

8

ESPALHAMENTO RAMAN POR ELETRONS E BURACOS EM GaAs.

*Reiko Sato Turtelli*

Orientador:

*Prof. Dr. Rogério Cêzar de Cerqueira Leite*

Co-Orientador:

*Prof. Dr. Antônio Rubens Britto de Castro*

Tese apresentada ao Instituto de Física  
"Gleb Wataghin" da Universidade Estadual  
de Campinas, como parte dos requisitos  
para a obtenção do Grau de Doutor em  
Ciências.

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS  
INSTITUTO DE FÍSICA  
BIBLIOTECA

Novembro, 1977

N.S. 9816833

CM000383943

I. FÍSICA - UNICAMP

n.º de ... TD

n.º de ... Física

ed. ... V. ... Ex. ...

n.º tomo. TD/202

BC-34829

m

## Agradeco

ao Prof. Dr. Rogério C. C. Leite pela orientação, pelo apoio e pelo interesse durante o andamento desta tese;

ao Rubens pela co-orientação, pelo empenho e paciência com que se dedicou ao trabalho, e pela franqueza com que sempre soube emitir suas opiniões;

ã Aurea, colega e amiga, pelas discussões e pelos esclarecimentos na parte teórica do trabalho;

ao Roberto Luzzi, sempre acessível e sempre disposto a dar apoio aos que dele precisam;

ao José Carlos e ao Paulo pelas muitas discussões;

ao Sr. Juvenal e a todos funcionários da oficina pela dedicação e pela competência demonstrada na confecção das muitas peças;

ao Sr. Cícero pelos trabalhos de vidraria;

ao Geraldo pela ajuda prestada na eletrônica;

ao Assis pelo pronto atendimento dispensado sempre que usei o PDP 11;

ãs desenhistas Martha e Selma pelo trabalho esmerado;

ã Marilena pelo primoroso trabalho de datilografia;

a todos os demais colegas, que de uma maneira ou outra, me ajudaram a fazer este trabalho;

finalmente, ao Armando, meu marido, pelo incentivo e pela compreensão.

Agradeço à FAPESP pela bolsa recebida e ao BNDE pelo auxílio financeiro.

Reiko Sato Turtelli

A meus pais,  
meus filhos  
e ao Armando.

## RESUMO

Neste trabalho, mediu-se o espalhamento de luz por plasmas e por fonons ópticos foto-excitados em várias amostras de GaAs, usando radiação infra-vermelha do laser de Nd:YAG. O mesmo feixe era utilizado para excitar o plasma e para medir o espalhamento Raman.

Foram observadas distribuições não equilibradas de elétrons e buracos, mas não se pode verificar nenhuma variação na relação das componentes Stokes e anti-Stokes atribuível a distribuições não equilibradas de fonons ópticos longitudinais, em condições de alta intensidade de excitação.

Calculou-se a secção de choque de espalhamento no plasma duplo de elétrons e buracos não equilibrados usando o conceito de quase-partículas de Landau. A não homogeneidade do feixe do laser no interior do cristal foi levada em conta. Este cálculo permitiu estimar a densidade de portadores foto-excitados nas amostras de alta resistividade, analisando-se os desvios do perfil Gaussiano do espectro Raman dos portadores quentes. Estes desvios são explicados pelo efeito de muitos corpos.

Sob excitação máxima, foi estabelecido um limite inferior igual a  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  para a densidade de portadores foto-excitados. Este valor resultou do ajuste da secção de espalhamento teórica aos dados experimentais.

Levando-se em conta o deslocamento em energia da linha correspondente ao fonon L0, estabeleceu-se um limite superior igual a  $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Até a máxima potência disponível, não se observou sinal de saturação na densidade de portadores foto-excitados. Conclui-se então que um limite inferior para manifestação de efeitos de saturação é  $1 \times 10^{16}$  elétrons por  $\text{cm}^3$ .

Um alargamento na linha dos fonons L0 foi observado sob condições de altas potências de pico de laser. Isto foi explicado como resultado da redução de tempo de vida na presença de excesso de populações dos fonons L0.

# ÍNDICE

|  |    |
|--|----|
| INTRODUÇÃO.....  | 1  |
| <br>   |    |
| CAPÍTULO I : Excitações elementares não equilibradas geradas por bombeamento óptico..... | 4  |
| <br>   |    |
| CAPÍTULO II : PLASMAS  |    |
| 1. Introdução.....   | 9  |
| 2. Espalhamento de luz por plasma.....   | 9  |
| 3. Espalhamento de luz por plasma duplo de eletrons e buracos.....                       | 13 |
| 3.1. Secção de choque de espalhamento por flutuação na densidade de carga.....           | 14 |
| 3.1.1. Para o gás não interagindo.....   | 15 |
| 3.1.2. Para o gás interagindo.....   | 19 |
| 3.2. Secção de choque de espalhamento por flutuação na densidade de spin.....            | 22 |
| <br>   |    |
| CAPÍTULO III : FÔNONS  |    |
| 1. Introdução.....   | 25 |
| 2. Espalhamento de luz por fônons ópticos longitudinais.....                             | 25 |
| 3. Considerações teóricas sobre os fônons ópticos de primeira ordem.....                 | 27 |
| 3.1. Intensidade e concentração dos fônons quentes.....                                  | 27 |
| 3.2. Cálculo de $q_{\min}$ do fônon L0 para bandas parabólicas e não parabólicas.....    | 29 |
| 3.3. Relação de dispersão dos modos acoplados plasmon-fônons.....                        | 33 |

## CAPÍTULO IV : PARTE EXPERIMENTAL

|  |    |
|--|----|
| 1. Introdução .....                      | 37 |
| 2. Técnica utilizada .....               |    |
| 2.1. Sistema Óptico .....                | 38 |
| 2.2. Sistema detetor .....               | 38 |
| 2.3. Calibração do sistema detetor ..... | 38 |
| 3. Medidas.....                          | 41 |

## CAPÍTULO V : ANÁLISE E DISCUSSÃO

|   |    |
|---|----|
| 1. Espalhamento de luz por plasmas de partículas individuais.     |    |
| 1.1. Introdução .....   | 44 |
| 1.2. Distribuições não equilibradas .....                         | 44 |
| 1.3. Efeitos de muitos corpos em condições de não equilíbrio..... | 49 |
| 1.3.1. Plasmas de elétrons individuais.....                       | 49 |
| 1.3.2. Plasma duplo de elétron-buracos individuais.....           | 51 |
| 1.4. Resultados e discussões.....                                 | 56 |
| 1.5. Conclusões .....   | 61 |
| 2. Espalhamento de luz por fônons ópticos longitudinais,          |    |
| 2.1. Introdução .....   | 62 |
| 2.2. Resultados .....   | 63 |
| 2.3. Discussões .....   | 71 |
| 2.4. Conclusões .....   | 77 |



|                                       |    |
|---------------------------------------|----|
| CAPÍTULO VI : COMENTÁRIOS FINAIS..... | 78 |
| APÊNDICE I .....                      | 80 |
| APÊNDICE II :::.....                  | 82 |
| APÊNDICE III .....                    | 84 |
| REFERÊNCIAS .....                     | 86 |

## INTRODUÇÃO

A espectroscopia Raman voltou à moda graças ao desenvolvimento de lasers. Porto e Wood<sup>(1)</sup> (1962) foram os pioneiros no uso de laser para as experiências de espalhamento Raman, seguidos por Leite e Porto<sup>(2)</sup> em 1964, Landon e Porto<sup>(2)</sup> em 1965, Worlock e Porto<sup>(2)</sup> em 1965. A partir daí esta técnica tornou-se padrão na maioria dos laboratórios de espalhamento de luz. O melhoramento dos lasers existentes e o desenvolvimento de novos instrumentos de medida, permitiram o uso de experiência de luz para o estudo de um grande número de fenômenos em cristais, tais como: fonons ópticos<sup>(3)</sup>, polaritons<sup>(4)</sup>, magnons<sup>(5)</sup>, plasmon<sup>(6)</sup> e partículas individuais<sup>(7)</sup>.

Basicamente, o processo de espalhamento de luz consiste na absorção de um foton pelo sistema com simultânea emissão de outro foton. Quando a frequência emitida é maior que a absorvida, ela é chamada componente Stokes, caso contrário é chamada Anti-Stokes. No primeiro caso o sistema absorve energia da radiação e no segundo caso libera energia decaindo a um estado de energia mais baixa.

Nestes últimos anos, com o desenvolvimento de lasers de alta potência, esta técnica vem sendo extensivamente utilizada para estudar em semicondutores, os efeitos de alta excitação: distribuição não equilibradas de excitações elementares.

O espalhamento Raman é muito conveniente para estudar tais efeitos pela facilidade de determinar a distribuição das excitações elementares responsáveis pelo espalhamento. Da teoria

de espalhamento, a intensidade de luz espalhada para componente Stokes e Anti-Stokes é proporcional a  $(n+1)$  e  $n$ , respectivamente (onde  $n$  é número de ocupação para excitações elementares) e a razão entre eles nos fornece a temperatura da distribuição (Ver expressão III-3, do Capítulo III). Por isso esta técnica vem sendo utilizada extensivamente para estudar as populações não equilibradas, principalmente de fônons (8-11).

Wolff<sup>(12)</sup> sugeriu que esta técnica também é um dos meios para estudar os sistemas de portadores em equilíbrio ou quase-equilíbrio térmico, pois nessas condições a intensidade de luz espalhada por eletrons é da forma  $I \propto \exp(-w^2/q^2 v_t^2)$ . Mooradian<sup>(13)</sup> observou experimentalmente a distribuição não equilibradas de eletrons usando um intenso campo elétrico pulsado para excitar os eletrons e mais recentemente, por nós<sup>(14)</sup>, usando a técnica de absorção de dois ftons para induzir o sistema de eletrons de não equilíbrio.

Embora existam várias técnicas de geração de populações não equilibradas de excitações elementares, a técnica aqui utilizada foi a de foto-excitação intensa. Este trabalho se limita ao estudo de espalhamento de luz por plasmas e fônons em várias amostras de GaAs, de densidade de portadores diferentes, excitados com vários níveis de potência incidente.

Foi dada ênfase à observação de populações não equilibradas de eletrons e buracos, determinando-se a temperatura efetiva através do gráfico logarítmico da intensidade espalhada em função da  $|\Delta\lambda|^2$  obtido experimentalmente. A seguir foi estimada a densidade de portadores foto-excitados, através da análise dos

desvios em relação ao perfil Gaussiano, apresentados nos espectros espalhados. Tais desvios são devidos a efeitos de muitos corpos.

As secções de choque de espalhamento de luz foram calculadas usando-se o conceito de quase partículas de Landau (Ver capítulo II).

Para o espalhamento de luz por fônons, a população dos fônons ópticos longitudinais  $L_0$  em excesso foi investigada analisando:

- i) A variação em função da potência incidente na razão das intensidades Raman de componentes Stokes e Anti-Stokes;
- ii) A variação em função da potência incidente na largura da linha dos fonons ópticos longitudinais  $L_0$ .

Através da análise (i), nenhum aquecimento dos fonons foi verificado mas a existência do excesso da população de fonons para alta excitação foi evidenciada pela análise correspondente ao item (ii).

## CAPÍTULO I

### EXCITAÇÕES ELEMENTARES NÃO EQUILIBRADAS GÉRADAS POR BOMBEAMENTO ÓPTICO.

As vibrações atômicas em um cristal, spins que interagem em um cristal ferromagnético, gás de elétrons que interage e estados excitados de um cristal não condutor podem ser tratados fazendo-se uma transformação na Hamiltoniana do sistema.

A Hamiltoniana de cada um dos sistemas será transformada (numa primeira aproximação) em uma soma de Hamiltonianas osciladores harmônicos independentes, cujos níveis de energia são igualmente espaçados por uma distância que é  $h$  vezes a frequência do oscilador.

Conhecendo as energias  $h\nu$  das excitações elementares de um sistema, conhecemos o extremo inferior do seu espectro de energia. Isso determina todas as propriedades termodinâmicas de equilíbrio do corpo em estudo.

Para que o sistema possa vir a ser encontrado em estado de equilíbrio termodinâmico, exige-se que exista uma pequena interação residual entre suas "partículas" constituintes (i.é, seus diferentes tipos de excitações elementares), mas a natureza dessas interações não afeta as propriedades termodinâmicas de equilíbrio.

Conclui-se que o estudo de sistemas em equilíbrio termodinâmico é de utilidade limitada quando se deseja pesquisar algo que dependa das interações entre excitações elementares ("tempo de vida" dessas excitações, por exemplo). Nesse sentido, ex-

periências sobre sistemas não equilibrados podem fornecer informação impossível de obter de outra forma. Tais experiências caem grosseiramente em duas famílias. A primeira agrupa as "medidas de relaxação", onde se acompanha a evolução temporal de um sistema perturbado, até que ele entre em equilíbrio.

A segunda, onde se incluem as medidas discutidas nesta tese, explora diretamente as propriedades espectrais de sistemas não equilibrados.

Lamentavelmente, deve ser reconhecido que as medidas espectrais em sistemas não equilibradas ainda estão em um estágio rudimentar. Discutem-se maneiras de induzir distribuições não equilibradas, e sobretudo a reprodutibilidade dos resultados.

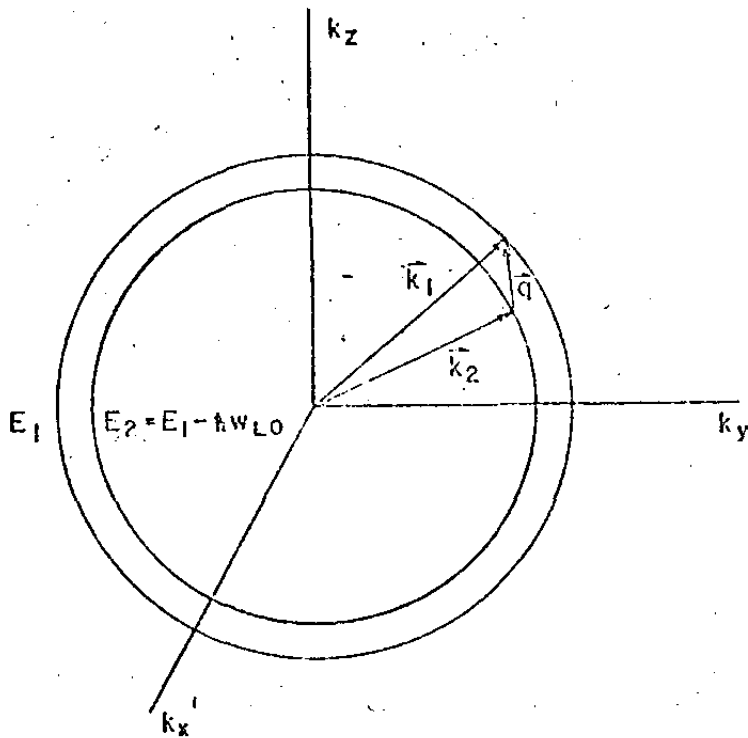
Neste trabalho discutiremos medidas feitas em GaAs excitado por bombeamento óptico. O modelo usado para explicar a geração de excitações elementares não equilibradas por foto-excitação de um semiconductor como GaAs é o modelo de Shah, Leite e Scott<sup>(8)</sup>. Este modelo consiste no seguinte: Um eletrão foto-excitado é criado com um excesso de energia  $\Delta E_e = (\hbar\omega_L - E_g) / (1 + m_e/m_b)$  (ou  $(2\hbar\omega_L - E_g) / (1 + m_e/m_b)$ , no caso da absorção de dois fotons) onde  $\hbar\omega_L$  é a energia do foton do laser,  $E_g$  é a energia da banda proibida e  $m_e$  é a massa efetiva dos eletrons e  $m_b$  dos buracos e a banda é suposta parabólica. O excesso de energia do buraco é dado por  $\Delta E_b = \Delta E_e \frac{m_e}{m_b}$ . Como, em geral,  $m_e \ll m_b$  o excesso de energia  $\Delta E_b$  não é importante. Este eletrão foto-excitado se relaxa até ao limite da banda, perdendo energia principalmente pela interação com os fônons ópticos e com outros portadores já existentes no cristal. Quando a intensidade do bombea-

Momento óptico for suficientemente grande, o processo acima é responsável pela geração de populações não equilibradas de fônons ópticos e de portadores. Em semicondutores polares, tais como BaAs, CdSe, CdTe, onde o espalhamento óptico polar é dominante<sup>(15)</sup>, o elétron foto-excitado perderá o seu excesso de energia  $\Delta E_e$  através de sucessivas emissões de fônons ópticos longitudinais  $L_0$  e através de colisões com outros portadores já existentes no cristal. A eficiência relativa desses dois processos dependerá da densidade de portadores  $n$  na região de foto-excitação<sup>(16)</sup>. Quando a densidade de portadores  $n$  torna-se muito grande, isto é, bem maior que a densidade crítica  $n_c$  (densidade de gás de elétrons para qual as colisões entre portadores neste gás de elétrons são tão frequente quanto as colisões destes portadores com os fônons ópticos polares), as colisões portadores-portadores tornam-se mais eficientes do que as colisões portador-fônon. Nessas condições, os portadores termalizarão entre si e atingirão uma situação de quase equilíbrio. Neste caso pode-se definir para os portadores uma temperatura efetiva  $T_e$  diferente da temperatura da rede.

A densidade das populações de fônons quentes, no estado estacionário, depende da fração do excesso da energia  $\Delta E_e$  usada para o processo da geração de fônons quentes e do tempo de vida desses fônons. Esta fração e a cedida ao sistema de portadores dependem da densidade de portadores foto-excitados e do mecanismo de acoplamento eletrofônon. Em um semicondutor polar, cada elétron foto-excitado produz  $\Delta E_e / \hbar \omega_{L_0}$  fônons  $L_0$ , onde  $\hbar \omega_{L_0}$  é a energia do fônon. O excesso de fônons  $L_0$  é tanto maior quan

to mais eficiente for a geração de portadores, e quanto mais longo for seu tempo de vida.

Os fônons ópticos gerados por emissões sucessivas devido ao relaxamento dos portadores foto-excitados podem adquirir apenas determinados valores de vetores de onda, isto é, eles devem estar compreendidos entre um mínimo  $q_{\min}$  e um máximo  $q_M$ . A fig. 1 mostra o processo a um fônon, onde um elétron de vetor de onda  $\vec{k}_1$  é espalhado, produzindo um elétron com vetor de onda  $\vec{k}_2$  e um fônon com vetor de onda  $\vec{q}$ .



.Fig. 1 : Espalhamento de elétron de superfície esférica de energia constante  $E_1$  para a superfície esférica de energia constante  $E_2$ .



Mais adiante faremos cálculo dos valores de  $q_{\min}$  e  $q_M$  para os am bos os casos:

- a) supondo-se as bandas de energia parabólicas e
- b) levando-se em conta a não parabolicidade das bandas.

No caso de emissão múltipla e simultânea de fônons, os fônons são gerados com valores quaisquer de  $q$  <sup>(17)</sup>.

Distribuições não equilibradas de eletrons (eletrons quentes) e de fônons (fônons quentes) também foram observadas em experiências de foto-luminescência <sup>(16) (18)</sup>.

Resumindo, as populações não equilibradas de portadores e fônons são observadas em condições de alta intensidade de foto-excitação. Os eletrons foto-energéticos perdem seu excesso de energia interagindo com os fônons ópticos e com os portadores já existentes na região de foto-excitação. Ambas as excitações quentes são observadas via luminescência e pelo espalhamento de luz.

## CAPÍTULO II

### PLASMAS

#### 1. Introdução.

Plasma é um conjunto de partículas carregadas livres para se mover sob ação das forças (Coulôbianas) de interação mútua - ou com campos externos. Podemos imaginá-lo com um gás de partículas carregadas que, devido ao fato de seus íons se moverem, pode se tornar extremamente sensível a perturbações eletromagnéticas. Os elétron-buracos em semicondutores e os elétrons livres em metais - são os exemplos. Embora, nos semicondutores, os plasmas sejam mais diluídos que os metais, aqueles são de grande interesse devido a facilidade na mudança de suas características por simples escolhidos materiais. Assim, nos semicondutores, tenta-se obter maior informações sobre os plasmas, comparando-se parâmetros tais como: frequência de plasma, frequência de cicloton, energia de Fermi e energia de fônon.

#### 2. Espalhamento de luz por plasma

Uma das finalidades do presente trabalho é o estudo de distribuições não equilibradas de velocidades dos portadores em GaAs através da observação do espalhamento quase elástico de luz. O espalhamento é causado por flutuações no sistema de vários cor-

pos. Estas flutuações podem ser atribuídas a quase partículas ou a modos coletivos. Estudando-se portanto o espectro de luz espalhada por plasmas, podemos ter informação sobre a densidade de portadores foto-excitados.

Experiências de espalhamento de luz por plasmas são efetuadas de tal modo que a frequência do laser  $\omega_L$  satisfaça a condição  $\omega_p < \omega_L < E_g/\hbar$ , onde  $\omega_p$  é a frequência do plasma. Nessa condição tem-se a interação fraca da luz incidente com o sistema de muitos corpos podendo-se usar a teoria de espalhamento a ser desenvolvida na secção seguinte. Além do mais, o cristal torna-se praticamente transparente à radiação, e o espalhamento observado refletirá fenômenos ocorridos no interior do semicondutor. Quando  $\omega_L > E_g/\hbar$ , ainda é possível, em alguns semicondutores, observar espalhamento, mas esse espalhamento ocorre na superfície do cristal e é afetado por uma série de complicados fenômenos de superfície<sup>(19)</sup>.

Os primeiros estudos teóricos de espalhamento de luz por plasma degenerado em sólidos foram feitos por McWhorter (1965)<sup>(20)</sup> e Platzman (1965)<sup>(21)</sup>, independentemente eles calcularam a secção de choque de espalhamento por flutuação na densidade de eletrons, em bandas parabólicas. Em 1966, Wolff refêz esses cálculos levando em conta também o efeito da contribuição interbanda<sup>(22)</sup>. Posteriormente, 1969, Hamilton e McWhorter<sup>(23)</sup> incluíram também o efeito da interação spin-órbita. O campo radiante é acoplado às flutuações de densidade de spin através dos

termos da perturbação de segunda ordem p.A. Em 1968 foi sugerido por Wolff<sup>(24)</sup> o uso do espalhamento Raman para se estudar a distribuição de velocidades de portadores não equilibrados. Já em 1966, Mooradian e Wright observaram os modos coletivos em plasmas, através de espalhamento de luz<sup>(25)</sup>. Dois anos depois Mooradian observou também espalhamento por partículas individuais<sup>(26)</sup>. Eram usadas amostras de GaAs com densidades de portadores diferentes. Os resultados experimentais não estavam de acordo com a teoria clássica, isto é, a intensidade de luz espalhada era duas ordens de grandeza maior que a prevista teoricamente. Isto porque a dinâmica dos elétrons nos semicondutores é mais complicada do que a do gás clássico e a relação energia-momento não é a mesma, ou seja, mudando a banda de energia há grande variação no espectro de espalhamento. No correr de 1969/1970 essas experiências foram repetidas para uma grande variedade de semicondutores, com os mesmos resultados<sup>(27)</sup>. Foi em 1970 que pela primeira vez se observou a distribuição não equilibrada de elétrons pelo processo de espalhamento. Essas medidas foram feitas por Mooradian e McWhorter, usando campo elétrico aplicado ao cristal<sup>(13)</sup>. A primeira observação de distribuição não equilibrada de elétrons através de espalhamento de luz provocados por foto-excitação foi conseguida em 1974 por Turtelli e outros<sup>(14)</sup>. Neste mesmo ano, A. Vasconcellos e Luzzi, calcularam a seção de choque diferencial de espalhamento de quase partículas, levando em consideração flutuação na densidade de carga e flutuação na densidade de spin<sup>(28)</sup>. Estes resultados concordaram plenamente com os resultados da referência (14), o que levou a concluir que a deformação apresenta

da no perfil do espectro Maxwelliano é devida a efeitos de muitos corpos. Estes autores sugeriram então que essa deformação pode ser usada para se medir a densidade de portadores.

Em relação ao plasma, este trabalho restringir-se-á ao estudo do espalhamento quase-elástico, através do qual se observam distribuições de velocidade não equilibradas de portadores dependendo da intensidade de excitação, em várias amostras de GaAs. Foi observado que quando se aumenta a intensidade, aumenta a temperatura das quase partículas em relação a temperatura da rede. Esse aumento da temperatura é tanto maior quanto mais puro for o semicondutor.

Um outro resultado é que quando se aumenta a densidade de portadores observam-se deformações no perfil Gaussiano da distribuição, na região de baixas energias transferidas.

A variação na densidade de portadores pode ser feita por duas maneiras ou alterando-se a dopagem dos semicondutores ou tomando-se um cristal puro e aumentando-se a densidade de portadores através da variação da intensidade de excitação. O fato curioso que se observou aqui é que, para uma mesma concentração a deformação no perfil Gaussiano dependerá do processo usado. Isto porque no segundo caso foi evidenciada a existência de plasma de componentes múltiplos (plasma duplo de elétrons e buracos). Com o aumento da intensidade de excitação, aumenta-se a densidade de elétron-buracos e a participação dos buracos no espectro de luz espalhada torna-se dominante no limite de densidade de portadores foto-excitados muito maior que densidade de portadores em condições de equilíbrio. Este efeito ocorre principalmen

te na região de baixas transferências de energia devido ao fato da massa efetiva dos buracos ser bem maior que a massa efetiva dos elétrons (ver expressão (11-25)). Portanto no espectro de espalhamento obtido experimentalmente, no segundo caso, há contribuição de ambos os portadores: os elétrons e os buracos. No primeiro processo, isto é, quando a densidade de portadores é aumentada com a dopagem o espalhamento é produzido principalmente por portadores em condições de equilíbrio, pois neste caso, a densidade desses portadores é dominante em comparação à densidade de portadores foto-excitados e a participação dos buracos (material do tipo n) ou dos elétrons (tipo p) é desprezível no seu espectro de espalhamento de luz.

Como já foi dito anteriormente, os pequenos desvios observados no perfil Maxwelliano são devidos a efeitos de muitos corpos no gás de elétrons quentes não degenerados. A secção de choque de espalhamento é afetada pela contribuição das flutuações na densidade de carga e na densidade de spin dos elétrons.

Como os resultados experimentais que serão apresentados mais adiante, envolverão contribuição tanto dos elétrons como dos buracos, a seguir será feita uma extensão da teoria da referência <sup>28</sup>(29) para o caso da componente múltipla <sup>(29)</sup>.

### 3. Espalhamento de luz por plasma duplo de elétrons e buracos.

A secção de choque de espalhamento Raman é dada por <sup>(28)</sup>:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dw} = \gamma(n_w + 1) \frac{1}{\pi} I_m \sum_{\substack{++ \\ kk' \\ nn' \\ ss'}} \langle \vec{k}ns | V | k', n's' \rangle \langle \vec{k}ns | \rho_1(w) | k', n's' \rangle \quad (11-1)$$

onde

$|\vec{k}ns\rangle$  são estados de Bloch caracterizados pelo número de onda  $\vec{k}$ , o índice de banda,  $n$ , e o índice de spin  $s$ ;

$V$  é o potencial de espalhamento;

$\rho_1$  é a flutuação do operador densidade de quase partículas de Landau induzida pelo potencial de espalhamento;

$n_w$  é a função de distribuição de Bose-Einstein;

$\hbar\omega$  é a energia transferida;

$q$  é o momentum transferido ao sistema e

$\gamma = V_0^2 w_s / (2\pi)^3 c^4$  sendo  $V_0$  o volume de espalhamento.

Na equação acima, quando ( $s = s'$ ) temos o processo de espalhamento por flutuação na densidade de carga e quando ( $s = -s'$ ) por flutuação na densidade de spin.

Embora para os casos investigados neste trabalho, o espalhamento produzido por flutuação na densidade de carga seja dominante, como veremos no capítulo V, foi calculado a secção de choque para os ambos processos.

### 3.1. Secção de choque por flutuação na densidade de carga.

Neste processo, foi feita a hipótese que a interação de um quase-eletron com a radiação é dominado pelo termo quadrático  $A^2$ , onde  $A$  é o potencial da radiação, dado que  $\omega_p < \omega_L < E_g/\hbar$ . Dentro desse esquema, pode-se considerar o elemento de matriz de potencial de espalhamento constante. O valor desta constante para uma dada condição de experiência, dependerá das massas efetivas dos eletrons e buracos, da constante dielétrica e do volume de espalhamento.

A flutuação na densidade de quase partícula é calculada usando o método do campo auto-consistente generalizado<sup>(30)</sup>.

A equação de movimento para a flutuação do operador densidade de quase partículas pode ser escrita por<sup>(32)</sup>.

$$[\omega - \epsilon(\vec{k}n) + \epsilon(\vec{k}'n')] \langle \vec{k}n | \rho_1(\omega) | \vec{k}'n' \rangle + [f_{\vec{k}n} - f_{\vec{k}'n'}] \times$$

$$\sum_{\substack{n_1 n'_1 \\ k_1 k'_1}} \langle n\vec{k}, n_1\vec{k}_1 | V_1 | n_1\vec{k}_1, n'\vec{k}' \rangle \langle n_1\vec{k}_1 | \rho_1(\omega) | n_1\vec{k}_1 \rangle =$$

$$= (f_{\vec{k}'n'} - f_{\vec{k}n}) |\vec{k}n| \chi | \vec{k}'n' \rangle \quad (11-2)$$

onde  $V_1$  é o potencial Coulombiano e  $f$  é a função de distribuição de Fermi-Dirac. Os índices de spin  $s$  e  $s'$  foram aqui suprimidos.

### 3.1.1. Secção de espalhamento para o gás de eletrons e buracos não interagindo.

Neste caso, na equação (2) tem-se  $V_1 = 0$ . Para

$\vec{k}' = \vec{k} + \vec{q}$  tem-se:

$$[\omega - \epsilon(\vec{k}n) + \epsilon(\vec{k} + \vec{q}, n')] \langle \vec{k}n | \rho_1(\omega) | \vec{k}'n' \rangle = (f_{\vec{k}+\vec{q}, n'} - f_{\vec{k}n}) \langle \vec{k}n | | \vec{k}+\vec{q}, n' \rangle$$

então:



$$\langle \vec{k}n | \rho_1(\omega) | \vec{k}'n' \rangle = \frac{(f_{\vec{k}+\vec{q},n'}^{\vec{k}} - f_{\vec{k}n}^{\vec{k}})}{[\omega - \epsilon(\vec{k}n) + \epsilon(\vec{k}+\vec{q},n')]} \langle \vec{k}n | \mathcal{V} | \vec{k} + \vec{q}, n' \rangle$$

ou

$$\langle \vec{k}n | \rho_1(\omega) | \vec{k}'n' \rangle = F(\vec{k}n, \vec{k}+\vec{q}, n') \langle \vec{k}n | \mathcal{V} | \vec{k} + \vec{q}, n' \rangle$$

ou ainda simplificando a notação vem:

$$\rho_1(\vec{k}\vec{q}nn') = F(\vec{k}\vec{q}nn', \omega) \mathcal{V}(\vec{k}\vec{q}nn') \quad (11-3)$$

onde

$$F(\vec{k}\vec{q}nn', \omega) = \frac{(f_{\vec{k}+\vec{q},n'}^{\vec{k}} - f_{\vec{k}n}^{\vec{k}})}{[\omega - \epsilon(\vec{k}n) + \epsilon(\vec{k}+\vec{q},n')]} \quad (11-4)$$

Sendo  $F(\vec{q}, \omega)$  dada por:

$$F(\vec{q}, \omega) = \sum_{\vec{k}sn'} F(\vec{k}\vec{q}nn', \omega) \quad (11-5)$$

Como no nosso resultado temos a energia transferida  $\hbar\omega$  muito menor que  $E_g$ , podemos considerar somente os processos intrabanda, isto é:

$$F(\vec{q}, \omega) = \sum_{\vec{k}s} F_{cc}(\vec{k}\vec{q}, \omega) + \sum_{\vec{k}s} F_{vv}(\vec{k}\vec{q}, \omega) \quad (11-5')$$

A secção de choque de espalhamento para o gás de eletrons e buracos não interagindo obtem-se substituindo a equação (3) em - equação (1).

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega}\right)_{cdf}^0 = \gamma(n_w+1) \frac{1}{\pi} |V|^2 I_m \sum_{\vec{k}_s} \{F_{cc}(\vec{k}+\vec{q}, w) + F_{vv}(\vec{k}+\vec{q}, w)\} \quad (11-6)$$

Supondo  $w \rightarrow w+i\epsilon$  na equação (4) e tendo  $F=F'+iF''$  tem-se:

$$F''_{cc} = \pi \sum_{\vec{k}_s} [f_c(\vec{k}+\vec{q}) - f_c(\vec{k})] \delta[\epsilon_c(\vec{k}+\vec{q}) - \epsilon_c(\vec{k}) + w] \quad (11-7)$$

$$F''_{vv} = \pi \sum_{\vec{k}_s} [f_v(\vec{k}+\vec{q}) - f_v(\vec{k})] \delta[\epsilon_v(\vec{k}+\vec{q}) - \epsilon_v(\vec{k}) + w] \quad (11-8)$$

Fazendo:

$$f(\vec{k}+\vec{q}) - f(\vec{k}) = \vec{q} \cdot \partial f / \partial \vec{k}$$

$$\epsilon(\vec{k}+\vec{q}) - \epsilon(\vec{k}) = \vec{q} \cdot \vec{k} / m$$

e passando a soma em  $\vec{k}$  para uma integração em coordenadas esféricas, as equações (7) e (8) tornam-se:

$$F''_{cc} = \frac{V_0}{2\pi} \frac{m_e^2 w}{q} \int_{\frac{m_e w^2}{2q^2}}^{\infty} \frac{\partial f(\epsilon_c)}{\partial \epsilon_c} d\epsilon_c \quad (11-9)$$

$$F_{VV}'' = \frac{V_0}{2\pi} \frac{m_b^2 w}{q} \int_{\frac{m_b w^2}{2q^2}}^{\infty} \frac{\partial f(\epsilon_v)}{\partial \epsilon_v} d\epsilon_v \quad (11-10)$$

Para o caso de plasma de partículas não degenerado, isto é,  $T \gg T_F$ , donde  $T$  é a temperatura do sistema e  $T_F$  é a temperatura de Fermi, a função de Fermi-Dirac tende à distribuição de Maxwell-Boltzmann

$$f(\epsilon) = \frac{4\pi^3 n}{(2\pi m^* k_B T)^{3/2}} e^{-\beta T} = A e^{-\beta T}$$

com  $\beta = \frac{1}{k_B T}$ ,  $k_B$  a constante de Boltzmann. Logo para o sistema de eletrons e de buracos tem-se:

$$\frac{\partial f(\epsilon_c)}{\partial \epsilon_c} = -\beta A_c e^{-\beta \epsilon_c} \quad (11-11)$$

$$\frac{\partial f(\epsilon_v)}{\partial \epsilon_v} = -\beta A_v e^{-\beta \epsilon_v} \quad (11-12)$$

com temperatura dos eletrons igual a temperatura dos buracos.

Substituindo os resultados das derivadas (11) e (12) nas equações (9) e (10) e integrando-as obtem-se:

$$F''_{cc} = V_0 n_e \sqrt{\pi} \beta \xi_e e^{-\xi_e^2} \quad (11-13)$$

$$F''_{vv} = V_0 n_b \sqrt{\pi} \beta \xi_b e^{-\xi_b^2} \quad (11-14)$$

com  $\xi_e = \frac{w}{q \cdot v_{te}}$  e  $\xi_b = \frac{w}{q \cdot v_{tb}}$ ,  $v_t$  a velocidade tér-

mica das partículas.

Logo:

$$\left[ \frac{d^2 \sigma}{dw d\Omega} \right]_{cdf}^0 = V_c^2 \left[ n_e \xi_e e^{-\xi_e^2} + n_b \xi_b e^{-\xi_b^2} \right] \quad (11-15)$$

onde  $V_c^2$  é uma constante cujo valor depende das características do cristal e da polarização da luz incidente e espalhada<sup>(28)</sup>.

### 3.1.2. Para o gás interagindo.

Neste caso o potencial Coulombiano  $V_1$  da equação (2) é diferente de zero. O cálculo detalhado para o plasma simples de eletrons é feito na referência (32).

Estendendo-se para o plasma duplo de eletrons e buracos, a soma da expressão (1) fica:

$$S = \sum_{\substack{kn \\ k'n'}} \langle kn | V | k'n' \rangle \langle kn | \rho_1(w) | k'n' \rangle = \frac{|V_c|^2 F(\vec{q}, w)}{1 - V(\vec{q}) F(\vec{q}, w)} \quad (11-16)$$

onde  $\rho_1$  foi calculada resolvendo-se a equação integral (11-2) e

$$V(\vec{q}) = 4\pi e^2 / \epsilon_\infty q^2 ; \epsilon_\infty \text{ é a constante dielétrica do meio.}$$

A parte imaginária desta soma é:

$$\text{ImS} = \frac{|V_c|^2 F''(\vec{q}, w)}{[1 - V(\vec{q}) F'(\vec{q}, w)]^2 + [V(\vec{q}) F''(\vec{q}, w)]^2} \quad (11-17)$$

com  $F'(\vec{q}, w) = F'_{cc}(\vec{q}, w) + F'_{vv}(\vec{q}, w)$  onde  $F'(\vec{q}, w)$  é o valor principal das integrais que aparecem em (11-5').

Substituindo o resultado da expressão (16) na equação (1) tem-se a secção de choque de espalhamento por flutuação na densidade de carga de um plasma duplo:

$$\left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dw} \right)_{cdf} = \gamma (n_w + 1) \frac{1}{q} |V_c|^2 |F''(\vec{q}, w)| / |\epsilon(\vec{q}, w)|^2$$

ou simplesmente:

$$\left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dw} \right)_{cdf} = \left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dw} \right)_{cdf}^0 / |\epsilon(\vec{q}, w)|^2 \quad (11-18)$$

onde  $\epsilon(\vec{q}, w) = 1 - V(\vec{q}) F(\vec{q}, w)$

é a constante dielétrica de Lindhard<sup>(31)</sup> e

$$|\epsilon(\vec{q}, w)|^2 = [1 - V(q) (F'_{cc} + F'_{vv})]^2 + [V(q) (F''_{cc} + F''_{vv})]^2 \quad (11-19)$$

onde os  $F'_{cc}$  e  $F'_{vv}$  tomam os seguintes valores:

$$F'_{cc} = \beta n_e [-1 + 2 \xi_c D(\xi_c)]$$

$$F'_{vv} = \beta n_b [-1 + 2 \xi_b D(\xi_b)]$$

onde  $D(\xi)$  é a integral de Dawson (33).

Logo:

$$\text{Re}\epsilon = 1 - \frac{2w^2 p_e}{q^2 v_{te}^2} (-1 + 2 \xi_e D(\xi_e)) - \frac{2w^2 p_b}{q^2 v_{tb}^2} (-1 + 2 \xi_b D(\xi_b)) \quad (11-20)$$

$$\text{Im}\epsilon = 2\sqrt{\pi} \left[ \frac{w^2 p_e}{q^2 v_{te}^2} \xi_e \exp(-\xi_e^2) + \frac{w^2 p_b}{q^2 v_{tb}^2} \xi_b \exp(-\xi_b^2) \right] \quad (11-21)$$

onde  $\omega_{pe,b}^2 = \frac{4\pi n_{e,b} e^2}{\epsilon_\infty m_{e,b}}$  é a frequência de plasma dos elétrons (buracos).

$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dw}\right)_{cdf}^o$  é a seção de choque para as partículas que não integram. A constante dielétrica do gás de elétrons que aparece ao quadrado no denominador é responsável por um efeito de blindagem. Este fenômeno causa uma deformação no perfil Maxwelliano, isto é, reduz a seção de espalhamento por partículas individuais pelo fator  $|\epsilon(\vec{q}, w)|^2$ .

### 3.2. Secção de choque de espalhamento por flutuação na densidade de spin.

Neste caso, leva-se em consideração o acoplamento da radiação com a distribuição de spins do sistema. Um fóton quando espalhado perturba o movimento eletrónico causando uma flutuação na densidade de spins. O potencial de espalhamento é dado através de um processo de terceira ordem: envolvendo por duas vezes o acoplamento dipolar A.p e uma vez a interação spin-orbita. Assumindo as mesmas condições de contorno e o mesmo procedimento anterior temos para a secção de espalhamento por flutuação na densidade de spin a seguinte expressão:

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dw} \right)_{sdf} = \left( \frac{d^2}{dwd\Omega} \right)_{sdf}^0 / |\mu(q,w)|^2 \quad (11-22)$$

onde o numerador é a secção de espalhamento para o gás de eletrões e buracos não interagindo e o denominador é a susceptibilidade magnética do material. Como no processo anterior, devido à existência do fator no denominador, o perfil Maxwelliano se apresenta deformado.

A expressão para a secção de espalhamento para o gás não interagindo é praticamente igual a expressão (11-15) diferindo apenas de uma constante:

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dw} \right)_{sdf}^0 = V_s^2 \left[ n_e \xi_e e^{-\xi_e^2} + n_b \xi_b e^{-\xi_b^2} \right]$$

onde  $V_s$  é uma constante que depende das características do cristal e da polarizabilidade da luz incidente e espalhada.

Neste processo, admitindo-se o potencial de troca bilinear, tem-se uma interação do tipo de contato  $V(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = U\delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$  onde  $\vec{r}_1$  e  $\vec{r}_2$  são as posições dos elétrons<sup>(34)</sup>. Portanto a susceptibilidade magnética pode ser dada por<sup>(32)</sup>:

$$\mu(\vec{q}, \omega) = 1 + (U/N)G(\vec{q}, \omega) \quad (11-24)$$

onde  $G(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2} F(\vec{q}, \omega)$ ,  $N$  é o número de portadores e  $U$  é o potencial de contato de intensidade  $U = U'n$ .

A parte real e a parte imaginária de  $\mu(\vec{q}, \omega)$  são dadas por:

$$\text{Re } \mu = 1 + \beta_e U_e (-1 + 2\xi_e D(\xi_e)) + \beta_b U_b (-1 + 2\xi_b D(\xi_b))$$

$$\text{Im } \mu = 2\sqrt{\pi} (\beta_e U_e \xi_e \exp(-\xi_e)^2 + \beta_b U_b \xi_b \exp(-\xi_b)^2)$$

É interessante observar que esse processo, ao contrário da interação Coulombiana, a secção de espalhamento na região de baixa transferência de energia é aumentada por um fator  $|\mu(\vec{q}, \omega)|^2$ .

A secção de choque total de espalhamento será portanto dada pela soma das secções de choque para esses dois processos (expressões 18 e 22):



$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} = \left[ n_e e^{-\xi_e^2} + n_b (m_b/m_e)^{\frac{1}{2}} e^{-\xi_b^2} \right] \left[ \frac{V_c^2}{|\epsilon|^2} + \frac{V_s^2}{|\mu|^2} \right]$$

( 11-25 )

O valor relativo de  $V_c^2$  e  $V_s^2$  é discutível.

Não há nenhum cálculo teórico detalhado até o presente trabalho que dê os valores de  $V_c$  e  $V_s$ . Nos dados de Mooradian <sup>(34')</sup> o valor de  $V_c^2$  para as baixas concentrações de portadores é da ordem de 30 vezes maior que o de  $V_s^2$ . Aqui, o valor da relação  $V_c^2/V_s^2$  foi determinado baseando-se no melhor ajuste com os dados experimentais deste trabalho.

CAPÍTULO IIIFÔNONS1. Introdução.

Num cristal composto de  $N$  celas primitivas com  $n$  átomos por cela, há  $3nN$  modos normais de vibrações de rede. Destes  $3nN$  modos, o número ramos será  $3n$ . A aproximação harmônica leva a um sistema de quase partículas livres chamadas fônons, cada um dos quais caracterizado pela sua energia  $\hbar\omega$ , momentum  $\hbar\mathbf{q}$  e índice de ramo  $j$ . Cada fon da rede move com a frequência  $\omega$  e tem uma polarização elíptica que está relacionada unicamente com o índice de ramo  $j$ . Um semi condutor de estrutura cristalina "Zinc-Blende" como o GaAs, contém dois átomos em cada cela unitária. O número da vibração da rede será então seis que correspondem a seis ramos da curva de dispersão dos fônons: 3 ramos acústicos (um acústico longitudinal LA e dois acústicos transversais TA) e 3 ramos ópticos (um óptico longitudinal LO e dois ópticos transversais TO).

Uma das técnicas mais usadas para o estudo das propriedades do fônons em sólidos é o espalhamento da luz. Como já foi dito anteriormente, esta técnica vem sendo utilizadas intensamente com o desenvolvimento do laser.

2. Espalhamento de luz por fônons ópticos longitudinais.

O estudo das distribuições não equilibradas dos fônons LO é também uma das finalidades deste trabalho. A concepção ori-

ginal para esta parte do trabalho era comparar as temperaturas efetivas dos fônons quentes e elétrons quentes no GaAs. Como para o caso de plasmas, parte do feixe incidente é "gasto" na foto-excitação (por absorção a um fóton no caso  $\hbar\omega_L > E_g$ , e absorção a dois fótons no caso  $\hbar\omega_L < E_g$ ) e o resto do feixe é espalhado elástica e inelasticamente.

As primeiras medidas de espalhamento Raman de primeira ordem em GaAs, InP, AlSb e GaP foram feitas por Mooradian e Wright em 1966<sup>(35)</sup>; usando laser de Nd. Em 1967, Villa-Coleiro<sup>(36)</sup> observou fônons ópticos longitudinais quentes em CdS, por intermédio da geração de portadores energéticos criados por foto-absorção e por aplicação de um campo magnético ao cristal. Mais tarde, 1970, Shah e outros<sup>(8)</sup>, usando técnica de espalhamento Raman superficial em GaAs, observaram também nesse material fônons LO quentes. A geometria utilizada foi a de retro-espalhamento (backscattering), isto é a luz só podia ser espalhada por fônons de vetor de onda  $q \approx 2k_1$ . Esta mesma técnica foi estendida por Mattos<sup>(10)</sup> para estudar os cristais: Si, InSb e GaSe. Estes resultados mostraram que a interação elétron-fônon é responsável pela aquecimento dos fônons ópticos LO. Fônons não equilibrados também foram observados no interior do cristal de GaAs, por absorção de dois fótons<sup>(11)</sup>. Este resultado é curioso, pois foram observados fônons quentes com vetores de onda  $q$  menores que  $q_{min}$ . Neste caso, o modelo proposto pela referência (8) não pode explicar a geração de fônons quentes. Em ambos os tipos de experiência (superficial e no interior) os fônons quentes foram evidenciados através do estudo da razão S/AS. O primeiro cálculo da razão de geração de fônons quentes pelo de-

caimento de, eletrons foto-excitados foi feito por Shah e outros<sup>(8)</sup> levando em conta somente a emissão espontânea. Mais tarde, um cálculo mais detalhado foi feito por Levinson e Levinsky<sup>(37)</sup> incluindo também a absorção e a emissão induzida.

### 3. Considerações Teóricas sobre os fônons ópticos de primeira ordem.

#### 3.1. Intensidade e concentração dos fônons quentes.

Consideramos o espalhamento inelástico de um fóton de vetor de onda  $\vec{k}$  e frequência  $w$  para um estado de vetor de onda  $\vec{k}_s$  e frequência espalhada  $w_s$ , representada na figura 2.

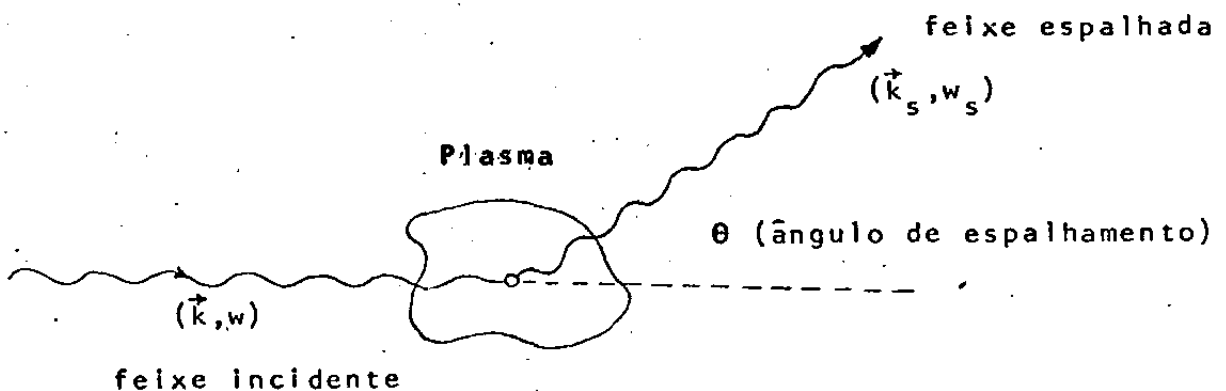


Fig. 2 : Diagrama esquematizada de um processo típico de espalhamento Raman.

Para o espalhamento  $\theta = 90^\circ$  e com luz não polarizada, a intensidade do espectro Raman para componente Stokes pode ser dada por<sup>(38)</sup>:

$$I = \frac{3\hbar w_s^4 L d\Omega}{\rho c^4 w_{LO}} |\alpha|^2 (n + 1) \quad (III-1)$$

onde  $L$  é o comprimento do cristal na direção da luz incidente,  $\rho$  é sua densidade,  $n$  é o número de ocupação dos fônons e  $\alpha$  é o tensor de polarizabilidade eletrônico. Para componentes Anti-Stokes,  $(n + 1)$  deve ser substituídos por  $n$ . Examinando-se a equação (23), as seguintes consequências interessantes podem ser obtidas:

- i. a intensidade  $I$  depende intensamente com a frequência da luz de excitação ( $w_s^4 \approx w_{laser}^4$ ).
- ii. quanto mais próximo estiver à linha Raman da luz de excitação (isto é, quanto menor o valor de  $w_{LO}$ ) mais intensa ela será.
- iii. A intensidade Raman de primeira ordem depende da temperatura através dos termos  $(n + 1)$  e  $n$ , para componentes Stokes e Anti-Stokes, respectivamente. O número de ocupação para os fônons (bosons) é dado por:

$$n = \left[ e^{\hbar w_{LO}/k_B T} - 1 \right]^{-1} \quad (III-2)$$

então a relação entre  $I_{As}$  e  $I_s$  é dada por:

$$I_{As}/I_s = \frac{n + 1}{n} = \exp(\hbar w_{LO}/k_B T) \quad (III-3)$$

A expressão (III-3) é válida ainda no caso mais geral em que os fônons não estejam em equilíbrio com a rede, mas estejam em quase-equilíbrio interno a uma temperatura efetiva  $T^*$  ("fônons quentes").

A concentração total dos fônons óptico produzidos pode ser estimada pela fórmula (8)

$$n \sim \frac{P\tau}{\hbar\omega_{LO}} \quad (111-4)$$

onde  $P$  é a potência por unidade de volume disponível para criar fônons  $LO$  e  $\tau$  é o tempo de vida dos fônons.

### 3.2. Cálculo de $q_{min}$ do fônon $LO$ para bandas parabólicas e não parabólicas.

Consideremos um elétron foto-excitado de momento  $\hbar\vec{k}_1$  que decai para  $\hbar\vec{k}_2$  com emissão de um fônon de momento  $\hbar\vec{q}$  e energia  $\hbar\omega_{LO}$  (ver figura 1). A conservação de momentum exige:  $\vec{k}_1 = \vec{k}_2 + \vec{q}$ , e de energia:  $E(\vec{k}_1) = E_2(\vec{k}_2) + \hbar\omega_{LO}(\vec{q})$ . O menor valor de  $\vec{q}$  é obtido quando  $\vec{k}_1$  e  $\vec{k}_2$  são paralelos e o maior valor ( $\vec{q} \approx 2\vec{k}_2$ ) quando  $\vec{k}_1$  e  $\vec{k}_2$  são anti-paralelos, como mostra a (figura-3).

Como  $\omega_{LO}$  depende fracamente de  $\vec{q}$ , há varios valores de  $\vec{q}$  para os quais a equação tem solução, e que estão distribuídos entre um mínimo  $q_{min}$  e um máximo  $q_M$ . O valor de  $q_{min}$  será:

$$q_{min} = \frac{\hbar\omega_{LO}}{|\text{grad } E_c|_k}$$

com  $|\text{grad } E_c|_k$  máximo.

FIG. 3

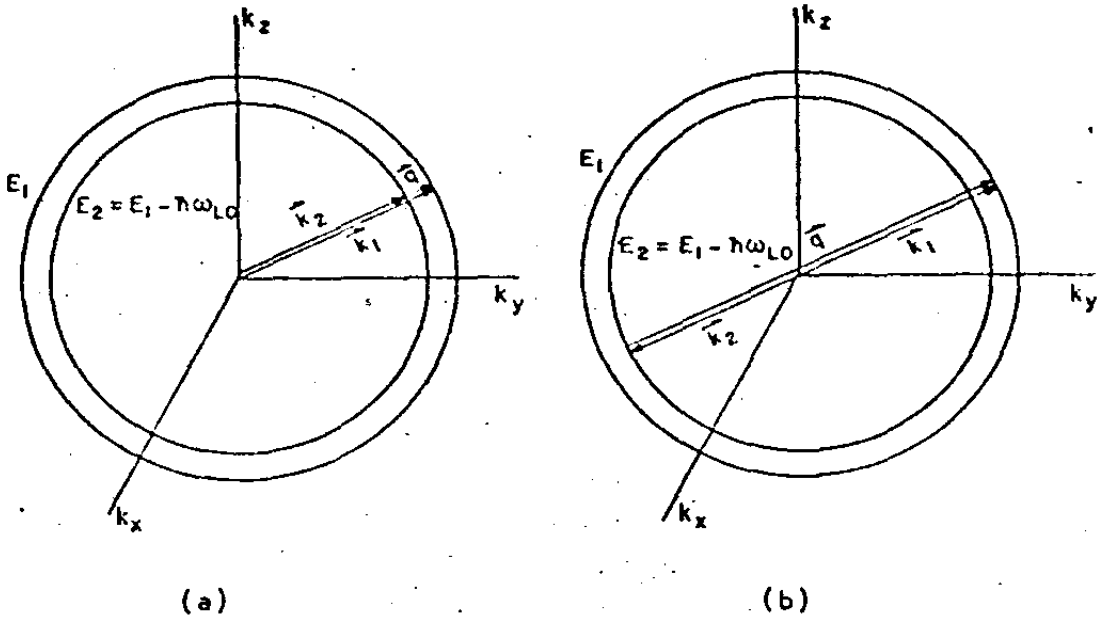


FIG. 3: Espalhamento de eletron de superfície esférica de energia constante  $E_1$  para superfície de energia  $E_2$ :  
 a) momentum de eletron  $\vec{k}_1$  paralelo a  $\vec{k}_2$  ;  
 b) momentum de eletron  $\vec{k}_1$  anti-paralelo a  $\vec{k}_2$  .

O GaAs, como já foi lembrado, tem uma estrutura cúbica ("zinc-blende"). Então o valor de  $k_B$  ( a distância compreendida entre a origem e a face hexagonal da primeira zona de Brillouin) é dado por

$$\frac{\pi}{a} |(\vec{i} + \vec{j} + \vec{z})| = \sqrt{3} \frac{\pi}{a}$$

onde  $a$  é o parâmetro da rede. Para este cristal tem-se  $a = 5,6 \text{ \AA}$  portanto  $k_B \sim 10^8 \text{ cm}^{-1}$ .

Neste cristal, admitindo as bandas parabólicas, perto da origem a faixa de condução vale  $E_c(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}$  e de valência  $E_v(\vec{k}) = -E_g - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_b}$ .

Na absorção de dois fótons, um elétron mono-energético com excesso de energia  $\Delta E_e = 0,92$  eV pode ser criado em qualquer ponto  $\vec{k}$  da primeira zona de Brillouin onde a relação

$$E_c(\vec{k}) - E_v(\vec{k}) = \Delta E = 2\hbar\omega_L - E_g \quad (III-5)$$

seja satisfeita. Resolvendo (III-5) obtemos

$$k_1 = \sqrt{2m_e \Delta E / \hbar^2} \approx 1,3 \times 10^7 \text{ cm}^{-1},$$

que é da ordem de  $k_B/7$ . Este é o maior vetor  $k$  que qualquer elétron foto-excitado poderá ter. Portanto, o decaimento dos elétrons foto-excitados longe da origem também produz fônons.

Para  $E_c(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}$ , observa-se que  $|\text{grad } E_c|$  sempre cresce. Tomemos, então, como limite superior para  $|\text{grad } E_c|$  na primeira zona de Brillouin, o valor em  $k_1$ .

Tem-se então

$$q_{\min} = \sqrt{\frac{m_e \omega_L^2}{2\Delta E_e}} \quad (III-6)$$

E para  $q_H \approx 2k_1$ , tem-se

$$q_H = \sqrt{\frac{8m_e \Delta E_e}{\hbar^2}} \quad (III-7)$$

Os valores numéricos obtidos das equações (6) e (7), usando os parâmetros da tabela-1, são respectivamente  $2,6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  e  $2,7 \times 10^7 \text{ cm}^{-1}$ .

Mas na realidade, as bandas não são parabólicas. Levando-



-se em conta a não parabolicidade da faixa de condução, chega-se à seguinte expressão para o valor de  $q_{\min}$  dos fonons  $L_0$ :

$$q_{\min} = (m_e \omega_{L_0} / \hbar k_1) \left[ 1 + \left( \frac{E_g^2}{E_p^2} + \frac{\hbar^2 k_1^2}{E_p m_e} \right)^{-1/2} \right]^{-1} \quad (III-8)$$

onde  $2E_p/m_0$  é o elemento de matriz inter-banda e  $m_0$  é a massa do elétron livre.

Deduziremos, a seguir, a fórmula acima.

Para  $k \leq 10^7 \text{ cm}^{-1}$ , a mais baixa banda de condução e a mais alta banda de valência podem ser dadas por (39):

$$E_c(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \frac{E_g}{2} \left[ \left( 1 + \frac{4E_p \hbar^2 k^2}{E_g^2 2m_0} \right)^{1/2} - 1 \right] \quad (III-9)$$

$$E_v(\vec{k}) = \frac{\hbar^2}{2m} \left\{ Ak^2 \pm \left[ B^2 k^4 + C^2 (k_x^2 k_y^2 + k_y^2 k_z^2 + k_z^2 k_x^2) \right]^{1/2} \right\} \quad (III-10)$$

onde A, B e C são os parâmetros da banda de valência cujos valores são dados por Lawaetz (40), e  $m_0$  é a massa do elétron livre.

| Símbolo             | Valor      | Símbolo | Valor                                |
|---------------------|------------|---------|--------------------------------------|
| $E_g (300^\circ K)$ | 1.43 eV    | A       | -7.65                                |
| n                   | 3,4        | B       | -4.82                                |
| $m_e$               | 0,07 $m_0$ | C       | 7,71                                 |
| $m_b$               | 0,57 $m_0$ | $U'_e$  | $12 \times 10^{-20} \text{ eV cm}^3$ |
| $E_\infty$          | 12         | $U'_b$  | $12 \times 10^{-20} \text{ eV cm}^3$ |

Tabela 1: Valores numéricos usados para vários parâmetros.

A derivada de  $E_c(\vec{k})$  será:

$$\frac{\partial E_c}{\partial k} = \frac{\hbar^2 k}{m_0} + \frac{E_p \hbar^2 k}{E_g m_0} \left( 1 + \frac{4E_p \hbar^2 k^2}{E_g^2 2m_0} \right)^{-1/2} \quad (III-11)$$

Verificamos que a derivada  $\partial E_c / \partial k$  sempre cresce. Lembrando-se que a função (III-9) é válida para um intervalo limitado de  $k$  ( $k \leq k_B/10$ ), calculamos o valor da  $\partial E / \partial k$  no ponto  $k_1$ , onde é máximo o vetor de onda dos eletrons foto-excitados. Tem-se então:

$$q_{\min} = \frac{\hbar \omega_{LO}}{\frac{\hbar^2 k}{m_0} \left[ 1 + \frac{E_p}{E_g} \left( 1 + \frac{2E_p \hbar^2 k^2}{E_g^2 m_0} \right)^{-1/2} \right]_{k_1}}$$

que é a expressão (III-8).

Resolvendo-se a equação (III-5) para o caso não parabólico, encontra-se o valor de  $k_1$  que é  $1,4 \times 10^7 \text{ cm}^{-1}$  (ver Apêndice I). Com  $\hbar \omega_{LO} = 36,1 \text{ meV}$  e  $k = k_1$ , para (III-8), encontramos um valor de  $q_{\min}$  igual a  $4,2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ .

Este resultado foi surpreendente, pois nota-se que há grande influência da não parabolicidade da banda no valor de  $q_{\min}$ . (caso parabólico,  $q_{\min} = 2,6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ ).

Pode-se concluir então que os vetores de onda dos fônons emitidos em processos de um único fônon, estão compreendidos entre  $4,2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  e  $2,8 \times 10^7 \text{ cm}^{-1}$ .

### 3.3 : Relação de dispersão de modos acoplados plasmon-fônon.

Em semicondutores polares a interação entre os eletrons e as vibrações da rede se dá principalmente com os fônons ópticos longitudinais. É bem conhecido que se a frequência de plasma do

semicondutor é da mesma ordem da frequência dos fônons LO, a interação destas excitações resulta na formação de modos acoplados plasmon-fônon.

O primeiro estudo teórico sobre os modos acoplados em semicondutores polares foi feito por Varga em 1965 (41). Ele mostrou que no limite de comprimento de onda grande, a frequência dos fônons pode ser dada em função de densidade de portadores, e que a função resposta dielétrica total, consistindo de fônons ópticos polares e portadores pode ser dada pela equação:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}}{1 - \frac{\omega^2}{\omega_{T0}^2}} - \frac{\omega_p^2 \epsilon_{\infty}}{\omega(\omega + \frac{i}{\tau})} \quad (III-13)$$

onde  $\epsilon_0$  = constante dielétrica estática.

$\epsilon_{\infty}$  = constante dielétrica óptica

$\omega_{T0}$  = frequência do fônon T0

$\tau$  = tempo de colisão fenomenológico

$\omega_p$  = frequência de plasma

O tempo de vida dos fônons foi desprezado aqui. Os fônons ópticos transversais  $\omega_{T0}$  independem da presença de portadores individuais, mas dependem das propriedades de polarização (42).

A relação de dispersão dos modos plasmon-fônon é dada pelas raízes da constante dielétrica longitudinal do cristal:

$$\epsilon_L(\omega, q) = 0 \quad (III-14)$$

E a solução é dada por:

$$\omega_{\pm}^2 = \frac{1}{2}(\omega_{LO}^2 + \omega_p^2) \pm \frac{1}{2}[(\omega_{LO}^2 + \omega_p^2) - 4\omega_p^2 \omega_{TO}^2]^{1/2} \quad (III-15)$$

ou

$$x_{\pm}^2 = \frac{1}{2} \left\{ \alpha + y^2 \pm [(\alpha + y^2)^2 - 4y^2]^{1/2} \right\} \quad (III-15')$$

onde  $x = \frac{\omega}{\omega_{TO}}$  ;  $y = \frac{\omega_p}{\omega_{TO}}$  ;  $\alpha = \frac{\epsilon_0}{\epsilon_{\infty}} = \frac{\omega_{LO}^2}{\omega_{TO}^2}$

A figura 4 mostra a relação de dispersão prevista pela equação (III-15)

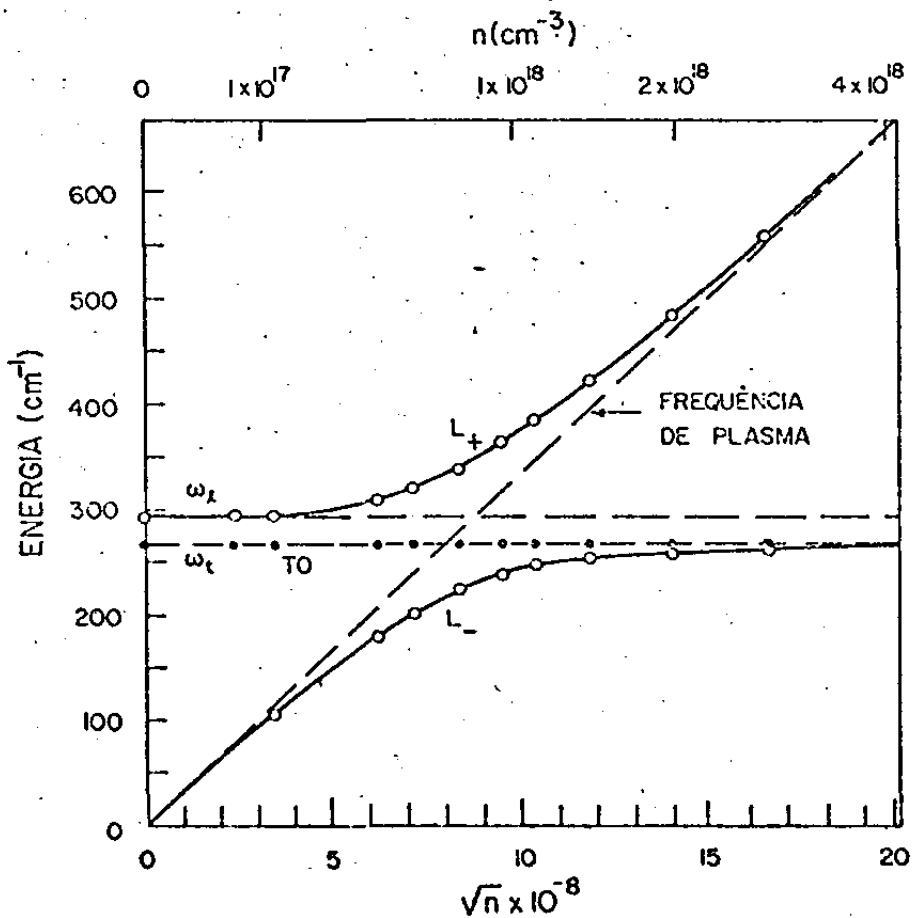


Fig. 4 : Curva de dispersão dos modos acoplados plasmon-fônon (Mooradian e McWhorter - 1967).

Mooradian e McWhorter <sup>(6)</sup> mostraram depois (1967) que o deslocamento Raman obedecia a esta lei, portanto corroborando a teoria de Varga.

CAPITULO IV

PARTE EXPERIMENTAL

1. Introdução.

Todas as medidas de espalhamento de luz foram feitas à temperatura ambiente com amostras de GaAs não orientadas e de diferentes dopagens, desde semi-isolantes até  $1,4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Os cristais, em geral, foram cortados em formas de placas retangulares cujas dimensões são aproximadamente  $3 \times 5 \times 10 \text{ mm}^3$ . Todas as faces das amostras foram polidas inicialmente por método mecânico e depois quimicamente usando-se uma solução de Peroxido-Alcalino<sup>(43)</sup>. O polimento deve ser o mais perfeito possível a fim de retardar o mais possível a queima do cristal no ponto de incidência do feixe de luz. As amostras, em geral, foram cedidas por A. Mooradian com as concentrações de portadores já especificadas. Através das medidas de transmissão usando espectrofotômetro, foram determinados os coeficientes de absorção linear para as amostras de resistividade mais alta. A (tabela 2) lista as quatro amostras utilizadas neste trabalho com as respectivas concentrações nominais.

| amostra                  | # 8           | # 9            | # 5                  | # 6                  |
|--------------------------|---------------|----------------|----------------------|----------------------|
| $n(\text{cm}^{-3})$      | semi-isolante | $\sim 10^{15}$ | $1.7 \times 10^{17}$ | $1.4 \times 10^{18}$ |
| $\alpha(\text{cm}^{-1})$ | 0             | 0,8            | -                    | -                    |

Tabela 2 : Valores das concentrações nominais dos eletrons e coeficientes de absorção linear das amostras utilizadas.

## 2. Técnica utilizada.

### 2.1. Sistema Óptico.

A fonte de excitação foi um laser de Nd:YAG operando em 1,06  $\mu\text{m}$ . O GaAs é transparente para este comprimento de onda, portanto os fenômenos observados não sofrem influência do estado de superfície das amostras. A luz espalhada foi coletada a  $90^\circ$  em relação à direção do raio incidente, e foi analisada por um espectrômetro duplo de alta resolução (SPEX 1406) com as redes de difração otimizadas para  $1\mu$ . O feixe do laser foi focalizado no interior da amostra numa área de aproximadamente  $10^{-4} \text{ cm}^2$ .

### 2.2. Sistema detetor.

A detecção da luz espalhada foi feita usando-se fotomultiplicadora S-1, resfriada a  $-150^\circ\text{C}$  e um contador de fótons. As vantagens e desvantagens do uso da técnica do contador de fótons aqui utilizado encontram-se discutidas na referência (44). O sinal da fotomultiplicadora passa por um pré-amplificador e depois por um discriminador de pulsos rápidos (SSR 1120) indo então ao contador de fótons de 85 MHz (SSR 1110). Foi usado um gerador de pulso externo para abrir a janela de contagem do SSR 1110 e disparar um "boxcar" que age como linha do retardo. A figura 5 mostra o diagrama de bloco da montagem utilizada na experiência.

### 2.3. Calibração do sistema detetor.

A sensibilidade da fotomultiplicadora S-1 cai quase exponencialmente para comprimento de ondas grandes. O intervalo

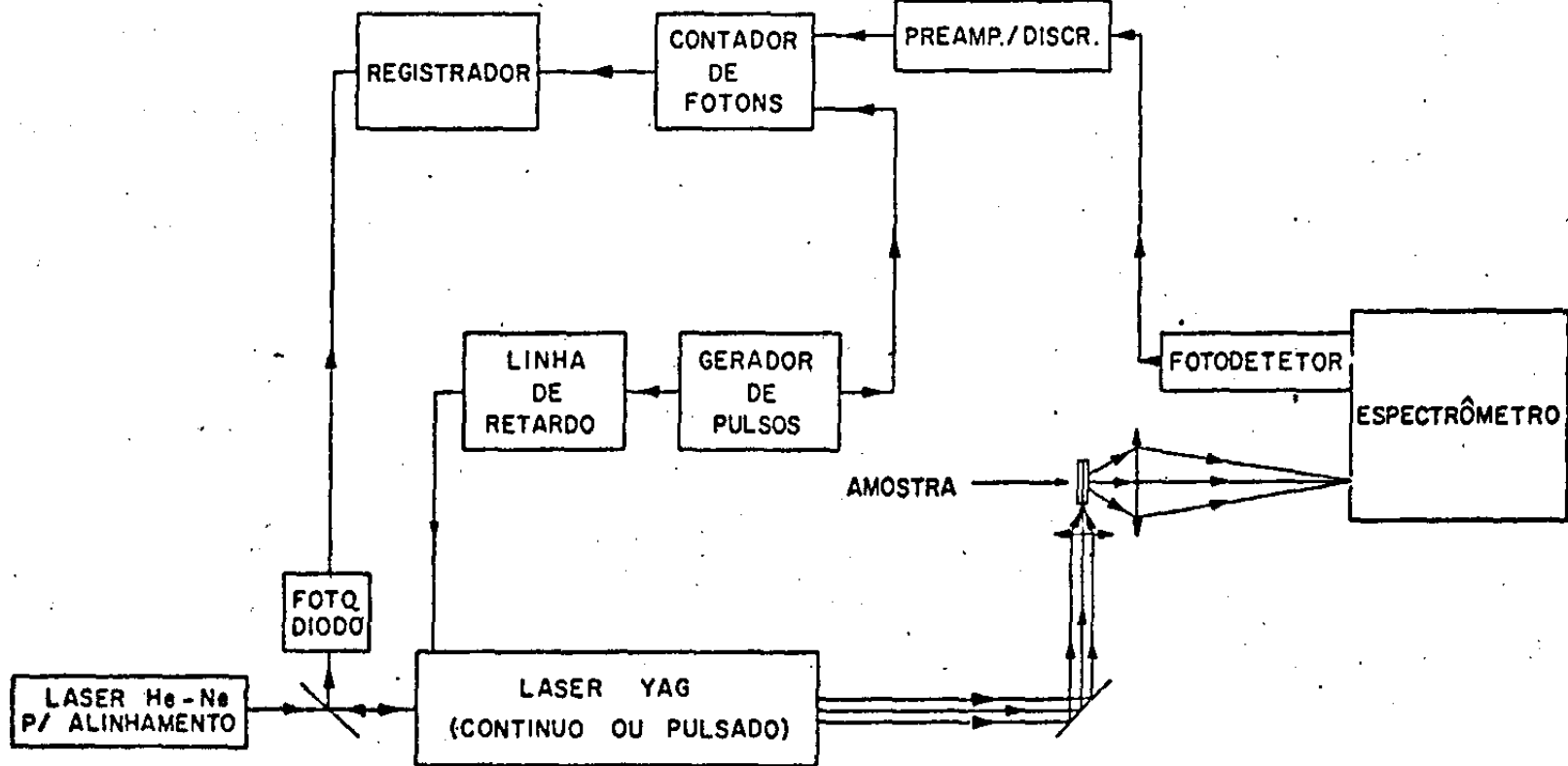


Fig. 5: Esquema da montagem utilizada.



de  $\Delta\lambda$  que separa as linhas dos fônons Stokes e Anti-Stokes em GaAs é da ordem de  $600 \text{ \AA}$ , e como as temperaturas efetivas são determinadas através das relações entre as intensidades dos componentes Stokes e Anti-Stokes, torna-se necessária uma calibração cuidadosa do sistema detetor (redes de difração e fotomultiplicadora) e uma boa estabilidade da potência do laser. A calibração foi feita utilizando-se uma lâmpada padrão M-117 (6,5 A). O resultado é mostrado na (fig.6).

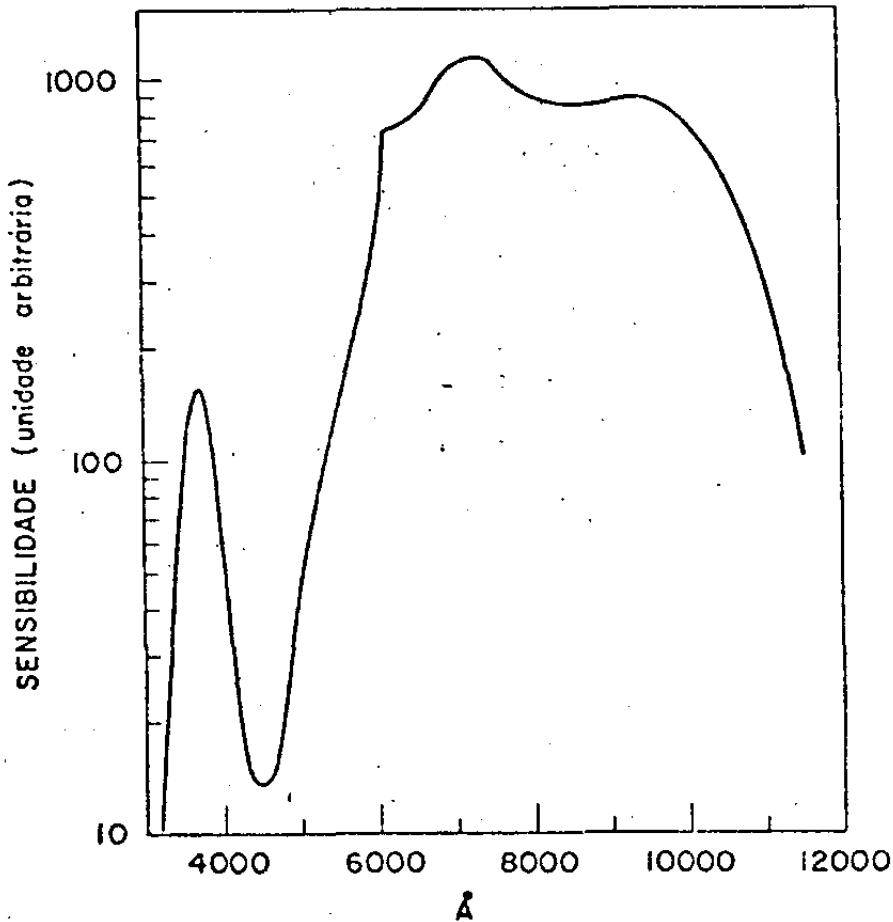


FIG. 6 : Sensibilidade do sistema: fotomultiplicadora S-1 (800 volts e resfriada com vapor de  $N_2$ ) e redes de difração otimizadas para  $1\mu$ .

Durante a medida, o sinal de um foto-diodo monitor da potência de saída do laser era registrado simultaneamente com o sinal Raman, permitindo assim correções quando ocorriam flutuações na intensidade do feixe de luz.

### 3. Medidas.

Para cada uma das quatro amostras citadas na secção 1, foi tirada uma série de espectros Raman para várias intensidades de excitação. Em algumas séries variaram-se a potência de pico do laser e a potência média, mantendo-se fixa a frequência de repetição, em outras séries ambas foram variadas. A máxima potência de pico utilizada foi de 8,1 Kw e a mínima de 200 mw.

Essas medidas, como já foi ressaltado anteriormente, tem por objetivo estudar as distribuições não equilibradas de partículas individuais e de fônons quentes em função do nível de excitação. Pretende-se ainda estudar as deformações devido ao efeito de muitos corpos observados nas regiões de baixa transferência de energia do espectro Maxwelliano das partículas individuais principalmente nas amostras de alta resistividade.

A distribuição de não equilíbrio são caracterizadas pelas temperaturas efetivas. Para os eletrons quentes, estas temperaturas são estimadas por ajuste da curva de intensidade espalhada teórica com os dados experimentais, e para os fônons quentes através da largura e da relação entre as intensidades dos componentes Stokes e Anti-Stokes

A figura-7 mostra espectros típicos das quatro amostras da tabela 2. Os espectros foram tirados à temperatura ambiente. Como podemos ver, o intervalo de comprimento de onda em questão

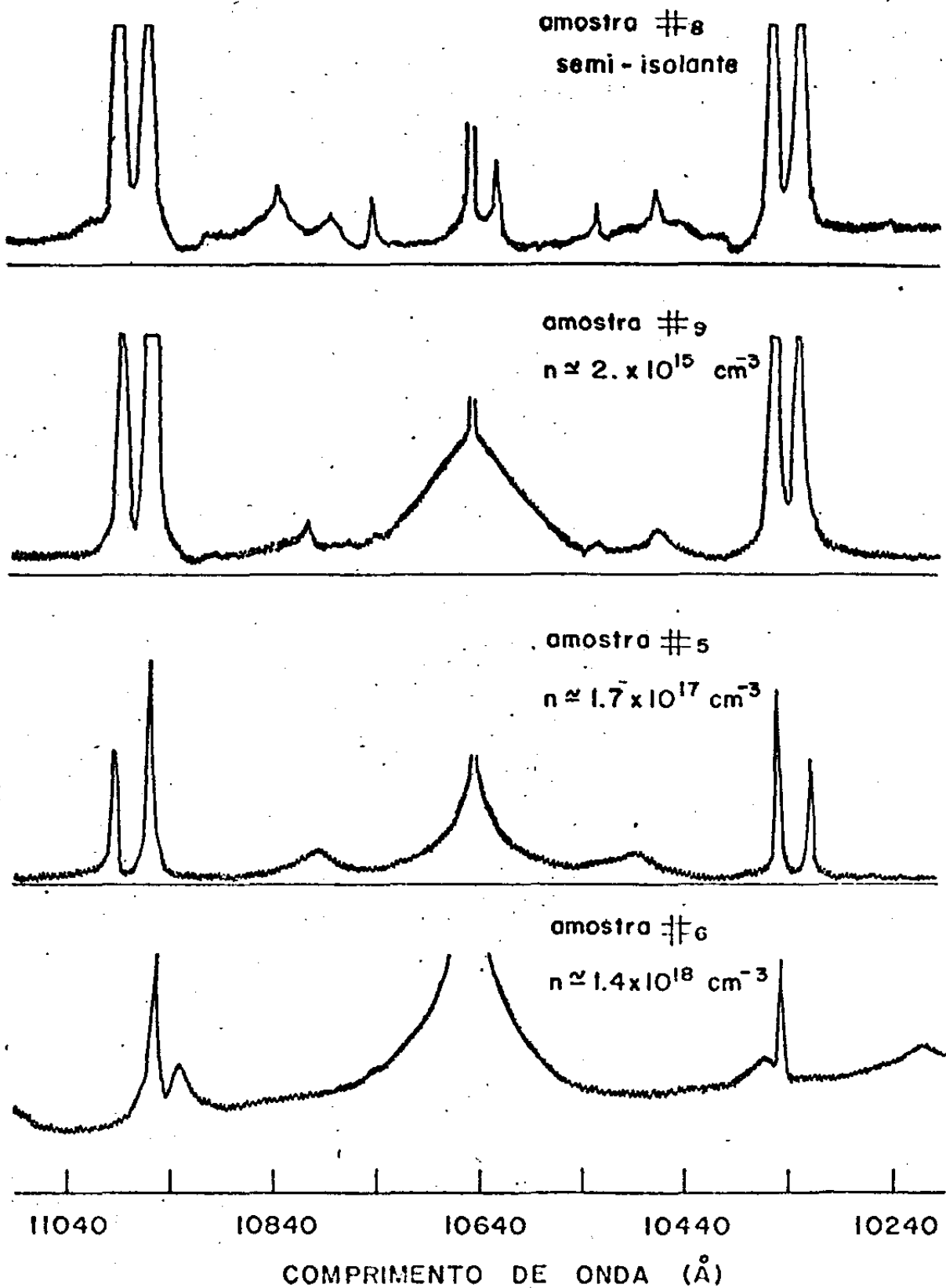


Fig. 7 : Espectro Raman de GaAs, à temperatura ambiente usando laser de Nd (1,064 $\mu\text{m}$ ).

era muito grande ( $\sim 1000 \text{ \AA}$ ). Entretanto, como dispomos de um espectrômetro com sistema de avanço inteiramente eletrônico, foi possível variar a velocidade de varredura durante o registro de cada espectro, sem os inconvenientes que isso acarretaria se a mudança de velocidade dependesse de uma caixa de engrenagens. Isso facilita grandemente o trabalho. Durante a varredura das linhas dos fônons, a velocidade usada foi bem pequena ( $0,1 \text{ \AA/mm}$ ), a fim de obter maior resolução nas suas posições e nas suas larguras.

O primeiro espectro da figura-7 que corresponde a amostra semi-isolante, mostra as componentes Stokes e Anti-Stokes para os processos de um e dois fônons.

As linhas em  $267 \text{ cm}^{-1}$  correspondem a processos de primeira ordem envolvendo fônons ópticos. Na posição correspondente a  $120 \text{ cm}^{-1}$ , aproximadamente, encontra-se uma estrutura referente ao espalhamento de segunda ordem. O restante dos picos é devido à luz do laser espalhada dentro do espectrômetro. Para as outras três amostras observamos, na região próxima do laser, um espectro contínuo e exponencial com uma intensidade finita para frequência igual a zero. Esta região do espectro corresponde ao espalhamento quase elástico devido à excitação das partículas individuais dos portadores. As linhas de modos coletivos são observadas nas amostras # 5 ( $n=1.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) e #6 ( $n=1.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ), observando-se ainda, nitidamente, o acoplamento dessas linhas com os fônons ópticos longitudinais.

## CAPÍTULO V

### ANÁLISE E DISCUSSÃO

#### 1. Espalhamento de luz por plasmas de partículas individuais.

##### 1.1. Introdução.

Conforme já dissemos o espalhamento de luz por partícula individual é um espalhamento quase-elástico e seu espectro obedece uma distribuição Gaussiana ( $\sim \exp(-w^2/q^2 v_t^2)$ ). Através desta distribuição pode-se determinar a temperatura efetiva do plasma de elétron-buracos. Na região de baixas energias transferidas nota-se um afastamento do perfil Maxwelliano. Essa deformação varia com a amostra e também com a intensidade de excitação.

##### 1.2. Distribuição não equilibradas.

As figuras 8, 9, 10 e 11 mostram, para várias intensidades de excitação, os espectros de espalhamento de luz por partículas individuais das amostras #8, #9, #5 e #6.

Para as duas primeiras amostras, as de alta resistividade, observam-se distribuições não equilibradas de partículas individuais, com o aumento de temperatura em relação à da rede a  $100^\circ\text{K}$  ( $T_e \approx 400^\circ\text{K}$ ), para a mais alta intensidade de excitação. À medida que se aumenta a densidade de portadores em equilíbrio (devido a conteúdo crescente de impurezas doadoras) esse aumento de temperatura torna-se menor, por isso nenhum aquecimento foi observado na amostra #6 (ver fig. 11).

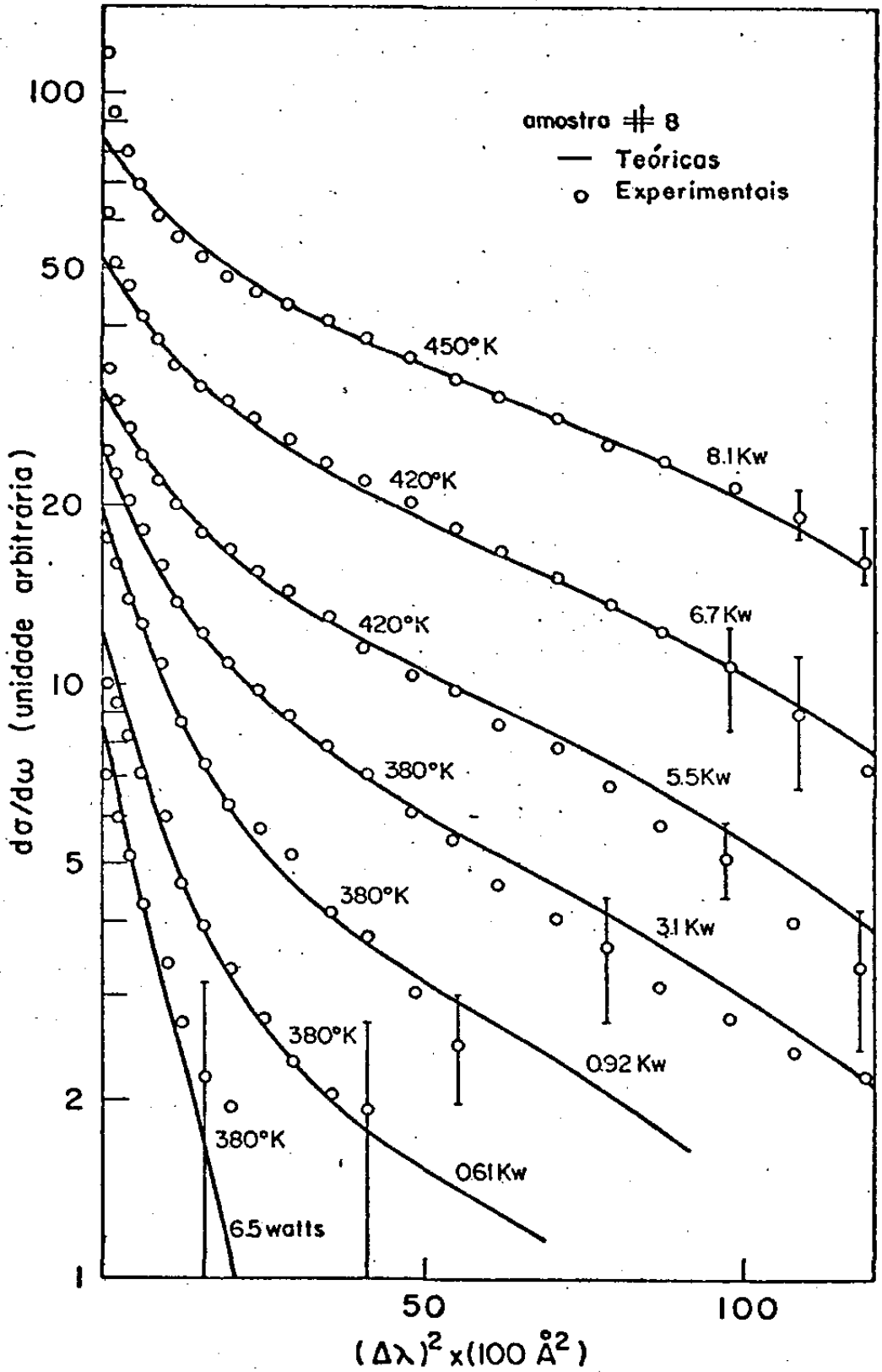


FIG. 8: Espectros de espalhamento por partículas individuais para a amostra de alta resistividade de GaAs (amostra #8).

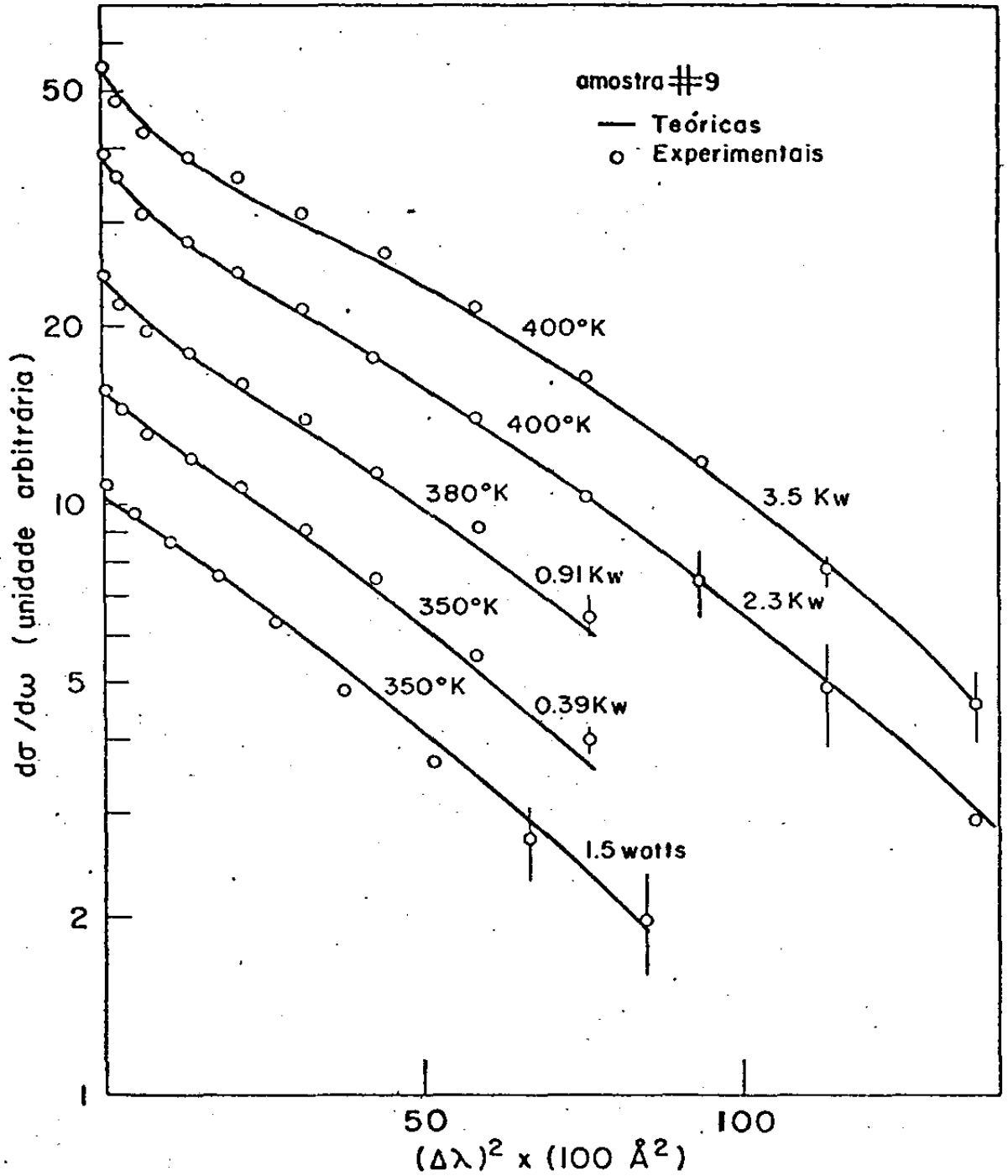


FIG.9 : Espectros de espalhamento por partículas individuais para amostra #9 ( $n \sim 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ).

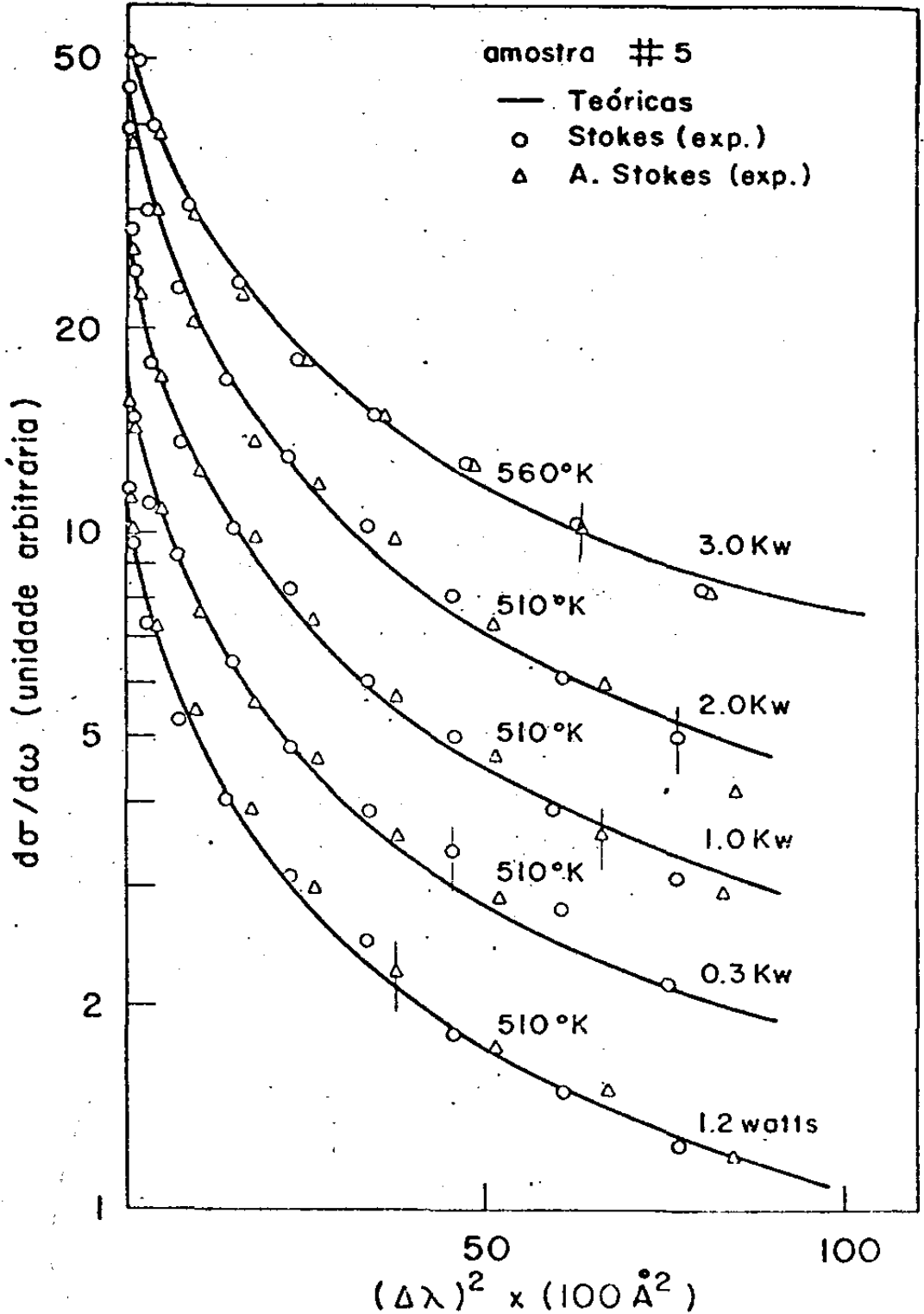


FIG. 10: Espectros de espalhamento por partículas individuais para amostra #5 ( $n = 1,7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ).



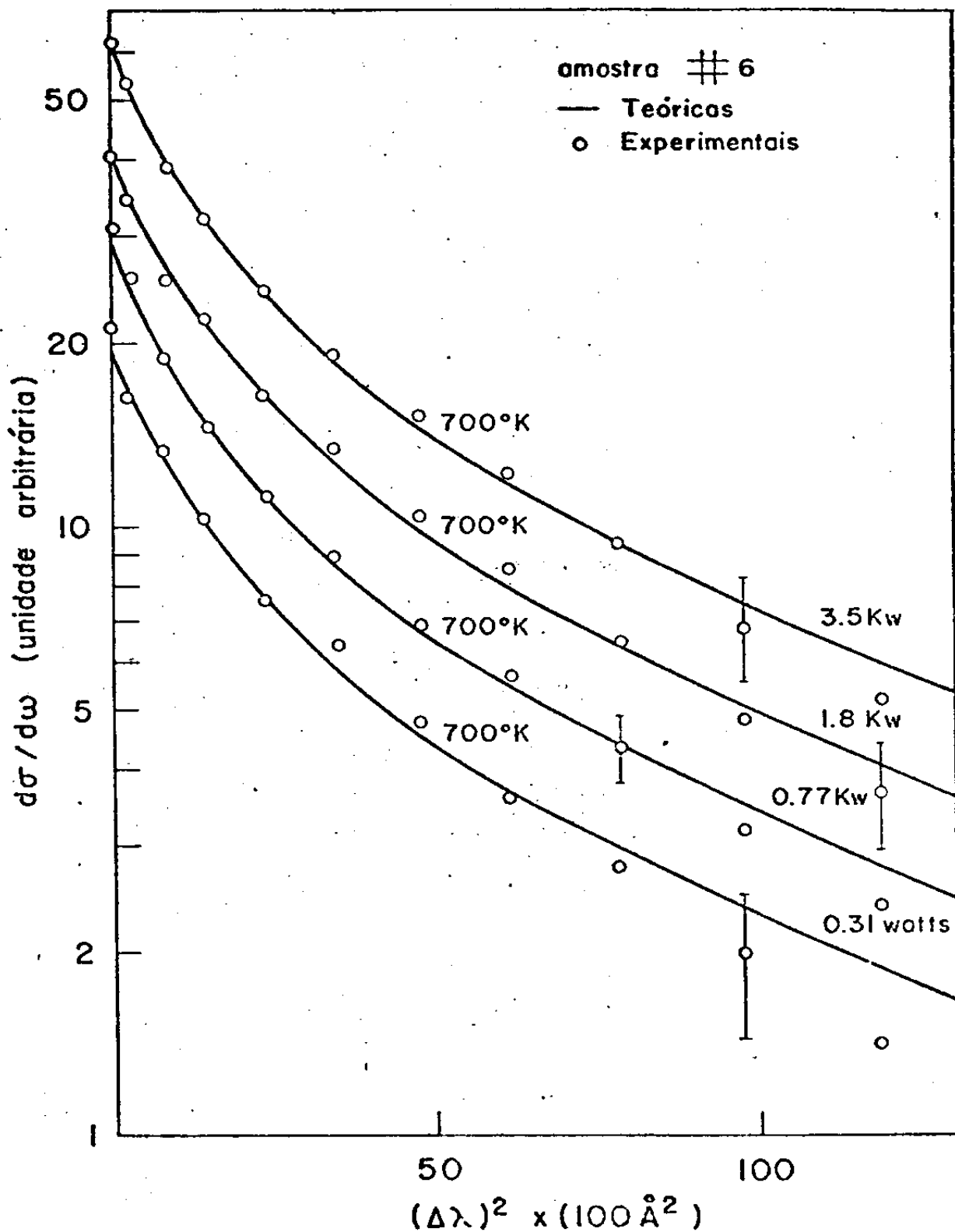


FIG.11.: Espectros de espalhamento por partículas individuais para amostra #6 ( $n = 1,4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ).

De acordo com o modelo proposto no Capítulo 1, os eletrons foto-excitados relaxam-se principalmente por emissão sucessiva de fônons e interagindo com os portadores já existentes. À medida que aumenta a intensidade de excitação (e a densidade de eletrons foto-excitados) a interação entre os últimos e os outros portadores se tornam mais eficiente ; na pequena região de foto-excitação, os portadores se termalizam entre si e apresentam numa temperatura maior que a temperatura da rede nessa mesma região. Entretanto, com o aumento da densidade de portadores aumenta também a capacidade calorífica do sistema de portadores do cristal, portanto para a amostra #6 não foi observado nenhum aquecimento de eletrons livres em relação à temperatura da rede.

### 1.3. Efeitos de muitos corpos em condição de não equilíbrio.

#### 1.3.1. Plasmas de eletrons individuais.

É óbvio das figuras 8, 9, 10 e 11, que esses espectros na região de pequenas energias transferidas, se afastam do perfil Gaussiano característico de eletrons livres. Nota-se que para as duas primeiras amostras, para a mais baixa intensidade de excitação, os espectros são gaussianos e à medida que aumenta a intensidade de excitação, há redução na intensidade espalhada e para a mais alta potência há aumento na região bem próxima à linha do laser. Ao contrário, para as outras duas amostras mais concentradas, verifica-se aumento na intensidade espalhada para qualquer intensidade de excitação. Esses efeitos são explicados como efeitos de muitos corpos, sendo que a redução se origina na contribuição das flutuações na densidade de carga e o aumento na

contribuição das flutuações na densidade de spin. As propriedades de polarização da radiação espalhada são também diferentes para os dois processos. Para o espalhamento por densidade de spin o elemento de matriz é proporcional a  $\vec{\sigma} \cdot (\hat{\epsilon}_1 \times \hat{\epsilon}_2)$ , enquanto que para o espalhamento por densidade de carga ele varia com  $(\hat{\epsilon}_1 \cdot \hat{\epsilon}_2)$ , onde  $\hat{\epsilon}_1$  e  $\hat{\epsilon}_2$  são vetores de polarização incidente e espalhada respectivamente. Entretanto as medidas apresentadas aqui são medidas não polarizadas, portanto o espectro de espalhamento contém ambas as contribuições. Para baixas concentrações de elétrons foto-excitados ( $< 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ), a flutuação na densidade de carga contribui muito mais para a luz espalhada do que a flutuação na densidade de spin, cerca de 14 vezes maior, isto é,  $\sigma(\hat{\epsilon}_1 || \hat{\epsilon}_2) / \sigma(\hat{\epsilon}_1 \perp \hat{\epsilon}_2) = 14$  (ver comentário na pag. 24). Neste caso, pode ser então desprezado o espalhamento por flutuação na densidade de spin. Para as amostras de grandes densidades de portadores acontece o inverso, isto é, o espalhamento por flutuação na densidade de spin torna-se dominante. Nas referências (28) e (32) calculam-se as secções de choque de espalhamento por elétrons por flutuação na densidade de carga e por flutuação na densidade de spin e faz-se comparação com os nossos dados experimentais da referência (14), havendo perfeita concordância. Portanto a medida da deformação em relação ao perfil Gaussiano nos dá informação sobre a densidade de portadores. Foi então sugerido que <sup>(32)</sup>, para uma amostra pura, a densidade de elétrons foto-excitados pode também ser estimada pela simples análise da deformação do espectro. Entretanto, a técnica só teve sucesso após ser levado em conta o fato de tanto elétrons como lacunas foto-excitadas contribuírem para o espalhamento em amostras puras sob con

dições de alta intensidade incidente.

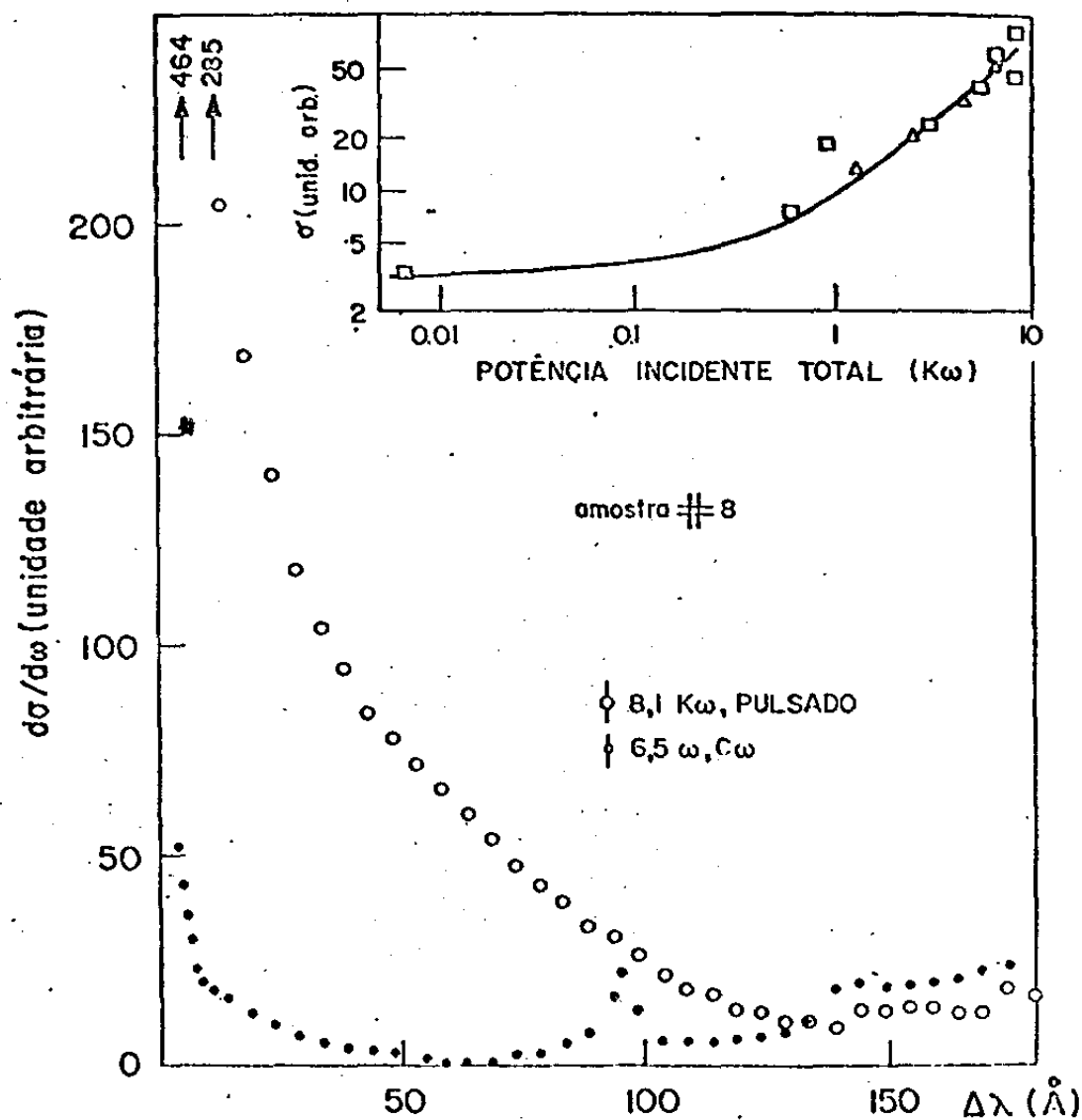
### 1.3.2. Plasma duplo de eletron-buracos.

Um resultado muito interessante foi observado nas medições de espalhamento de luz com a amostra de alta resistividade. É o aparecimento das características de eletrons quando o cristal é intensamente foto-excitado. Estas características não são observadas no espectro espalhado quando a potência de pico do laser é pequena. A figura 12 mostra este resultado.

Observa-se então que, à medida que aumenta a potência de pico do laser, ambos, eletrons e buracos, contribuem para o espectro de luz espalhada. Os buracos, devido ao grande valor da sua massa efetiva em relação a do eletron, dominam a região de pequenas transferências de energia e a intensidade de luz espalhada desta região torna-se maior. Este fenômeno deu origem à secção de choque de espalhamento diferente da obtida com as amostras dopadas. Fenômeno semelhante também foi observado para a amostra #9. Esta amostra é tipo n, entretanto à mais alta potência de pico do laser, aparecem características de buracos no espectro de espalhamento de luz, próxima a frequência do laser.

Estudando-se as secções de choque diferencial e integral para espalhamento de luz por plasma duplo de eletrons e buracos, determinamos as densidades de portadores foto-gerados para cada intensidade de excitação, através dos ajustes das secções de choque teóricas aos dados experimentais. Até a máxima potência incidente utilizada na experiência, não se observou sinal de saturação na densidade de portadores foto-excitados. Esta evi-

FIGURA 12



Espectros de espalhamento por partículas individuais obtidos a mais baixa (os pontos) e a mais alta (os círculos) potência do laser incidente. Ambos os espectros foram normalizados à intensidade de fônons TO integrada. No topo da figura tem-se a intensidade espalhada integrada de 10 a 100 Å em função da potência incidente total. Os quadrados correspondem aos dados da Fig. 8 e os triângulos aos dados da outra série. Todos os espectros foram normalizados à intensidade de fônons TO integrada. A linha cheia corresponde aos resultados teóricos obtidos a 400°K.

dência é mostrada na figura 12, na parte superior da figura (log  $\sigma$  x log P).

As secções de choque de espalhamento foram calculadas utilizando-se a equação (II-25), supondo-se, inicialmente, uniformes as densidades de portadores. Nestas condições foi verificada que não havia concordância entre os valores experimental e teórico da secção de choque, principalmente para o mais alto nível de excitação incidente, onde a relação sinal ruído é excelente. Suspeitou-se aí que a discrepância estivesse relacionada com o fato de não ser uniforme a distribuição de intensidade do feixe do laser. Para levar o efeito em conta foi medido o perfil de intensidade do laser. Fizemos isso varrendo a secção reta do feixe, em 2 direções ortogonais, com um foto-detetor coberto por um anteparo perfurado. A não homogeneidade vertical de intensidade ao longo do cristal também foi levada em conta para o caso da amostra  $\text{Fe}^{2+}$ , porque esta tem coeficiente de absorção relativamente grande para a luz de  $1,06\mu$  ( $\alpha = 8\text{cm}^{-1}$ ). Estes fatores influem no cálculo da secção de choque diferencial pois ela depende da densidade de eletrons e buracos foto-excitados, e esta por sua vez depende da intensidade da luz local, portanto a secção de choque dependerá da posição  $\underline{r}$  e poderá ser escrita por:

$$I_s(\lambda, I_0) = 2\pi \int_0^\infty r dr \int_0^\infty dx I_{inc}(x, r) \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dw} \right) \quad (V-1)$$

onde  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega dw}$  é dada pela expressão (II-25).

$I_{inc}(x,r) = I_0 R(r) X(x)$  é a intensidade da luz local

$I_0 R(r)$  é o perfil da intensidade radial do feixe do laser

$X(x)$  é a distribuição da intensidade do laser ao longo do cristal na direção do feixe e pode ser dada pela solução da equação:

$$\frac{dX}{dx} = -\alpha X - \beta X^2$$

onde

$$X(x) = \frac{I_0}{e^{\alpha x} + \frac{\beta I_0}{\alpha} [e^{\alpha x} - 1]} \quad (V-2)$$

com  $\alpha \neq 0$ ,  $\alpha$  é o coeficiente de absorção linear e  $\beta$  é o coeficiente de absorção quadrática.

As densidade de portadores  $n_e$  e  $n_b$  são dadas pelas expressões abaixo:

$$n_e = n_{ef} + n_{el} (I_{inc}/I_0^{max}) + n_{eq} (I_{inc}/I_0^{max})^2 \quad (V-3)$$

$$n_b = n_{bf} + n_{bl} (I_{inc}/I_0^{max}) + n_{bq} (I_{inc}/I_0^{max})^2 \quad (V-4)$$

onde o primeiro termo é a densidade de portadores em equilíbrio, e o segundo termo é a densidade de portadores gerada por absorção linear e o último, por absorção quadrática. Nesta experiência, tem-se  $\hbar\omega_L < E_g < 2\hbar\omega_L$ , portanto, se a luz é suficientemente intensa, a absorção de dois fótons pode tornar-se o principal mecanismo de perda. Mesmo assim, nesta região, existe sempre uma certa absorção linear residual que não é desprezível. Duas origens pode ser especuladas para os termos lineares.

- a) efeito de tunelamento de elétrons foto-assistidos e  
 b) existência de níveis de impurezas localizadas<sup>(45)</sup>.

Substituindo na equação (V-1) os dados da tabela-1 e os da tabela-3 e tomando  $B = 0,1$  cm/Mw<sup>(46)</sup>, foram obtidas as linhas cheias das figuras (8), (9), (10) e (11).

| AMOSTRA | $n_{ef}$<br>( $\text{cm}^{-3}$ ) | $n_{el}$<br>( $\text{cm}^{-3}$ ) | $n_{eq}$<br>( $\text{cm}^{-3}$ ) | $n_{bf}$<br>( $\text{cm}^{-3}$ ) | $n_{bl}$<br>( $\text{cm}^{-3}$ ) | $n_{bq}$<br>( $\text{cm}^{-3}$ ) |
|---------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| #8      | -                                | $5 \times 10^{15}$               | $5 \times 10^{15}$               | $4 \times 10^{14}$               | $1 \times 10^{15}$               | $5 \times 10^{15}$               |
| #9      | $2 \times 10^{15}$               | $5 \times 10^{15}$               | $5 \times 10^{15}$               | -                                | $1 \times 10^{15}$               | $2 \times 10^{15}$               |
| #5      | $1,7 \times 10^{17}$             | -                                | -                                | -                                | -                                | -                                |
| #6      | $1,0 \times 10^{18}$             | -                                | -                                | -                                | -                                | -                                |

Tabela 3 : Valores numéricos dos coeficientes que aparecem nas equações (V-3) e (V-4).



#### 1.4. Resultados e Discussões.

Observando-se as figuras 8 e 9, nota-se que as intensidades calculadas, na região próxima a linha do laser, primeiramente são menores e depois são maiores que as obtidas experimentalmente. Esta discrepância deve-se provavelmente ao fato de se imaginar uma banda parabólica para a faixa de energia dos buracos. Para simplificar os cálculos teóricos, assumiu-se a banda com uma distribuição isotrópica de massa efetiva. Na realidade a energia do buraco pesado é dada pela expressão (III-10) com o sinal positivo, isto é,

$$E_V(k) = \frac{\hbar^2}{2m_0} \{ Ak^2 + [Bk^4 + C^2(k_x^2 k_y^2 + k_y^2 k_z^2 + k_z^2 k_x^2)]^{1/2} \}$$

A massa efetiva do buraco pesado tem os seguintes valores:  $0,93m_0$ ,  $0,68m_0$  e  $0,35m_0$  para as direções (111), (110) e (100), respectivamente (ver apêndice II). Para o cálculo da seção de choque, foi tomada a média dos valores acima. Como na região da discrepância o espalhamento de luz por buraco é dominante, é possível que explique a aproximação nas massas efetivas a diferença observada.

Quanto aos valores de  $n_e$  e  $n_b$  da tabela 3 foram escolhidos de maneira a se obter o melhor ajuste com os resultados experimentais. As densidades de portadores também foram determinadas por medidas de efeito Hall<sup>(47)</sup> para as duas primeiras amostras. Entretanto estes resultados não estão de acordo com os obtidos através de ajuste. Para a amostra #8 a densidade medida foi de  $n_{ef} = 1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  (tipo n) e para amostra #9,  $n_{ef} =$

$7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Esta diferença pode ter sido causado por duas dificuldades surgidas durante as medidas de efeito Hall <sup>(47)</sup>.

- i) os contatos não eram suficientemente pequenos comparados com o tamanho da amostra
- ii) a espessura do cristal não era suficientemente fina para ser considerada uma placa (amostra bi-dimensional).

Uma outra causa da discrepância acima especialmente no caso da amostra #8, é o fato desse material ser altamente - compensado ( $\alpha = 8,0 \text{ cm}^{-1}$ ). Neste caso, a densidade de impurezas ionizadas no cristal pode ser não uniforme, variando de região - para região. Mas ao se fazer as medidas de espalhamento, mede-se a densidade em apenas uma região do cristal.

Não há indicação de saturação na secção de choque integrada até a mais alta intensidade de excitação. Isto está de acordo com as considerações teóricas aqui feitas, uma vez que foi admitido o plasma como um gás altamente não degenerado. Neste caso, não existe um ponto mínimo na energia livre  $F$  do plasma, mas sim ela decresce monotonicamente e muito devagar com o inverso da densidade. À temperatura ambiente, a possibilidade de saturação na geração de par elétron-buraco e na densidade do plasma foto-excitado está excluída. Este fato é mostrado no topo da figura 12. A linha cheia deste gráfico é obtida teoricamente e os pontos (quadrados e triângulos) são os dados experimentais. Foi estabelecido um limite inferior para possíveis efeitos de saturação da população de pares elétron-buracos foto-excitados igual a  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , através do ajuste da secção de choque teórica aos dados experimentais. Um limite superior grosseiro da população de elétrons foto-gerados fôra estimado inicialmente cal-

culando-se a diferença entre as frequências de centro das linhas dos fônons L0 e dos T0<sup>(42)</sup> dos espectros de mais baixa potência e de mais alta potência de pico. Quando se aumenta a densidade de portadores a linha dos fônons L0 se afasta da linha dos fônons T0, devido à interação entre os plasmons e fônons L0.

Referindo-nos à equação (III-15), temos no limite

$$y \ll \alpha$$

$$x_+^2 = \alpha + y^2 \left(1 - \frac{1}{\alpha}\right)$$

$$x_-^2 = \frac{y^2}{\alpha}$$

Chamando de  $w_+$  a frequência dos fônons L0 obtida com a potência mais alta disponível, de  $w_{L0}$  a obtida com a mais baixa potência e tendo  $\alpha = (w_{L0}/w_{T0})^2 = 1,81$  vem:

$$\Delta = w_+ - w_{L0} = \frac{0,15}{w_+ + w_{L0}} w_p^2$$

Substituindo  $w_p = \frac{4\pi e^2}{m_e \epsilon_\infty} n$  e tomando os valores da tabela

temos:

$$\Delta = 2,9 \times 10^{-17} n \quad \text{ou}$$

$$n = 3,4 \times 10^{16} \Delta \text{ cm}^{-3} \quad (\text{V-5})$$

Tanto para amostra #8 como para amostra #9, o valor de  $\Delta$  determinado experimentalmente foi  $(0,6 \pm 0,4) \text{ cm}^{-1}$ , donde o valor citado para a densidade.

Em relação às amostras #5 e #6, não se observou nenhuma variação na diferença  $\Delta_w = w_+ - w_{L0}$  com a intensidade de excitação. Nestas amostras observam-se nitidamente os modos cole-

tivos (ver figura 7). Aliás a incerteza nos dados experimentais da figura 10 é devido à superposição das linhas dos plasmons com o espectro das partículas individuais na amostra # 5.

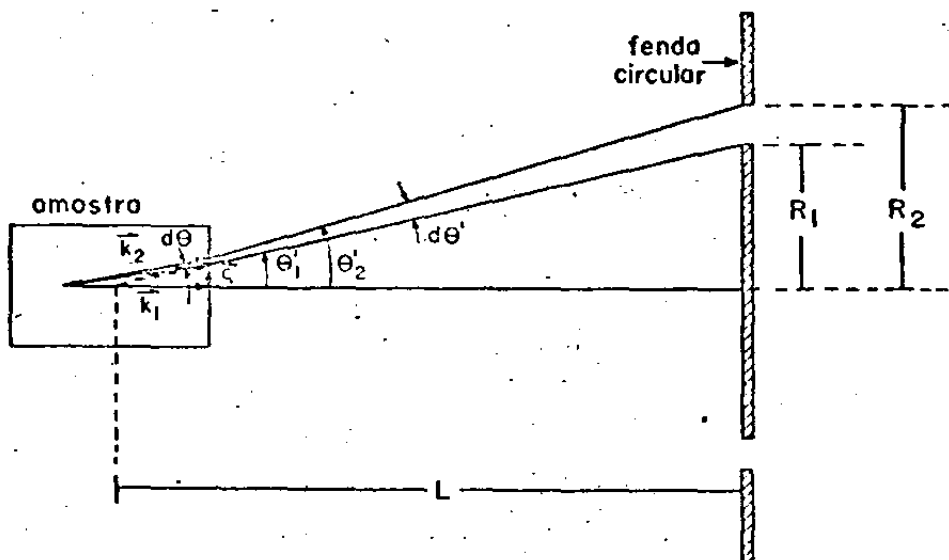
Já para a amostra # 6,  $n = 1,4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , a temperatura de Fermi das partículas é da ordem de  $940^\circ \text{K}$ , portanto maior que a temperatura da rede. Nestas condições, o plasma é quântico, e o tratamento teórico aqui utilizado para os cálculos das secções de choque não seria válido. Entretanto neste caso, há grande aquecimento do cristal com a potência incidente e a temperatura da rede torna-se comparável a da Fermi. Portanto usamos o mesmo tratamento teórico e obtemos a linha cheia da Figura- 11. Pode-se verificar para esta amostra um forte acoplamento entre os modos coletivos de eletrons e os fônons (ver figura- 8).

Todos os resultados até agora discutidos foram obtidos com ângulos de espalhamento de  $90^\circ$  e à temperatura ambiente. Tentou-se medir espalhamento por partículas individuais para os dois limites de ângulo de espalhamento: próximo a  $0^\circ$  e  $180^\circ$ . Entretanto nenhum resultado útil foi obtido em qualquer dos casos devido à grande intensidade de luz espúria que atinge a foto-multiplicadora na região do espalhamento quase elástico. Para ângulos pequenos além desse fator, outras duas causas contribuíram para a não observação do espalhamento por partículas individuais.

1) pequeno momentum transferido. De fato, a secção de espalhamento por eletrons individuais é proporcional a  $\exp\left(-\frac{w^2}{q^2 v_t^2}\right)$ . Se o ângulo de espalhamento variar de  $90^\circ$  para  $9^\circ$ , a secção de espalhamento variará de três ordens de grandeza. Nestas condições, só foi possível medir a luz espalhada até  $\Delta\lambda = 15 \text{ \AA}$ .

ii) tamanho finito da fenda. Isto afeta drásticamente a secção de choque observada. Para seleccionar um ângulo de espalhamento pequeno foi utilizada uma fenda circular de aproximadamente 2mm de largura e 16mm de diâmetro interno, colocada entre a amostra e a objetiva, a uma distância  $L$  (ver figura 13).

FIG. 13



Arranjo experimental para seleccionar  
ângulo de espalhamento pequeno.

Por outro lado, qualquer que seja o ângulo de espalhamento a intensidade  $I$  medida é uma integral sobre o ângulo sólido  $\Delta\Omega$  subentendido pelo sistema óptico de colimação:

$$I = I_{\text{Incidente}} \int_{\Delta\Omega} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} d\Omega$$

Para geometria de espalhamento a  $90^\circ$ , o integrando é essencialmente constante e portanto

$$I = I_{\text{incidente}} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dw} \Delta\Omega$$

Para geometria de espalhamento a pequenos ângulos, ao contrário, o integrando varia de forma extremamente rápida mesmo no pequeno intervalo de ângulos sub-entendidos pela fenda circular (ver Apêndice III). Nesse caso o espectro teórico, expressão (II-25), não tem conexão imediata com o espectro experimental.

### 1.5. Conclusão.

Observou-se espalhamento de luz por plasmas de partículas individuais em GaAs, à temperatura ambiente, com o ângulo de espalhamento de  $90^\circ$ . Em condições de alta intensidade de excitação, foram observadas distribuições não equilibradas de populações de pares de elétron-buracos. Um aumento de  $100^\circ\text{K}$  em relação à temperatura da rede foi registrado para amostras com baixa densidade de portadores; nenhum aquecimento foi observado para a amostra de mais alta densidade de portadores aqui considerada (# 6).

A seção de choque de espalhamento por plasma duplo (elétron-buracos) foi calculada através da teoria generalizada de quase partículas de Landau. O efeito de muitos corpos (flutuação na densidade carga e flutuação na densidade de Spin) ex-

plica as deformações do perfil Gaussiano observadas no espectro de espalhamento medido. A densidade de portadores foto-excitados é uma função da intensidade da radiação incidente. Sob excitação máxima, foi estabelecido um limite superior igual a  $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  para a densidade de portadores foto-excitados, no caso da amostra semi-isolante ( $\neq 8$ ), por considerações de deslocamento em energia da linha correspondente ao fônon L0.

Um limite menor, igual a  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , resultou do ajuste da secção de choque teórica aos dados experimentais.

Não se observou sinal de saturação na densidade de portadores foto-excitados para nenhum valor da potência incidente, e portanto conclui-se que um limite inferior para manifestação de efeitos de saturação é  $1 \times 10^{16}$  eletrons  $\text{cm}^{-3}$ .

## 2. Espalhamento de luz por fônons ópticos longitudinais.

### 2.1. Introdução.

Tendo nós observado populações não equilibradas de eletrons individuais, foi estendido a análise para o caso dos fônons L0, para comparar as suas temperaturas efetivas com aquelas dos eletrons. Fônons quentes haviam sido observados em GaAs por E. Lluésma e outros (11) para amostras de GaAs à temperatura ambiente, ângulo de espalhamento de  $90^\circ$  e mesma frequência de radiação incidente aqui utilizada. Mediram uma temperatura efetiva de  $3700^\circ$  para os fônons ópticos longitudinais quentes.

## 2.2 Resultados.

A figura 13 mostra a razão  $(S/A)$  entre as intensidades dos componentes Stokes e Anti-Stokes dos fônons  $L_0$  em função da potência de pico incidente para a amostra de alta resistividade (# 8).

Nesta amostra, os valores das razões  $S/A$  são praticamente iguais para a mais baixa e mais alta potência de pico e no intervalo de potência incidente usado (de algumas watts até 8100 watts) a razão  $S/A$  variou aleatoriamente com a potência. Portanto não foi observada nenhuma distribuição não equilibrada de fônons  $L_0$ . Este resultado é surpreendentemente diferente dos da referência (11).

Foram estudadas ainda a razão  $S/A$  dos fônons  $T_0$ , as posições e as larguras dos fônons  $L_0$  e  $T_0$ , em função da potência de excitação, para esta amostra. Os resultados são mostrados nas próximas cinco figuras: a variação da razão das intensidades dos componentes Stokes e anti-Stokes para  $T_0$  (fig-14); da posição dos  $T_0$  (fig.15); da posição dos  $L_0$  (fig. 16); da largura das linhas  $T_0$  (fig.17) e da largura das linhas  $L_0$  (fig.18) em função da potência de pico incidente.

Um outro resultado inesperado é o alargamento da linha dos fônons  $L_0$ , em condições de alto nível de bombeamento óptico. Este resultado está ilustrado na figura 18.

O mesmo tipo de estudo foi feito para a amostra fracamente dopada (# 9). Resultados semelhantes foram obtidos e são ilustrados nas cinco figuras seguintes: Fig.19:  $(S/A)_{L_0, T_0} \times P$ ; Fig.20:  $E_{T_0} \times P$ ; Fig.21:  $E_{L_0} \times P$ ; Fig.22:  $\Delta_{T_0} \times P$ ; Fig.23:  $\Delta_{L_0} \times P$ , onde  $E$  e  $\Delta$  são respectivamente as energias e as larguras dos fônons.



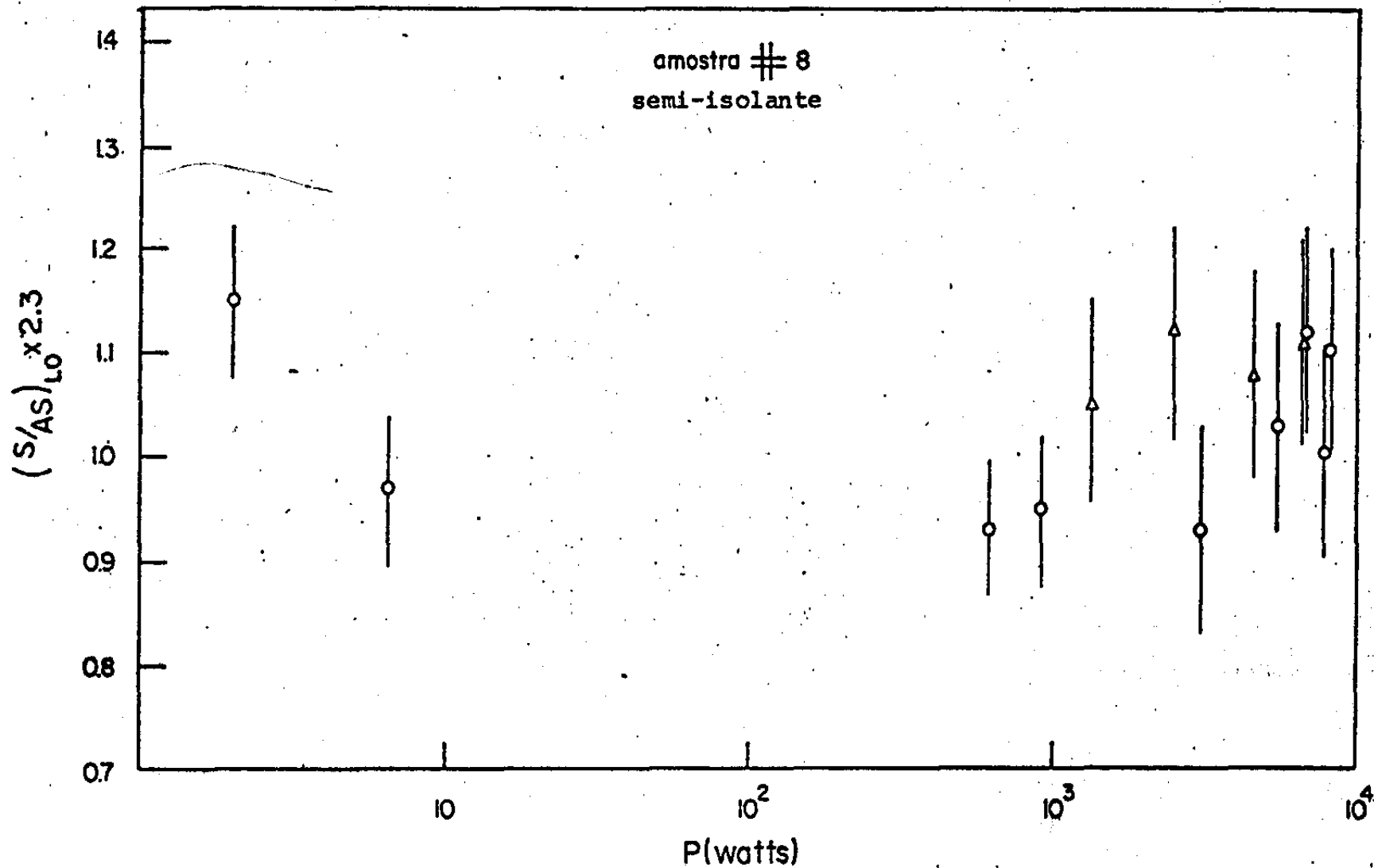


FIG.13: Razão das Intensidades dos componentes Stokes e Anti-Stokes para fônons LO em função da potência de pico incidente.

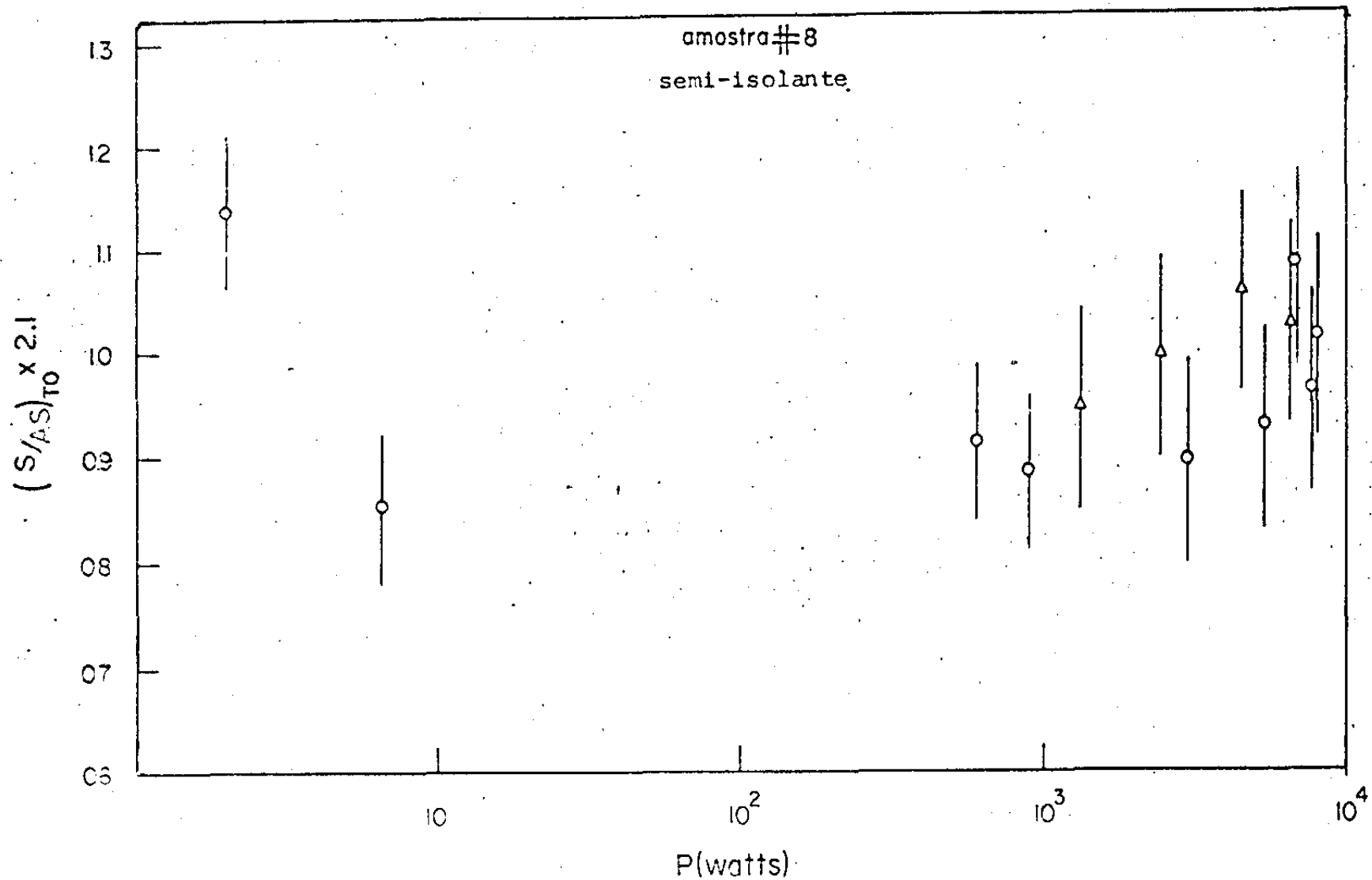


FIG.14: Razão das intensidades dos componentes Stokes e Anti-Stokes para fônons  $T_0$  em função da potência de pico incidente.

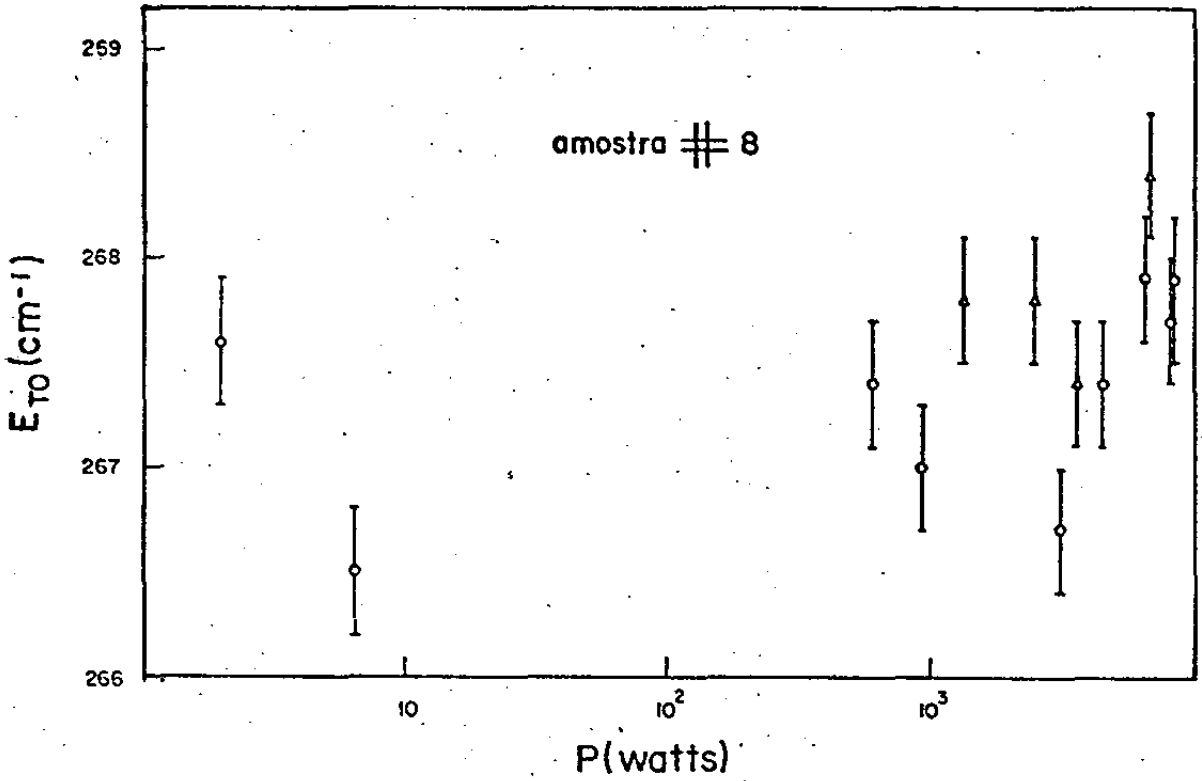


FIG.15: Posição dos fônons TO vs. potência de pico incidente.

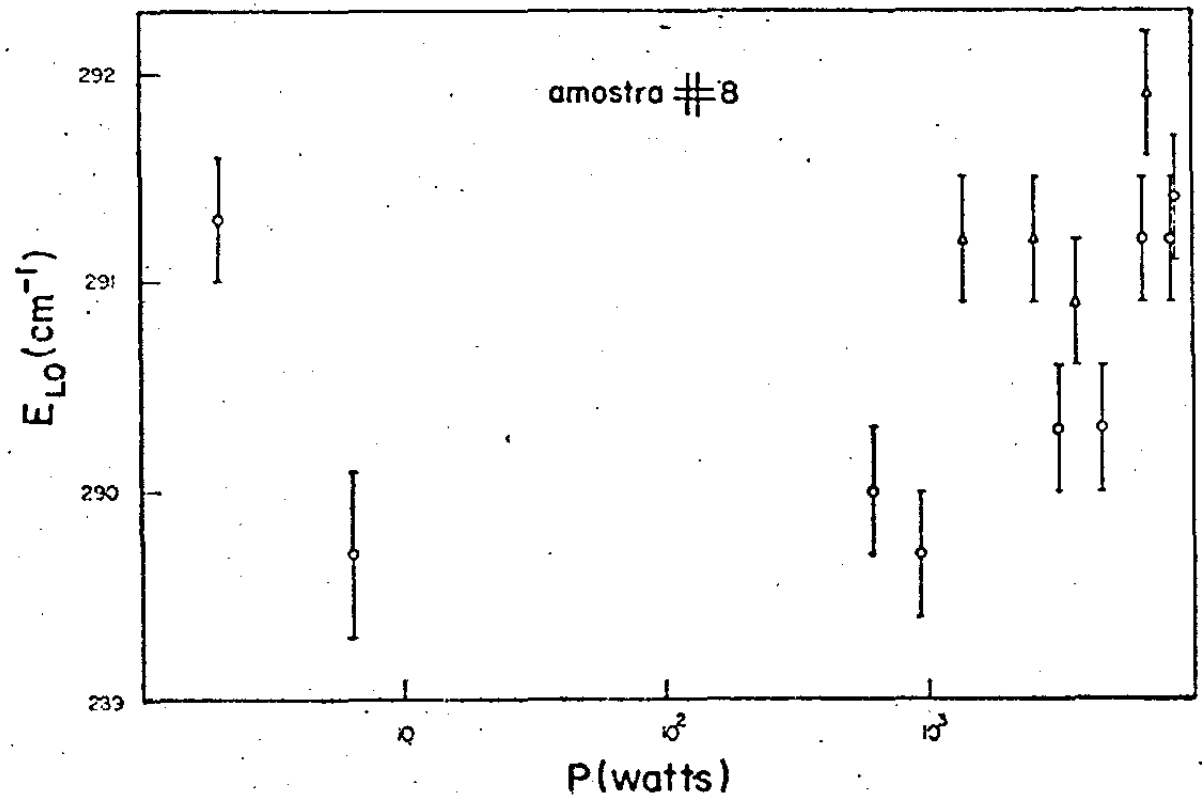


FIG.16: Posição dos fônons LO vs. potência de pico incidente.

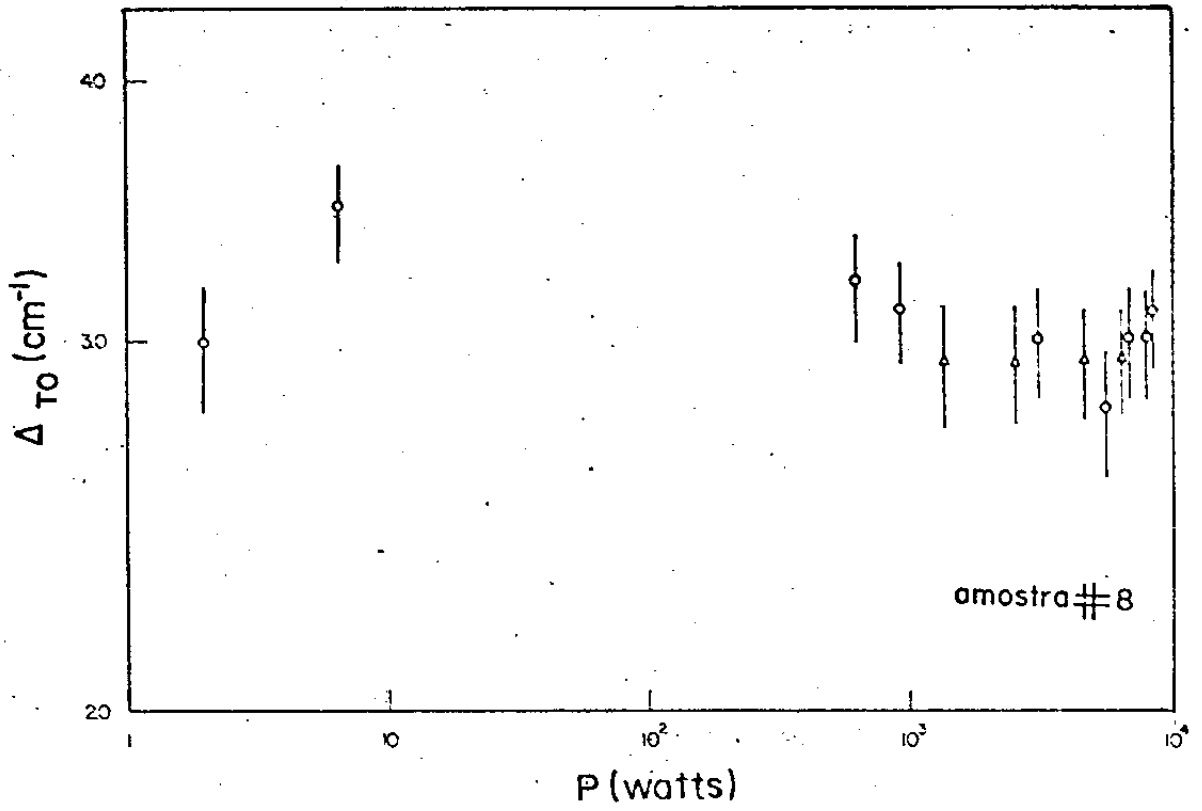


FIG. 17: Largura da linha T<sub>0</sub> vs. potência de pico incidente.

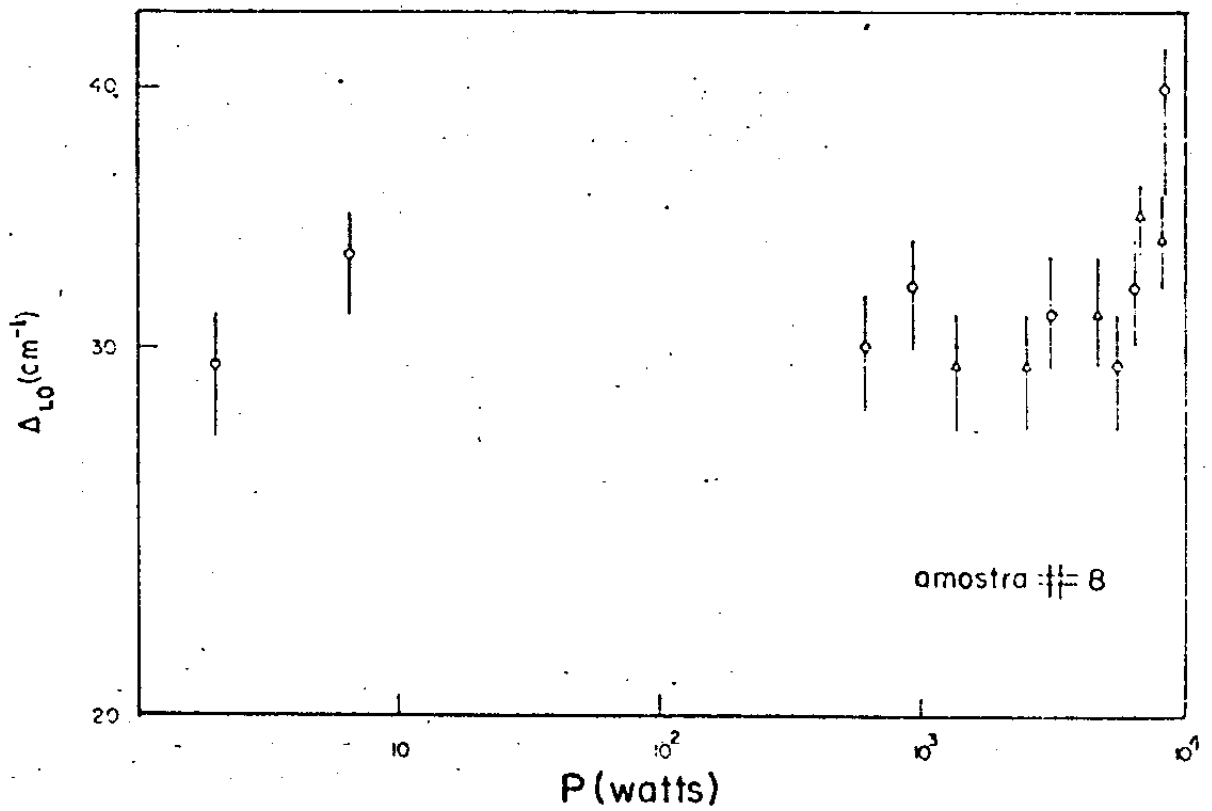


FIG. 18: Largura da linha L<sub>0</sub> vs. potência de pico incidente.

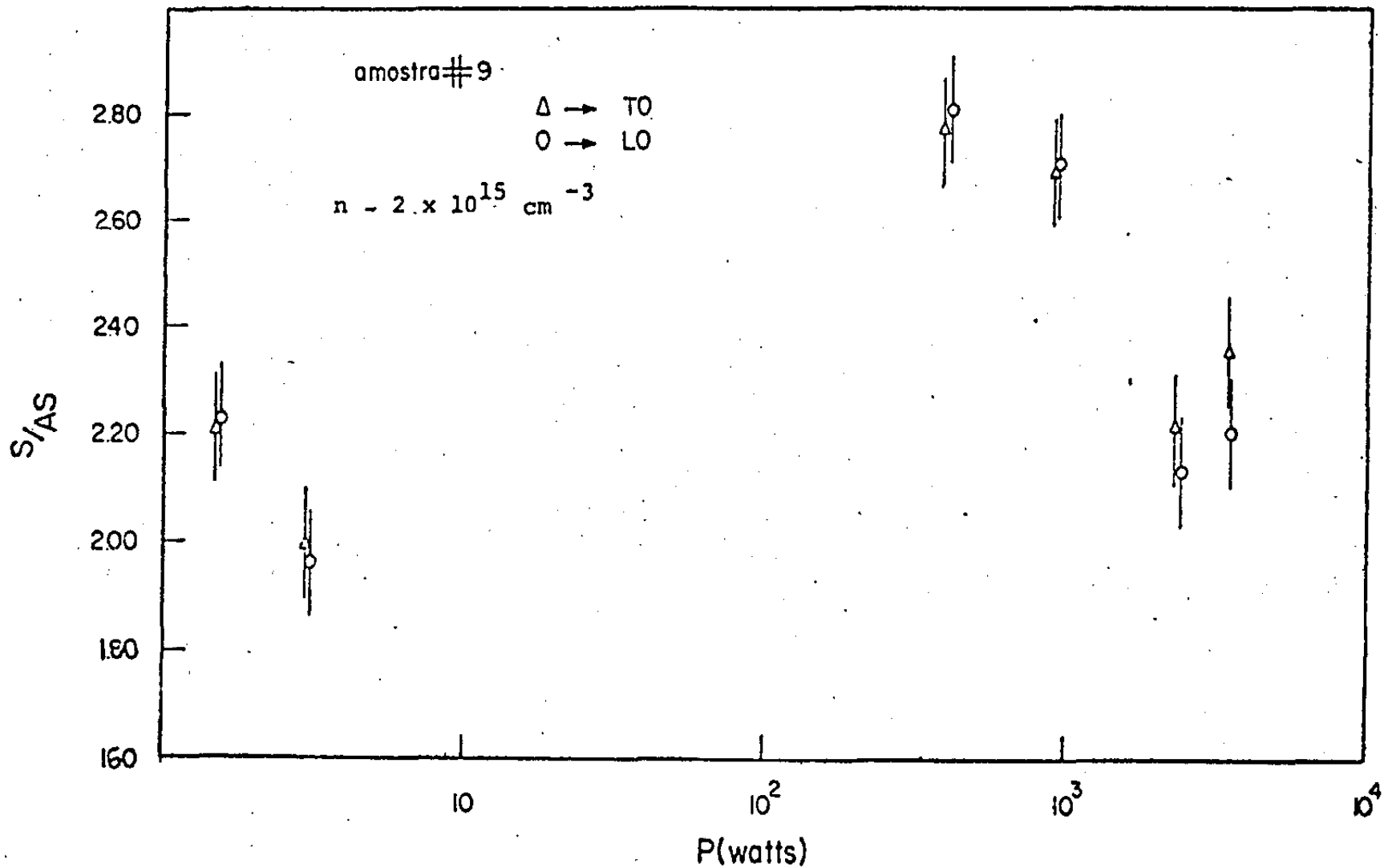


FIG.19: Razão das Intensidades Stokes e Anti-Stokes para fônons TO (triângulos) e LO (círculos) versus potência de pico incidente.

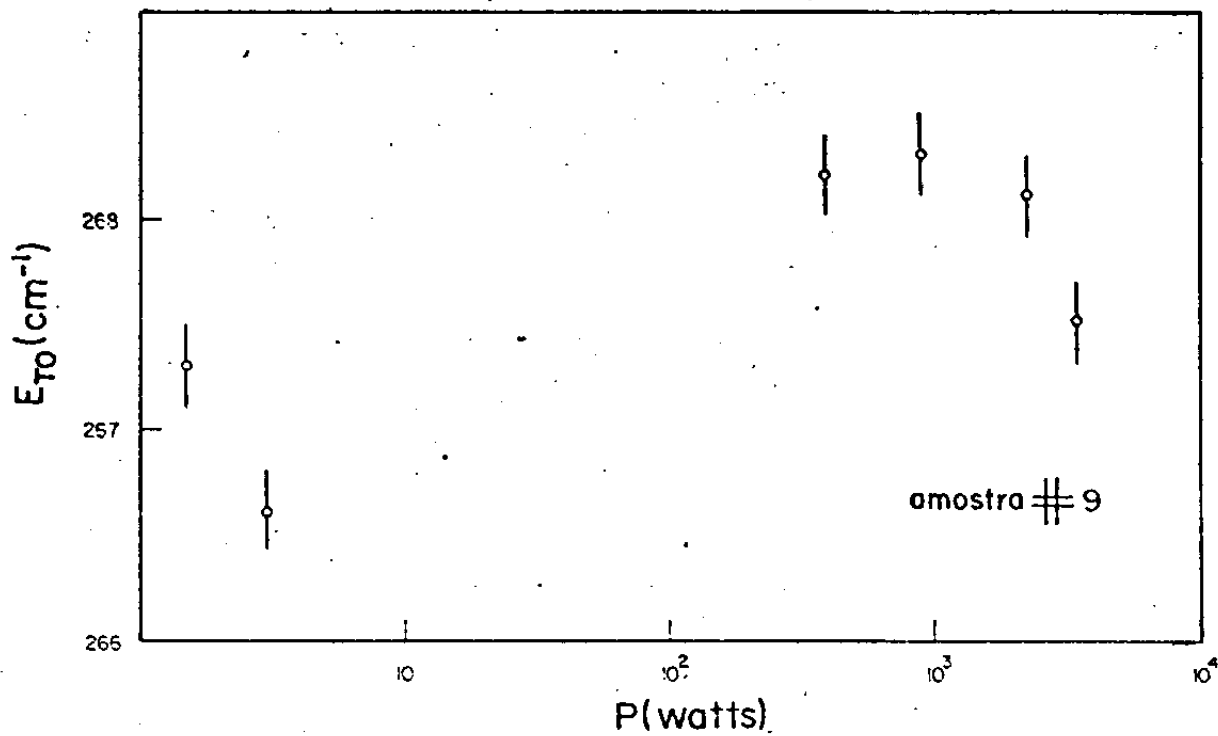


FIG.20: Posição dos fônons TO vs. potência de pico incidente.

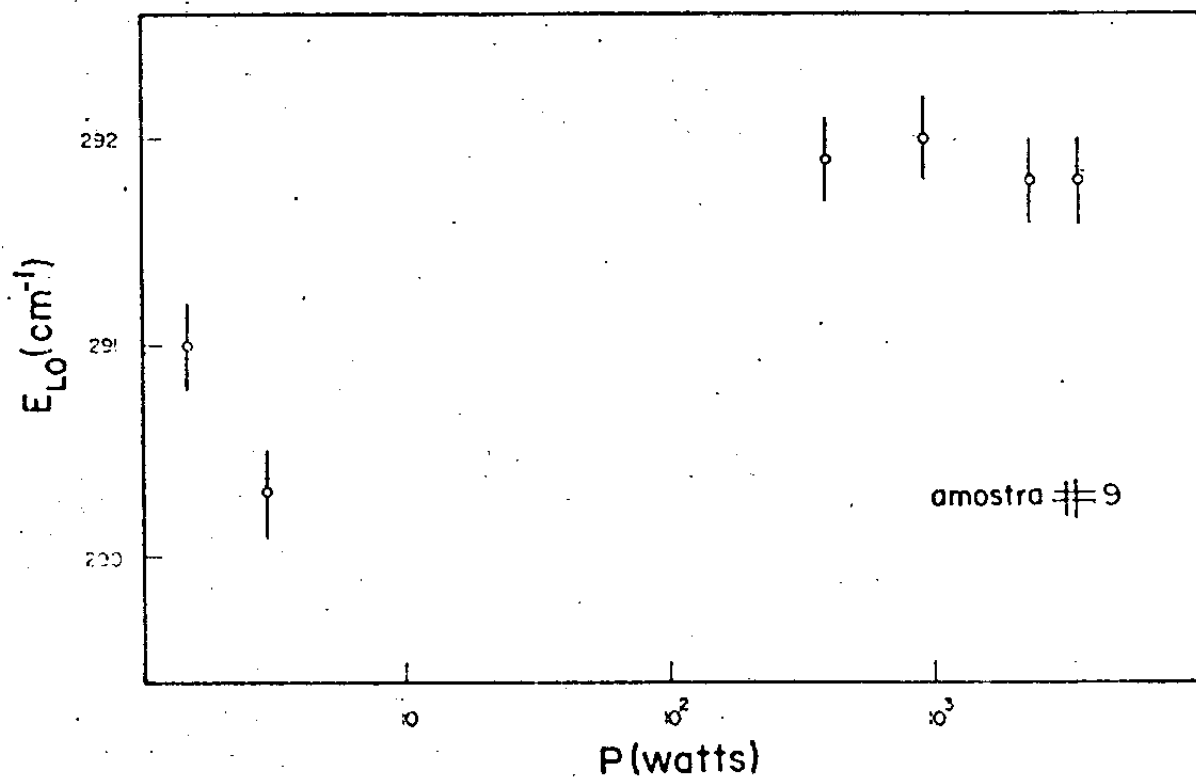


FIG.21: Posição dos fônons LO vs. potência de pico incidente.

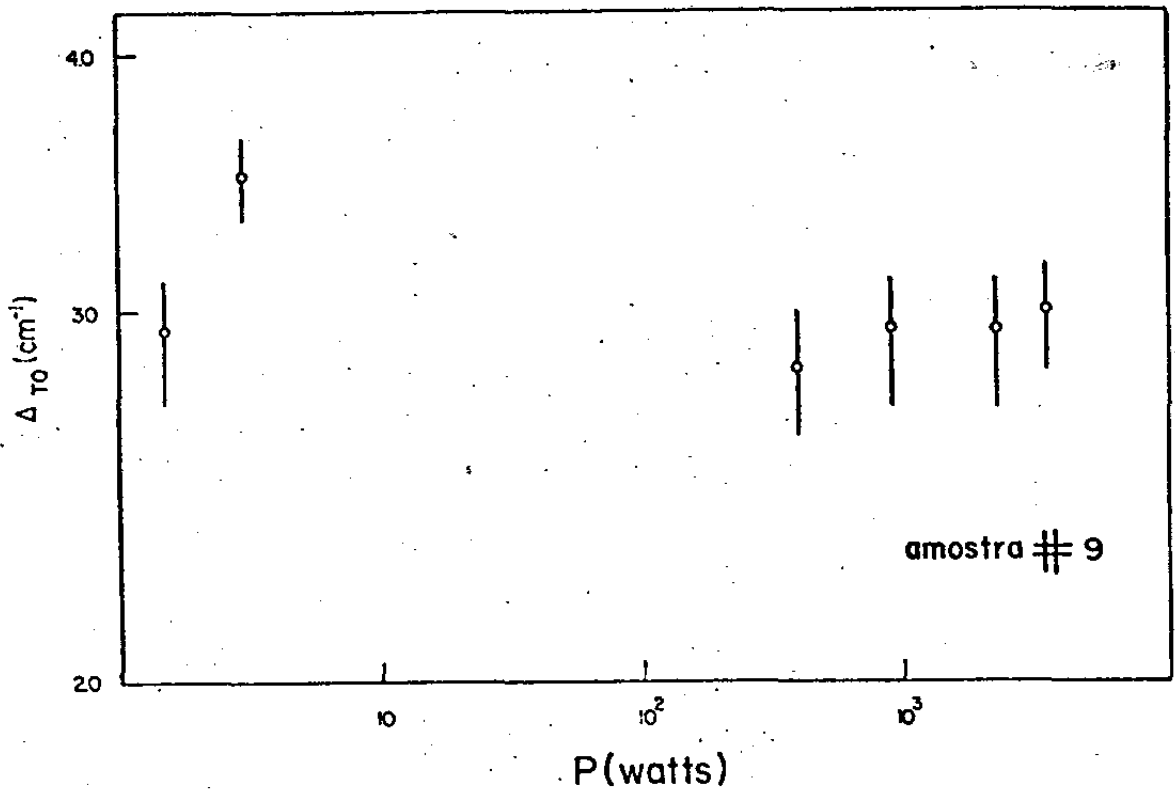


FIG. 22: Largura da linha T0 vs. potência de pico incidente.

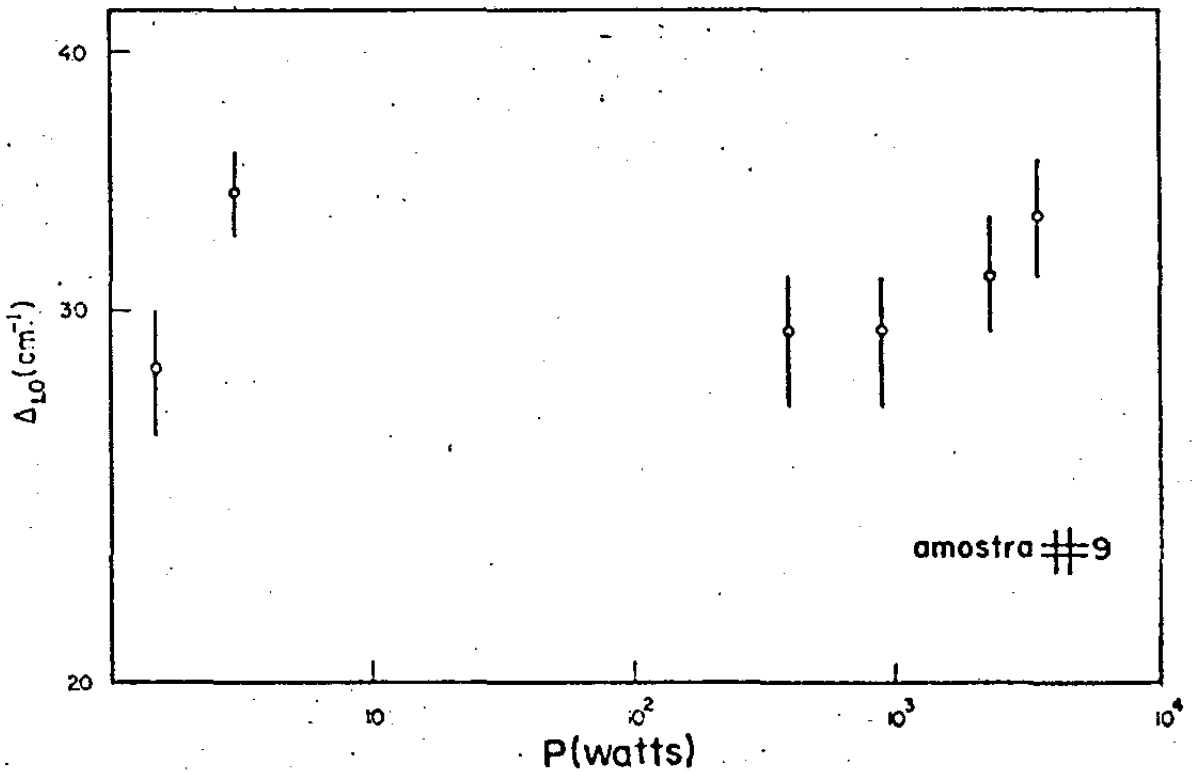


FIG. 23: Largura da linha L0 vs. potência de pico incidente.

### 2.3. Discussões.

No capítulo I foi apresentado um modelo que explica a geração de excitações elementares não equilibradas por foto-excitação. Segundo este modelo, os fônons quentes não podem ser observados nem nas condições desta experiência, nem nas da referência (11) por não ser satisfeita a condição de  $k_t \geq q_{\min}$  ( $k_t$  é o vetor de onda transferido). No espalhamento Raman a  $90^\circ$ , com  $\lambda_L = 1,06 \mu$ , o valor de  $k_t$  é igual a  $2,9 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ .

Na secção 3.2 do capítulo III, obteve-se  $q_{\min} = 4,2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ . Portanto, os eletrons energéticos com excesso de energia 0,92 eV e com vetor de onda máximo de  $\sim 10^7 \text{ cm}^{-1}$ , decaem criando fônons L0 que não estão disponíveis para espalhar a radiação utilizada. Mesmo para a experiência de retro-espalhamento onde  $k_t = 4,04 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  não foram observados os fônons quentes. Surgem então as seguintes questões: Por que os autores da referência (11) observaram os fônons quentes, nestas condições? Se a explicação é dada pelo fenômeno da produção múltipla dos fônons<sup>(48)</sup> por que a relação  $(S/A - 1)^{-1}$  é proporcional a  $k_t^{-2}$ ? até agora ainda não foi apresentada uma explicação definitiva para este fato.

A variação aleatória da razão S/A em função da potência de pico observada aqui (ver figuras 13 e 19) é causada pela variação da potência média do laser incidente. Há um aumento na temperatura da rede quando se aumenta a potência média e portanto varia a razão S/A.

Se a variação da razão é devido à variação na temperatura da rede, então tanto  $(S/A)_{L0}$  como  $(S/A)_{T0}$ ,  $E_{L0}$ ,  $E_{T0}$ ,  $\Delta_{L0}$  e



$\Delta_{T0}$  devem também ter a mesma dependência da intensidade de excitação (9,35,49). O que aliás pode ser claramente visto nas figuras 13 a 18 para a amostra # 8 e nas figuras 19 a 23 para a amostra # 9. De fato, a dependência de  $\Delta_{L0}$  com a potência é diferente por motivos que serão vistos adiante.

Um outro modo de estudar a relação entre a temperatura do cristal e a potência média do laser é medir a temperatura do cristal para vários valores da potência incidente. Isto foi feito, usando um termômetro Tectronix P6058, para uma dada amostra de GaAs.

Observou-se que na região de 1,0 a 6,0 watts cw a temperatura aumentou linearmente com a potência.

As tabelas 4 e 5 mostram os valores das potências médias com as correspondentes potências de pico para os espectros obtidos com as amostras # 8 e # 9.

Para a amostra # 8, a potência de pico desejada foi obtida através da variação da frequência de repetição do laser e da potência média. Para a outra amostra, a variação na potência de pico foi feita mantendo-se constante a frequência de repetição e variando-se a potência média por meio da introdução de filtro de densidade neutra.

| A M O S T R A 8      |                    |                      |                    |
|----------------------|--------------------|----------------------|--------------------|
| série 1 (círculos)   |                    | série 2 (triângulos) |                    |
| Potência de pico (w) | Potência média (w) | Potência de pico (w) | Potência média (w) |
| $8,1 \times 10^3$    | 1,5                | $6,7 \times 10^3$    | 1,1                |
| $6,7 \times 10^3$    | 1,2                | $4,6 \times 10^3$    | 1,6                |
| $5,5 \times 10^3$    | 2,0                | $2,5 \times 10^3$    | 2,5                |
| $3,1 \times 10^3$    | 3,5                | $1,4 \times 10^3$    | 2,5                |
| $9,2 \times 10^2$    | 3,5                |                      |                    |
| $6,1 \times 10^2$    | 2,5                |                      |                    |
| 6,5 (cw)             | 6,5                |                      |                    |

Tab.4 : Valores das potências de pico e média utilizados nos espectros obtidos com a amostra #8.

| A M O S T R A 9          |                        |
|--------------------------|------------------------|
| Potência de pico (watts) | Potência média (watts) |
| $3,5 \times 10^3$        | 1,4                    |
| $2,3 \times 10^3$        | 0,9                    |
| $9,1 \times 10^2$        | 0,4                    |
| $3,9 \times 10^2$        | 0,2                    |
| 3,0 (cw)                 | 3,0                    |
| 1,5 (cw)                 | 1,5                    |

Tab.5: Valores das potências de pico e média utilizados nos espectros obtidos com a amostra #9.

Observa-se nas figuras 18 e 23 que a dependência de  $\Delta_{L0}$  com a potência de pico é diferente das anteriores. Nota-se um alargamento da linha em condições de altas intensidades de excitação. O máximo aumento da largura foi de  $1,2 \text{ cm}^{-1}$ .

Existem vários fatores que contribuem para o alargamento das linhas dos fônons. Entretanto estes fatores contribuem tanto para os fônons T0 como para os fônons L0. Entre eles podemos mencionar:

- i) o aquecimento da rede <sup>(9,49)</sup>
- ii) saturação do contador de fóton <sup>(44)</sup>
- iii) não monocromaticidade da excitação <sup>(50)</sup>

A seguir, são citados dois processos envolvendo a interação elétron-fônon que poderiam ser causas do alargamento da linha dos fônons L0. O primeiro processo seria um alargamento não homogêneo. Em consequência da não homogeneidade espacial do feixe do laser e da correspondente distribuição de portadores foto-excitados, poderia haver uma superposição das linhas dos fônons  $L_+$  resultando no alargamento dessas linhas. Isto causaria uma deformação do espectro. No entanto, os resultados aqui obtidos, obedecem a uma distribuição Lorentziana com precisão de 2%, tornando improvável a participação desse processo no alargamento observado. O segundo mecanismo invocaria o fato experimental de ser a largura do modo híbrido  $L_+$  função da densidade de portadores na amostra <sup>(51)</sup>. No entanto nenhum estudo foi feito até agora sobre a largura da linha  $L_+$  em função da densidade de portadores, em GaAs, próximo a densidade de  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Para densidades maiores ( $10^{17} \text{ cm}^{-3} < n < 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) tem-se os resultados de Kukharskii <sup>(51)</sup> (ver figura 24). É visto que não é possível

extrapolar-se para  $n = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

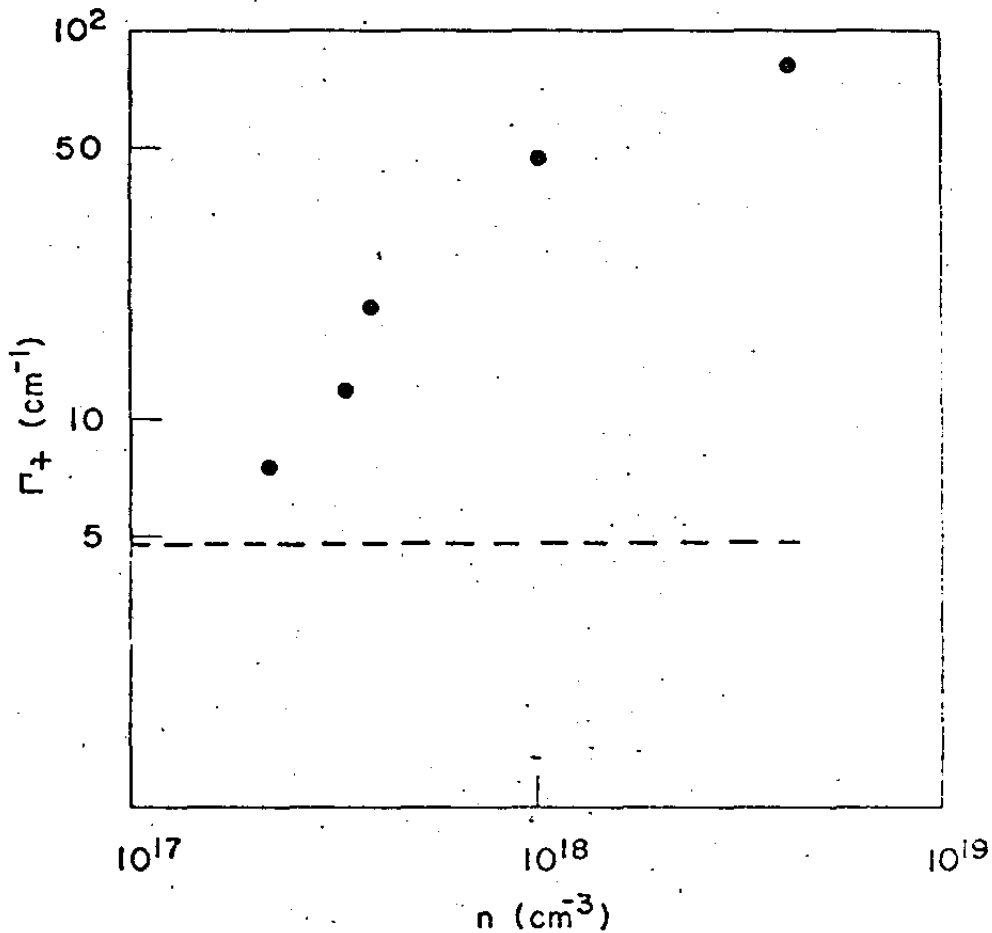


Fig. 24 : Largura da linha dos fônons  $L_+$  em função da densidade de portadores em GaAs. A linha tracejada indica a média dos valores em duas amostras com  $w_p = 0$ .

Decidiu-se então fazer medidas com a amostra de dopagem  $n \approx 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . O resultado mostra que a largura da linha dos fônons  $L_0$  desta amostra é praticamente igual a largura da linha

obtida com as amostras mais puras, e a diferença  $\omega_{L0} - \omega_{T0}$  desta amostra é da mesma ordem da obtida com a amostra pura, excitada à mais alta potência incidente. Logo a hipótese de que a interação eletrôn-fônon não é importante para o efeito de alargamento, pelo menos até a densidade de portadores aqui obtida é comprovada.

Pode-se então especular que o fator principal para o alargamento das linhas  $L0$ , em condições de alta intensidade de excitação seja uma redução de tempo de vida dos fônons.

Note-se em primeiro lugar que a presença de eletrons foto-excitados, atestada diretamente pela possibilidade de exibirmos as características de espalhamento Raman por "eletrons livres" numa amostra isolante, implica na presença de um excesso de população de fônons  $L0$ . Isso é o que se deduz do modelo de Shah, Leite e Scott<sup>(8)</sup>.

Note-se também que esses fônons quentes de acordo com a discussão feita anteriormente no princípio desta seção não estão (pelo menos logo após sua criação) numa região do espaço  $k$  acessível à nossa sonda Raman.

Pode-se entretanto conjecturar que os fônons  $L0$  acessíveis à sonda Raman interajam com os fônons  $L0$  "quentes" (e inacessíveis) para dar origem a outros dois fônons  $L0$  (acessíveis ou não). O resultado dessas colisões é claramente uma diminuição do tempo de vida dos fônons  $L0$  observáveis via Raman. Essas colisões serão tanto mais prováveis quanto maior o excesso de fônons quentes; a variedade de colisões possíveis é restrita pelas leis de conservação de momento e de energia. Tais efeitos não harmônicos envolvendo fônons  $L0$  são muito plausíveis fisicamente

no caso em questão se criamos grandes densidades de portadores no seio de um material polar como GaAs, é de esperar deformações locais com amplitudes maiores que as consistentes com a aproximação harmônica.

Nenhum alargamento nem aquecimento, sob condições de alta excitação, foi verificado, no caso de amostras 5 e 6. Embora nestes casos tenha se gerado um excesso de eletrons, a sua densidade deve ser desprezível em relação a densidade de portadores já existentes mesmo sem excitação. Isto é a população de eletrons é devida praticamente a impurezas introduzidas propositalmente e tem tempo de vida infinito.

#### 2.4. Conclusões.

Nenhuma mudança na relação de intensidades das componentes Stokes e Anti-Stokes, atribuível a distribuições não equilibradas de fônons foi observada em condições de alta excitação. Este fato foi atribuído ao fato de  $k_t$  ser menor que  $q_{min}$ .

O alargamento observado na linha dos fônons L0 foi interpretado como consequência da redução do tempo de vida dos fônons L0.

## CAPÍTULO VI

## COMENTÁRIOS FINAIS

Os resultados obtidos neste trabalho já foram amplamente discutidos nos capítulos anteriores. Cabem aqui apenas algumas observações sobre possíveis extensões deste trabalho.

O uso da radiação infra-vermelha para medidas de espalhamento de luz é uma das técnicas mais poderosas no estudo das interações dos dois sistemas de excitações elementares predominantes em semicondutores: os fônons ópticos e os portadores. Entretanto, não se conseguiu correlacionar os comportamentos desses dois sistemas de excitações elementares não equilibradas, uma vez que não foram observados fônons quentes através da razão Stokes / Anti-Stokes. Mas a existência do alargamento da linha permite fazer algumas especulações sobre aquelas interações. Para tanto, seria conveniente obter as medidas de todos os espectros obtidos com os diferentes potenciais de pico incidentes, com a mesma potência média, o que evitaria a variação da largura da linha devido ao aquecimento da rede.

Uma experiência que oportunamente deverá ser realizada também para estudos de fônons quentes, é a experiência de "medidas de relaxação", onde se acompanha a evolução temporal do fluxo de energia no sistema de fônons LO criados por bombeamento óptico. É ainda desconhecido o tempo de relaxação para atingir o equilíbrio termodinâmico no sistema de fônons.

Durante a experiência, as medidas foram estendidas para região de luminescência. Usando as mesmas condições em que foram

obtidas as medidas de espalhamento de luz, isto é, a fonte de excitação do laser de Nd:YAG, e portanto com  $h\nu_L = 1,17\text{eV} < E_g$ , foram tirados vários espectros de luminescência para as amostras - mais dopadas. A luminescência é então devida à recombinação - dos pares elétron-buracos criados por absorção de dois fótons. Como a luminescência está sendo produzida no interior da amostra, a intensidade de luz espalhada no extremo de altas energias não é proporcional a  $\exp(-E/k_B T)$  <sup>(16)</sup>. A radiação ao sair do cristal é reabsorvida, e sua intensidade diminui de um fator  $e^{-\alpha d}$  (onde  $\alpha$  é o coeficiente de absorção linear e  $d$  é a distância até a face). Para se obter a temperatura efetiva do elétrons quentes, é necessário fazer a correção do efeito de reabsorção. Por este motivo, os resultados obtidos neste trabalho ainda não foram comparados - com os da luminescência.

Ainda no espectro de luminescência, observa-se um grande alargamento da linha na região de baixas energias. Este efeito, em parte, pode ser causado pela interação dos elétrons e fônons. Para amostras de concentração de portadores altas ( $n \geq 1,7 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ ) o fenômeno de interação elétron-fônon é facilmente verificado nas experiências de espalhamento aqui realizadas. É intenção da autora analisar este fenômeno através da técnica de luminescência, em colaboração com J. Galvão P. Ramos.

Finalmente, pretende-se repetir medidas com outras amostras tais como: InP do composto III-V e CdTe do composto II-VI, na temperatura ambiente e na temperatura de nitrogênio líquido ( $77^\circ\text{K}$ ). Nestes cristais, assim como em GaAs, tem-se  $w_p < w_L < E_g/n$ , o que os torna transparentes à radiação infra-vermelha, permitindo a observação de espalhamento de luz por partículas individuais de elétrons.



APÊNDICE I

Cálculo do valor de  $k_1$  (vetor de onda máximo dos elétrons foto-excitados) para as bandas não parabólicas.

Resolveremos a equação (III-5) para o caso não parabólico. Para isso, inicialmente calculemos o valor da  $E_V(\vec{k})$ .

Substituindo  $(k_x^2 k_y^2 + k_y^2 k_z^2 + k_z^2 k_x^2)$  da expressão (III-9) pelo seu valor médio calculado em todas as direções de  $k$  assumindo  $|\vec{k}|$  constante, tem-se:

$$\langle k_x^2 k_y^2 + k_y^2 k_z^2 + k_z^2 k_x^2 \rangle =$$

$$= \frac{k^4}{4\pi} \int (\sin^4 \theta \sin^2 \phi \cos^2 \phi + \sin^2 \theta \cos^2 \theta \sin^2 \phi + \sin^2 \theta \cos^2 \theta \cos^2 \phi) \sin \theta d\theta d\phi$$

$$= \frac{k^4}{4\pi} \left( \int_0^\pi \sin^5 \theta d\theta \int_0^{2\pi} \sin^2 \phi \cos^2 \phi d\phi + \int_0^\pi \sin^3 \theta \cos^2 \theta d\theta \int_0^\pi d\phi \right) = \frac{k^4}{5}$$

então a expressão (III-10) fica:

$$E_V(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2 m_0} \left\{ A \pm [B^2 + C^2/5]^{1/2} \right\} \quad (1)$$

Substituindo os valores de A, B e C da tabela I em

(1) vem:

$$E_V(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2 m_0} (-7,65 \pm 5,92) \quad (2)$$

O sinal (-) corresponde a buracos leves e o (+) corresponde a buracos pesados.

Portanto para os buracos pesados tem-se:

$$E_v(\vec{k}) = -1,73 \frac{\hbar^2 k^2}{2 m_0} \quad (3)$$

Substituindo o resultado da equação (3) em (III-5) temos:

$$\frac{\hbar^2 k^2}{2 m_0} + (E_g/2) \left[ \left( 1 + \frac{4E_p \hbar^2 k^2}{E_g^2 2m_0} \right)^{1/2} - 1 \right] + 1,73 \frac{\hbar^2 k^2}{2 m_0} = 0,92 \text{ eV}$$

fazendo  $\frac{\hbar^2 k^2}{E_g m_0} = x$ ,  $E_p = 20 \text{ eV}$  e  $E_g = 1,43 \text{ eV}$  a expressão acima

fica:

$$0,72 \left[ \left( (1+28,2x) \right)^{1/2} - 1 + (1+1,73)x \right] = 0,92$$

cuja solução é 0,10.

Portanto o valor de  $k_1$  pode ser dado por:

$$k_1 = (E_g m_0 x)^{1/2} / \hbar = 1,4 \times 10^7 \text{ cm}^{-1}$$

$$k_1 = 1,4 \times 10^7 \text{ cm}^{-1}$$

## APÊNDICE II

### Cálculo da massa efetiva dos buracos pesados nas bandas de valência.

#### 1. Supondo a banda isotrópica:

Lembrando-se que a massa efetiva é dada por:

$$m_b^* = \left[ \frac{1}{h^2} \frac{\partial^2 E_v(\vec{k})}{\partial k^2} \right]^{-1}$$

tem-se da expressão (3) do Apêndice I, o valor da massa efetiva igual a :  $- 0,57 m_0$

#### 2. Levando em conta a não isotropia na banda

A)  $\vec{k} = (k; 0; 0)$

$$E_v(\vec{k}) = \frac{h^2}{2m_0} (Ak^2 + |B|k^2)$$

$$(m_b^*)_{100} = - 0,35 m_0$$

B)  $\vec{k} = \left( \frac{k}{\sqrt{2}} ; \frac{k}{\sqrt{2}} ; 0 \right)$

$$E_v(\vec{k}) = \frac{h^2}{2m_0} \left\{ Ak^2 + \left[ B^2 k^4 + \frac{C^2 k^4}{4} \right]^{1/2} \right\}$$

$$(m_b^*)_{110} = - 0,68 m_0$$

$$c) \vec{k} = \left( \frac{k}{\sqrt{3}} ; \frac{k}{\sqrt{3}} ; \frac{k}{\sqrt{3}} \right)$$

$$E_V(\vec{k}) = \frac{\hbar^2}{2m_0} \left[ Ak + (Bk^4 + \frac{C^2 k^4}{3})^{1/2} \right]$$

$$(m_b^*)_{111} = -0,93 m_0$$

APENDICE IIIEfeito da abertura finita da fenda

A secção de choque de espalhamento por partículas individuais é dada por:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega dw} = A \exp\left[-m_e (\Delta E)^2 / h^2 q^2 2k_B T\right] \quad (1)$$

onde  $q = 2 \text{sen}(\theta/2) q_i$

$$\therefore q^2 = 2q_i^2 (1 - \cos \theta)$$

$$|\vec{q}_s| = |\vec{q}_i|$$

$$(\Delta E)^2 = (h\nu_i - h\nu_s)^2 = \left(\frac{hc \Delta\lambda}{\lambda_i^2}\right)^2$$

Portanto o expoente acima pode ser escrito por:

$$\frac{m_e (\Delta E)^2}{h^2 q^2 (2k_B T)} = \frac{m_e c^2 (\Delta\lambda)^2}{4k_B T \lambda_i^2 (1 - \cos \theta)} = \frac{\alpha}{1 - \cos \theta} \quad (2)$$

onde  $\alpha = m_e c^2 (\Delta\lambda)^2 / 4k_B T \lambda_i^2$ . Substituindo (2) e (1) vem:

$$\frac{d\sigma(\alpha)}{dw} = 2\pi A \int_{\theta_1}^{\theta_2} \left[ \exp(-\alpha / (1 - \cos \theta)) \right] \text{sen } \theta d\theta \quad \text{ou}$$

$$\frac{d\sigma(\lambda)}{dw} = 2\pi A \int_{x_1}^{x_2} \exp(-\alpha/x) dx \quad (3)$$

O coeficiente  $\alpha$  à temperatura ambiente toma o valor  $i$  igual a  $3,44 \times 10^5 (\Delta\lambda/\lambda_i)^2$ , logo a equação (3) fica:

$$\frac{d\sigma(\lambda)}{dw} = 2\pi A \int_{x_1}^{x_2} \exp\left[-(3,44 \times 10^5/x) (\Delta\lambda/\lambda_i)^2\right] dx$$

Tomemos como exemplo, uma fenda de abertura  $\Delta_x = R_2 - R_1 = 2\text{mm}$  situado a  $L = 50\text{mm}$  da amostra (ver a figura 13) e calculemos a variação de  $d\sigma(\lambda)/dw$  para  $\Delta\lambda = 4 \text{ \AA}$ , perto da origem:

Supondo-se o ângulo  $\theta$  pequeno e  $n = 3,4$  temos:

$$q = q_i \theta$$

$$\theta_1 = (1/n) \text{tg } \theta_1' = (1/n) R_1/L = 0,047$$

$$\theta_2 = (1/n) \text{tg } \theta_2' = (1/n) R_2/L = 0,059$$

Portanto:

$$x_1 = 1 - \cos \theta_1 = \theta_1^2/2 = 1,1 \times 10^{-3}$$

$$x_2 = 1 - \cos \theta_2 = \theta_2^2/2 = 1,7 \times 10^{-3}$$

Com  $\lambda = 10640 \text{ \AA}$  o expoente  $\alpha/x$  varia entre 44 e 28, portanto a variação do integrando é sobre 6 ordens de grandeza!

## REFERENCIAS

- 1) S.P.S. Porto and D.L. Wood, J. Opt. Soc. Amer. 52, 251, (1962)
- 2) R.C.C. Leite and S.P.S. Porto, J. Opt. Soc. Amer. 54, 981, 1964;  
D. Landon and S.P.S. Porto, Appl. Optics 4, 762 (1965); J.H.  
Worlock and S.P.S. Porto, Phys. Rev. Letters 15, 697, 1965.
- 3) S.P.S. Porto, J.A. Giordmaine, and T.C. Damen Phys. Rev. 147,  
608 (1966); J.F. Scott and S.P.S. Porto, Phys. Rev. 161, 903  
(1967), G.B. Wright Ed. Light Scattering Spectra of Solids,  
Springer, N.Y. (1969) e outras
- 4) S.P.S. Porto, P. Tell, and T.C. Damen, Phys. Rev. Letters 16,  
450 (1966); J.F. Scott, L.E. Cheesman, and S.P.S. Porto, Phys.  
Rev. 162, 834 (1967) e outras
- 5) P.A. Fleury, S.P.S. Porto, L.E. Cheesman and H.J. Guggenheim,  
Phys. Rev. Letters 17, 84 (1966)
- 6) A. Mooradian and G.B. Wright, Phys. Rev. Letters 16, 999 (1966);  
A. Mooradian and A.L. Mc Whorter, Phys. Rev. Letters 19, 849  
(1967) e outras
- 7) A Mooradian, Phys. Rev. Letters, 20, 1102 (1968), J.F. Scott,  
T.C. Damen, R.C.C. Leite and J. Shah, Phys. Rev. B, 1 : 11, 4330  
(1970) e outras
- 8) J. Shah, R.C.C. Leite and J.F. Scott, S.S. Comm. 8, 1089 (1970)
- 9) J.C. Mattos, W.O. Guimarães and R.C.C. Leite, Optics Comm. 8,  
73 (1973)
- 10) J.C. Mattos and R.C.C. Leite, S.S. Comm., 12, 465 (1973)

- 11) E. Lluesma, G. Mendes, C.A. Arguelo and R.C.C. Leite, S.S.Comm. 14, 1195 (1974)
- 12) P.A. Wolff, Phys. Rev. 171, 436 (1968); Phys. Rev. Letters, 16, 225 (1966)
- 13) A. Mooradian and A.L. McWhorter, "Proc. 10th Int. Conf. on the Phys. of Semiconductors", S.P. Keller, J.C. Hencel and F. Stern Eds. (USA A.E.C. 1970) p. 380
- 14) R.S. Turtelli, A.R.B. Castro and R.C.C. Leite, S.S. Comm. 16, 969 (1975)
- 15) E.M. Conwell, High Field Transport in semiconductors, Supp. 9 of Solid State Physics, Ed. by F. Seitz, D. Turnbull and H. Ehrenreich, Academic Press, (1967)
- 16) J. Shah e R.C.C. Leite, Phys. Rev. Letters, 22, 1304, 1969
- 17) R.C.C. Leite and S.P.S. Porto, Phys. Rev. Letters 17, 10, (1969); R.C.C. Leite, J.F. Scott and T.C. Damen, Phys. Rev. Letters 22, 780 (1969)
- 18) R.S. Turtelli, Tese de Mestrado, UNICAMP (1973); R. Ulbrich, Phys. Rev. B 8, 5719 (1973); J. Shah, Phys. Rev. B 10, 3697 (1974); E.A. Menezes, N. Jannuzzi, J.G. P. Ramos, R. Luzzi and R.C.C. Leite, Phys. Rev. B 11, 2213, 1975; e outras.
- 19) T.C. Damen, R.C.C. Leite and J. Shah, Proc. of Xth International Conference on the Physics of Semiconductors; S.P. Keller, J.C. Hencel and F. Stern; Editors (USA A.E.C., 1970) p. 735; P. Corden, A. Pinczuk and E. Burstein, Proc. of Xth International Conference on the Physics of Semiconductors, S.P. Keller J.C. Hencel and F. Stern, Ed. (USA, A.E.C., 1970) p. 739.



- 20) A.L. MacWorter, "Proc. of the International Conf. on the Phys of Quantum Electronics, Puerto Rico 1965 " Mc Graw-Hill, N.Y. 1965.
- 21) P.M. Platzman, Phys. Rev. 139, A 379 (1965)
- 22) P.A. Wolff, Pyys. Rev. Letters 16 , 6, (1966)
- 23) D.C. David and A. L. MacWhorter, "Light Scattering Spectra of solids I ", G. B. Wright Ed. (N.Y., 1969) p. 309
- 24) P.A. Wolff, "Light Scattering Spectra of Solids I " , G. B. Wright Ed. (N.Y., 1969) p. 273
- 25) A. Mooradian and G.B. Wright, Phys. Rev. Letters, 16 , 22, 999 (1966)
- 26) A. Mooradian, Phys. Rev. Letters, 20, 1102, (1968)
- 27) A. Mooradian, Advances in Solid State Physics, (Ed. By D.E. Madelung, Pergamon Press, N.Y.) IX; J.F. Scott, T. C. Damen, R. C.C. Leite and J. Shah, Phys. Rev. B 1 , 11, 4330 (1970); V. Klein and S. P. S. Porto, Phys. Rev. Letters 22, 1969; C. K. N. Patel and E. D. Shaw , Phys Rev. Letters 21, 1073, 1970 and F.A. Blum and A. Mooradian, proc. of Tenth International Conference on Physics of Semiconductors, Boston, Ed. S.P. Keller et al, p.755 (USA, A.E.C.) 1970.
- 28) A. R. Vasconcelos and R. Luzzi, S. S. Comm. 17, 501, 1975
- 29) Esses cálculos foram desenvolvidos em colaboração com A. R. Vasconcelos
- 30) A. R. Vasconcelos and R. Luzzi, Phys. Rev. B 10, 1773, 1974

- 31) J. Lindhard, Dan. Math., Fys. Medd. 28, nº 8, 1954
- 32) A. R. Vasconcelos, Tese de Doutorado, UNICAMP (1976)
- 33) M. Abramowitz and I. Stegun, "Handbook of Math. Functions", p. 319, 8th Ed. , Dover, N: Y., 1972
- 34) L. Hedin, Phys. Rev. 139 A, 796, 1960
- 34') A. Mooradian, "Light Scattering Spectra of Solids I", G. B. Wright, Ed. (New York, 1969) p. 285
- 35) A. Mooradian and G. Wright, S.S. Comm. 4, 431, 1966.
- 36) G.P. Vello-Coleiro, Phys. Rev. Letters, 23, 697 (1969)
- 37) Y.B. Levinson and B.N. Levinsky. S.S. Comm. 16, 713, 1975
- 38) H. Smith, Phil. Trans. Roy. Soc. London A 241, 105 (1948)
- 39) E.O. Kane, J. Phys. Chem. Solids 1, 249 (1957); R. Ulbrich, Physics Rev. B 8, 5719 (1973)
- 40) P. Lawaetz, Phys. Rev. B4, 3460 (1971)
- 41) B.B. Varga, Phys. Rev. 137, A 1896 (1965)
- 42) A. Mooradian and A.L. Mac Whorter, "Light Scattering Spectra of Solids I" G.B. Wright Ed. (N.Y. 1969) p. 297
- 43) J.C. Dymont and G.A. Rozgonyi, J. Electrochem. Soc. Solid State Science, 118, 8, 1346 (1971)
- 44) A.R.B. de Castro, J. of Chem. and Lasers, a ser publicado
- 45) J.J. Pankove "Optical Process In Semiconductors", p. 10-46, Prentice Hall, Inc. Englewood Cliffs, 1971
- 46) S.J. Bepko, Phys. Rev. B12, 669, 1975
- 47) L.J. van der Pauw, Philips Res. Repts 13, 1-9, 1958

- 48) J.A. Freitas, Tese de Mestrado, UNICAMP (1974)
- 49) R.K. Chang, J.M. Ralston and D.E. Keating " Light Scattering Spectra of Solids I" G.B. Wright Ed. (N.Y. 1969) p. 369
- 50) I.B. Levinson, Sov. Phys. JEIP, 38, 1, 162 (1974)
- 51) A.A. Kukharskii, S.S. Comm. 13, 1761 (1973)