y.; AKIYAMA, H. Intersubband electronic Raman scattering in narrow GaAs single quantum wells dominated by single-particle excitations. **Physical Review B**, v. 70, n. 15, p. 153305, 2004.
- [69] GOÑI, A. R.; HABOECK, U.; THOMSEN, C.; EBERL, K.; REBOREDO, F. A.; PROETTO, C. R.; GUINEA, F. Exchange instability of the two-dimensional electron gas in semiconductor quantum wells. **Physical Review B**, v. 65, n. 12, p. 121313, 2002.
- [70] DANAN, G.; PINCZUK, A.; VALLADARES, J. P.; PFEIFFER, L. N.; WEST, K. W.; TU, C. W. Coupling of excitons with free electrons in light scattering from GaAs quantum wells. **Physical Review B**, v. 39, n. 8, p. 5512-5515, 1989.

- [71] JUSSERAND, B.; VIJAYARAGHAVAN, M. N.; LARUELLE, F.; CAVANNA, A.; ETIENNE, B. Resonant Mechanisms of Inelastic Light Scattering by Low-Dimensional Electron Gases. **Physical review letters**, v. 85, n. 25, p. 5400-5403, 2000.
- [72] GOÑI, A. R.; DANCKWERTS, M.; HABOECK, U.; EBERL, K.; THOMSEN, C. Inelastic Light Scattering by Elementary Excitations of the 2D Electron Gas at High Densities. **Physica status solidi (b)**, v. 215, p. 347-351, 1999.
- [73] HABOECK, U.; GOÑI, A. R.; DANCKWERTS, M.; THOMSEN, C.; EBERL, K. Coupling of intersubband charge-density excitations to longitudinal-optical phonons in modulation-doped GaAs quantum wells. **Solid state communications**, v. 115, n. 2, p. 85-88, 2000.
- [74] GIUDICI, P.; GOÑI, A. R.; THOMSEN, C.; EBERL, K.; HAUSER, M. Coupling between charge-density excitations and polar optical phonons in single quantum wells revisited. **Physical Review B**, v. 73, n. 4, p. 045315, 2006.
- [75] UNUMA, T.; KOBAYASHI, K.; YAMAMOTO, A.; YOSHITA, M.; HIRAKAWA, K.; HASHIMOTO, Y.; KATSUMOTO, S.; IYE, Y.; KANEMITSU, Y.; AKIYAMA, H. Collective and single-particle intersubband excitations in narrow quantum wells selected by infrared absorption and resonant Raman scattering. **Physical Review B**, v. 77, n. 19, p. 195306, 2006.
- [76] COOPER, L. N. Microscopic Quantum Interference Effects in the Theory of Superconductivity. In: LUNDQVIST, S. (Ed.). **Nobel Lectures in Physics 1971 - 1980**. Singapore: World Scientific, 1994. p. 73-93. (Nobel Lectures).

**APÊNDICE A – Função resposta via teorema de flutuação e dissipação (T = 0K) e a equação de movimento (método autoconsistente)**

Todos os cálculos desenvolvidos aqui estão sujeitos a Teoria da Resposta Linear [53]. O seu objetivo é procurar uma resposta global de um sistema sob uma perturbação pequena. Isso indica que a mudança no valor esperado de qualquer operador é linear em relação a perturbação. O teorema da flutuação e dissipação [53] permite conectar características de processos dissipativos com as flutuações ao redor do equilíbrio no sistema físico. A partir dele, é possível realizar o cálculo de propriedades do sistema em termos das médias de todos os estados em equilíbrio. O teorema segue da comparação de uma função de correlação de duas quantidades e a resposta do sistema quando submetido a uma perturbação externa. De acordo com a equação 3.11, define-se a expressão chamada fator de estrutura dinâmico:

$$S(\omega) = \sum_{\mathbf{F}} |\langle \mathbf{F} | \hat{V}_{\text{ef}} | \mathbf{I} \rangle|^2 \delta(\mathbf{E}_{\mathbf{F}} - \mathbf{E}_{\mathbf{I}} - \omega) \quad (\text{A.1})$$

$$\begin{aligned} S(\omega) &= \sum_{\mathbf{F}} \langle \mathbf{I} | \hat{V}_{\text{ef}}^\dagger | \mathbf{F} \rangle \langle \mathbf{F} | \hat{V}_{\text{ef}} | \mathbf{I} \rangle \frac{1}{2\pi} \int dt e^{\frac{-i}{\hbar}(\mathbf{E}_{\mathbf{F}} - \mathbf{E}_{\mathbf{I}} - \hbar\omega)t} \\ &= \frac{1}{2\pi} \int dt \sum_{\mathbf{F}} \langle \mathbf{I} | e^{\frac{i}{\hbar}\mathbf{H}t} \hat{V}_{\text{ef}}^\dagger e^{-\frac{i}{\hbar}\mathbf{H}t} | \mathbf{F} \rangle \langle \mathbf{F} | \hat{V}_{\text{ef}} | \mathbf{I} \rangle e^{i\omega t}. \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Definindo-se um operador na representação de Heisenberg  $\hat{V}_{\text{ef}}^\dagger(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\mathbf{H}t} \hat{V}_{\text{ef}}^\dagger(0) e^{-\frac{i}{\hbar}\mathbf{H}t}$ , juntamente com a relação de completeza  $\sum_{\mathbf{F}} |\mathbf{F}\rangle \langle \mathbf{F}| = \mathbb{1}$ , tem-se:

$$S(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \langle \mathbf{I} | \hat{V}_{\text{ef}}^\dagger(t) \hat{V}_{\text{ef}}(0) | \mathbf{I} \rangle. \quad (\text{A.3})$$

O valor esperado do operador efetivo de espalhamento sobre o estado fundamental de muitos corpos é dados por  $\langle \Psi(t) | \hat{V}_{\text{ef}}^\dagger(0) | \Psi(t) \rangle$ , em que  $\Psi(t)$  é a função de onda dependente do tempo de muitos corpos. Considerando-se uma perturbação  $\hat{V}(t) = \hat{V}(0) e^{-i(\omega + i\eta)t}$  ligada de forma adiabática ( $\eta \rightarrow 0$ ). Assume-se que a dependência temporal do Hamiltoniano é muito pequena, ou seja, a perturbação é introduzida lentamente (quase estática). Os autoestados do sistema perturbado serão levemente diferentes de tal forma que o sistema se comporte aproximadamente como antes. A partir da teoria de perturbação dependente do tempo de primeira ordem:

$$|\Psi(t)\rangle = e^{\frac{-i\mathbf{E}_{\mathbf{I}}t}{\hbar}} |\Psi_{\mathbf{I}}\rangle + \sum_{\mathbf{F}} a_{\mathbf{F}}^{(1)}(t) e^{\frac{-i\mathbf{E}_{\mathbf{F}}t}{\hbar}} |\Psi_{\mathbf{F}}\rangle. \quad (\text{A.4})$$

Em que:

$$\begin{aligned} a_{\mathbf{F}}^{(1)}(t) &= \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \langle \Psi_{\mathbf{F}} | \hat{V}(t') | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle e^{\frac{i}{\hbar}(E_{\mathbf{F}} - E_{\mathbf{I}})t'} = \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \langle \Psi_{\mathbf{F}} | \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle e^{\frac{i}{\hbar}(E_{\mathbf{F}} - E_{\mathbf{I}})t'} e^{-i(\omega + i\eta)t} \\ &= \frac{1}{\hbar} \frac{\langle \Psi_{\mathbf{F}}(t) | \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle}{(\omega - \omega_{\mathbf{FI}} + i\eta)} e^{-i(\omega - \omega_{\mathbf{FI}} + i\eta)t}, \quad \text{em que } \omega_{\mathbf{FI}} = \omega_{\mathbf{F}} - \omega_{\mathbf{I}}. \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

$$\begin{aligned} \langle \Psi(t) | \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) | \Psi(t) \rangle &= \langle \Psi_{\mathbf{I}} | e^{\frac{i}{\hbar}E_{\mathbf{I}}t} + \langle \Psi_{\mathbf{F}} | \sum_{\mathbf{F}} a_{\mathbf{F}}^{*(1)}(t) e^{\frac{i}{\hbar}E_{\mathbf{F}}t} (\hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0)) e^{\frac{-i}{\hbar}E_{\mathbf{I}}t} | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle + \\ &\quad + \sum_{\mathbf{F}} a_{\mathbf{F}}^{(1)}(t) e^{\frac{-i}{\hbar}E_{\mathbf{F}}t} | \Psi_{\mathbf{F}} \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{\hbar} \sum_{\mathbf{n}} \langle \Psi_{\mathbf{I}} | \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) | \Psi_{\mathbf{F}} \rangle \frac{\langle \Psi_{\mathbf{F}} | \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle}{(\omega - \omega_{\mathbf{FI}} + i\eta)} e^{-i\omega t} e^{\eta t} + \\ &\quad + \frac{1}{\hbar} \sum_{\mathbf{F}} \langle \Psi_{\mathbf{F}} | \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle \frac{\langle \Psi_{\mathbf{I}}(0) | \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{F}} \rangle}{(\omega - \omega_{\mathbf{FI}} - i\eta)} e^{i\omega t} e^{\eta t} \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

Como a perturbação é proporcional a  $e^{-i\omega t}$ , então o primeiro termo da equação acima estará relacionado com a resposta do sistema. Utilizando-se a relação  $\lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{1}{x \pm i\eta} = \frac{1}{x} \mp i\pi \delta(x)$  e pegando a parte imaginária da componente de Fourier em  $-\omega$  da expressão acima:

$$\begin{aligned} \text{Im} \langle \Psi(t) | \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) | \Psi(t) \rangle_{\omega} &= \text{Im} \langle \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) \rangle_{\omega} \\ \text{Im} \langle \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) \rangle_{\omega} &= -\frac{\pi}{\hbar} \sum_{\mathbf{F}} \langle \Psi_{\mathbf{I}} | \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) | \Psi_{\mathbf{F}} \rangle \langle \Psi_{\mathbf{F}} | \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle \delta(\omega - \omega_{\mathbf{FI}}) \\ &= -\frac{\pi}{\hbar} \sum_{\mathbf{F}} \langle \Psi_{\mathbf{I}}^{(\text{S})} | \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) | \Psi_{\mathbf{F}} \rangle \langle \Psi_{\mathbf{F}} | \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} e^{\frac{i}{\hbar}(E_{\mathbf{I}} - E_{\mathbf{F}})t} \\ &= -\frac{\pi}{\hbar} \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \sum_{\mathbf{F}} \langle \Psi_{\mathbf{I}} | e^{\frac{iHt}{\hbar}} \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) e^{-\frac{iHt}{\hbar}} | \Psi_{\mathbf{F}} \rangle \langle \Psi_{\mathbf{F}} | \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle \end{aligned}$$

Com a definição de um operador na representação de Heisenberg e com a relação de completudeza, encontra-se:

$$\text{Im} \langle \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(0) \rangle_{\omega} = -\frac{\pi}{\hbar} \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \langle \Psi_{\mathbf{I}} | \hat{V}_{\text{ef}}^{\dagger}(t) \hat{V}(0) | \Psi_{\mathbf{I}} \rangle = -\frac{\pi}{\hbar} S(\omega). \quad (\text{A.8})$$

A partir da definição da equação 3.35 e sem explicitar os índices de spin, tem-se:

$$\hat{V}_{\text{eff}}(0) = \sum_{\alpha\beta} V_{\alpha\beta}^{\text{ext}} \hat{c}_{\beta}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha}. \quad (\text{A.9})$$

$$\text{Im} \left[ \langle \Psi(t) | \hat{V}_{\text{ef}}^\dagger(0) | \Psi(t) \rangle_\omega \right] = \text{Im} \langle \Psi(t) | \sum_{\beta\alpha} [\mathbf{V}_{\alpha\beta}^{\text{ext}}]^* \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta | \Psi(t) \rangle_\omega. \quad (\text{A.10})$$

A derivação da equação de movimento para o valor esperado de uma par de excitação elétron-buraco é dada por:

$i\hbar \frac{2}{\partial t} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_t = \langle [\hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta, \text{H}] \rangle$ , em que a Hamiltoniana efetiva do gás de elétrons é dada por [56]

$$\text{H} = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \varepsilon_{\mathbf{k}'} \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} + \sum_{\mathbf{k}',\mathbf{q}'} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}',\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}',\sigma'}.$$

O desenvolvimento do método autoconsistente assume que o gás de elétrons responde a um potencial total. O primeiro termo no Hamiltoniano corresponde a energia cinética enquanto o segundo termo representa a interação sujeita ao potencial efetivo. Dessa forma:

$$\begin{aligned} \langle [\hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta, \text{H}] \rangle &= \left\langle \left[ \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} + \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \right] \right\rangle \\ &= \left\langle \left[ \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} \right] \right\rangle + \left\langle \left[ \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \sum_{\mathbf{k}'\mathbf{q}'\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}',\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} \right] \right\rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

Utilizando-se as relações para os comutadores fermiônicos:

$$\{\hat{a}_i, \hat{a}_j^\dagger\} = \delta_{ij} = \begin{cases} 0, i \neq j \\ 1, i = j \end{cases}, \quad \{\hat{a}_i, \hat{a}_j\} = \{\hat{a}_i^\dagger, \hat{a}_j^\dagger\} = 0. \quad (\text{A.12})$$

O primeiro termo ao lado direito do comutador é escrito da seguinte forma:

$$\begin{aligned} \left[ \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} \right] &= \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} (\hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} - \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}) \\ &= \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} \left( (1 - \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger) \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} - \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'} (1 - \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger) \right). \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

Por meio do uso da identidade  $[\hat{c}_i^\dagger \hat{c}_j, \hat{c}_l^\dagger \hat{c}_m] = \delta_{jl} \hat{c}_i^\dagger \hat{c}_m - \delta_{im} \hat{c}_l^\dagger \hat{c}_j$ , segue-se que:

(i)  $\mathbf{k}'\sigma' \neq \mathbf{k} + \mathbf{q}; \sigma, \mathbf{k}\sigma$

$$\sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} [\hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}] = 0; \quad (\text{A.14})$$

(ii)  $\mathbf{k}'\sigma' = \mathbf{k} + \mathbf{q}; \sigma$   
 $\mathbf{k}'\sigma' \neq \mathbf{k}\sigma$

$$\sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} [\hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}] = - \sum_{\mathbf{k}\sigma} \varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}; \quad (\text{A.15})$$

(iii)  $\mathbf{k}'\sigma' = \mathbf{k}\sigma$   
 $\mathbf{k}'\sigma' \neq \mathbf{k} + \mathbf{q}; \sigma$

$$\sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} [\hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}] = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \varepsilon_{\mathbf{k}} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}; \quad (\text{A.16})$$

(iv)  $\mathbf{k}'\sigma' = \mathbf{k} + \mathbf{q}; \sigma, \mathbf{k}\sigma$

$$\sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} [\hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}] = \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} - \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} = 0. \quad (\text{A.17})$$

Portanto, o primeiro termo do comutador tem como resultado:

$$[\hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}, \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \varepsilon_{\mathbf{k}'} \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'\sigma'}] = \sum_{\mathbf{k}\sigma} (\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}. \quad (\text{A.18})$$

O desenvolvimento do segundo termo ao lado direito da equação A.11 é determinado de maneira análoga. No entanto, somente a contribuição de  $\mathbf{q}' = -\mathbf{q}$  é apreciável [56]. Os termos com outros valores são negligenciados. Assume-se uma oscilação rápida para esses termos e sua contribuição média é aproximadamente nula. Então, a equação de movimento pode ser reescrita na forma:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \rangle = \sum_{\mathbf{k}\sigma} (\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \langle \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \rangle + \langle \sum_{\mathbf{k}\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma} \rangle - \langle \sum_{\mathbf{k}\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \rangle. \quad (\text{A.19})$$

O valor esperado para os dois últimos termos ao lado direito da equação acima para o estado fundamental de muitos corpos é realizado de forma análoga ao que foi feito para a função resposta mediante teoria de perturbação de primeira ordem no regime da resposta linear. Além disso, usa-se a relação [60]  $\langle \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} \rangle = f_{\mathbf{k}\sigma}$ , em que  $f_{\mathbf{k}\sigma}$  corresponde a função de distribuição de Fermi-Dirac. Logo:

$$\begin{aligned} \langle \Psi(t) | \sum_{\mathbf{k}\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma} | \Psi(t) \rangle &= \langle \Psi_I | \sum_{\mathbf{k}\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma} | \Psi_I \rangle = \hat{V}_{\text{ef}} f_{\alpha}(\mathbf{k} + \mathbf{q}), \\ \langle \Psi(t) | \sum_{\mathbf{k}\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} | \Psi(t) \rangle &= \langle \Psi_I | \sum_{\mathbf{k}\sigma} \hat{V}_{\text{ef}} \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} | \Psi_I \rangle = -\hat{V}_{\text{ef}} f_{\beta}(\mathbf{k}). \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

E a equação de movimento:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle = (E_\beta - E_\alpha) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle + (f_\alpha - f_\beta) V_{\beta\alpha}^{\text{ef}} \quad (\text{A.21})$$

Considerando-se a mesma dependência periódica que a perturbação  $\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle = \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle e^{-i(\omega + i\eta)t}$ , obtém-se ( $\eta \rightarrow 0$ ):  $i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle = \hbar\omega \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle$ . E, dessa forma, a equação de movimento é dada por:

$$\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_t = \frac{1}{\hbar} \left( \frac{f_\alpha - f_\beta}{\omega - \omega_{\beta\alpha}} \right) V_{\beta\alpha}^{\text{ef}}, \text{ em que } \omega_{\beta\alpha} = \frac{E_\beta - E_\alpha}{\hbar}. \quad (\text{A.22})$$

## APÊNDICE B – Amortecimento das flutuações de carga

$$\nabla \cdot \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) + \frac{\partial \hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0. \quad (\text{B.1})$$

A partir da equação A.21 e seu complexo conjugado:

$$-i\hbar \frac{2}{\partial t} \langle \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t = (E_\beta - E_\alpha) \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} + (f_\alpha - f_\beta) \hat{V}_{\beta^* \alpha^*}^{\text{ef}}. \quad (\text{B.2})$$

Utilizando-se a equação A.21 e B.2 e  $\hat{V}_{\beta\alpha}^{\text{ef}} = \hat{V}_{\beta^* \alpha^*}^{\text{ef}}$  (reversão temporal), tem-se:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t, \quad (\text{B.3})$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t + 2(f_\alpha - f_\beta) V_{\beta\alpha}^{\text{ef}}. \quad (\text{B.4})$$

Com o intuito de incluir o amortecimento, adiciona-se um termo à equação, isto é:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t + 2(f_\alpha - f_\beta) V_{\beta\alpha}^{\text{ef}} - i\hbar\gamma_{\beta\alpha} \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta - \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t. \quad (\text{B.5})$$

A aplicação de um potencial perturbador ao sistema eletrônico produz uma variação não nula em sua densidade tal que  $\rho_e = \rho_0 + \delta\rho_e$ . Conseqüentemente:

$$\begin{aligned} \langle \delta\hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t) \rangle &= \langle \hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r}, t) \hat{\Psi}(\mathbf{r}, t) \rangle_t = \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle \\ \frac{\partial \hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} &= \frac{\partial \delta\hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_t = -i\omega \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_t, \\ \frac{\partial \hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} &= -i\omega \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t \text{ para o par } \alpha^* \beta^*, \end{aligned}$$

em que  $\psi_\alpha^* = \psi_{\alpha^*}$ ,  $\psi_{\beta^*}^* = \psi_\beta$  e  $\omega_{\beta\alpha} = \omega_{\alpha^* \beta^*}$ .

$$\frac{\partial \hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \frac{\partial \delta\hat{\rho}_e(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -i\frac{\omega}{2} \sum_{\alpha\beta} \psi_\alpha^*(\mathbf{r}) \psi_\beta(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t. \quad (\text{B.6})$$

Em segunda quantização o operador densidade de corrente [56] será dado por:

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) &= \frac{\hbar}{2mi} \left[ \Psi^\dagger(\mathbf{r}) \nabla \Psi(\mathbf{r}) - \Psi(\mathbf{r}) \nabla \Psi^\dagger(\mathbf{r}) \right] \\ &= \frac{\hbar}{2mi} \left[ \sum_{\alpha} \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \nabla \sum_{\beta} \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \hat{c}_{\beta} - \sum_{\beta} \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \hat{c}_{\beta} \nabla \sum_{\alpha} \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \right]. \\ \nabla \cdot \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) &= \frac{\hbar}{2mi} \sum_{\alpha\beta} \left[ \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \nabla^2 \psi_{\beta}(\mathbf{r}) - \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \nabla^2 \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \right] \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta}.\end{aligned}$$

Multiplicando-se a equação acima por  $\hbar(1/\hbar)$ , sabendo-se que  $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$ ,  $E = \hat{\mathbf{p}}^2/2m = -\hbar^2\nabla^2/2m$  e  $(\hat{\mathbf{p}}^2/2m + V)\psi = E\psi$ :

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) &= i \sum_{\alpha\beta} \omega_{\beta\alpha} \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} \rangle_t, \\ \nabla \cdot \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) &= -i \sum_{\alpha\beta} \omega_{\beta\alpha} \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t \text{ para o para } \alpha^*\beta^*. \text{ Portanto:} \\ \nabla \cdot \hat{\mathbf{J}}(\mathbf{r}, t) &= \frac{i}{2} \sum_{\alpha\beta} \omega_{\beta\alpha} \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} - \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t\end{aligned}\tag{B.7}$$

A partir das equações B.7 e B.6, pode-se expressar a equação de conservação de corrente local, ou seja:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} + \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t = \hbar\omega_{\beta\alpha} \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} - \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t.\tag{B.8}$$

Somando-se as equações B.3 e B.5:

$$2i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} \rangle_t = 2\hbar\omega_{\beta\alpha} \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} \rangle_t + 2(f_{\alpha} - f_{\beta})V_{\beta\alpha}^{\text{eff}} - i\hbar\gamma_{\beta\alpha} \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} - \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t.\tag{B.9}$$

A equação da continuidade fornece:

$$\begin{aligned}\frac{i}{2} \sum_{\alpha\beta} \omega_{\beta\alpha} \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} - \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t - i\frac{\omega}{2} \sum_{\alpha\beta} \psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}) \psi_{\beta}(\mathbf{r}) \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} + \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t &= 0, \\ \langle \hat{c}_{\beta^*}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t &= \frac{(\omega_{\beta\alpha} - \omega)}{(\omega_{\beta\alpha} + \omega)} \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} \rangle_t.\end{aligned}\tag{B.10}$$

Substituindo-se o resultado acima na expressão B.9 e como  $\frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} \rangle_t = -i\omega \langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} \rangle_t$ :

$$\langle \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta} \rangle_t = \frac{1}{\hbar} \left( \frac{\omega + \omega_{\beta\alpha}}{\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega} \right) (f_{\alpha} - f_{\beta})V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}.\tag{B.11}$$

A partir da equação B.3, juntamente com a expressão acima e  $\frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t = -i\omega \langle \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t$ :

$$\langle \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \rangle_t = -\frac{1}{\hbar} \left( \frac{\omega - \omega_{\beta\alpha}}{\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega} \right) (f_\alpha - f_\beta) V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}. \quad (\text{B.12})$$

$$\left\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta + \hat{c}_{\beta^*}^\dagger \hat{c}_{\alpha^*} \right\rangle_t = \frac{2\hbar\omega_{\beta\alpha}(f_\alpha - f_\beta)}{\hbar^2(\omega^2 - \omega_{\beta\alpha}^2 + i\gamma_{\beta\alpha}\omega)} V_{\beta\alpha}^{\text{eff}}. \quad (\text{B.13})$$

**APÊNDICE C – Lista de publicações**

LEONARDE N. RODRIGUES, A. ARANTES, C. SCHÜLLER, M. J. V. BELL, and V. ANJOS. Resonant electronic Raman scattering: A BCS-like system. **Physical Review B**, v. 93, p. 205409, 2016.

LEONARDE N. RODRIGUES, A. ARANTES, M. J. V. BELL, V. ANJOS. Electron gas elementary excitations in narrow quantum wells via resonant intersubband Raman scattering **Vibrational Spectroscopy**, v. 87, p. 193, 2016.

CHANDEL, ANUJ K.; ANTUNES, FELIPE A.F.; ANJOS, VIRGILIO; BELL, MARIA J. V.; LEONARDE N. RODRIGUES; POLIKARPOV, IGOR; DE AZEVEDO, EDUARDO R.; BERNARDINELLI, OIGRES D.; ROSA, CARLOS A.; PAGNOCCA, FERNANDO C.; DA SILVA, SILVIO S. Multi-scale structural and chemical analysis of sugarcane bagasse in the process of sequential acid–base pretreatment and ethanol production by *Scheffersomyces shehatae* and *Saccharomyces cerevisiae*. **Biotechnology for Biofuels**, v. 7, p. 63, 2014.

CHANDEL, A. K.; ANTUNES, F. F.; ANJOS, V.; BELL, M. J.; LEONARDE N. RODRIGUES; SINGH, O. V.; ROSA, C. A.; PAGNOCCA, F. C.; SILVA, S. S. Ultra-structural mapping of sugarcane bagasse after oxalic acid fiber expansion (OAFEX) and ethanol production by *Candida shehatae* and *Saccharomyces cerevisiae*. **Biotechnology for Biofuels**, v. 6, p. 1, 2013.