

DEPENDÊNCIA DAS INTERAÇÕES ELETRON-FONON COM RESPEITO AO
VETOR DE ONDA DAS EXCITAÇÕES LO, TO E POLARITON.

JAIME DE ANDRADE FREITAS JÚNIOR

ORIENTADOR

PROF. ROGÉRIO CÉZAR DE CERQUEIRA LEITE

*Tese apresentada no Instituto de
Física "Gleb Wataghin" da Univer
sidade Estadual de Campinas, pa
ra a obtenção do título de Mes
tre em Ciências.*

JUNHO, 1974

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Rogério Cêzar de Corqueira Leite, pelo problema sugerido, pela eficiência e decisiva orientação e incentivo à conclusão do mesmo.

Ao José Carlos Valladão de Matos pela paciência, incentivo, discussões e pela força máxima dada a este trabalho.

Ao Eliseo Gallego Lluesma pelo seu interesse e eficiente colaboração.

Ao Wladimir O.N. Guimarães pelo apoio e amizade.

Ao Prof. R.C.C. Leite e ao Wladimir O.N. Guimarães que tornaram possível a minha permanência em Campinas.

Aos Profs. Roberto Luzzi e Nelson de Jesus Parada por esclarecimentos.

Ao MINIPLAN e BNDE pelo importante apoio financeiro.

Ao Geraldo Mendes pela amizade e colaboração indispensável.

Ao Sr. Juvenal Xavier de Oliveira e auxiliares pela pronta e hábil colaboração nos vários projetos desenvolvidos na Oficina Mecânica.

Ao Valdomiro Fernandes de Paula e auxiliares pela eficiência e colaboração nos trabalhos matizados na Gráfica.

Ao Gilberto Orlando Feriani pelas figuras.

A Irani pelo excelente trabalho de datilografia.

Ao colega e amigo Joaquim de O. Figueiredo.

Ao amigo José Carlos Valladão de Matos.

Aos professores e colegas pelo excelente ambiente de trabalho.

A meus pais.

Jaime

A

Ivone

Í N D I C E

CAPÍTULO I	- Introdução	1
CAPÍTULO II	- Generalidades sobre Excitações não-Equilibra das Termicamente com a Rede	5
CAPÍTULO III	- Técnica Experimental	
3.1	- Instrumental	13
3.2	- Medidas	17
CAPÍTULO IV	- Resultados Experimentais	
4.1	- Fonons Óticos Longitudinais (LO)	21
4.2	- Polariton	25
4.2-1	- Introdução	25
4.2-2	- Teoria	28
4.2-3	- Experimental	32
CAPÍTULO V	- Discussão e Conclusões	
5.1	- Discussão	42
5.2	- Conclusões	44

INTRODUÇÃO

Populações de fonons acústicos não equilibradas termicamente com a rede cristalina (fonons quentes), foram estudadas anteriormente com algum detalhe em relação aos problemas de transportes em semicondutores (1).

A primeira publicação sobre distribuições de fonons óticos não equilibradas termicamente, se deve a Vella-Coleiro (2). Este excesso de população de fonons LO foi induzido por portadores foto-excitados em CdS. Os portadores energéticos eram obtidos pela absorção de ftons de energia dobrada por geração de segundo harmônico. Um campo magnético pulsado provocaria a formação de níveis de Landau. Assim, quando a separação entre dois níveis de Landau coincidissem com a energia de um fonon LO, a criação de tal fonon seria favorecida e consequentemente se observaria aumento de população de fonons LO para valores pré-determinados do campo magnético. A interpretação dada por Vella-Coleiro foi questionada por Shah, Leite e Scott (3), uma vez que a criação de fonons longitudinais óticos em CdS deve ser dominante mesmo na ausência de campo magnético.

Posteriormente, populações de fonons óticos não equilibradas termicamente foram observadas em vários semicondutores, sem a aplicação de campos magnéticos: GaAs (3,4,5), InSb (5), Si (5), GaSe (5). Não se sabe ao certo como a aplicação de campo magnético nos leva a observação de fonons quentes no experimento da referência 2, uma vez que o nível de excitação neste caso é 10^7 inferior àquele utilizado nas experiências sem campo magnético (3-5).

Recentemente, enorme população de fonons óticos foi induzida em GaAs (6) pela relaxação de foto-portadores gerados pe

la absorção de fótons de frequência dobrada provenientes de um laser Nd:Yag ($2\hbar\omega_L = 2 \times 1.17$ eV).

O CaAs é transparente para a radiação de 1.17 eV, uma vez que esta energia é menor do que o "gap". Também é um excelente conversor de segundo harmônico e possui alta condutividade térmica. Com fortes linhas Raman de primeira ordem e tendo as frequências dos fonons longitudinal ótico (LO) e transversal ótico (TO) bem conhecidas, bem como todas suas propriedades óticas cuidadosamente medidas, nos oferece condições excepcionais para a realização de experimentos semelhantes àqueles das ref. 3, 4 e 5, observando-se agora, geração de portadores e espalhamento de luz no interior do material (bulk) ao contrário de espalhamento na superfície como nos experimentos das ref. 3, 4 e 5. Esta modificação evita a inconveniência do aumento da temperatura da rede (3,4,5) devido à alta intensidade luminosa absorvida em um pequeno volume do cristal, e a influência determinante das condições de superfícies (4,7) no tempo de vida dos fonons e consequentemente na largura de linha dos mesmos.

Como sabemos, para fonons transversais o acoplamento elétron-rede se dá unicamente através do potencial de deformação, originado pelas deformações mecânicas da rede cristalina devido à passagem do fonon. Para os fonons longitudinais o acoplamento elétron-rede se dá também pelo potencial de deformação, mas com um mecanismo adicional devido ao campo elétrico macroscópico associado às vibrações longitudinais (interação de Fröhlich, responsável pela separação LO-TO⁽⁸⁾). Portanto, os fonons LO são mais eficientes para o processo de relaxação, conforme medidas apresentadas na referência 5.

Deve-se notar que até então, a preocupação em trabalhos anteriores, era de uma verificação dos tipos de processos de interação elétron-fonon responsáveis pela formação de fonons quando

tes devido à relaxação da energia dos portadores foto-excitados, não sendo levado em conta os diferentes valores de vetor de onda $\vec{k}$ do fonon.

Nossa intenção no presente trabalho é fazer uma "varredura" no espaço dos vetores de onda dos fonons, de maneira a obter informações a respeito da forma de interação eletron-fonon responsável pelo decaimento dos portadores foto-excitados.

Como será descrito com maiores detalhes no próximo capítulo, a frequência do foton proveniente do laser (Nd:Yag) é dobrada e absorvida no interior da amostra de GaAs, criando um par eletrôn-buraco com um excesso de energia $E = 2\hbar\omega_L - E_g \approx 0,9$ eV. A radiação Raman espalhada é observada em relação à radiação de 1,17 eV do Nd:Yag, para a qual o GaAs é transparente.

Em todo processo de decaimento do eletrôn na Banda de Condução no qual somente um fonon ótico é produzido, o vetor de onda $\vec{k}$ deste fonon é limitado por um valor máximo ($\vec{k}_{max}$) e mínimo ($\vec{k}_{min}$). Como será calculado posteriormente, usando-se a aproximação parabólica das bandas de condução e de valência, os menores valores para o vetor de onda do fonon serão obtidos analisando-se a luz espalhada aproximadamente na mesma direção que a de propagação do vetor de onda do foton incidente $\vec{k}_i$ ("forward"). O vetor de onda de um fonon medido num experimento de espalhamento Raman a 180° (back scattering) é da ordem de $2\vec{k}_i$ e num espalhamento a 90° é da ordem de $\sqrt{2}\vec{k}_i$ (vetor de onda do foton incidente). Na direção de incidência entretanto, o vetor de onda observado em espalhamento Raman se aproxima de zero e sua variação com ângulo de observação é bastante rápida.

Para obtermos informações sistemáticas do espaço- $\vec{k}$ do vetor de onda do fonon, para pequenos valores de $\vec{k}$, usamos uma configuração próxima àquela de incidência, frequentemente usa-

da para estudos de polariton⁽⁹⁾ (geometria de polariton). Nos experimentos das referências 4 e 5 a luz espalhada era observada a aproximadamente 180° , enquanto que na referência 6 se observava uma mistura de 0 a 180° .

Durante a realização do presente trabalho, como era esperado, a luz espalhada por polaritons foi também observada em nossas medidas, nos parecendo relevante também incluí-lo no estudo da dependência do acoplamento eletrôn-rede com respeito ao vetor de onda $\vec{k}$ da excitação observada.

Nossas observações experimentais confirmaram alguns resultados obtidos nas experiências da referência 6, para fonons LO e TO. Note-se que nesta referência, a geometria de espalhamento era mal definida, e que não era feita nenhuma seleção nos possíveis valores dos vetores de onda $\vec{k}$ das diversas populações de fonons, sendo portanto a informação fornecida uma média para os valores de $\vec{k}$. Quanto ao polariton, apresentou em nossas medidas um comportamento semelhante ao do fonon transversal ótico.

Assim, o presente trabalho é a primeira tentativa de verificação direta da forma de interação eletrôn fonon em função do vetor de onda do fonon e portanto da chamada interação de Fröhlich, $G(\vec{k}) = \alpha/k^2$, onde $G(\vec{k})$ é a razão de geração de fonons para um determinado k e α uma constante de acoplamento.

CAPÍTULO II

GENERALIDADES SOBRE EXCITAÇÕES NÃO-EQUILIBRADAS TERMICAMENTE COM A REDE.

A indução de populações de fonons não equilibradas termicamente com a rede cristalina são obtidas por meio do decaimento de portadores energéticos foto-excitados nas bandas de condução e valência. Os portadores decaem nas bandas respectivas principalmente pela criação de fonons óticos. Outros processos possíveis de decaimento envolvem a criação de fonons acústicos e perda de energia para o sistema de portadores livres que porventura existe. Um esquema do processo de decaimento é apresentado na figura 2.1.

Segundo cálculos apresentados por Ehrenreich⁽¹⁰⁾ o espalhamento ótico polar é predominante em amostras de GaAs relativamente puras pelo menos no intervalo de 200°K a 500°K. Portanto se a foto-geração de portadores for eficiente e se o tempo de vida dos fonons for suficientemente longo, (ou se tal relaxamento é da mesma ordem que o decaimento dos fonons óticos em acústicos), obter-se-á um acréscimo na população de fonons óticos polares.

Devido à forma da banda, o fonon criado pelo decaimento de um foto-portador pode ter um vetor de onda que varie de um valor mínimo finito K_{min} , bastante pequeno em relação às dimensões da Zona de Brillouin, até um valor máximo $K_{max} \approx 2K_e$ (onde K_e é o vetor de onda do eletrão foto-excitado) para uma mesma energia. Como é visto na figura 2.2, podemos escrever segundo a conservação da energia que

$$\epsilon_{2 \text{ fotons}} = \epsilon_{B.C.}^e + \epsilon_{GAP} + \epsilon_{B.V.}^b \quad (2.1)$$

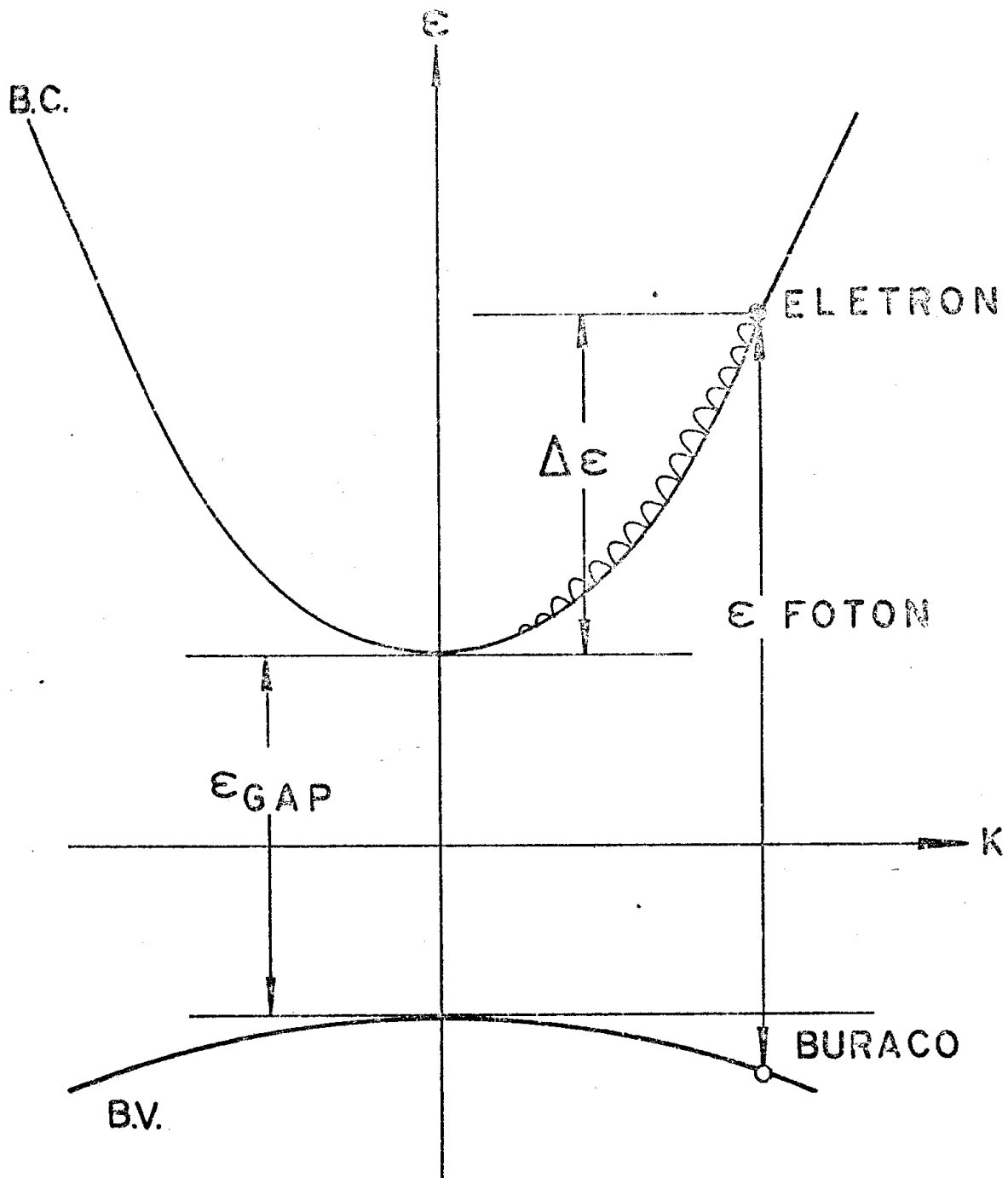


Fig: 2.1

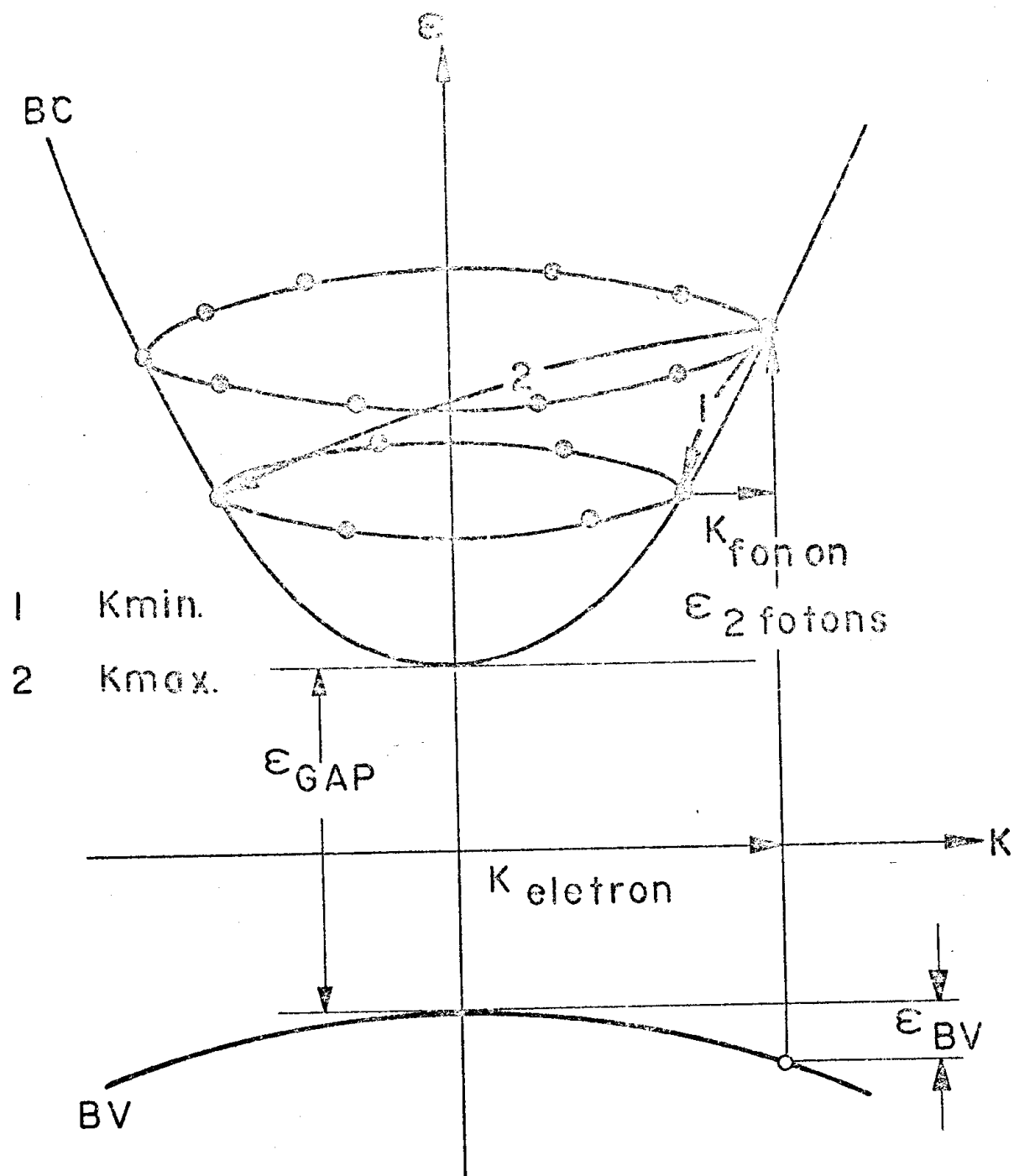


Fig: 2.2

onde o índice superior e refere-se ao eletrôn. Aqui não levaremos em conta o buraco, uma vez que sua massa efetiva é muito grande. Portanto sua contribuição é pequena em relação àquela do eletrôn.

$$\epsilon_{B.C.}^e = \frac{\hbar^2 K_e^2}{2m_{B.C.}^*}, \quad \epsilon_{B.V.}^b = \frac{\hbar^2 K_b^2}{2m_{B.V.}^*} \quad (2.2)$$

onde $K_e = K_b$, $\hbar$ é a constante de Planck, $m_{B.C.}^*$ e $m_{B.V.}^*$ são respectivamente a massa efetiva do eletrôn na banda de condução e na banda de valência.

Portanto de (2.2) em (2.1)

$$K_e = \left| \frac{\epsilon_{2 \text{ fotons}} - \epsilon_{\text{gap}}}{\frac{\hbar^2}{2} \left(\frac{1}{m_{B.C.}^*} + \frac{1}{m_{B.V.}^*} \right)} \right|^{1/2} \quad (2.3)$$

Da equação (2.2) podemos escrever

$$\Delta \epsilon_{B.C.}^e = \frac{2\hbar^2 K_e \Delta K_e}{2m_{B.C.}^*}$$

ou ainda

$$\Delta K_e = \frac{m_{B.C.}^*}{\hbar^2 K_e} \Delta \epsilon_{B.C.}^e = \frac{m_{B.C.}^*}{\hbar^2 K_e} \epsilon_{\text{fonon}} \quad (2.4)$$

De (2.3) e (2.4) obtemos finalmente que

$$\Delta K_e = K_{\min}^{\text{fonon}} = \frac{m_{B.C.}^*}{\hbar \left| \frac{\epsilon_{2 \text{ fotons}} - \epsilon_{\text{gap}}}{\frac{1}{2} \left(\frac{1}{m_{B.C.}^*} + \frac{1}{m_{B.V.}^*} \right)} \right|^{1/2}} \quad (2.5)$$

Substituindo os valores conhecidos (11,12) para o GaAs, $\epsilon_{\text{gap}} = 1,43 \text{ eV}$; $\epsilon_{\text{fonon}} = 292 \text{ cm}^{-1}$; $m_{B.V.}^* = 0,52 m_0$; $m_{B.C.}^* = 0,07 m_0$ (sendo m_0 a massa de repouso do eletrôn), obtemos pa

ra o menor vetor de onda do fonon no processo de relaxação do eletrôn o valor $K_{\min} \approx 35000 \text{ cm}^{-1}$. Este valor é muito pequeno comparado com a zona de Brillouin, cujo máximo é da ordem de 10^8 cm^{-1} . Portanto, há um grande intervalo entre $K_{\min}$ e $K_{\max}$ em que os portadores foto-excitados na Banda de Condução podem criar fonons óticos, com mesma energia, mas com vetores de onda distintos.

O modelo teórico assumido para o estudo da relaxação dos portadores foto-excitados em fonons longitudinais óticos⁽³⁾, de vetor de onda $\vec{K}$ qualquer, é apresentado em seguida.

Se chamamos $G(K)$ a razão de geração de fonons com vetor de onda $\vec{K}$ (número de fonons criados na unidade de tempo) e τ o tempo de vida dos fonons, teremos que

$$G(K)\tau = n(K) - n_0(K) \quad (2.6)$$

nos dará o excesso de fonons em relação à distribuição em equilíbrio térmico com a rede cristalina, onde

$$n_0(K)4\pi K^2 dK = \frac{1}{8\pi^3} 4\pi K^2 dK (\exp h\omega_0/k_B T_0 - 1)^{-1} \quad (2.7)$$

é a densidade de fonons em equilíbrio térmico com a rede cristalina, com vetor de onda entre K e $K+dK$, dada pela distribuição de Planck.

Em (2.7), k_B é a constante de Boltzman, T_0 a temperatura da rede cristalina, $\hbar\omega_0$ é a energia do fonon, sendo aqui desprezada a dependência de ω com K .

Como será discutido detalhadamente no próximo capítulo, o GaAs é transparente para a radiação de 1.17 eV do Nd:Yag la ser e também é um excelente conversor de segundo harmônico, de maneira que a densidade de portadores gerados por segundo é dada por

$$G_e = \frac{\Lambda P^2}{\hbar\omega_L} \frac{1}{A d} \quad (2.8a)$$

sendo P a potência do laser usada na medida, A o fator de conversão de segundo harmônico para a amostra utilizada, A a área do feixe focalizado e d o comprimento do cristal. Portanto " Ad " é o volume de geração, uma vez que segundo harmônico é gerado por todo comprimento do cristal, bem como volume de espalhamento. $\hbar\omega_L$ é a energia dos fons incidentes. Supomos aqui que todo segundo harmônico gerado é absorvido, o que é aceitável, uma vez que o segundo harmônico gerado no "bulk" da amostra tem energia maior do que o gap (o coeficiente de absorção da amostra é muito grande (13)).

Sendo P_0 a potência máxima usada em nossas medidas, podemos escrever a equação (2.8a) como

$$G_e = \frac{\Lambda P_0^2}{\hbar\omega_L} \frac{1}{Ad} \left(\frac{P}{P_0} \right)^2 \quad (2.8b)$$

Supondo que todo excesso de energia $\Delta\epsilon$ do portador foto-excitado seja transferido para o sistema de fonons durante o decaimento do portador, a razão de geração de fonons para todos os possíveis valores do vetor de onda será dada por

$$G_{\text{fonons}} = G_e \frac{\Delta\epsilon}{\hbar\omega_0} = \frac{\Delta\epsilon}{\hbar\omega_0} \frac{\Lambda P_0^2}{\hbar\omega_L} \frac{1}{A \cdot d} \left(\frac{P}{P_0} \right)^2 \quad (2.9)$$

onde $\hbar\omega_0$ é a energia do fonon criado no processo de relaxação.

Uma vez que o GaAs é um semiconductor fortemente polar, indicação dada pela grande separação entre os modos óticos longitudinais e transversais em $K = 0$ (8), o termo de interação de Fröhlich é dominante na interação eletrôn-fonon (campo elétrico macroscópico associado ao fonon LO), de maneira que os foto-portadores relaxam-se preferencialmente através de fonons LO (10). A razão de geração de fonons com vetores de onda $\vec{K}$ para cada eletrôn foto-excitado na Banda de Condução, tem a forma

$$G(K) = \frac{\alpha}{K^2}$$

Sendo G_{fonons} dado pela equação (2.9)

$$G(K) = G_{\text{fonons}} \alpha / K^2 \quad (2.10)$$

Na equação (2.10) α é uma constante de acoplamento e K o vetor de onda do fonon.

Supomos que seja possível escrever-se para $n(K)$ (a densidade de fonons não-equilibrados termicamente com a rede cristalina) uma expressão semelhante à equação 2.7. Isto é aceitável contanto que nos mantenhamos alertos quanto ao significado da temperatura T aqui utilizada. Esta é apenas um parâmetro que indica a população de fonons. Isto é, T é uma temperatura efetiva para a qual a população de fonons é igual àquela que existiria se o cristal estivesse à referida temperatura. Assim, baseado nesta suposição, e fazendo a substituição de 2.7 na equação 2.6, e usando a expressão de $G(K)$ de 2.10, temos

$$\left| \frac{1}{e^{\hbar\omega_0/K_B T} - 1} - \frac{1}{e^{\hbar\omega_0/K_B T_0} - 1} \right| = G_{\text{fonons}} \frac{8\pi^3 \alpha \tau}{K^2} \quad (2.11)$$

Sabemos da teoria de espalhamento Raman por fonons que a intensidade da luz espalhada na frequência Stokes (S) é proporcional a $n + 1$, enquanto que na frequência anti-Stokes (A), é proporcional a n ⁽¹⁴⁾, sendo n o número de fonons presentes.

Uma vez que n é o número de ocupação para fonons, da do pela teoria de Bose-Einstein, podemos escrever para a razão da intensidade de luz espalhada nas frequências Stokes e anti-Stokes dos fonons, a expressão

$$S/A = \frac{n + 1}{n} = \exp \frac{\hbar\omega_0}{K_B T} \quad (2.12)$$

sendo que ω_0 é a frequência do fonon considerado e T a temperatura da distribuição de fonons.

Como não foi observado nenhum deslocamento na frequên -

cia do fonon, nem alargamento da linha nas medidas realizadas, comprovando as observações da referência (6), podemos garantir que a variação do segundo termo, comparada à variação do primeiro termo, no lado esquerdo da relação 2.11 é desprezível. Assim, usando-se 2.12, podemos escrever a relação 2.13, como segue

$$\left(\frac{S}{A} - 1\right)^{-1} = \frac{\gamma}{K^2} \left(\frac{P}{P_0}\right)^2 \quad (2.13)$$

onde

$$\gamma = \frac{\Delta\epsilon}{\hbar\omega_0} \frac{8\pi^3\alpha\tau}{\hbar\omega_L} \frac{\Lambda P_0^2}{\Lambda d}$$

Admitamos que α e τ sejam constantes, pelo menos no intervalo das medidas realizadas. Num gráfico de $(S/A-1)^{-1} \times K^{-2}$ é esperado um comportamento linear com coeficiente angular $\gamma(P/P_0)^2$. Para um valor fixado de P/P_0 (a potência normalizada) podemos verificar a eficiência do termo de Fröhlich na relaxação dos portadores foto-excitados.

Por outro lado, fixando-se uma determinada população de fonons (para um K fixo), pode-se verificar a dependência de $(S/A - 1)^{-1}$ em função da potência incidente. Vê-se da eq. 2.13 que, o comportamento esperado é linear. Para diferentes populações de fonons espera-se simplesmente retas com coeficientes angulares diferentes.

Os dois comportamentos acima foram estudados experimentalmente e serão detalhados nas seções seguintes.

TÉCNICA EXPERIMENTAL

3.1 - INSTRUMENTAL

A fonte de geração de portadores foto-excitados consistiu de um laser Nd:Yag (MODEL 60 YAG LASER - COHERENT RADIATION) cujo Q da cavidade é variado acusticamente Q-switched), que embora emitisse ftons de energia menor que o "gap" do GaAs, tinha sua energia dobrada no interior do cristal, uma vez que o mesmo é um excelente gerador de segundo harmônico para esta frequência.

A geração de harmônicos é um exemplo de interação da luz com um meio não linear. Este processo pode usualmente ser tratado como uma pequena perturbação cuja existência não afeta drasticamente a passagem do feixe primário de luz através do cristal. Portanto, o mesmo laser foi usado para espalhamento Raman das diversas excitações a serem observadas (LO, TO e POLARITON).

Maiores detalhes sobre geração e absorção de segundo - harmônico são apresentados nas referências 15 e 16.

Com um feixe de diâmetro de aproximadamente 70 μ , atingimos uma densidade máxima na potência de pico de $\sim 10^8$ watts/cm² na frequência não dobrada.

A análise espectral da luz espalhada foi realizada por meio de um duplo-monocromador de 100 cm (Scanning Double Monochromator-Jarrel Ash), uma fotomultiplicadora S-1 refrigerada a nitrogênio de maneira a obtermos melhor relação sinal ruído. Depois de amplificado, por amplificador de pulso, o sinal era enviado a um Integrador "Boxcar" (Boxcar Integrator Model 160 , Princeton Applied Research), (sempre em 500 Hz), finalmente o

sinal é registrado (7100 Bm Strip Chart Record-Hewlett Packard). Registrava-se simultaneamente com o espectro a potência do laser, de modo a se ter segurança de sua estabilidade durante uma medi-
da.

Uma idéia esquemática da distribuição instrumental acima descrita, nos é fornecida pelo diagrama de bloco apresentado na figura 3.1.

Com o propósito de mantermos constantemente a temperatura ambiente a amostra de GaAs, esta foi fixada a um pequeno bloco de cobre, sendo o contato térmico garantido pela alta condutividade térmica da amostra.

Para selecionarmos populações de diferentes vetores de onda utilizamos um conjunto de máscaras circulares com raios diferentes e de abertura aproximadamente igual a 2 mm. A geometria de espalhamento era próxima à "geometria de polariton" (forward), de modo que passando-se de uma máscara para outra, o módulo do K_{fonon} variava significativamente. Posteriormente fixamos a menor máscara circular em um suporte xy (perpendicular ao feixe do laser) que por sua vez podia ser movido paralelamente ao feixe do laser. Este novo arranjo nos proporcionou a possibilidade de maior número de medidas, bem como maior precisão no alinhamento ótico, sendo usado na parte relativa ao polariton. Na parte central da máscara foi fixado um pequeno espelho que refletia o feixe do laser incidente ($1,064\mu$) não absorvida pela amostra, - desta maneira reduzindo a quantidade de luz direta do laser dentro do espectrômetro. Uma representação esquemática deste sistema é apresentado na figura 3.2 .

O arranjo instrumental acima descrito nos possibilitou medir vetores de onda da ordem de 2600 cm^{-1} , o que correspondia a ângulos internos na amostra de GaAs da ordem de $0,8^\circ$.

Toda a técnica instrumental descrita (próxima a configu-

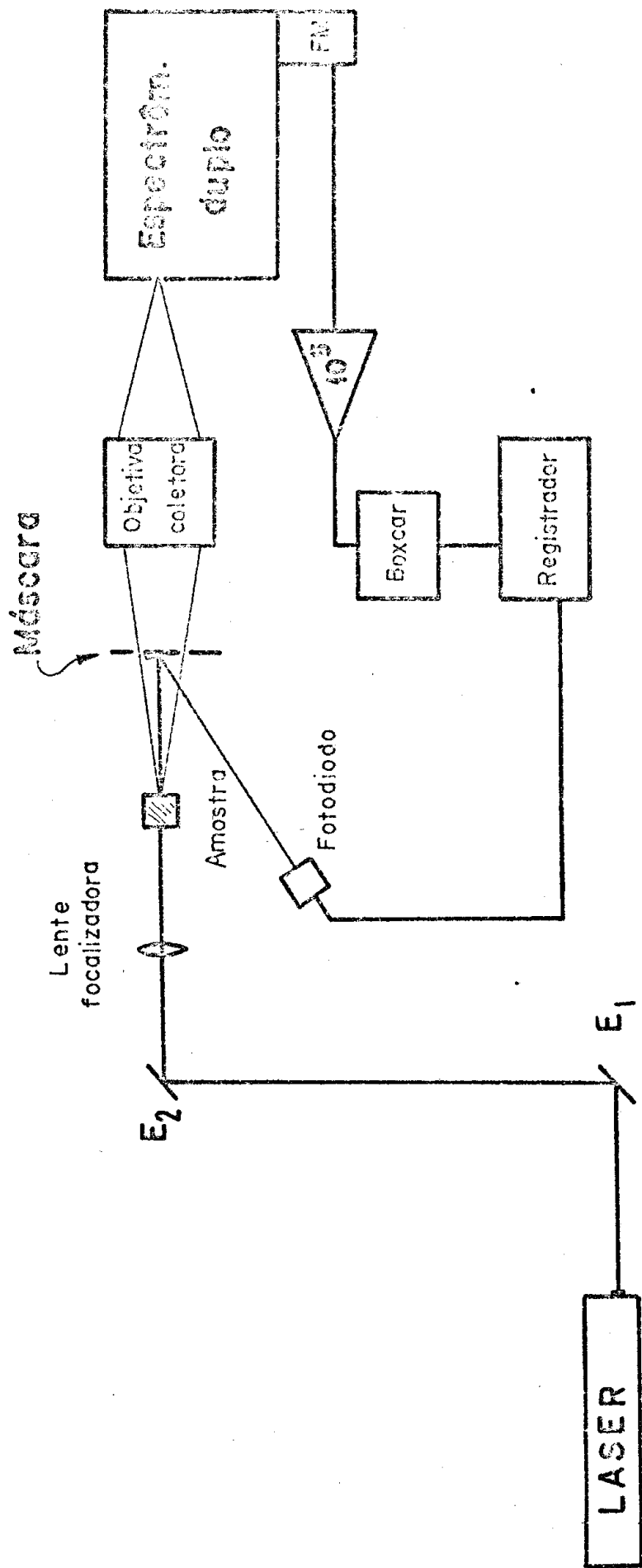


Fig: 3.1

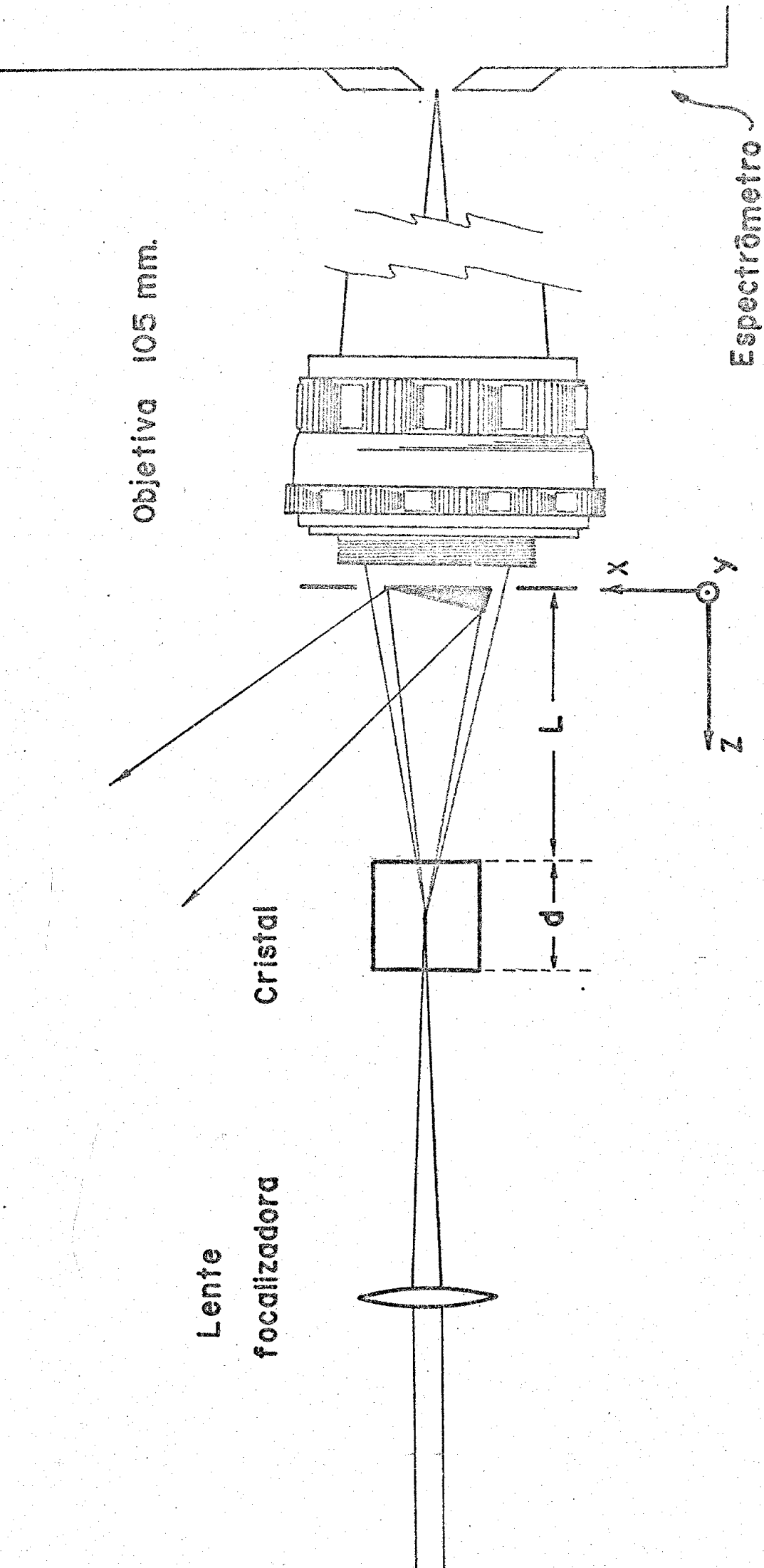


Fig: 3.2

ração "forward") já tem sido usada em trabalhos anteriores⁽⁹⁾, mas nunca com o propósito de estudar o acoplamento eletrôn-fonon.

3.2 - MEDIDAS

O objetivo principal de nossas medidas foi o estudo da dependência do acoplamento eletrôn-rede com respeito ao vetor de onda K das excitações observadas. Portanto fez-se necessário medir-se distribuições de fonons com diferentes vetores de onda K , sendo empregado com este objetivo o instrumental anteriormente descrito.

As informações sobre a população de cada distribuição- K de fonons nos era fornecida pela razão das intensidades Stokes e anti-Stokes. Para que estas medidas fossem repetitivas, foi necessário assegurarmo-nos da estabilização da temperatura ambiente, do fluxo e temperatura da água de refrigeração do laser, bem como da tensão da linha de alimentação, o que nos garantia melhor estabilidade na potência do laser. Como verificação desta estabilidade, a intensidade da potência incidente foi monitorada e registrada simultaneamente com as componentes Stokes e anti-Stokes da luz espalhada.

Grande cuidado foi tomado em relação ao alinhamento, pois era imprescindível que o feixe do laser fosse coincidente com o eixo da máscara circular, uma vez que desejávamos medir populações de mesmo vetor de onda K . A maior dificuldade para este alinhamento devia-se ao fato da luz fornecida pelo laser ($1,064\mu$) não ser visível. Este problema foi contornado pelo uso de um visor infravermelho (Model IRV 7100 - Electrophysics Corp Nutley, N.J.), de um cartão fosforescente para esta frequência e auxílio de um laser de argônio para determinação do caminho ótico.

Verificações cuidadosas foram feitas com o intuito de - saber quais os valores mais convenientes para a amplificação do sinal da fotomultiplicadora (a fim de evitar saturação do sinal), constante de tempo e abertura (gate) do Boxcar, bem como velocidade de varredura (scanning) do espectrômetro duplo e constante de tempo do registrador, de modo que o sistema eletrônico respondesse corretamente ao sinal, não provocando distorções - nem variações na intensidade da linha registrada. Esta calibração foi feita para uma razão de repetição dos pulsos do laser de 500 Hz, região em que obtínhamos maior potência de pico e estabilidade no comportamento do laser para todo intervalo de variação de potência usado nas medidas.

Como já foi comentado no parágrafo anterior, a máxima densidade utilizada na potência de pico em nossas medidas foi - de $\sim 10^8$ watts/cm². Notou-se que uma pequena variação acima - deste valor provocava uma ruptura abrupta no cristal. Isto provavelmente ocorria devido à grande intensidade do campo elétrico do feixe incidente na amostra (17). Para o máximo valor utilizado no intervalo de medidas, nenhum aquecimento local apreciável foi verificado, segundo as medidas de alargamento e deslocamento da linha Raman, que nos permite detectar variações na temperatura da rede inferiores a 10°K, estando portanto nossas observações sobre a temperatura da rede cristalina em acordo com aquelas observadas na referência 6.

O intervalo de medidas de variação de potência do laser, para uma razão de repetição de 500 pulsos por segundo, era sempre de 0,1 KW nas lâmpadas do laser, e a correspondência com a potência de saída do laser é apresentada na figura 3.3 .

Devido à utilização de um espectrômetro duplo para a análise espectral da radiação espalhada, fêz-se necessário, para a obtenção de espectros corretos a garantia de que as duas

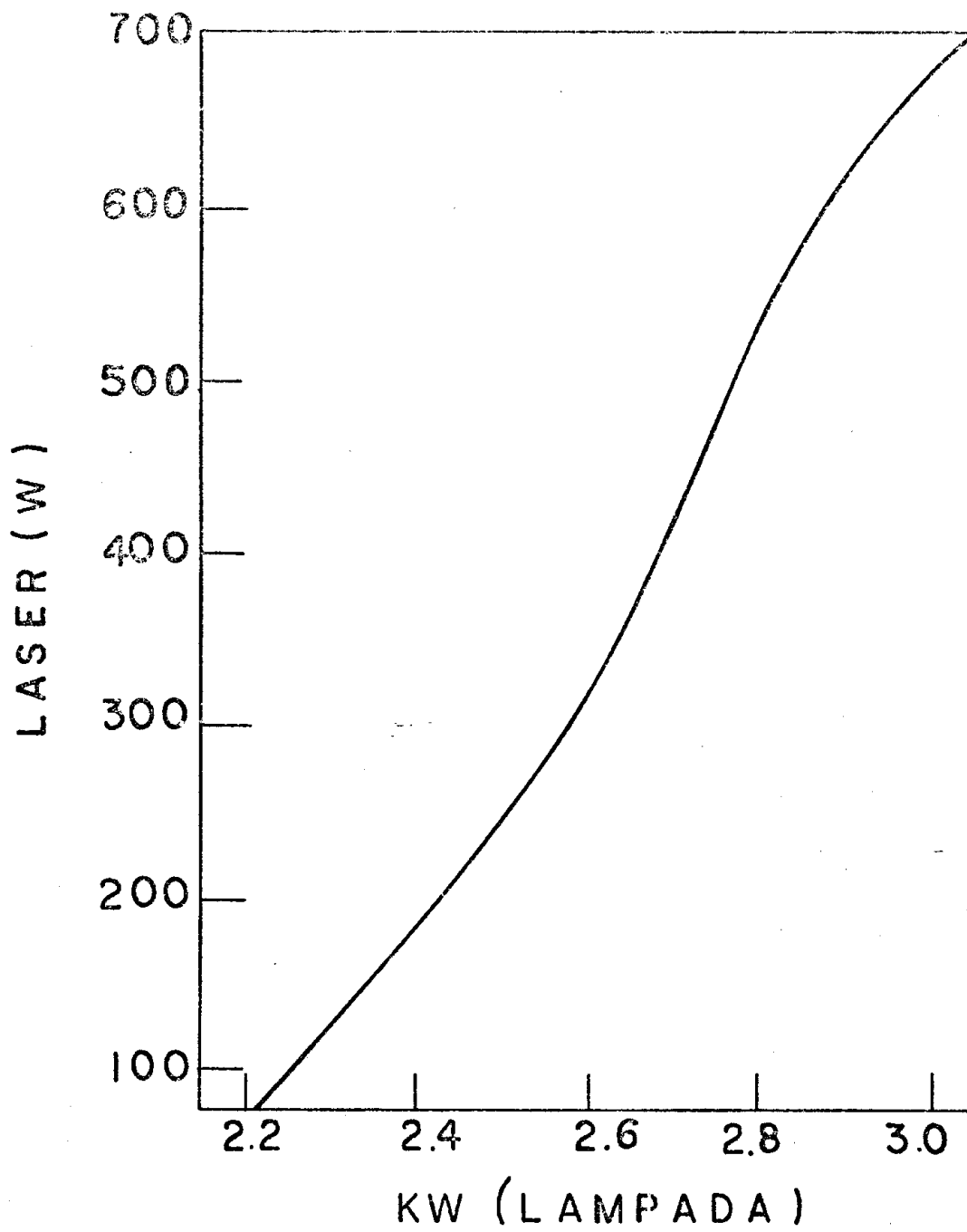


fig. 3.3

redes de difração se movessem em perfeito sincronismo. Isto eliminou a possibilidade de deslocarmos as redes manualmente para a obtenção mais rápida das medidas, o que incorreria no deslocamento do pico registrado, bem como a falta de reprodutividade das medidas. Assim, depois de assegurarmos-nos da calibragem do sistema eletrônico e do alinhamento ótico, geralmente realizado sobre uma linha Raman intensa para a obtenção de uma maior razão sinal-ruído, a varreduras das redes de difração era iniciada, movendo-se eletricamente, geralmente $50\text{\AA}$ acima daquela correspondente à posição da linha anti-Stokes. A operação também era repetida para a linha Stokes. Com isto, asseguramos uma posição precisa para cada pico em frequência, o que era importante, uma vez que estávamos também levantando a curva de dispersão do polariton e buscando eventuais deslocamentos térmicos da linha Raman.

Uma vez que era pequena a velocidade de varredura das redes de difração, sempre $5\text{\AA}/\text{min}$ (pelos motivos acima apresentados), para cada medida completa, Stokes e anti-Stokes, era gasto aproximadamente 80 minutos. Como estávamos também preocupados com a reprodutividade das medidas, as mesmas eram repetidas pelo menos duas vezes, para cada população de vetor de onda K , ou para cada valor da razão $(P/P_0)^2$, de maneira que tornou-se longo e exaustivo o tempo dedicado às medidas.

RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo, apresentaremos os dados experimentais obtidos para as excitações observadas (fonon LO), fonon TO e polariton) sendo que as discussões destes resultados serão deixadas para o próximo capítulo.

4.1 - Fonons Óticos Longitudinais LO

Usando o instrumental e a sistemática apresentados no capítulo anterior, para um valor fixo da potência incidente, ou seja, para um valor constante da razão de geração de eletrons foto-excitados, realizamos várias medidas da intensidade Stokes e anti-Stokes do fonon para populações de diferentes vetores de onda K (18). Calculamos a razão S/A e mostramos o parâmetro $(S/A-1)^{-1}$ em função de K^{-2} , onde K é o vetor de onda do fonon. Devemos ressaltar que a razão das intensidades Stokes e anti-Stokes decresce a medida que o vetor de onda K do fonon (ou da população considerada) decresce, como é visto na figura 4.1 - 1, indicando um maior número de fonons nas distribuições de menor vetor de onda K .

O cálculo do vetor de onda K do fonon foi feito a partir da configuração apresentada na figura 3.2, representado esquematicamente na figura 4.1-2, onde vemos que: $\vec{K} = \vec{K}_i - \vec{K}_s$.

Como a configuração usada é próxima àquela de "forward" o ângulo no interior do cristal θ_i , é muito pequeno de maneira que podemos assumir: $K_s \approx K_i$ ou ainda $K \approx K_i \theta_i$ (4.1.1), que será explicado com maiores detalhes na seção 4.3.

Com esta aproximação, a lei de Snell nos garante que

$$\theta_i \approx \frac{1}{n} \operatorname{tg} \theta_e = \frac{1}{n} \frac{R}{L} \quad (4.1.2)$$

TABELA 4.1.1

Excitação	$K(\text{cm}^{-1})$	$(S/A - 1)^{-1}$	n/n_0^*	$T(^{\circ}\text{K})$
L0	6.550	6,9	20,6	3.060
L0	8.700	5,0	14,7	2.250
L0	15.500	2,9	8,5	1.380
L0	19.800	2,6	7,7	1.260

* n_0 - número de fonons em equilíbrio térmico com a rede cristalina.

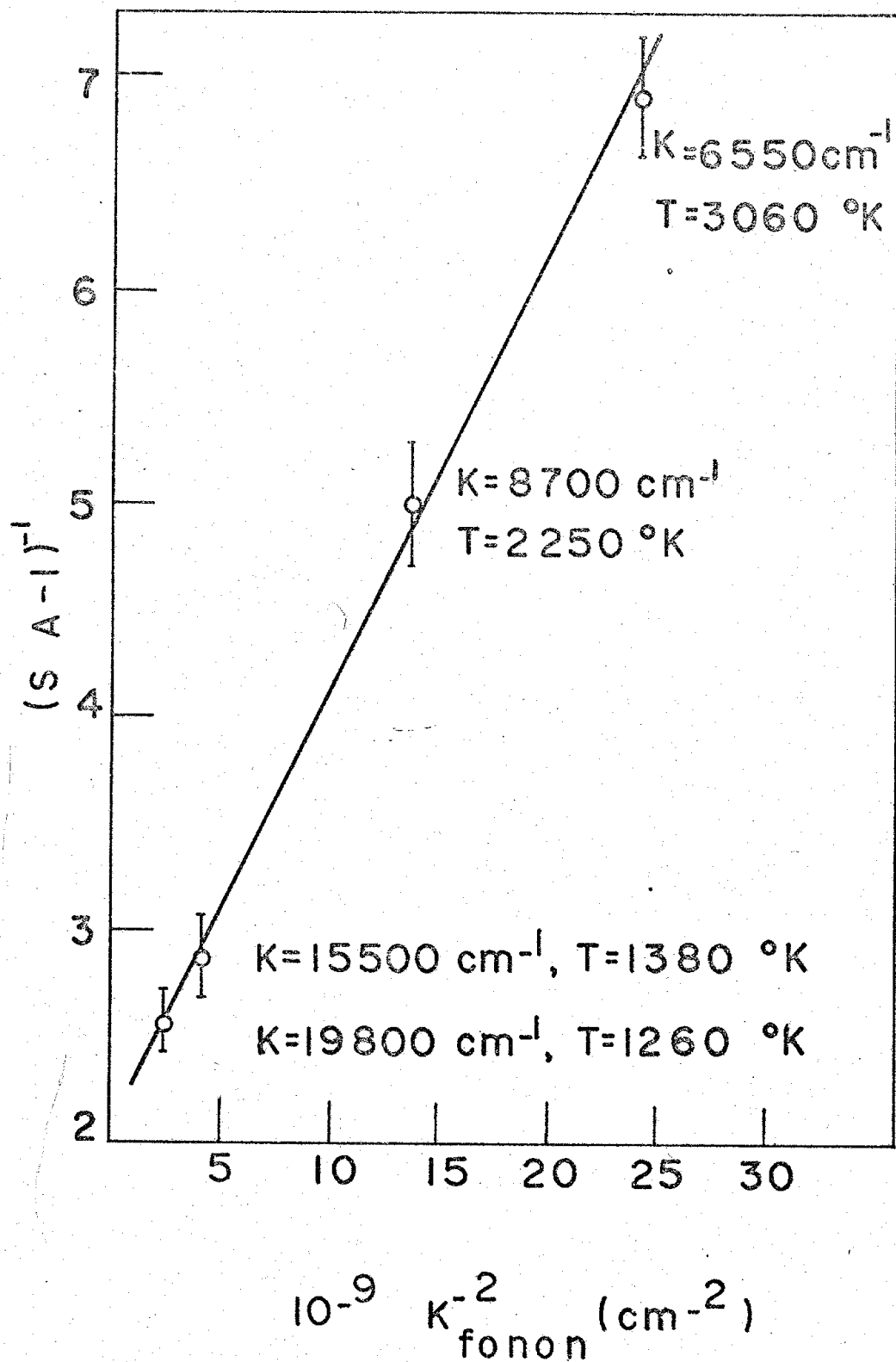


Fig. 4.1-1

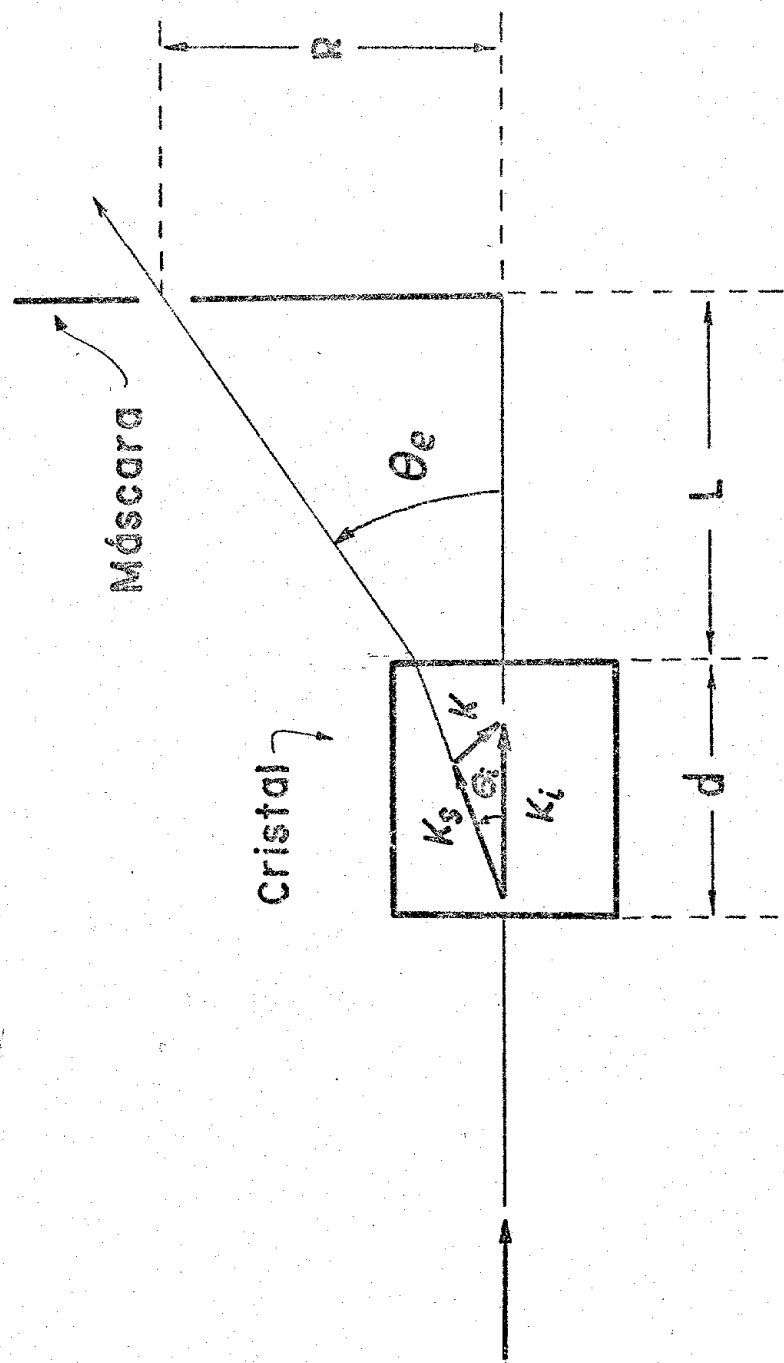


Fig: 4.1-2

onde n é o índice de refração do GaAs para $\lambda = 1,064\mu$ (11), o comprimento de onda associado ao foton do laser Nd:Yag. Aqui a dimensão do cristal (d) não foi levada em conta, uma vez que $d \ll L$.

Das equações (4.1.1) e (4.1.2) obtemos para o vetor de onda da excitação observada a expressão:

$$K = \frac{K_i}{n} \frac{R}{L} \quad (4.1.3)$$

onde R é o raio da fenda circular e L a distância desta fenda ao cristal.

Como uma tentativa de comprovação do comportamento acima apresentado, uma nova sistemática de medidas foi realizada. Escolhemos determinadas populações (fonons de diferentes vetores de onda K), e fizemos uma variação da potência incidente na amostra para cada população, como é apresentado na figura 4.1-3. Obtivemos sempre um comportamento linear para todas as populações, notando-se porém que o maior coeficiente angular estava relacionado à população de menor vetor de onda K , comprovando também assim a existência de um maior número de fonons para as distribuições de menor vetor de onda.

4.2 - Polariton

Nesta seção, antes de apresentarmos os resultados experimentais para o polariton, faremos uma breve introdução e discussão teórica desta excitação, visando tornar mais compreensível não só os dados experimentais como também as conclusões que serão apresentadas no capítulo seguinte.

4.2.1 - Introdução

Nos cristais polares, fonons óticos transversais (TO) e ftons de aproximadamente mesma energia e vetor de onda acoplam

TABELA 4.1.2

$(P/P_0)^2$	$(S/A - 1)^{-1}$			$T(^{\circ}K)$			(n/n_0)		
	K_1^*	K_2^*	K_3^*	K_1^*	K_2^*	K_3^*	K_1^*	K_2^*	K_3^*
0,11	1,6	0,9	0,5	840	540	380	4,7	2,6	1,5
0,22	2,5	1,6	1,1	1240	870	660	7,5	4,9	3,4
0,36	4,4	-	1,5	2010	-	800	13,0	-	4,4
0,61	7,0	4,6	2,5	3120	2100	1230	21,0	13,7	7,4
1,00	11,2	7,5	4,0	4850	3320	1860	33,4	22,4	11,9

$$*K_1 = 3000 \text{ cm}^{-1}$$

$$*K_2 = 3900 \text{ cm}^{-1}$$

$$*K_3 = 6300 \text{ cm}^{-1}$$

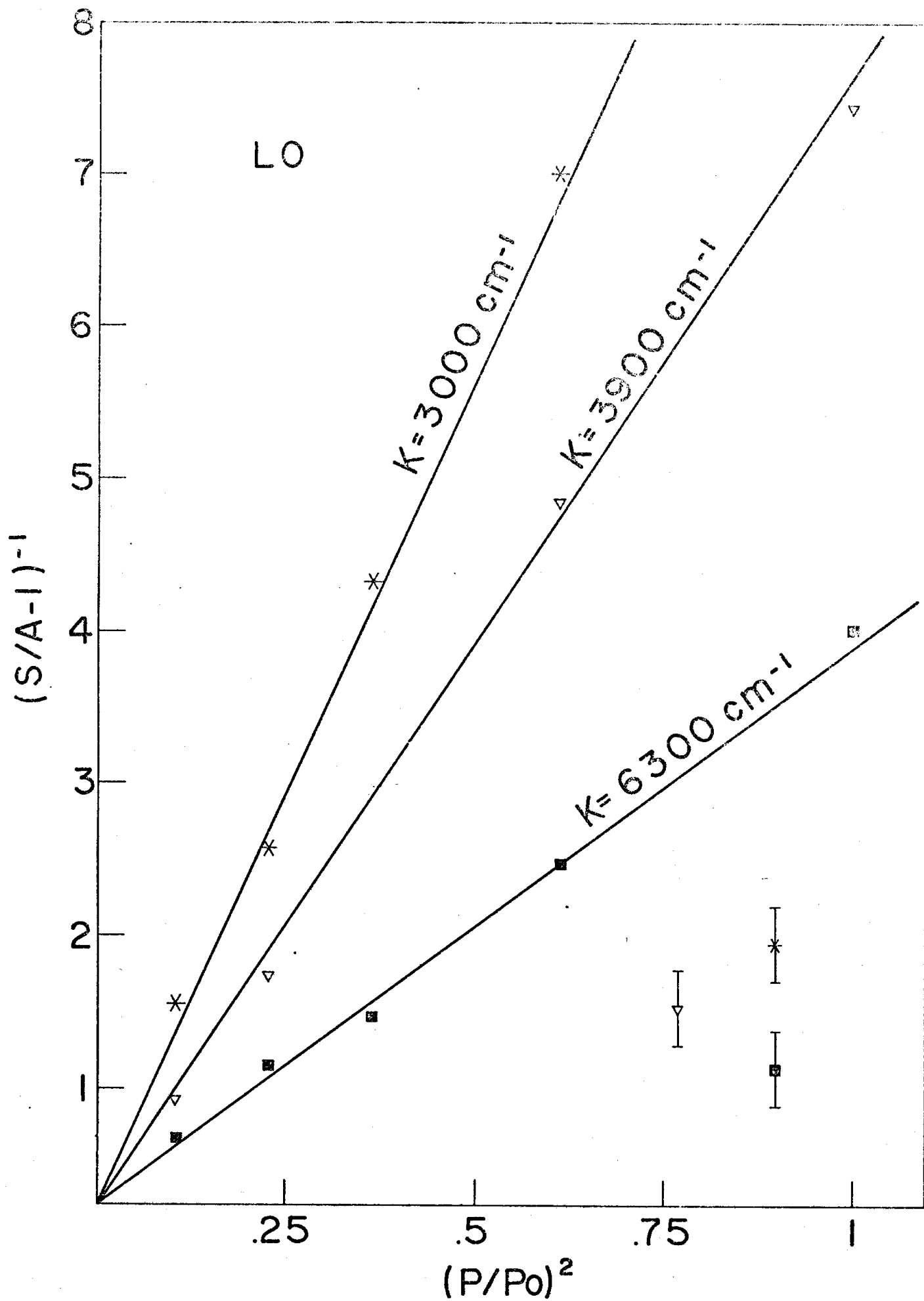


Fig: 4.1.3

-se fortemente. Este estado de propagação de longo comprimento de onda, cujo momento é parcialmente eletromagnético e parcialmente mecânico, chamado de polariton, foi observado por Henry e Hopfield em Gap (20), e posteriormente por Porto, Tell e Damen (9). A descrição teórica desta excitação mista foton-fonon TO foi dada anteriormente por Huang (21) e popularizada posteriormente por Born e Huang (22), Fano (23) e Hopfield (24).

4.2.2 - Teoria

É importante ressaltar que o tratamento teórico de Huang que apresentaremos a seguir é válido somente para cristais que possuem um único fonon infra-vermelho ativo. No entanto, será feita uma generalização para o caso de muitos modos anisotrópicos.

Definimos, por conveniência, o parâmetro w igual à diferença entre os deslocamentos das sub-redes positiva e negativa, para a vibração ótica, multiplicada pela raiz quadrada da massa efetiva ($m^* = m_1 m_2 / m_1 + m_2$) por unidade de volume.

Para cristais iônicos diatômicos, a teoria de Huang consiste das duas seguintes equações acopladas:

$$\vec{w} = b_{11} \vec{w} + b_{12} \vec{E} \quad (4.2.1)$$

$$\vec{P} = b_{21} \vec{w} + b_{22} \vec{E} \quad (4.2.2)$$

onde $\vec{P}$ e $\vec{E}$ são respectivamente a polarização macroscópica e o campo elétrico do cristal a uma frequência ω .

As equações (4.2.1) e (4.2.2) tem as seguintes soluções periódicas: $\vec{E} = \vec{E}_0 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t)$, $w = w_0 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t)$ e $\vec{P} = \vec{P}_0 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t)$.

Substituindo estas soluções em (4.2.1) e (4.2.2) teremos

$$-\omega^2 \vec{w} = b_{11} \vec{w} + b_{12} \vec{E} \quad (4.2.3)$$

$$\vec{P} = b_{21} \vec{w} + b_{22} \vec{E} \quad (4.2.4)$$

de onde obtemos que:

$$\vec{P}(\omega) = \left[b_{22} + \left(\frac{b_{12} b_{21}}{2} \right) \right] \vec{E}(\omega) \quad (4.2.5)$$

Lembremos agora da expressão clássica macroscópica para o deslocamento elétrico, ou seja:

$$\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P} = \epsilon\vec{E}$$

de onde obtemos

$$\epsilon = 1 + 4\pi \frac{\vec{P}}{\vec{E}} \quad (4.2.6)$$

Comparando (4.2.5) e (4.2.6), obtemos para a função dielétrica $\epsilon(\omega)$ a expressão

$$\epsilon(\omega) = (1 + 4\pi b_{22}) + \frac{4\pi b_{12} b_{21}}{\omega_0^2 - \omega^2} \quad (4.2.7)$$

No limite quando $\omega \rightarrow \infty$, a equação (4.2.7) torna-se

$$\epsilon(\infty) = 1 + 4\pi b_{22} \quad (4.2.8)$$

e no limite quando $\omega \rightarrow 0$, usando (4.2.8), a equação (4.2.7) transforma-se em

$$\epsilon_0 - \epsilon_\infty = 4\pi b_{12} b_{21} \omega_0^{-2} \quad (4.2.9)$$

Usando (4.2.8) e (4.2.9), (4.2.7) pode ser reescrita - como

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{|\epsilon_0 - \epsilon_\infty| \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \quad (4.2.10)$$

onde ϵ_0 é calculado para frequências que são pequenas comparadas com ω_0 , a frequência do fonon ótico, mas grande em relação às frequências as quais são grandes quando comparadas com ω_0 , mas pequenas em relação a $\omega_g = E_g/\hbar$, a banda proibida.

Tendo chegado a este ponto, passaremos agora para a generalização da equação (4.2.10) para multimodos de um cristal - anisotrópico. Tal generalização é obtida pela soma sobre os m modos com frequência ω_j e pela consideração das componentes se-
paradas da resposta dielétrica ϵ_i para os campos ao longo das direções $i = x, y, z$. Assim

$$\epsilon_i(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_{j=1}^m \frac{S_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2} \quad (4.2.11)$$

onde o coeficiente S_j obedece a seguinte soma

$$\epsilon_i(\omega=0) = \epsilon_\infty + \sum_{j=1}^m S_j$$

Para isolantes podemos escrever a equação de Poisson co-
mo

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \vec{\nabla} \cdot (\vec{E} + 4\pi\vec{P}) = \rho = 0 \quad (4.2.12)$$

uma vez que no nosso caso a amostra é considerada praticamente pura ($\rho \approx 0$, com $n < 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ para semicondutores típicos), não havendo portanto a possibilidade de acoplamento dos três estados foton-fonon-plasmon, denominado plasmariton (25).

Temos das equações restantes de Maxwell que

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{1}{c} (\vec{E} + 4\pi\vec{P}) \quad (4.2.13)$$

Usando (4.2.5) e as representações de onda plana para $\vec{E}$ e $\vec{P}$ obtemos para (4.2.13) a expressão

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = - \frac{i\omega}{c} \left[1 + 4\pi b_{22} + \frac{4\pi b_{12} b_{21}}{-b_{11} - \omega^2} \right] \vec{E} \quad (4.2.14)$$

Para $\vec{H} = \vec{H}_0 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t)$ encontramos

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = i\vec{k} \times \vec{H} \quad (4.2.15)$$

Caso tomemos a componente de (4.2.14) e (4.2.15) ao lon-

go de $\vec{K}$, encontramos

$$0 = i\vec{K} \cdot (\vec{K} \times \vec{H}) = -\frac{i\omega}{c} \left| 1 + 4\pi b_{22} + \frac{4\pi b_{12}b_{21}}{-b_{11} - \omega^2} \right| \times (\vec{E} \cdot \vec{K}) \quad (4.2.16)$$

ou, usando (4.2.7),

$$\epsilon(\omega) (\vec{E} \cdot \vec{K}) = 0 \quad (4.2.17)$$

Para a solução do modo longitudinal ótico-LO, é necessário em (4.2.17) que $\vec{E} \parallel \vec{P} \parallel \vec{w} \parallel \vec{K}$, portanto

$$\begin{aligned} 0 = \epsilon &= 1 + 4\pi b_{22} + \frac{4\pi b_{12}b_{21}}{-b_{11} - \omega^2} \\ &= \epsilon_{\infty} + \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_{\infty})\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \end{aligned}$$

ou ainda

$$\omega_{LO} = (\epsilon_0/\epsilon_{\infty})^{1/2} \omega_0 \quad (4.2.18)$$

Outra solução seria $\vec{E} \cdot \vec{K} = 0$. Para $|\vec{E}| = 0$ obtemos a solução trivial $w = 0$, não considerada. A outra possibilidade é a solução transversal, $\vec{w} = \vec{P} = \vec{E} \perp \vec{K}$.

Introduzindo outra equação de Maxwell, $\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}$ e a representação de onda plana para $\vec{H}$ obtemos

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{i\omega}{c} \vec{H} \quad (4.2.19)$$

Usando (4.2.14) em (4.2.19) obtemos

$$i\vec{\nabla} \times \vec{K} \times \vec{E} = -\frac{i\omega}{c} \vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \vec{E} \quad (4.2.20)$$

Uma vez que $\vec{E} \perp \vec{K}$ teremos para (4.2.20)

$$K^2 \vec{E} = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \vec{E} \quad (4.2.21)$$

donde vemos que a solução do modo transversal requer que

$$\epsilon(\omega) = \frac{K^2 c^2}{\omega^2} \quad (4.2.22)$$

ou ainda

$$\frac{K^2 c^2}{\omega^2} = \epsilon_{\infty} + \sum_{j=1}^m \frac{S_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2} \quad (4.2.23)$$

onde usamos (4.2.11). Esta é a nossa equação geral de dispersão do polariton relacionando ω e K para excitações transversais em um cristal polar. Particularmente, no nosso caso temos somente um fonon TO, de modo que usando a relação em (4.2.11) obtemos de (4.2.23)

$$\frac{K^2 c^2}{\omega^2} = \epsilon_{\infty} + \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}) \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \quad (4.2.24)$$

Apresentamos na figura 4.2-1 a curva de dispersão do polariton ω e K (14), ilustrando a solução obtida em (4.2.24). Note que para $Kc \gg \omega_0$ (polariton) $\approx \omega_{TO}$, enquanto que para $Kc \ll \omega_0$, $\omega(\text{polariton}) \approx \omega_{LO} = \left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_{\infty}} \right)^{1/2} \omega_0$, como está indicado na figura. Para $Kc \approx \omega_0$ temos modos acoplados.

4.2.3 Experimental

Uma vez que a conservação do vetor de onda num processo de espalhamento requer que o vetor de onda do polariton criado ou aniquilado ($\vec{K}$) seja igual à diferença entre o momento do fonon incidente ($\vec{K}_i$) e espalhado ($\vec{K}_s$) podemos escrever

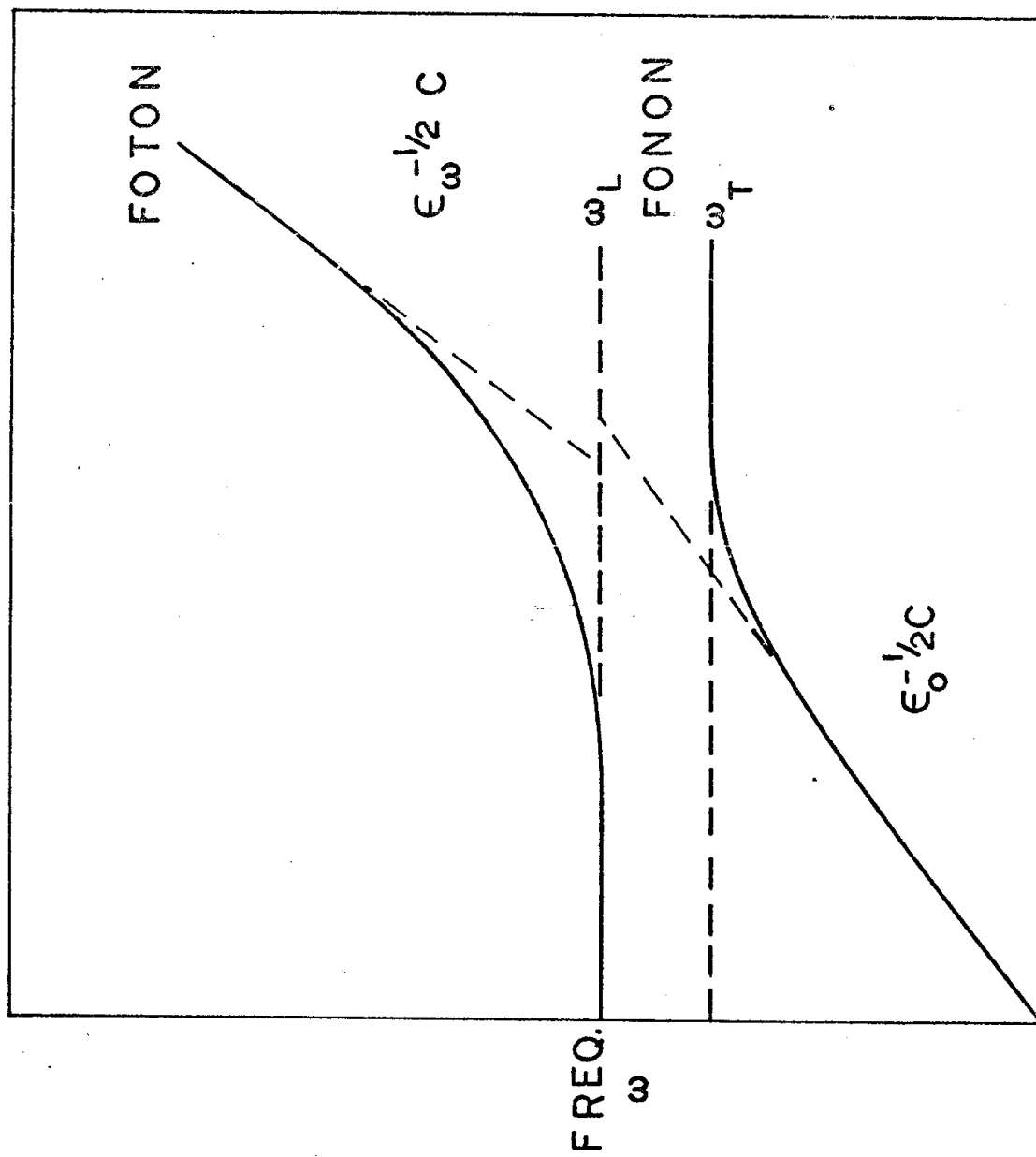
$$\vec{K}_i = \vec{K}_s + \vec{K} \quad (4.2.25)$$

sendo que $K_i = 2\pi\omega_L n$ e $K_s = 2\pi\omega_s n$. Sendo n o índice de refração do cristal anisotrópico para a luz incidente, ou ainda

$$K^2 = K_i^2 + K_s^2 - 2K_i K_s \cos\theta \quad (4.2.26)$$

onde θ é o ângulo de espalhamento medido no interior do cristal.

Uma vez que θ é muito pequeno (lembramos que o polari -



MOMENTO K

fig. 4.2.1

tem frequência entre 100 e 1000 cm^{-1}), $\cos\theta \approx 1 - \frac{\theta^2}{2}$ e
(4.2.26) torna-se

$$K^2 = (K_i - K_s)^2 + K_i K_s \theta^2 \quad (4.2.27)$$

Como $K_i \approx K_s$

$$K = K_i \theta$$

(4.2.28)

e, conseqüentemente

$$cK_i \theta \approx \omega_0$$

(4.2.29)

Usando (4.2.28) em (4.2.24) temos

$$\frac{K_i^2 \theta^2 c^2}{\omega^2} = \epsilon_\infty + \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2}$$

ou ainda

$$\frac{\theta}{\omega} = \frac{1}{K_i c} \left| \epsilon_\infty + \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \right|^{1/2} \quad (4.2.30)$$

Esta solução é representada graficamente na figura 4.2-2 juntamente com os dados experimentais, mostrando uma concordância satisfatória entre a teoria e os dados, bem como com os valores anteriormente medidos usados em nossos cálculos (11,26).

Fazendo uso do instrumental e da sistemática de medidas apresentadas no capítulo III, escolhemos determinadas populações (diferentes vetores de onda K), daí então: foi feita uma variação na potência de pico incidente para cada população⁽¹⁹⁾, no intervalo anteriormente usado. Os resultados foram representados num gráfico de $(S/A - 1)^{-1}$ vs $(P/P_0)^2$, apresentado na figura 4.2-3. As curvas obtidas, eram aproximadamente coincidentes e cresciam rapidamente para baixas potências e saturavam numa relação $(S/A - 1)^{-1}$ que correspondia a uma temperatura para a distribuição de aproximadamente 950°K. Este comportamento é se-

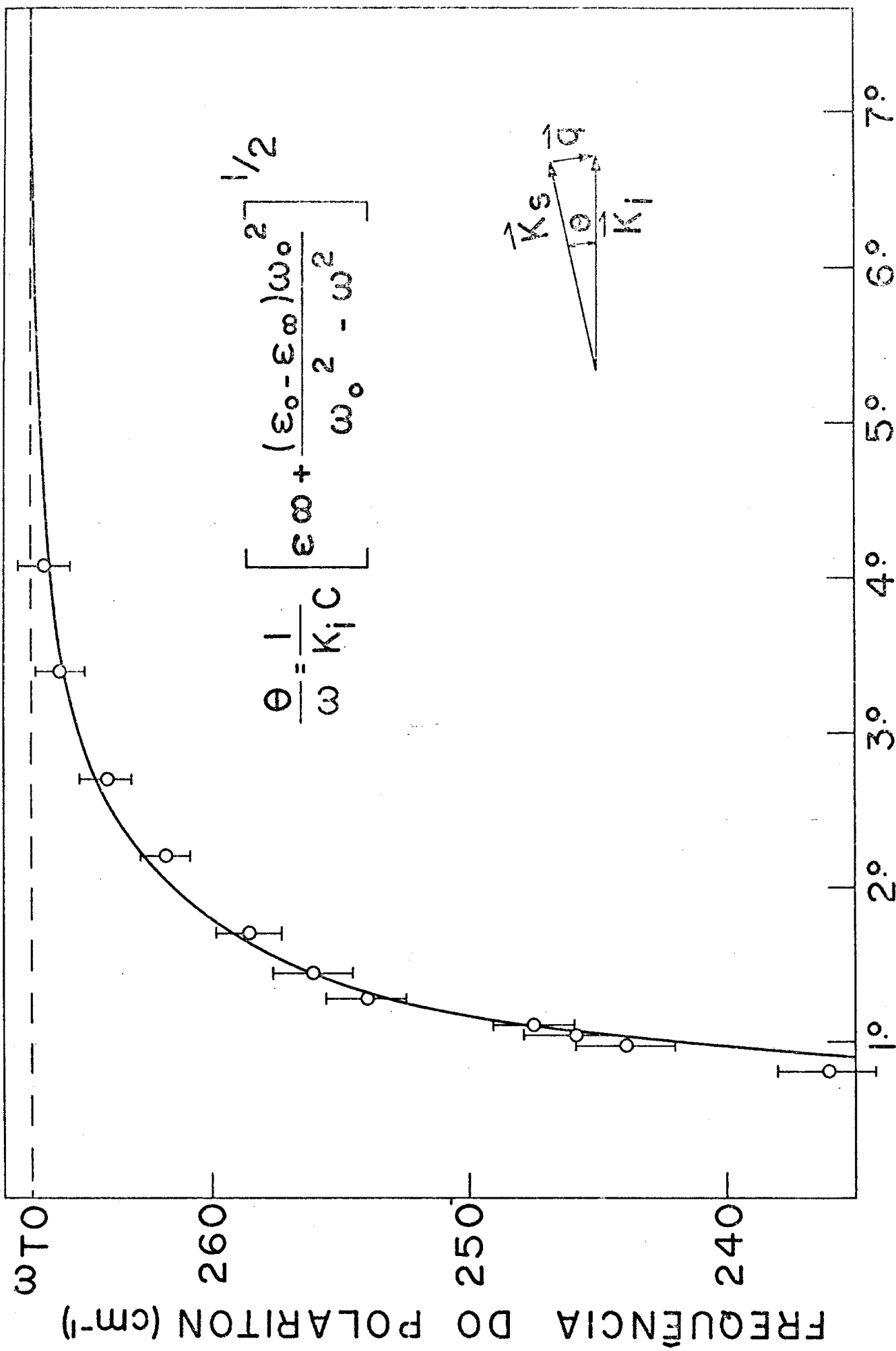


Fig: 4.2.2

TABELA 4.2.1

$(P/P_0)^2$	$(S/A - 1)^{-1}$			$T(^{\circ}K)$			(n/n_0^*)		
	K_1^*	K_2^*	K_3^*	K_1^*	K_2^*	K_3^*	K_1^*	K_2^*	K_3^*
0,11	1,3	1,2	1,1	630	610	590	3,0	2,9	2,8
0,22	1,9	1,8	1,7	820	790	780	4,1	4,0	4,0
0,36	1,9	-	1,9	820	-	870	4,1	-	4,6
0,61	1,9	1,9	1,9	820	860	870	4,1	4,4	4,6
1,00	2,0	1,9	1,9	860	830	890	4,4	4,2	4,7

$$^*K_1 = 3000 \text{ cm}^{-1}$$

$$^*K_2 = 3900 \text{ cm}^{-1}$$

$$^*K_3 = 6300 \text{ cm}^{-1}$$

$$^*n_0 = \text{número de fonons}$$

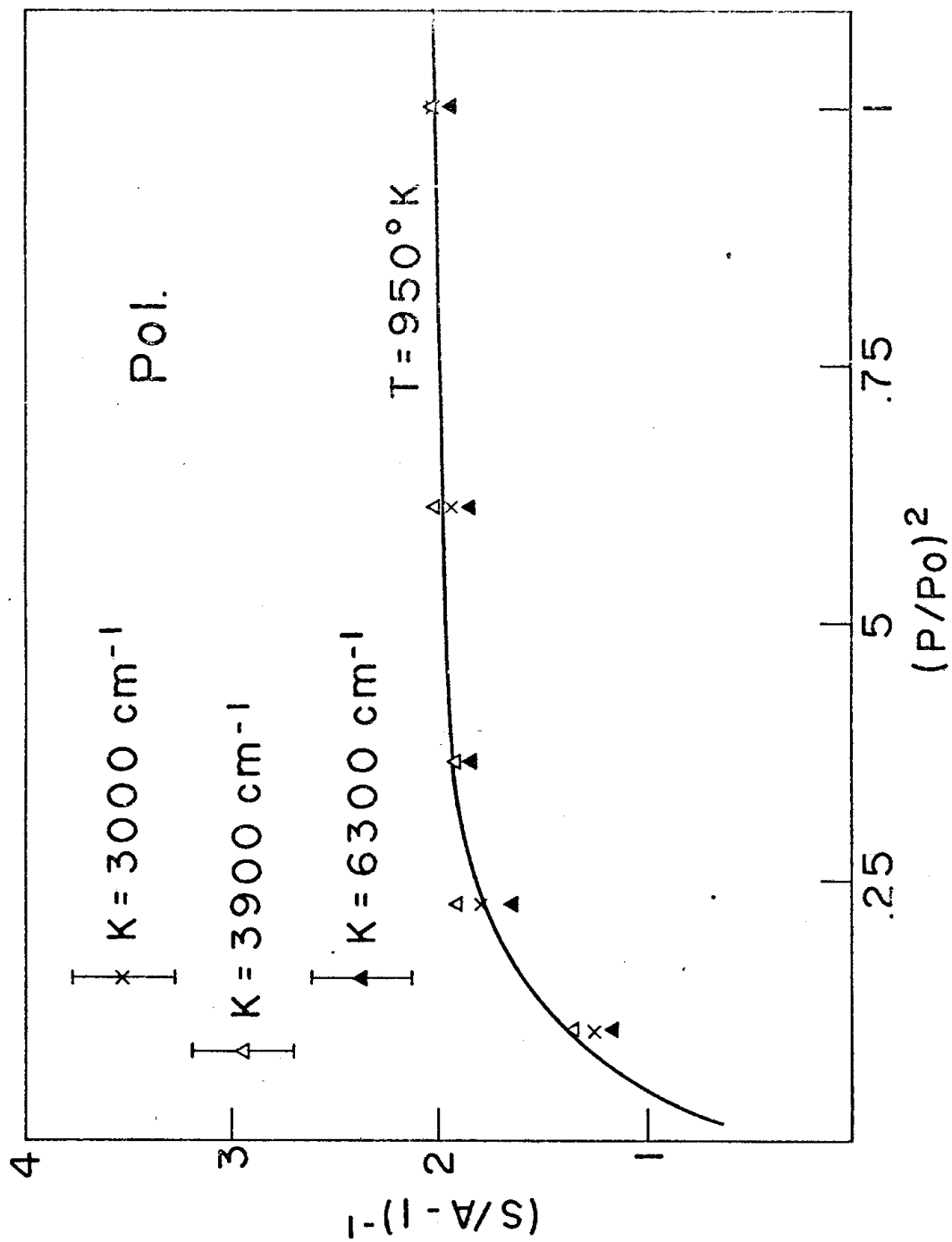


Fig: 4.2.3

melhante aos dos fonons $T0$, de $K \approx 2K_1$, que devido à reflexão interna no cristal é observado para todos os valores de θ .

Tal espectro devido a reflexões internas no cristal é útil como referência, uma vez que não há praticamente variação de K . Note-se que também para o $L0$ deve haver uma componente constante de vetor de onda $2K_1$, mas que não obstante pouco interfere com o valor de $(S/A - 1)^{-1}$, posto que os fonons a $2K_1$, segundo os resultados das próprias figuras 4.1-1 e 4.1-3 atingem populações muito menores que aquelas para pequeno K .

Para ilustrar o comportamento da interação foton-fonon $T0$ (polariton) em relação ao ângulo de observação, apresentamos nas figuras 4.3-4,5, 6, três dos espectros obtidos nas experiências da referência 19. Note como o vetor de onda do polariton cresce com o aumento do ângulo de observação, aproximando-se do fonon ótico transversal, mostrando seu caráter tipo fonon (fonon-like).

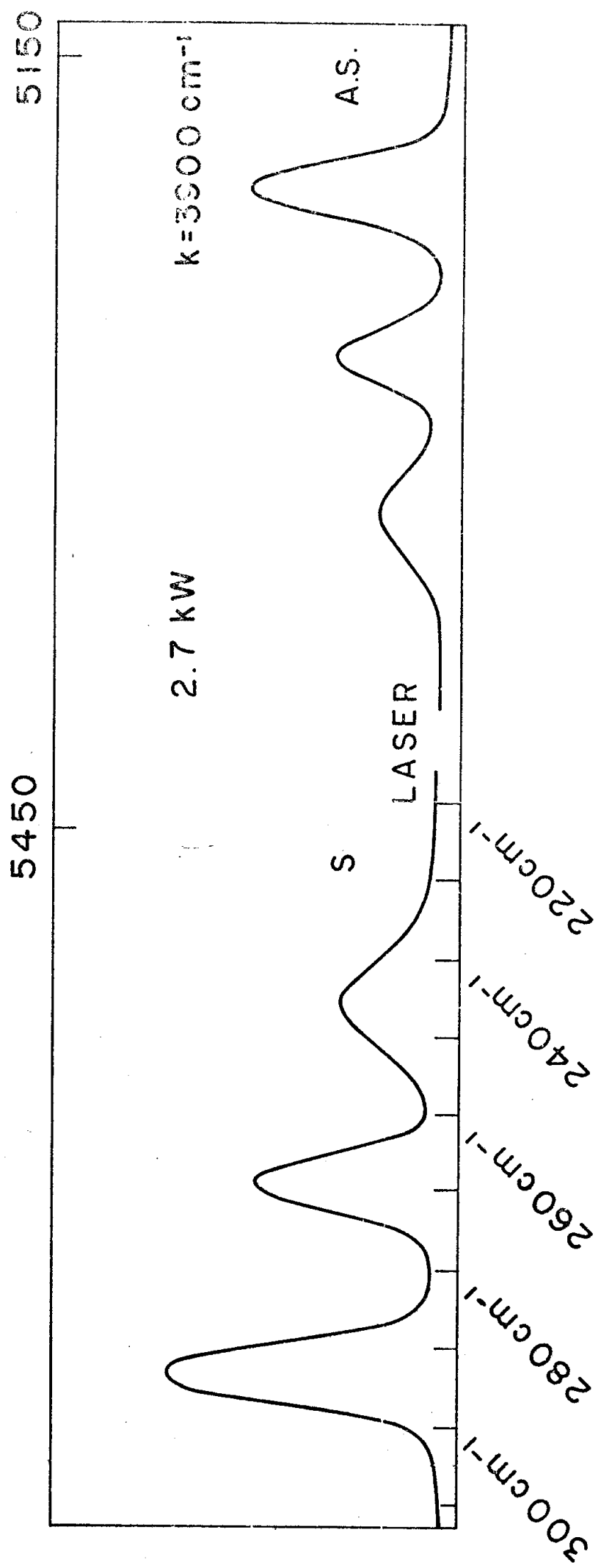


Fig: 4.2.4

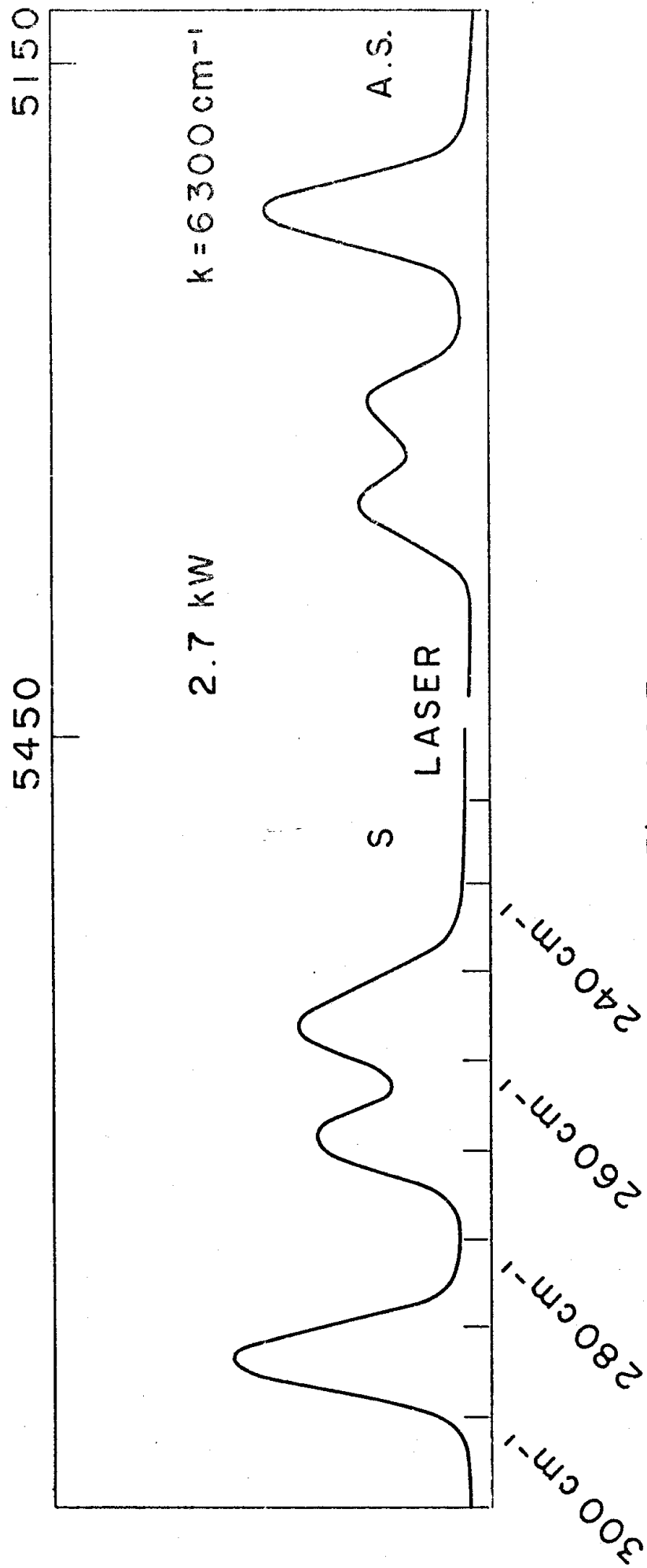


Fig:4.2.5

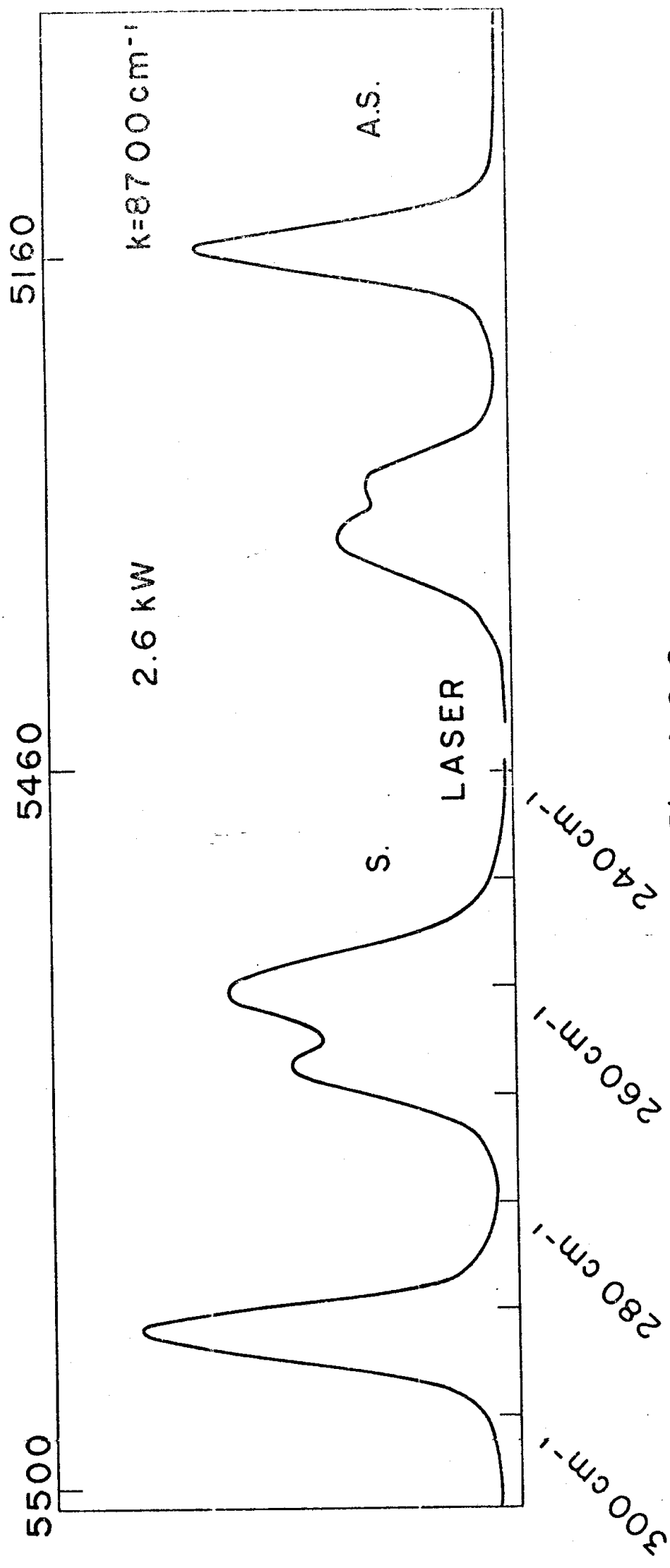


Fig: 4.2.6

CAPÍTULO V

DISCUSSÃO E CONCLUSÕES

No presente capítulo serão discutidos os dados experimentais apresentados nas seções do capítulo anterior. Para tornar mais clara a discussão dos dados experimentais, apresentaremos separadamente cada excitação.

5.1 - Discussão

A figura 4.1.1 mostra um significativo aumento na população de fonons longitudinais para pequenos valores do vetor de onda K do fonon $L0$, isto é, uma forte dependência do parâmetro $(S/A - 1)^{-1}$ com os valores do vetor de onda do fonon.

Segundo cálculo apresentado no capítulo II, usando o diagrama da figura 2.2, no qual supõe-se que somente um fonon é produzido em cada salto do eletrôn em sua relaxação na banda de condução, o valor mínimo do vetor de onda K do fonon criado é $K_{\min} \approx 35.000 \text{ cm}^{-1}$. O menor valor medido para o vetor de onda do fonon⁽¹⁹⁾, apresentado na tabela 4.1.2, é muito menor que este valor calculado ($K_{\min} > 3.000 \text{ cm}^{-1}$). Poderíamos então argumentar que o excesso na população de fonons $L0$ ocorria devido ao espalhamento no mesmo ramo de fonons óticos produzindo fonons de K menor que $K_{\min}$. Como exemplo dois fonons de K maior que $K_{\min}$, produzidos pela relaxação do eletrôn, interagiriam criando dois outros fonons $L0$, onde um dos quais com K menor que $K_{\min}$, conservando o vetor de onda. Se tal processo fosse relevante, o tempo de vida do fonon $L0$ decresceria com o quadrado da população dos fonons $L0$, efeito facilmente detectável através da largura de linha Raman. No entanto, na referência 6, onde foi observado um grande desvio na população de fonons $L0$ (27 vezes maior que a de equilíbrio térmico), não foi observado ne

nhum alargamento de linha Raman, indicando completa independência do tempo de vida do fonon L_0 , com respeito à população do fonon, independentemente da razão de geração de fonons.

Nas diversas populações estudadas a largura de linha e a posição em frequência eram completamente independentes de K . As linhas Raman observadas eram boas Lorentzianas para valores de K medidos (18) (19). Podemos concluir que o tempo de vida do fonon L_0 é também independente de K .

Todas as medidas realizadas para fonons L_0 (18) (19) com provam uma forte dependência do parâmetro $(S/A - 1)^{-1}$, em relação aos valores de K da forma K^{-2} . Essa dependência concorda plenamente com o tipo de interação eletrôn-fonon de Fröhlich, tendo em vista os argumentos apresentados no capítulo II⁽³⁾, resumidos na equação 2.11 ou 2.13.

Como fonons de vetor de onda K da ordem daqueles observados nesta experiência não podem ser produzidos direta ou indiretamente por simples emissão de um único fonon, somos levados a crer que o processo responsável pela criação de fonons de K menor que $K_{\min}$ é a produção múltipla de fonons.

Tais processos já foram evidenciados em efeito Raman ressonante (27,28) e em espectros de excitação de foto luminescência.

Mesmo para as mais altas potências de excitação usadas, ou seja, para as maiores temperaturas atingidas pelas distribuições dos fonons L_0 observadas, nenhuma mudança apreciável foi verificada na largura e posição da linha. Portanto, como na referência 6 conclui-se que não ocorre aquecimento local detectável.

Para o polariton, os dados experimentais seguem a curva de dispersão ω vs K , figura 4.2-1. Também a largura de linha guarda esta dependência, embora esta diminui quando o polari -

ton aproxima-se do fonon TO, como é visto nas figuras 4.3-4, 5, e 6. Estas dependências não são provocadas por aquecimento local da rede, como já foi verificado através dos modos LO e TO, e sim são características próprias do polariton, como é bem conhecido.

Nas medidas da variação do parâmetro $(S/A - 1)^{-1}$ em função da potência incidente, em três diferentes populações, verificamos o mesmo comportamento que aquele para o fonon TO ($2k_j$). A saturação também ocorria para potências incidentes mais elevadas, figura 4.2-3. O parâmetro $(S/A - 1)^{-1}$ apresenta-se independente do vetor de onda K do polariton. Portanto a interação eletrôn-rede através do polariton é da mesma natureza que a do fonon TO ou seja através do potencial de deformação.

5.2 - Conclusão

Os resultados apresentados para o GaAs (18,19) indicam que o mecanismo de relaxação do eletrôn através de fonons óticos ocorre pela produção múltipla. Tanto o LO como o TO e o Polariton atingem excesso na população, mas o excesso alcançado pelo fonon LO é muito maior que o das outras duas excitações. Os mecanismos de acoplamento para fonon-TO (potencial de deformação) e para polariton não mostram dependência com o vetor de onda da excitação enquanto que o acoplamento para fonons-LO - (predominância da interação de Fröhlich) mostra a dependência k^{-2} predita por Fröhlich, apesar da produção múltipla de fonons. Os resultados são portanto uma primeira evidência direta para a importante interação eletrôn-fonon de Fröhlich, e que a técnica apresentada apesar de simples, é muito eficiente para o estudo da interação eletrôn-fonon.

ÍNDICE DAS FIGURAS

FIG. 2.1	- Esquema do eletrôn excitado na banda de condução..	6
FIG. 2.2	- Possíveis decaimentos do eletrôn excitado na B.C. mostrando $k_{\max}$ do fonon	7
FIG. 3.1	- Diagrama de bloco da montagem experimental . . .	15
FIG. 3.2	- Arranjo experimental para seleção das populações de diferentes vetores de onda	16
FIG. 3.3	- Potência de saída do laser	19
FIG. 4.1-1-	Medida de populações de fonons LO em função do vetor de onda da população	23
FIG. 4.1-2-	Conservação do vetor de onda no espalhamento . .	24
FIG. 4.1-3-	Medida de população de fonons quentes (LO) para três diferentes populações	27
FIG. 4.2-1-	Curva de dispersão para fonons óticos e ftons de grande comprimento	33
FIG. 4.2-2-	Curva de dispersão experimental e teórica do polariton ($\omega_{\text{pol}} \times \theta_{\text{int}}$)	35
FIG. 4.2-3-	Medida de população de polariton para três diferentes populações	37
FIG. 4.2-4-	Espectro de espalhamento Raman das excitações LO, TO e polariton foton-like	39
FIG. 4.2-5-	Espectro do espalhamento Raman das excitações LO, TO e polariton	40
FIG. 4.2-6-	Espectro de espalhamento Raman das excitações LO, TO e polariton fonon-like	41

ÍNDICE DAS TABELAS

TABELA 4.1-1 - Dados sobre vetores de onda das populações, $(S/A - 1)^{-1}$, densidade de fonons LO e temperatura	22
TABELA 4.1-2 - Dados sobre população, $(S/A - 1)^{-1}$, temperatura e densidade de fonons LO para três diferentes populações	26
TABELA 4.2-1 - Dados sobre população, $(S/A - 1)^{-1}$, temperatura e densidade de polaritón para três diferentes populações	36

REFERÊNCIAS

1. E.M. CONWEL, "High Field Transport in Semiconductors", Solid State Physics, Suppl. 9 (Edited by F. Seitz and D. Turnbull)
2. G.P. VELLA-COLEIRO, Phys. Rev. Lett., 23, 697 (1969).
3. J. SHAH, R.C.C. LEITE and J.F. SCOTT, Solid State Comm., 8, 1089 (1970).
4. J.C.V. MATTOS, W.O.N. GUIMARÃES and R.C.C. LEITE, Optics Comm., 8, 73 (1973).
5. J.C.V. MATTOS and R.C.C. LEITE, Solid State Comm., 12, 465 (1973).
6. E.G. LLUESMA, G. MENDES, C.A. ARGUELLO and R.C.C. LEITE, Solid State Comm., a ser publicado.
7. T.C. DAMEN, R.C.C. LEITE and J. SHAH, Proc. of Xth International Conference on the Physics of Semiconductors. S.P. Keller, U.S. Atomic Energy Comission (1970).
8. H. POULET, Ann. Acad. Phys., Paris, 10, 908 (1965).
9. S.P.S. PORTO, B. TELL, T.C. DAMEN, Phys. Rev. Lett., 16, 450 (1966).
10. H. EHRENREICH, Phys. Rev., 120, 1951 (1957).
11. Semiconductors and Semimetals (Edited by R.K. Willardson and Albert C. Beer) vol. I, II and III.
12. J.I. PANKOVE, Optical Process in Semiconductors. (Edited by Prentice-Hall, Inc., New Jersey, 1971).
13. D.A. KLEINMAN, R.C. MILLER and W.A. NORDLAND, Appl. Phys. Lett., 23, 243, (1973).
14. R. LOUDON, Adv. in Phys., 13, 423 (1964).
15. G.C. BALDWIN, An Introduction to Nonlinear Optics. (Edited by Plenum Press, New York, 1969).

16. A. YARIV and J.E. PEARSON, Progress in Quantum Electronics, vol. I - Parametric Process (Edited by Pergamon Press, 1969).
17. H. FRÖHLICH, Proc. Roy. Soc., A 160, 230 (1937).
18. J.C.V. MATTOS, J.A. FREITAS, Jr., E.G. LLUESMA and R.C.C. LEITE, Solid State Comm., aceito para publicação.
19. J.A. FREITAS, Jr., J.C.V. MATTOS, E.G. LLUESMA and R.C.C. LEITE, Proc. of XIIth International Conference on the Physics of Semiconductors, Stuttgart, Germany, 1974.
20. C.H. HENRY, J.J. HOPFIELD, Phys. Rev. Lett., 15, 944 (1965).
21. K. HUANG, E.R.A. Report L/T 239 (1950); Proc. Ray. Soc., A 208, 352 (1951).
22. M. BORN and K. HUANG, Dynamical Theory of Cristal Lattices, pp. 82-100 (1954) (Edited by Claredon Press, Oxford).
23. U. FANO, Phys. Rev. 103, 1202 (1956).
24. J.J. HOPFIELD, Phys. Rev. 112, 1555 (1958).
25. C.K.N. PATEL and R.E. SLUSHER, Phys. Rev. Lett., 22, 282 (1969).
26. K.G. HAMBLETON, C. HILSON and B.R. HOLEMAN, Proc. Phys. Soc. (London) 77, 1147 (1961).
27. R.C.C. LEITE and S.P.S. PORTO, Phys. Rev. Lett., 17, 10 (1966).
28. R.C.C. LEITE, J.F. SCOTT, and T.C. DAMEN, Phys. Rev. Lett., 22, 780 (1969).