

Universidade de São Paulo

Condensação de Bose-Einstein em Excitons-polárítos

Alysson Ferreira Morais

Universidade de São Paulo
Instituto de Física
São Paulo, SP

Janeiro de 2016

Sumário

Resumo.....	2
1 - Introdução	2
2 - Éxcitons	3
3 - Interação luz-matéria e confinamento de éxcitons	4
4 - Microcavidades ópticas.....	5
5 - Éxcitons-poláritons.....	6
6 - Condensação de Bose-Einstein de éxcitons-poláritons.....	8
7 – Conclusões	9

Resumo

Éxcitons-poláritons são partículas formadas devido à interação entre um fóton e um éxciton simultaneamente confinados dentro de uma cavidade óptica. Um processo de repetidas absorções e emissões do fóton pelo éxciton cria um novo estado quântico que é uma mistura de componentes excitônica e fotônica. Em outras palavras, a interação fóton-éxciton faz com que nem o éxciton nem o fóton sejam autoestados da Hamiltoniana deste sistema interagente. Surge então o poláriton, um fruto do acoplamento forte e ressonante de um fóton e um éxciton. Neste trabalho, uma introdução ao tema será dada. Aspectos teóricos da formação dos éxcitons-poláritons serão discutidos. Será mostrado que, devido à baixa massa efetiva dos poláritons, essas partículas formam um sistema muito conveniente para a realização de condensados de Bose-Einstein em temperaturas altas ($T_c \sim 1 - 300K$).

1 - Introdução

Poláritons são partículas que têm se mostrado promissoras para a realização de condensados de Bose-Einstein em altas temperaturas. Além disso, formam condensados mais estáveis que os usualmente conhecidos e formados de gases atômicos ou excitônicos puros. Os ingredientes fundamentais para a formação de tais partículas são: microcavidades ópticas para o confinamento de fótons e um arranjo experimental com *Quantum Wells* capazes de confinar éxcitons em regiões semicondutoras.

Cavidades ópticas são regiões com paredes espelhadas capazes de aprisionar fótons de energias bastante específicas. Graças a avanços tecnológicos recentes, cavidades ópticas cada vez menores e com paredes mais perfeitamente refletoras puderam ser criadas. Em especial, são chamadas de microcavidades aquelas cuja distância entre as paredes refletoras é $L \lesssim 1 \mu m$, da ordem do comprimento de onda da luz visível.

Quando uma cavidade óptica é preenchida com um meio semiconductor com gap ressonante com a energia dos fótons confinados pelas paredes refletoras, elétrons da banda de valência são excitados até a banda de condução ao absorverem um fóton. Devido à atração Coulombiana entre o elétron e o buraco deixado na banda de valência, um éxciton é formado, com o elétron orbitando o buraco. Após certo tempo de vida característico dos éxcitons, ocorre seu decaimento, com a sucessiva emissão de um fóton, que estando confinado dentro da cavidade, pode ser novamente absorvido em um processo cíclico de absorção e emissão. Esse sistema conjunto formado pelo fóton e pelo éxciton interagentes é chamado de poláriton.

Neste trabalho, algumas características dos poláritons serão revistas. Mostraremos que sua reduzida massa efetiva abre perspectivas para a realização de condensados de Bose-Einstein em temperaturas altas e não usuais para esse tipo de transição de fase, podendo chegar até a temperatura ambiente.

2 - Éxcitons

Em materiais semicondutores, quando um fóton ressonante com a energia do gap é absorvido por um elétron de valência, um par elétron-buraco se forma e o elétron fotoexcitado passa a ocupar um estado de Bloch na banda de condução. Nesta situação, a força eletrostática sentida por ele devido à interação com as outras cargas presentes no material é de forma a atraí-lo até o buraco, que age, portanto, como uma partícula positivamente carregada. Esse estado ligado do elétron orbitando o buraco forma o que conhecemos por éxciton (cf. Figura 1).

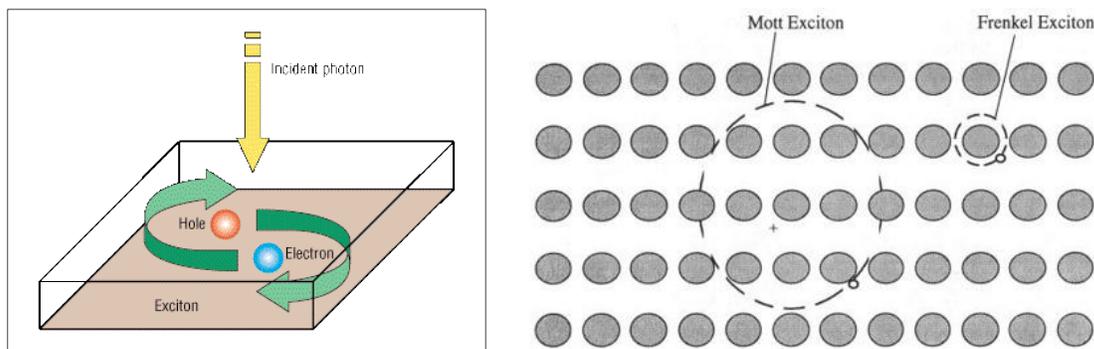


Figura 1: (Esq.) O elétron fotoexcitado orbita o buraco deixado na banda de valência. (Dir.) Esquema de um éxciton em uma estrutura cristalina. Éxcitons confinados em apenas um sítio da rede são chamados de éxcitons de Frenkel em contraste com os éxcitons de Mott. Fontes: <https://northbeggar.wordpress.com/2009/10/04/exciton/> e <http://electrons.wikidot.com/solar-cells>.

Devido à semelhança dos éxcitons com o átomo de hidrogênio, vários conceitos podem ser imediatamente transpostos para esse contexto com pequenas alterações. Em analogia, o raio R da órbita eletrônica, por exemplo, é dado por

$$R = \frac{\epsilon_r}{m^*} \frac{h^2 \epsilon_0}{\pi m_e e^2} \sim 10 - 100 \text{ \AA},$$

onde ϵ_r é a constante dielétrica do material, que diminui a intensidade da atração eletrostática elétron-buraco aumentando o raio da órbita eletrônica, e m^* é a massa efetiva dos elétrons na

banda de condução. Para $\epsilon_r \sim 1 - 10$ e $m^* \sim 0.1$, valores típicos em semicondutores, raios excitônicos típicos estão entre 10Å e 100Å . Energias de ligação típicas são

$$E \sim 10 - 100 \text{ meV},$$

em contraste com a enorme energia de ligação do átomo de hidrogênio $E_H = 13.6 \text{ eV}$.

Sob o ponto de vista quântico, um operador de criação de éxcitons pode ser definido a partir da criação $a_{\mathbf{k}}^{\dagger}$ de elétrons na banda de condução e buracos $b_{\mathbf{k}}^{\dagger}$ na banda de valência:

$$e_{\mathbf{K},n}^{\dagger} = \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \delta_{\mathbf{K},\mathbf{k}+\mathbf{k}'} \phi_n \left(\frac{m_h \mathbf{k} - m_e \mathbf{k}'}{m_e + m_h} \right) a_{\mathbf{k}}^{\dagger} b_{\mathbf{k}'}^{\dagger}.$$

Dessa definição segue um fato bastante curioso acerca da natureza dos éxcitons: são bósons no limite de baixa densidade n_{exc} :

$$[e_{\mathbf{K}',n'}^{\dagger}, e_{\mathbf{K},n}^{\dagger}] = 0,$$

$$[e_{\mathbf{K}',n'}, e_{\mathbf{K},n}] = 0,$$

$$[e_{\mathbf{K}',n'}, e_{\mathbf{K},n}^{\dagger}] = \delta_{\mathbf{K}\mathbf{K}'} \delta_{nn'} - \mathcal{O}(n_{exc} R^3)$$

3 - Interação luz-matéria e confinamento de éxcitons

A criação/destruição de um éxciton depende da absorção/emissão de um fóton pelo elétron fotoexcitado. Tais processos radiativos ocorrem por meio da interação de dipolo elétrico. A amplitude dessa interação depende diretamente de um termo usualmente chamado de “força do oscilador”:

$$f = \frac{2m^* \omega}{\hbar} |\langle u_v | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e} | u_c \rangle|^2 \frac{V}{\pi R^3},$$

onde ω é a frequência da radiação absorvida/emitada, $|u_c\rangle$ e $|u_v\rangle$ são, respectivamente, os estados de condução e de valência do elétron e V é o volume de quantização. Fica claro que a diminuição do raio R do éxciton implica em um aumento da amplitude de interação luz-matéria.

A estratégia adotada para aumentar o acoplamento entre éxcitons e fótons dentro de uma cavidade óptica é, portanto, o confinamento dos éxcitons dentro de uma *Quantum Well* (cf. Figura 2). Nessas estruturas os éxcitons são confinados em uma fina ($L < R$) camada semicondutora interposta entre regiões semicondutoras de gap muito maior e que, por isso, formam barreiras de potencial que restringem o movimento e a própria existência do éxciton. Dessa forma, um éxciton de tamanho reduzido se forma na tentativa de que a função de onda do elétron não ultrapasse a região da *Quantum Well*, o que demandaria um custo energético extra.

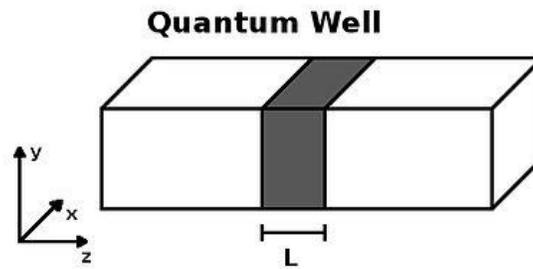


Figura 2: Uma *Quantum Well* é uma fina ($L < R$) camada semicondutora interposta entre regiões semicondutoras de gap muito maior. Estas regiões formam barreiras de potencial que restringem a existência do éxciton à região da *Quantum Well*. Fonte: https://en.wikipedia.org/wiki/Quantum_well.

4 - Microcavidades ópticas

Cavidades ópticas são regiões no espaço envoltas por paredes espelhadas de forma que fótons presentes nessas regiões são refletidos pelas paredes e ficam aprisionados na cavidade. Graças a avanços tecnológicos recentes, cavidades ópticas cada vez menores e com paredes mais perfeitamente refletoras puderam ser criadas. Em especial, são chamadas de microcavidades aquelas cuja distância entre as paredes refletoras é $d \lesssim 1 \mu m$, da ordem do comprimento de onda da luz visível.

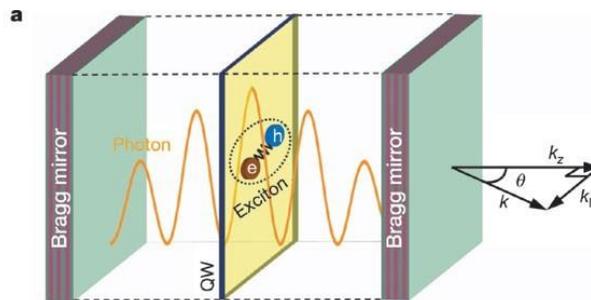


Figura 3: Uma microcavidade formada por espelhos de Bragg. Radiação eletromagnética está confinada nesta cavidade e interagindo com um éxciton em uma *Quantum Well*. Fonte: [doi:10.1038/nature05131](https://doi.org/10.1038/nature05131).

No interior de cavidades ópticas, apenas comprimentos de onda λ específicos são permitidos para a radiação eletromagnética confinada. Devido às condições de contorno impostas pelos espelhos refletoras (espelhos de Bragg na Figura 3), uma cavidade comporta apenas radiações em que d seja um múltiplo inteiro de $\lambda/2$:

$$N \frac{\lambda}{2} = d$$

para algum número natural N . Na Figura 3, por exemplo, está esquematizada uma onda eletromagnética estacionária confinada na cavidade com $N = 10$. Em termos das diferentes componentes do momento linear dessa onda, como ilustrado, a sua energia é

$$E_{cav} = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_z^2 + k_{||}^2} \approx \frac{\hbar c}{n_c} k_z \left(1 + \frac{k_{||}^2}{2k_z^2} \right) = E_{cav}(k_{||} = 0) + \frac{\hbar^2 k_{||}^2}{2m_{cav}},$$

se o fóton se propaga quase perpendicularmente ($k_{||}^2 \ll k_z^2$) à superfície da cavidade e onde n_c é seu índice de refração. Dessa forma, podemos definir a massa efetiva dos fótons nessa situação:

$$m_{cav} = \frac{E_{cav}(k_{||} = 0)}{c^2/n_c^2} \sim 10^{-5} m_e,$$

que, tipicamente, é cinco ordens de grandezas menor que a massa do elétron livre.

5 - Éxcitons-poláritons

Éxcitons-poláritons são partículas que emergem como autoestados da Hamiltoniana que descreve o sistema acoplado entre éxcitons e fótons. O termo de interação entre essas partículas é da forma

$$H_{int} = \sum_{k_{||}} g_0 (f_{k_{||}}^+ e_{k_{||}} + f_{k_{||}} e_{k_{||}}^+),$$

onde a constante de interação g_0 depende da “força do oscilador” já definida anteriormente e os operadores $f_{k_{||}}^+$ e $f_{k_{||}}$ são de criação e destruição de fótons na cavidade, respectivamente.

A Hamiltoniana completa do sistema é

$$\begin{aligned} H_{pol} &= H_{cav} + H_{exc} + H_{int} \\ &= \sum_{k_{||}} E_{cav}(k_{||}) f_{k_{||}}^+ f_{k_{||}} + \sum_{k_{||}} E_{exc}(k_{||}) e_{k_{||}}^+ e_{k_{||}} + \sum_{k_{||}} g_0 (f_{k_{||}}^+ e_{k_{||}} + f_{k_{||}} e_{k_{||}}^+), \end{aligned}$$

onde $E_{cav}(k_{||})$ e $E_{exc}(k_{||})$ são as relações de dispersão dos fótons e dos éxcitons, respectivamente. Essa Hamiltoniana pode ser facilmente diagonalizada pela transformação

$$P_{k_{||}} = X_{k_{||}} e_{k_{||}} + C_{k_{||}} f_{k_{||}},$$

$$Q_{k_{||}} = -C_{k_{||}} e_{k_{||}} + X_{k_{||}} f_{k_{||}},$$

após a qual a Hamiltoniana se torna

$$H_{pol} = \sum_{k_{||}} E_{low}(k_{||}) P_{k_{||}}^+ P_{k_{||}} + \sum_{k_{||}} E_{up}(k_{||}) Q_{k_{||}}^+ Q_{k_{||}},$$

com

$$E_{low,up}(k_{||}) = \frac{1}{2} \left[E_{exc} + E_{cav} \pm \sqrt{4g_0^2 + (E_{exc} - E_{cav})^2} \right],$$

que estão graficadas na Figura 4.

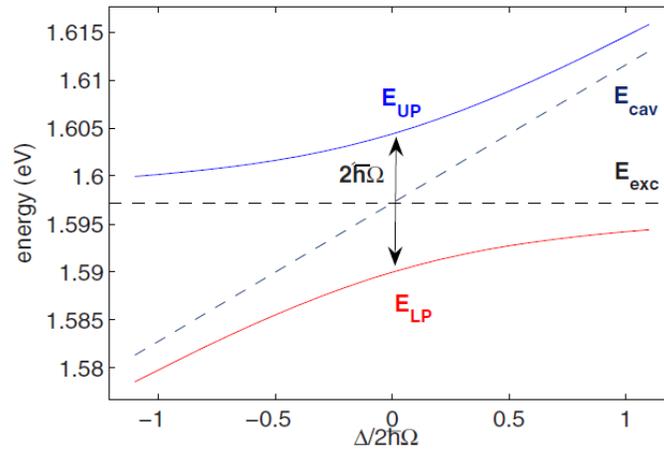


Figura 4: Avoided crossing: autoenergias dos poláritons em função de $\Delta = E_{cav} - E_{exc}$. Na região de ressonância, $E_{cav} = E_{exc}$, os poláritons são uma combinação linear equilibrada de componentes fotônica e excitônica. Fora da ressonância, quando a energia do fóton não é capaz de excitar um éxciton, os estados excitônicos e fotônicos voltam a ser, separadamente, autoestados da Hamiltoniana com suas relações de dispersão se aproximando daquela dos poláritons. ($\hbar\Omega = g_0$). Fonte: [RevModPhys.82.1489](https://arxiv.org/abs/1408.1489).

Um desenvolvimento importante acerca dos poláritons é o calculo de sua massa. No caso do poláriton de menor energia, podemos expandir a sua relação de dispersão em termos de seu momento $k_{||}$:

$$E_{low}(k_{||}) \approx E_{low}(0) + \frac{\hbar^2 k_{||}^2}{2m_{low}},$$

com

$$m_{low} \approx 2m_{cav} \sim 10^{-4} m_{exc}.$$

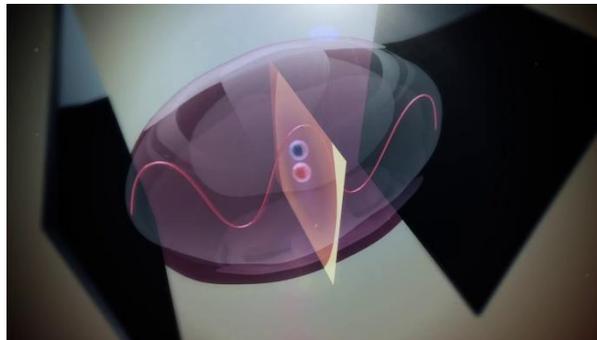


Figura 5: Ilustração pictórica da formação de um poláriton. Na situação de ressonância, éxciton e poláriton passam a formar uma partícula única com componentes excitônicas e fotônicas equilibradas $|X_{k_{||}}|^2 = |C_{k_{||}}|^2 = \frac{1}{2}$. Fonte: <https://www.youtube.com/watch?v=sWmvZ0IGrsU>.

A massa deste poláriton é, portanto, quatro ordens de grandeza menor que a massa dos éxcitons. Neste ponto, estamos prontos para entender a importância dos poláritons para o estudo de condensados de Bose-Einstein: a temperatura crítica abaixo da qual esta fase da matéria irá ocorrer será 10^4 vezes maior para os poláritons que para os éxcitons, já que esta é inversamente proporcional à massa das partículas.

Uma ilustração pictórica do poláriton, um estado conjunto formado pelo éxciton e o fóton, está mostrada na Figura 5.

6 - Condensação de Bose-Einstein de éxcitons-poláritons

Em um sistema bosônico, condensação de Bose-Einstein deve ocorrer abaixo da temperatura crítica

$$T_C \approx 3.3125 \frac{\hbar^2 n^{2/3}}{mk_B}.$$

A Tabela 1 mostra uma comparação entre condensados de Bose-Einstein de diferentes sistemas. Em sistemas bosônicos usuais como o de gases atômicos e sistemas excitônicos puros, a temperatura de transição é extremamente baixa devido à massa das partículas ser relativamente elevada. No caso dos gases atômicos, por exemplo, com massas da ordem de $10^3 m_e$, a temperatura de transição pode chegar até $\sim 1nK$. Nesse sentido, sistemas de muitos poláritons, com sua baixa massa efetiva, são a concretização de condensados de Bose-Einstein em temperaturas relativamente altas e facilmente alcançáveis em laboratório.

TABLE I. Parameter comparison of BEC systems.

Systems	Atomic gases	Excitons	Polaritons
Effective mass m^*/m_e	10^3	10^{-1}	10^{-5}
Bohr radius a_B	10^{-1} \AA	10^2 \AA	10^2 \AA
Particle spacing: $n^{-1/d}$	10^3 \AA	10^2 \AA	1 \mu m
Critical temperature T_c	1 nK–1 μ K	1 mK–1 K	1–> 300 K
Thermalization time/Lifetime	1 ms/1 s $\sim 10^{-3}$	10 ps/1 ns $\sim 10^{-2}$	(1–10 ps)/(1–10 ps)=0.1–10

Tabela 1: Comparação entre parâmetros físicos de diferentes condensados de Bose-Einstein. Fonte: [RevModPhys.82.1489](https://arxiv.org/abs/1408.2148).

Além das altas temperaturas críticas dos condensados de poláritons, podemos citar ainda outras vantagens experimentais deste sistema: (i) defeitos estruturais e de composição química comuns nos sistemas excitônicos são inimigos da estabilidade do condensado, mas podem ser facilmente diminuídos nos sistemas de poláritons caso as microcavidades ópticas sejam preenchidas com vácuo; (ii) maiores densidades de poláritons podem ser conseguidas apenas empilhando outras *Quantum Wells* em torno da *Quantum Well* central, aumentando ainda mais a temperatura crítica do condensado; (iii) apesar de terem tempo de vida muito curtos, $\sim 1 - 10ps$, a baixa massa efetiva dos poláritons também diminui o tempo de termalização do sistema. Em contraste com os sistemas excitônicos puros e de gases atômicos, isso faz com que condensados de poláritons possam ser tratados como sistemas próximos do equilíbrio térmico durante boa parte de sua existência.

7 – Conclusões

Polárítons são partículas encontradas em física do estado sólido e representam uma grande oportunidade para o estudo conjunto de vários temas, dentre eles: transições de fase quânticas, eletrodinâmica de cavidades, interação luz-matéria e sistemas fortemente acoplados. Devido à sua baixa massa efetiva e sua menor sensibilidade às imperfeições cristalinas, formam ainda um sistema ideal para o estudo de condensados de Bose-Einstein estáveis em temperaturas que podem chegar até a temperatura ambiente. Estas características, além de facilitar o estudo experimental de condensados de Bose-Einstein, podem, no futuro, permitir o desenvolvimento de dispositivos baseados em polárítons e condensados de Bose-Einstein.

8 – Referências

- [1] – **Exciton-poláríton Bose-Einstein condensation**. H. Deng, H. Haug e Y. Yamamoto. Rev. Mod. Phys., 82-1489, Junho de 2010.
- [2] – Animação sobre a formação de polárítons: <https://youtu.be/sWmvZ0IGrsU?t=135>. LDSD Semiconductor Research Group at the University of Sheffield.
- [3] – L. Dominici, et al. **Real-space collapse of a polariton condensate**. Nature Communications **6** (2015) 9993. doi:10.1038/ncomms9993.
- [4] - J. Kasprzak, et al. **Bose–Einstein condensation of exciton polaritons**. Nature **443** (2006), 409-414. doi:10.1038/nature05131.