

II. EXCITONES CON DESDOBLAMIENTO DE BANDAS LINEAL CON EL VECTOR DE LA ONDA.

II.1 INTRODUCCION

En 1959 Hopfield y Thomas⁽¹⁵⁾, basandose en un trabajo anterior de D. Dutton (1958)⁽¹⁵⁾, publicaron un artículo sobre el espectro de reflectancia del CdS a bajas temperaturas, donde identifican tres series excitónicas intrínsecas separadas, llamadas A, B y C. La serie A apareció con luz incidente poco energética, siendo fuertemente activada solo para luz polarizada con el campo eléctrico perpendicular al eje del cristal ($E \perp c$). Las series B y C se activaron para ambos modos de polarización de la luz ($E \perp c$ y $E \parallel c$). La explicación a estos resultados la dieron en términos de excitones formados de un electrón de la banda de conducción y un hoyo de cada una de las tres bandas de valencia, las cuales son resultado de un corrimiento completo de la degeneración de las tres bandas ρ en el estado $q = 0$, bajo la influencia del campo eléctrico del cristal y efectos de acoplamiento *spin-órbita*. Encuentran que la simetría de la banda de valencia superior es Γ'_6 , y la de las otras Γ'_7 . Los estados cuánticos $n=1$ de los excitones fueron detectados a 77°K , mientras que los $n=2$, más débiles, solo fueron apreciados a 4.2°K .

Posteriormente, en 1964, Mahan y Hopfield⁽¹⁶⁾ reportaron mediciones de reflectividad del principal estado excitónico serie B en CdS. Observaron que solo con el vector de onda y el campo eléctrico, de la luz incidente, perpendiculares al eje del cristal ($q \perp c$ y $E \perp c$) aparece una estructura adicional de interés. La explicación de este fenómeno los llevó a desarrollar una teoría basada en términos de energía lineales en el vector de onda, de acuerdo a la simetría del cristal de CdS tipo Wurtzita. Según esta teoría, en cristales uniaxiales, como Wurtzita, la componente del campo eléctrico del cristal en dirección axial puede dar lugar a un acoplamiento *spin-órbita*, produciendo un desdoblamiento de la banda excitónica B en dos nuevas sub-bandas B_+ y B_- . El desdoblamiento excitónico acoplado a la luz da lugar a tres ramas polaritónicas transversales.

polaritónicas transversales.

El estudio de los efectos ópticos introducidos por el desdoblamiento excitónico de la serie B ha llamado la atención a muchos investigadores. En particular, en esta tesis se calculan los efectos de desdoblamiento excitónico en la serie B del CdS sobre las propiedades ópticas de una película delgada.

II.2 DEDUCCION DE LA FUNCION DIELECTRICA $\epsilon(\omega, q)$.

Como se mencionó en el capítulo I, las bandas de energía en semiconductores de gap-directo son frecuentemente isotrópicos, y las energías de los excitones correspondientes son adecuadamente descritas por medio de la relación parabólica:

$$h\omega_T^2(q) = h\omega_T^2(q=0) + hq^2/2m,$$

como es el caso del excitón $A_{(n=1)}$ de CdS.

Una derivación heurística ⁽¹⁷⁾ de las energías de los excitones $B_{(n=1)}$ de CdS, cuando se da el desdoblamiento de banda excitónica, es mostrada a continuación. Una derivación formal es dada en el artículo de Mahan y Hopfield ⁽¹⁸⁾ (1964).

En cristales uniaxiales, como es el caso del cristal CdS tipo Wurtzita, el campo eléctrico generado por el cristal, E_c , puede ser tal que tenga una componente no nula en la dirección del eje cristalino c . Definiendo un sistema coordenado cartesiano de manera que el eje y sea paralelo al eje c , entonces el campo E_{cy} es percivido como campo magnético, por un electrón moviéndose en el plano xy dando lugar a un acoplamiento spin-órbita. El problema es tratado por teoría de perturbaciones, donde el hamiltoniano perturbador $(q \cdot p)$ se expresa como:

$$H' = \phi (q_z \sigma_y - q_x \sigma_x),$$

donde q_x y q_z son las componentes transversales del vector de onda q , σ_x y σ_y son las matrices de Pauli, y ϕ un parámetro que es proporcional al campo del cristal. Los eigenvalores de los excitones formados por hoyos de la banda de valencia y electrones

de la banda de conducción afectados por E_c son:

$$h\omega_{\pm}(\mathbf{q}) = h\omega_T(0) + \frac{h^2}{2m_{\perp}} (q_x^2 + q_z^2) + \frac{h^2}{2m_{\parallel}} q_y^2 \pm \phi (q_x^2 + q_z^2)^{1/2},$$

donde m_{\perp} y m_{\parallel} son las masas transversal y longitudinal, respectivamente; $q_{\perp} = (q_x^2 + q_z^2)^{1/2}$ es la componente del vector de onda perpendicular al eje c . Según esta ecuación, la interacción spin-órbita produce un desdoblamiento de la banda excitónica original en dos sub-bandas, con una separación de sus mínimos en el espacio de las fases de $2m_{\perp}\phi/h^2$.

El efecto de desdoblamiento es proporcional a q_{\perp} por medio de ϕ , llamado parámetro de desdoblamiento excitónico o de desdoblamiento lineal en q . Puede verse en la expresión que si $q_{\parallel} \neq 0$ no hay desdoblamiento, siendo solo observable para $q_{\parallel} = 0$.

Experimentalmente se encuentra que para CdS el efecto de desdoblamiento es observado cuando la luz que incide tiene polarización p , con plano de incidencia perpendicular a c ($E \perp c$). Esto se debe a que el hamiltoniano perturbador H' acopla una transición óptica dipolar prohibida a una permitida, alcanzando ambas igual fuerza oscilatoria ($4\pi\beta$). Para polarización s , con $E \parallel c$, los efectos no son apreciables.

De esta manera, para una geometría donde el plano de incidencia sea perpendicular al eje del cristal c (y éste paralelo a la superficie) y con luz incidente con polarización p ($E \perp c$), se asegura el desdoblamiento excitónico. Las energías de los nuevos excitones son:

$$h\omega_{+}(\mathbf{q}) = h\omega_T(0) + \frac{h^2}{2m_{\perp}} q_{\perp}^2 + \phi q_{\perp},$$

$$h\omega_{-}(\mathbf{q}) = h\omega_T(0) + \frac{h^2}{2m_{\perp}} q_{\perp}^2 - \phi q_{\perp}.$$

De acuerdo con el modelo de Mahan y Hopfield, la fuerza del oscilador $4\pi\beta$ es igualmente dividida entre los dos nuevos excitones. Esto lleva a que la función dieléctrica tenga la forma:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_0 + \frac{2\pi\beta\omega_T^2}{\omega_+^2(q) - \omega^2 - i\gamma\omega} + \frac{2\pi\beta\omega_T^2}{\omega_-^2(q) - \omega^2 - i\gamma\omega}$$

Puede verse que esta expresión se reduce a la ecuación (I.24), correspondiente a la función dieléctrica para el excitón $A_{(n=1)}$, cuando se anula el parámetro ϕ .

II.3 POLARITONES EXCITONES DE VOLUMEN. TRES MODOS DE PROPAGACION TRANSVERSAL.

Las energías de los excitones, obtenidas anteriormente, cuando se tienen las condiciones necesarias para lograr el desdoblamiento excitónico son:

$$h\omega_{\pm}(q) = h\omega_T(0) + \frac{h^2}{2m_{\perp}} q_{\perp}^2 \pm \phi q_{\perp}. \quad (II.1)$$

En esta expresión los últimos dos sumandos del miembro derecho son cantidades pequeñas comparadas con el primero, de manera que una buena aproximación de $\omega_{\pm}^2(q)$ es la siguiente

$$\omega_{\pm}^2(q) = \omega_T^2(0) + Dq_{\perp}^2 \pm \bar{\phi}q_{\perp} \quad (II.2)$$

donde

$$D = \frac{h\omega_T^2}{m_{\perp}} \quad \text{y} \quad \bar{\phi} = \frac{2\omega_T\phi}{h}, \quad (II.3)$$

sustituyendo la ecuación (II.2) en la función dieléctrica, se tiene:

$$\epsilon(\omega, q) = \epsilon_0 - \frac{4\pi\beta\omega_T^2(\Omega^2 - Dq_{\perp}^2)}{\Omega^4 - (2D\Omega^2 + \bar{\phi}^2)q^2 + D^2q^4} \quad (II.4)$$

donde

$$\Omega^2 = \omega^2 - \omega_T^2 + i\gamma\omega \quad (II.5)$$

Restringiéndonos al caso de incidencia normal ($q_{\perp} = q_z$), solo podrán excitarse modos de vibración transversales en el material. Dichos modos satisfacen la relación de dispersión (I.15):

$$\epsilon(\omega, q) = q^2 \frac{c^2}{\omega^2}. \quad (II.6)$$

Sustituyendo la ecuación (II.4) en la ecuación (II.6) se obtiene la ecuación cúbica en q^2 :

$$D^2 q^6 - (2D\Omega^2 + \epsilon_0 D^2 \frac{\omega^2}{c^2} + \Phi^2) q^4 + (\Omega^4 - 4\pi\beta\omega_T^2 D \frac{\omega^2}{c^2} + 2\epsilon_0 D\Omega^2 \frac{\omega^2}{c^2} + \epsilon_0 \Phi^2 \frac{\omega^2}{c^2}) q^2 + (4\pi\beta\omega_T^2 - \epsilon_0 \Omega^2) \Omega^2 \frac{\omega^2}{c^2} = 0 \quad (II.7)$$

Asumiendo ahora que

$$\Omega_P^2 = \frac{4\pi\beta}{\omega_T}, \quad \Omega = \frac{\omega}{\omega_T}, \quad Q = \frac{qc}{\omega_T}$$

$$\Gamma^2 = -\frac{c^2}{D} \frac{A^2}{\omega_T^2} = \frac{c^2}{D} (1 - \Omega_P^2 - i\gamma\omega) \quad \psi = \frac{c\Phi}{D\omega_T} \quad \gamma = \frac{\nu}{\omega_T}$$

quedando la ecuación para Q^2 :

$$Q^6 + Q^4 (2\Gamma^2 - \psi^2 - \epsilon_0 \Omega^2) + Q^2 (\Gamma^4 - \epsilon_0 \Omega^2 (2\Gamma^2 - \psi^2) - \Omega_P^2 \Omega^2 c^2 / D^2) - (\epsilon_0 \Omega^2 \Gamma^2 + \Omega_P^2 \Omega^2 c^2 / D^2) \Gamma^2 = 0 \quad (II.8)$$

Esta ecuación da como resultado tres ramas polaritónicas transversales, con vectores de onda q_1 , q_2 y q_3 , en el medio no-local. Los tres vectores son, en general, funciones complejas que deben tener parte imaginaria positiva. La figura II.1 muestra la relación de dispersión para los modos transversales, usando los parámetros dados por Mahan y Hopfield.

III.1 GEOMETRÍA

En este capítulo se estudiará la propagación óptica de luz en una película delgada de CdS en la región de longitud de onda correspondiente al excitón E_{exc} . Cuando la luz incide sobre una geometría que se logra el desdoblamiento de niveles de energía dándose origen al vector de onda. Esto se logra solamente cuando tanto el vector de onda q como el campo eléctrico E de la luz incidente son perpendiculares al eje z del cristal ($E \perp z$ y $q \perp z$).