

UNIVERSIDADE FEDERAL DE SÃO CARLOS
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS E DE TECNOLOGIA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA
DEPARTAMENTO DE FÍSICA

ESTUDO POR ESPECTROSCOPIA RAMAN DE
EFEITOS DE LOCALIZAÇÃO DAS EXCITAÇÕES
ELEMENTARES EM SUPERREDES E EM LIGAS
DOPADAS

Veronica Elsa Espinoza Carrasco

Orientador: Prof. Dr. Yuri A. Pusep

Co-orientador: Prof. Dr. José Cláudio Galzerani

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física
como parte dos requisitos para a obtenção
do título de DOUTOR EM FÍSICA.

São Carlos - 2005

**Ficha catalográfica elaborada pelo DePT da
Biblioteca Comunitária/UFSCar**

E77ee

Espinoza-Carrasco, Veronica Elsa.

Estudo por espectroscopia Raman de efeitos de localização das excitações elementares em superredes e em ligas dopadas / Veronica Elsa Espinoza Carrasco. -- São Carlos : UFSCar, 2005.

101 p.

Tese (Doutorado) -- Universidade Federal de São Carlos, 2005.

1. Física da matéria condensada. 2. Raman, Espectroscopia de. 3. Super redes. 4. Interação plasmon-fonon. 5. Desordem. I. Título.

CDD: 530.41 (20^a)

Saber não é tudo. É necessário fazer. E para bem fazer, homem algum dispensará a calma e a serenidade, imprescindíveis ao êxito, nem desdenhará a cooperação, que é a companheira diletta do amor.

Dedico este trabalho aos meus pais, Mariella e Santiago, e também aos meus irmãos e sobrinhos.

AGRADECIMENTOS

- Aos professores Yuri A. Pusep e José Claudio Galzerani pela orientação e confiança.
- A Giovani pela discussões, paciência, amizade e apoio incondicional na execução e finalização deste trabalho.
- A minha família em São Carlos : Marco Antonio e Andreza.
- Aos profesoress Pizani, Cesar e Paulo Daniel.
- A toda a equipe do laboratório: Tuta, Ariano, Kiko, Tânia, William, Chiquito, Miryam, Elton, Olivia, Tati, Romulo, Sandra, Marcelo, Perna, Rodrigo, Juliana, Lara e Alexandre pelos amizade e incentivo.
- A Edgar pela cooperação e apoio no desenvolvimento das atividades de laboratório e apoio técnico na construção de equipamentos.
- A meus amigos Patricia, Mickel, Fernando, Armando e Daniela pelo companherismo, incentivo e confiança.
- As meus amigos de sempre Rocio, Maribel, Rossi, Lidia, Denis, Edson e Eduardo.
- A Dona Alice, Terezinha e Wilson.
- Aos demais colegas da pós-graduação e a todos aqueles que direta ou indiretamente contribuíram na execução deste trabalho.
- A CAPES pelo suporte financeiro.

Resumo

Neste trabalho, as propriedades de localização das excitações de uma partícula e das excitações sujeitas a um potencial aleatório em ligas $AlGaAs:Si$ e em super-redes intencionalmente desordenadas $GaAs/AlGaAs:Si$ (SL's) foram investigadas por magnetoresistência e espalhamento Raman. Como é bem sabido, as flutuações do potencial eletrônico, que ocorrem em SL's e ligas dopadas destroem a invariância translacional permitindo o aparecimento de um comprimento de localização espacial das excitações elementares e, como consequência, causando a relaxação das regras de seleção o que provoca a largura e assimetria das linhas Raman. A análise da forma das linhas espectrais permite determinar os comprimentos de localização das excitações elementares envolvidas no processo Raman e assim, estudar suas propriedades de localização. No caso das ligas $AlGaAs:Si$, mostrou-se que o amortecimento de Landau determina os comprimentos de localização das excitações coletivas tipo plasmon. Entretanto, nas SL's intencionalmente desordenadas, as propriedades de localização tanto das excitações de uma partícula quanto das excitações coletivas são limitadas pela desordem. Os comprimentos de localização das excitações tipo plasmon obtidos por espectroscopia Raman foram comparados com os comprimentos de coerência de fase do elétron medidos por magnetoresistência. Verificamos que em superredes o comprimento de localização das excitações de uma partícula é consideravelmente maior que o comprimento de localização das excitações coletivas. Isto sugere que o efeito da desordem é mais fraco para os elétrons do que para os movimentos coletivos e que a interação permite que os efeitos coletivos aumentem a localização.

Abstract

In the present work, the localization properties of the single-particle and collective excitations subjected to a random potential in the *AlGaAsSi* alloys and in the intentionally disordered *GaAs/AlGaAs:Si* superlattices (SL's) were investigated by magnetoresistance and Raman scattering. As it is well known, the fluctuations of the electronic potential, which occur in doped SL's and alloys destroy the translational invariance giving rise to a spatial coherence length of the elementary excitations and, as consequence, cause the breakdown of the Raman selection rules leading to the broadening and asymmetry of the Raman lines. The analysis of the shape of the spectral lines allows one to determine the coherence lengths of the elementary excitations involved in the Raman process and thus, to study their localization properties. It was shown that the Landau damping determines the localization lengths of the collective plasmon-like excitations in bulk *AlGaAs* alloy. Meanwhile the localization lengths of both, the single-particle and collective excitations are limited by disorder in the intentionally disordered superlattices. The localization lengths of the plasmon-like excitations obtained by Raman Spectroscopy was compared with the phase-breaking lengths measured by Magnetoresistance. We had verified that in superlattices the localization length of the individual electron was found to be considerably larger than localization length corresponding to the collective excitations. This suggests that the effect of disorder has weaker influence on the electrons than on their collective motion and that the interaction, which gives rise to the collective effects, increase the localization.

Sumário

1	Introdução	1
2	Espalhamento Raman	4
2.1	Introdução	4
2.2	Tratamento Clássico	6
2.3	Tratamento Quântico	8
2.4	Regras de Seleção	11
2.4.1	Regras de Seleção em Semicondutores III-V	12
2.4.2	Leis de conservação	15
2.4.3	Principais mecanismos de espalhamento	19
3	Super-Redes	22
3.1	Estrutura eletrônica de Super-Redes	22
3.2	Fônons em Super-Redes	25
3.3	Regras de Seleção em Super-Redes	27
3.4	Teoria de Excitações Coletivas em Super-Redes	29
3.4.1	Anisotropia dos modos vibracionais	29
3.4.2	Espalhamento por modos acoplados Fônons LO-Plasmon	35
3.4.3	Excitações Coletivas num material desordenado	40

4	Transporte Eletrônico e Efeitos de Localização	47
5	Procedimento Experimental	52
5.1	Amostras	52
5.2	Descrição do equipamento Raman	56
5.3	Litografia	60
5.4	Descrição do equipamento para Magnetotransporte	61
6	Resultados e Discussões	64
6.1	Ligas $Al_xGa_{1-x}As:Si$	64
6.2	Super-Redes $(GaAs)_m(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6:Si$ ($\delta = 0,82$)	79
6.3	Super-Redes $(GaAs)_m(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6:Si$ ($\delta = 0,4$)	83
6.4	Super-redes desordenadas $(GaAs)_m(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6$ altamente dopadas	90
7	Conclusões	94
	Bibliografia	96

Lista de Figuras

2-1	Representação das quantidades envolvidas num processo de espalhamento.	5
2-2	Espalhamento Raman: a) Stokes e b) anti-Stokes.	9
2-3	Representação esquemática da geometria de espalhamento usando a notação $\vec{k}_i(\hat{e}_i, \hat{e}_s)\vec{k}_s$, onde \vec{k}_i e \vec{k}_s são as direções do fóton incidente e espalhado e, \hat{e}_i e \hat{e}_s , são as polarizações dos fóton incidente e espalhado, respectivamente.	13
2-4	Diagramas de Feynman para os processos: Stokes e anti-Stokes.	16
2-5	Cinemática de espalhamento inelástico de luz.	17
2-6	Diagrama de Feynman para o caso de dois fônons.	18
3-1	Perfil da banda de condução das SL's a) SL's não desordenadas com minibanda W, b) SL's desordenadas e c) distribuição gaussiana de níveis de energia das SL's desordenadas.	25
3-2	Exemplo de dobramento numa SL de $(\text{GaAs})_4(\text{AlAs})_4$. As linhas pontilhadas correspondem às curvas de dispersão do GaAs e do AlAs "bulks" e as linhas sólidas representam os ramos dobrados de acordo com a nova periodicidade d ao longo do eixo da SL [21].	26

3-3	Modos interfaciais calculados através da expressão 5.5. As frequências permitidas formam bandas entre as curvas para $k_z d = \pi$ (linhas sólidas) e $k_z d = 0$ (linhas pontilhadas). a) modos tipo AIAs, amostra A. b) modos tipo AIAs, amostra B. c) e d) modos tipo GaAs, amostra A e B, respectivamente [29].	33
3-4	Excitação de uma partícula dentro de uma banda com população degenerada [34].	38
3-5	Representação das propriedades de dispersão das excitações elementares em cristais. A região hachurada representa o contínuo de excitação de uma partícula (SPE) [22].	39
3-6	Modos acoplados fônon-plasmon de um semiconductor polar dopado (GaAs tipo n) [36].	40
3-7	Forma da linha para modos acoplados fônon-plasmon.	44
4-1	Trajétoias de elétrons na presença de centros de espalhamento.	48
4-2	Função de ondas típicas para: a) estados estendidos com caminho livre médio L e b) estados localizados com comprimento de localização L_Φ	49
4-3	Propagação de um elétron de um ponto a outro no sólido. Duas trajetórias típicas descrevendo a) propagação de A até B e b) um circuito fechado.	50
5-1	Super-rede crescida por M.B.E. sobre substrato de GaAs.	53
5-2	Desordem vertical produzida pela variação aleatória das espessuras do GaAs. . .	54
5-3	Representação do conjunto experimental empregado em Espectroscopia Raman. . .	58
5-4	Configuração do modo subtrativo do espectrômetro T64000. F1, F1/2 e F3 são as fendas de entrada, intermediária e de saída, respectivamente. R1, R2 e R3 são as redes.	59
5-5	Ilustração de litografia óptica por proximidade [48].	60
5-6	Esquema dos contatos elétricos na amostra AlGaAs:Si sobre a mesa: a) vertical e b) horizontal.	62
5-7	Esquema da montagem experimental para as medidas de magnetotransporte. . .	63

6-1	Espectro Raman das ligas de $Al_xGa_{1-x}As:Si$ dopadas. A concentração de portadores N é mantida em um valor fixo.	65
6-2	Espectro Raman das ligas de $Al_xGa_{1-x}As:Si$ dopadas. A concentração de alumínio, x , é mantida em um valor fixo.	67
6-3	Dependência dos fônons ópticos do centro da zona para $Al_xGa_{1-x}As$ [49].	68
6-4	Espectro Raman da liga $Al_{0,2}Ga_{0,8}As:Si$ dopada medido à temperatura $T=10K$ no intervalo espectral do AlAs. a) $N=2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ e b) $N=4,4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. A linha pontilhada mostra o ajuste de curva do espectro.	70
6-5	Espectro Raman da liga $Al_{0,2}Ga_{0,8}As:Si$ dopada com uma densidade eletrônica $N=2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	71
6-6	Gráfico dos modos acoplados fônon LO-plasmon da liga semicondutora dopada $AlGaAs:Si$. As linhas retas e horizontais indicam, as frequências dos modos longitudinais e transversais ópticos w_{TO1} e w_{LO1} (do GaAs) e w_{TO1} e w_{LO1} (do AlAs) [51].	72
6-7	Resistividade de campo magnético zero em função da temperatura medida no estado a) isolante e b) metálico nas ligas AlGaAs:Si. As linhas cheias em a) representam a resistividade calculada considerando-se processos de transporte por "hopping" e em b) as linhas cheias representam a resistividade devido à destruição do processo de interferência quântica.	75
6-8	Comprimentos de localização das excitações coletivas fônon-plasmon no intervalo espectral do AlAs medidas nas ligas $Al_{0,11}Ga_{0,89}As:Si$ em $T=10K$ para diferentes concentrações de dopagem. I refere-se ao estado isolante e M ao estado metálico. A linha vertical mostra o limite entre os estados I e M. A linha cheia exhibe o decréscimo do comprimento de localização do plasmon causado pelo espalhamento por impurezas ionizadas.	77

6-9	Em a) mostra-se a intensidade da linha Raman da liga $\text{Al}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{As}:\text{Si}$, obtida do ajuste do espectro. As linhas pontilhadas e cheias em b) representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons do AlAs, respectivamente. A linha tracejada representa o espectro de energia das excitações de uma partícula (SPE) a partir do qual aparece o regime de amortecimento de Landau. A linha vertical mostra o número de onda da luz de excitação.	78
6-10	Intensidade Raman medidas em $T= 80 \text{ K}$ na SL $(\text{GaAs})_m(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$ com parâmetro de desordem 0,82 para geometria de retroespalhamento: a) $z(x,x)-z$ e b) $x'(z,z)x'$. As linhas tracejadas foram calculadas de acordo com a Eq. 3.4.3. As contribuições dos picos assimétricos tipo plasmon são mostrados com linhas espessas.	81
6-11	Espectro de energia das excitações de uma partícula e das excitações coletivas calculadas nas direções paralela (linhas finas) e perpendicular (linhas espessas) às camadas da SL $(\text{GaAs})_{17}(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$. A linha tracejada espessa e as linhas cheias representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons LO respectivamente. A linha vertical tracejada mostra o número de onda transferido pela luz de excitação. A figura inserida mostra o espectro eletrônico de energias das excitações de uma partícula (SPE), propagando-se normal às camadas.	82
6-12	Intensidade Raman medidas em $T= 10 \text{ K}$, na SL $(\text{GaAs})_m(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$ com parâmetro de desordem 0,4. As linhas tracejadas foram calculadas de acordo a Eq. 3.4.3.	85
6-13	Espectro de energia das excitações de uma partícula (inserção) e das excitações coletivas propagando-se verticalmente para a SL $(\text{GaAs})_{17}(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$ As linhas tracejadas espessas e as linhas cheias representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons LO do AlAs, respectivamente. A linha vertical tracejada mostra o número de onda transferido pela luz de excitação. No lado esquerdo mostra-se a intensidade da linha Raman calculada.	87

6-14	Magnetoresistência vertical do campo fraco medido num campo magnético paralelo às camadas na SL à temperatura $T= 10\text{K}$ (denotada por DSL). A linha tracejada foi calculada pela Eq 3.4.3. A linha correspondente ao GaAs relaciona a estrutura da mesa fabricada no mesmo substrato dopado sem a SL. No interior da figura mostra-se a mesa dupla da SL usada nas medidas de transporte vertical, assim como as orientações do fluxo de corrente e do campo magnético.	88
6-15	Espectros das super-redes $(\text{GaAs})_m(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$ com concentração nominal $1,2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, com diferentes parâmetros de desordem, medidos à $T= 10\text{K}$. . .	91
6-16	Espectros Raman da super-rede $(\text{GaAs})_m(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$ dopada ($N=1,2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), medidos em $T= 10\text{K}$, no intervalo espectral dos fônons ópticos tipo A1As, com diferentes parâmetros de desordem.	93

Capítulo 1

Introdução

Os problemas de localização num potencial aleatório e a transição entre estados localizados e estendidos continua atraindo muito a atenção. De acordo com W. Kohn [1], a localização dos elétrons ocorre no espaço de fases e portanto, está relacionado mais com a natureza ondulatória da função de onda do elétron do que com a distribuição da densidade de cargas eletrônicas no espaço real. Conseqüentemente, o estado isolante que resulta na condutividade dc zero é determinado pela localização da função de onda do elétron no estado fundamental. Portanto, uma medida direta das propriedades da função de onda eletrônica é o objeto central do problema de localização. Qualquer excitação elementar, com origem ondulatória, revela os mesmos aspectos qualitativos da localização. Entretanto, suas características podem resultar em diferentes propriedades.

Os aspectos gerais da localização no caso de elétrons individuais e seus movimentos coletivos (plasmons) foi indicado pela primeira vez na Referência [2], onde foram propostas as super-redes (SL's) como uma ferramenta para controlar a intensidade da desordem. A diferença essencial entre elétrons e plasmons é a polarização dinâmica,

que determina o movimento eletrônico coletivo. Assim, a interação entre elétrons determina intrinsecamente as características das excitações coletivas. Portanto, a comparação entre as propriedades de localização dos plasmons e dos elétrons pode esclarecer o problema de como a interação influencia a localização.

As propriedades ondulatórias dos elétrons individuais podem ser medidas por magnetoresistência [3]. Como resultado, o comprimento de coerência de fase pode ser obtido. Como estabelecido em [4], o comprimento de coerência de fase determina a largura mínima de um pacote de onda de elétrons e portanto, pode servir como limite inferior do comprimento de localização. Em cristais "bulk", onde a energia transferida no evento de espalhamento é tipicamente grande, o comprimento de coerência de fase coincide com o comprimento de localização. Desta forma, o comprimento de localização associado com a indeterminação do quase-momento dos plasmons na presença de desordem pode ser medido em espalhamento Raman [5].

Como previsto pela teoria [6] pode-se observar que o amortecimento de Landau limita o quase-momento das excitações coletivas em cristais de corpos volumétricos ("bulk") devido ao quase-momento correspondente das excitações de uma partícula. Isto impede que se meça o valor correto da desordem induzida pelo comprimento de correlação dos plasmons em materiais fortemente desordenados. No caso das SL's, entretanto, a sintonia da estrutura de minibandas permite evitar o amortecimento de Landau no caso em que as energias das excitações coletivas se encontram no intervalo do minigap no espectro de energia de um único elétron. Portanto, pode-se medir o comprimento de localização vertical (perpendicular às camadas) nestas estruturas.

O presente trabalho consiste na análise e comparação entre as propriedades de localização das excitações de uma partícula e das excitações coletivas do elétron sujeito a um potencial aleatório nas SL's de $(GaAs)_n(AlAs)_m$ intencionalmente desordenadas e nas ligas $Al_xGa_{1-x}As$.

A potencialidade da espectroscopia Raman para este tipo de análise é evidente, uma vez que desordens estruturais e/ou químicas causam mudanças nas frequências e no tempo de vida dos fônons, levando ao deslocamento e alargamento dos picos Raman. Assim, esta técnica mostra-se como uma das mais poderosas ferramentas quando usada no estudo dos modos vibracionais de sólidos, pois apresenta como principais vantagens o caráter não destrutivo, a rapidez na aquisição e análise de dados, não exigir preparação especial de amostras, possibilidade de explorar pequenas regiões da amostra, reprodutibilidade e fornecer resultados qualitativos e quantitativos. O trabalho é dividido na seguinte maneira: a teoria básica do efeito Raman é discutido no capítulo 2. O capítulo 3 versará sobre as super-redes e suas excitações coletivas. O capítulo seguinte tratará sobre o transporte eletrônico e os efeitos de localização. No capítulo 5 serão descritos os equipamentos utilizados e a análise dos resultados das super-redes. Finalmente, no capítulo 6, têm-se as conclusões deste trabalho.

Capítulo 2

Espalhamento Raman

2.1 Introdução

Quando a luz incide sobre um material, uma fração desta é refletida e a outra é transmitida. No meio material, parte da radiação pode ser absorvida ou espalhada enquanto que o resto passa através da amostra. Parte das ondas eletromagnéticas absorvidas podem ser dissipadas como calor e re-emitidas com frequência diferente. As ondas eletromagnéticas podem ser espalhadas por inhomogeneidades do meio que podem ser estáticas ou dinâmicas. As inhomogeneidades estáticas tais como defeitos, espalham a luz elasticamente (dito espalhamento Rayleigh), enquanto que as inhomogeneidades dinâmicas tais como flutuações da densidade de carga devido à presença de excitações elementares, podem espalhar a luz inelasticamente.

O espalhamento inelástico de luz pelas ondas acústicas foi proposto teoricamente por Brillouin e depois por Mandelstan [7]. Espalhamento inelástico de luz pelas vibrações moleculares foi primeiro observado por Raman [8]. Em 1930 Raman obteve o Prêmio Nobel pelo descobrimento do "Espalhamento Raman". Hoje o espalhamento

Raman e o espalhamento Raman Ressonante são ferramentas espectroscópicas muito úteis no estudo dos materiais em geral e dos semicondutores em particular. Assim, a espectroscopia Raman é uma técnica de análise onde são estudadas as correlações entre as propriedades de um feixe de luz incidente (com frequência ω_i , vetor de onda \vec{k}_i , polarização e_i e intensidade I_i) e aquelas do feixe de luz espalhada (ω_s, k_s, e_s, I_s). A interpretação de um experimento de espectroscopia Raman consiste em fazer a ligação entre esses vários parâmetros e as propriedades do material como é representado na Figura 2-1.

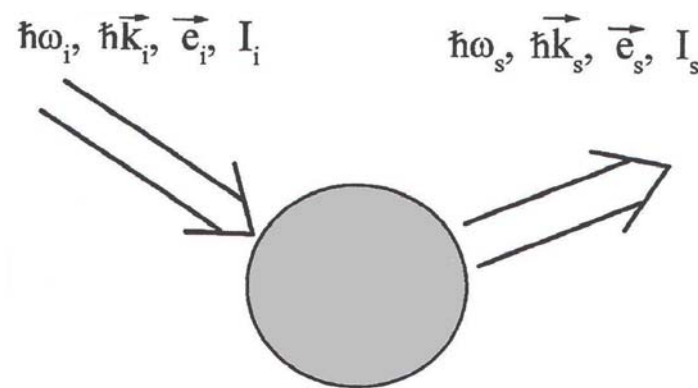


Figura 2-1: Representação das quantidades envolvidas num processo de espalhamento.

No espectro de radiação espalhada, as novas frequências são denominadas linhas Raman e constituem o espectro Raman. O espalhamento Brillouin é um caso especial do espalhamento Raman, onde o desvio de frequência é muito pequeno ($0-10 \text{ cm}^{-1}$); sua análise exige aparatos experimentais diferentes¹ dos usados em Raman.

¹Espectroscopia Raman é convenientemente realizada por instrumentos dispersivos, tais como prismas e grades de difração. O espectro Brillouin, por outro lado é melhor medido por interferômetros.

2.2 Tratamento Clássico

No tratamento clássico, o cristal é representado por um conjunto de átomos sofrendo vibrações harmônicas simples na presença do campo elétrico da luz incidente. Este tratamento não leva em conta a quantização da energia vibracional. Adotou-se neste trabalho a aproximação de Born-Oppenheimer² tratando os elétrons e os núcleos atômicos de forma independente devido à sua diferença de massa [9].

Quando um feixe de luz monocromática incide sobre um cristal, os elétrons do cristal deslocam-se em relação aos seus núcleos. Como resultado do deslocamento eletrônico se produz um momento dipolar oscilante induzido que atua como fonte de radiação.

Seja o campo elétrico da luz incidente num ponto do espaço dado por:

$$\vec{E}_i(\vec{r}, t) = \hat{e}_i E_{oi} \exp \left[i(\vec{k}_i \cdot \vec{r}_i - w_i t) \right] \quad (2.0)$$

onde \hat{e}_i define a polarização da luz incidente, E_{oi} é a amplitude, w_i é a frequência e \vec{k} é o vetor de onda.

A polarização \vec{P}_i gerada por este campo elétrico no meio pode ser descrita como:

$$\vec{P}_i = \chi \vec{E}_i \quad (2.0)$$

onde χ é o tensor polarizabilidade (ou susceptibilidade) da molécula e representa a facilidade com que a nuvem eletrônica pode ser distorcida. Assumindo o meio isotrópico, χ pode ser representado por um escalar.

²Na aproximação de Born-Oppenheimer como o movimento dos elétrons é mais rápido que o dos núcleos, pode-se considerar o movimento dos elétrons mantendo a posição dos núcleos fixa. Do mesmo modo, durante o movimento dos núcleos, pode-se considerar uma distribuição média dos elétrons.

Considerando o caso de vibrações de rede, temos que o deslocamento atômico $\vec{u}(\vec{r}, t)$ em torno da sua posição de equilíbrio e ao longo do eixo de vibração em um determinado tempo t pode ser convenientemente descrito na forma

$$\vec{u}(\vec{r}, t) = \vec{u}_o \exp [i(\vec{q} \cdot \vec{r} - w_o t)] \quad (2.0)$$

onde \vec{u}_o é a amplitude do deslocamento, w_o a frequência de vibração da rede e \vec{q} o seu vetor de onda.

As variações na configuração atômica do cristal produzem mudanças em χ . Isto é, χ possui dependência em \vec{u} . Segundo a aproximação adiabática $\chi(\vec{u})$ pode ser expandida em série de Taylor em torno da posição de equilíbrio na forma:

$$\chi(\vec{u}, w_i) = \chi_o(\vec{k}_i, w_i) + \left(\frac{\partial \chi}{\partial \vec{u}} \right) \vec{u} + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 \chi}{\partial \vec{u}^2} \right) \vec{u}^2 + \dots \quad (2.0)$$

onde o segundo termo na equação 2.2 representa a susceptibilidade oscilante induzida pela onda da rede $\vec{u}(\vec{r}, t)$.

Substituindo as equações 2.2, 2.2, 2.2 na equação 2.2 obtém-se:

$$\vec{P}_i = \chi_o(\vec{k}_i, w_i) E_{oi} \exp [i(\vec{k}_i \cdot \vec{r} - w_i t)] + \left(\frac{\partial \chi}{\partial \vec{u}} \right) E_{oi} \vec{u}_o \times \exp \left\{ i \left[(\vec{k}_i \pm \vec{q}) \cdot \vec{r} - (w_i \pm w_o) t \right] \right\} \hat{e}_i + \dots$$

O primeiro termo da equação 2.2 descreve o espalhamento Rayleigh, pois a frequência da radiação espalhada é a mesma da radiação incidente. O segundo termo caracteriza-se pela emissão de radiação de frequências $w_i \pm w_o$ que correspondem ao espalhamento Raman denominados Stokes (-) e anti-Stokes (+). Os termos seguintes correspondem ao espalhamento Raman de ordens maiores. Nestes casos, a variação

de frequências é mais acentuada [7].

Portanto, a equação 2.2 indica que:

(i) A luz será espalhada com frequência

$$\begin{aligned} w_i &\Rightarrow \text{espalhamento Rayleigh} \\ w_i \pm w_o &\Rightarrow \text{espalhamento Raman Stokes (-) e anti-Stokes(+).} \end{aligned}$$

(ii) $\left(\frac{\partial \overleftarrow{\chi}}{\partial u}\right)_0 \neq 0$ para que o espalhamento Raman ocorra.

Conclui-se de (ii) que o espalhamento Raman de primeira ordem provém da modulação da susceptibilidade elétrica pelas excitações elementares criadas (processo Stokes, frequência $w_i - w_o$) ou destruídas (processo anti-Stokes, frequência $w_i + w_o$) no material.

Podemos definir o tensor Raman \overleftarrow{R} como

$$\overleftarrow{R} = \left(\frac{d\overleftarrow{\chi}}{d\overrightarrow{u}}\right)_0 \overrightarrow{u} , \quad (2.0)$$

onde aproximamos $\overrightarrow{q} = 0$ para espalhamento de um fônon (ver leis de conservação).

Fazendo $\widehat{Q} = \overrightarrow{u}/|\overrightarrow{u}|$ o vetor unitario paralelo à direção do deslocamento atômico, re-definimos o tensor \overleftarrow{R} como

$$\overleftarrow{R} = \left(\frac{d\overleftarrow{\chi}}{d\widehat{Q}}\right)_0 \widehat{Q}(w_0) \quad (2.0)$$

2.3 Tratamento Quântico

Na descrição quântica, a radiação e os osciladores do material são quantizados. Um quantum de radiação incidente é aniquilado e um quantum de radiação espalhado

é originado através da criação (processo Stokes) ou aniquilação (processo anti-Stokes) de uma excitação cristalina (por exemplo, fônons).

Assumindo que o átomo está inicialmente em algum estado ligado $|a\rangle$ e o campo de radiação no estado $|n_i, n_f\rangle$ com n_i fótons de momentum $\hbar k_i$ e polarização \hat{e}_i e n_f fótons de momento $\hbar k_f$ e polarização \hat{e}_f , o autovetor do sistema campo-átomo no estado inicial será $|a; n_i, n_f\rangle$ e a energia $\varepsilon_a + n_i \hbar \omega_i + n_f \hbar \omega_f$. Após o espalhamento, assume-se que o átomo está no estado $|b\rangle$ e o campo no estado $|n_i - 1, n_f + 1\rangle$ tal que a energia final seja $\varepsilon_b + \hbar \omega_i (n_i - 1) + \hbar \omega_f (n_f + 1)$.

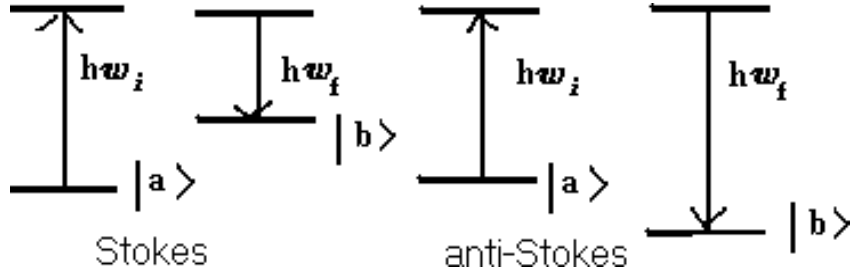


Figura 2-2: Espalhamento Raman: a) Stokes e b) anti-Stokes.

A partir dessas hipóteses, pode-se calcular a probabilidade para que tal processo ocorra e obter a secção de choque diferencial [10]. A secção de choque diferencial é definida como a probabilidade de transição por segundo no ângulo sólido, por número de fótons por segundo e por unidade de área, e é dada por:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega} = & (r_0)^2 (n_f + 1) \frac{w_f}{w_i} |(\hat{e}_i \cdot \hat{e}_f) \delta_{ab} - \\ & + \frac{1}{m} \sum_I \left[\frac{(\hat{e}_i \cdot \vec{p}_{bI})(\hat{e}_f \cdot \vec{p}_{Ia})}{\varepsilon_I - \varepsilon_a + \hbar \omega_f} + \frac{(\hat{e}_f \cdot \vec{p}_{bI})(\hat{e}_i \cdot \vec{p}_{Ia})}{\varepsilon_I - \varepsilon_a - \hbar \omega_i} \right] \Bigg|_{w_f = w_i - [(\varepsilon_b - \varepsilon_a)/\hbar]}^2 \end{aligned} \quad (2.0)$$

onde m e \vec{p} são a massa e o momento do elétron respectivamente. I refere-se ao estado intermediário e a somatoria é feita sobre todos os estados I possíveis. O número de fótons n_f refere-se ao espalhamento estimulado e o valor 1 ao espalhamento espontâneo; r_0 é o raio clássico do elétron.

No caso do espalhamento Raman, o primeiro termo não contribui.

Consideramos primeiro o caso em que $\varepsilon_b > \varepsilon_a$. Se a frequência incidente é w_i e a frequência espalhada $w_S = w_i - (\varepsilon_b - \varepsilon_a) / \hbar$ com $w_S < w_i$ (esta é a chamada linha Stokes), então a secção de choque diferencial é dada por:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{Stokes} = r_0^2 \left(\frac{w_s}{w_i} \right) (n+1) \left| \hat{e}_s \cdot \overleftrightarrow{R} \cdot \hat{e}_i \right|^2 \quad (2.0)$$

onde o tensor Raman \overleftrightarrow{R} é dado por:

$$\overleftrightarrow{R} = \frac{1}{m} \sum_I \left[\frac{\vec{p}_{bI} \vec{p}_{Ia}}{\varepsilon_I - \varepsilon_a - \hbar w_i} + \frac{\vec{p}_{aI}^* \vec{p}_{Ib}^*}{\varepsilon_I - \varepsilon_a + \hbar w_s} \right] \quad (2.0)$$

e

$$\hbar w_S = \hbar w_i - (\varepsilon_b - \varepsilon_a) < \hbar w_i \quad (2.0)$$

No segundo caso, $\varepsilon_a > \varepsilon_b$ e a frequência espalhada w_A é maior que w_i . Esta é a chamada linha anti-Stokes. A secção de choque, neste caso, é:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{anti-Stokes} = r_0^2 \left(\frac{w_A}{w_i} \right) n \left| \hat{e}_A \cdot \overleftrightarrow{R} \cdot \hat{e}_i \right|^2 \quad (2.0)$$

onde

$$\hbar w_A = \hbar w_i + (\varepsilon_a - \varepsilon_b) > \hbar w_i \quad (2.0)$$

e o tensor Raman possui a mesma forma da Equação 2.3. Observa-se destas equações

que no espalhamento Stokes, onde o fônon é excitado no meio pela radiação incidente, a intensidade torna-se proporcional a $(n + 1)$, sendo n é o número de ocupação do fônon dado pela fator estatístico de Bose-Einstein $[\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1]^{-1}$ onde k_B é a constante de Boltzman e T é a temperatura absoluta. Da mesma forma, a intensidade anti-Stokes será proporcional a n e será nula em baixas temperaturas (pois não possui o termo $+1$ responsável pela contribuição da temperatura nula). Por isso, em baixas temperaturas, é conveniente obter os espectros Raman de fônons tomando o ramo de frequências correspondentes ao processo Stokes [7, 11].

2.4 Regras de Seleção

As regras de seleção possibilitam prever se o espalhamento Raman para um dado modo vibracional é permitido. No espalhamento, além da conservação do vetor de onda e da energia deve ser imposta a condição

$$\hat{e}_s \cdot \overleftarrow{R} \cdot \hat{e}_i \neq 0 \quad (2.0)$$

A intensidade Raman da luz espalhada é proporcional ao quadrado do momento do dipolo induzido e pode ser expressa como:

$$I_s \propto \left| \hat{e}_s \cdot \overleftarrow{R} \cdot \hat{e}_i \right|^2 g(\omega) \quad (2.0)$$

onde \hat{e}_i (\hat{e}_s) corresponde a polarização da luz incidente (espalhada) e $g(\omega)$ é a forma da linha (Lorentziana).

Da Equação 2.4, observa-se que as regras de seleção são dependentes da geometria de espalhamento. Medindo a dependência da intensidade de luz espalhada em

função das polarizações incidente e espalhada, pode-se deduzir as simetrias do tensor Raman e, portanto, a simetria do fônon Raman ativo correspondente. Desta forma o espalhamento Raman pode ser usado para determinar tanto a frequência como a simetria dos fônons do centro da Zona de Brillouin (ZB).

Utilizaremos neste trabalho a notação de Porto [12] para descrever a geometria de espalhamento, que pode ser determinada por quatro vetores: \vec{k}_i e \vec{k}_s (são as direções de propagação do fóton incidente e espalhado) e \hat{e}_i e \hat{e}_s (a polarização dos fóton incidente e espalhado respectivamente). Estes quatro vetores são usualmente representados como $\vec{k}_i(\hat{e}_i, \hat{e}_s)\vec{k}_s$. A notação $z(y, x)\bar{z}$, por exemplo, indica que a excitação da luz incidente sobre a amostra está na direção z e possui polarização ao longo de y , enquanto que a luz espalhada foi detectada ao longo do eixo z e polarizada ao longo do eixo x , como mostrado na Figura 2-3.

2.4.1 Regras de Seleção em Semicondutores III-V

Em semicondutores tipo blenda do zinco tal como GaAs, as regras de seleção são descritas da seguinte forma: o fônon óptico do centro da Zona de Brillouin (ZB) possui simetria Γ_4 (ou equivalentemente Γ_{15}). Esta representação é triplamente degenerada e seus três componentes podem ser denotados por X , Y , Z . Neste caso particular é interessante tratar cada uma das três componentes como projeções iguais aos deslocamentos relativos dos dois átomos da célula unitária ao longo dos eixos cristalográficos [7, 13]. Este tensor possui apenas uma componente linearmente independente, que denotamos por “d”. As componentes não nulas do tensor Raman correspondente são dependentes do deslocamento causado pelo fônon e são diferentes para cada direção devido ao fato das constantes elásticas serem diferentes. Para um fônon óptico polarizado ao longo da direção x , seu tensor $\overleftrightarrow{R}(X)$ terá apenas duas

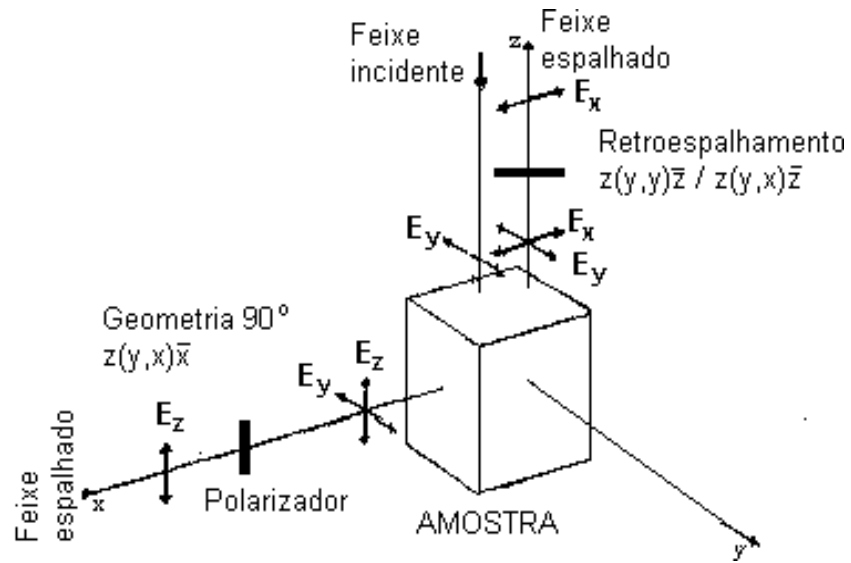


Figura 2-3: Representação esquemática da geometria de espalhamento usando a notação $\vec{k}_i(\hat{e}_i, \hat{e}_s)\vec{k}_s$, onde \vec{k}_i e \vec{k}_s são as direções do fóton incidente e espalhado e, \hat{e}_i e \hat{e}_s , são as polarizações dos fóton incidente e espalhado, respectivamente.

componentes não nulas $\overleftrightarrow{R}_{yz}(X) = \overleftrightarrow{R}_{zy}(X) = d$.

Podemos representar $\overleftrightarrow{R}(X)$ por uma matriz 3 x 3, tal que

$$\overleftrightarrow{R}(X) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & d \\ 0 & d & 0 \end{pmatrix} \quad (2.0)$$

Usando argumentos similares, podemos derivar os tensores Raman para os mesmos fônons ópticos polarizados nas direções y e z ,

$$\overleftrightarrow{R}(Y) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & d \\ 0 & 0 & 0 \\ d & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad \text{e} \quad \overleftrightarrow{R}(Z) = \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.0)$$

Em semicondutores polares, tais como o GaAs, os fônons ópticos compõem-se de um modo transversal óptico (TO), duplamente degenerado e de um modo longitudinal óptico (LO) para vetores de onda próximos ao centro da ZB. Os elementos do tensor Raman para estes dois fônons são diferentes porque além do fato mencionado acima (constantes de força diferentes em distintas direções), o modo LO pode adicionalmente espalhar luz via seu campo elétrico longitudinal macroscópico [14]. A notação d_{TO} e d_{LO} é utilizada, respectivamente, para distinguir os fônons TO e LO.

As regras de seleção para cristais de estrutura blenda do zinco para a geometria de retroespalhamento são apresentadas na Tabela 1.

Geometria de espalhamento		Regras de seleção	
	$\vec{k}_i(\hat{e}_i, \hat{e}_s)\vec{k}_s$	modo TO	modo LO
	x(y,y) \bar{x} ; x(z,z) \bar{x}	0	0
	x(y,z) \bar{x} ; x(z,y) \bar{x}	0	$ d_{LO} ^2$
	x(y',z') \bar{x} ; x(z',y') \bar{x}	0	0
	x(y', y') \bar{x} ; x(z', z') \bar{x}	0	$ d_{LO} ^2$
	y'(x,x) \bar{y}'	0	0
	y'(z',x) \bar{y}'	$ d_{TO} ^2$	0
	y'(z',z) \bar{y}'	$ d_{TO} ^2$	0
	x''(z'',z'') \bar{x}''	$\frac{2}{3} d_{TO} ^2$	$\frac{1}{3} d_{LO} ^2$
	x''(z'',y'') \bar{x}''	$\frac{2}{3} d_{TO} ^2$	0

Tabela 1. Regras de seleção Raman para geometrias de retroespalhamento em cristais tipo blenda do zinco. d_{TO} e d_{LO} denotam os elementos não nulos dos tensores Raman para os modos TO e LO respectivamente: x, y e z representam os eixos [100], [010] e [001] respectivamente. y' e z' representam os eixos [011] e $[0\bar{1}1]$, enquanto que x'', y'', z'' representam os eixos (mutuamente perpendiculares) [111], $[1\bar{1}0]$ e $[11\bar{2}]$ respectivamente [7].

2.4.2 Leis de conservação

No espalhamento Raman de primeira ordem somente um fônon participa do processo, podendo ser criado (Stokes) ou destruído (anti-Stokes).

Quando fótons de luz visíveis são utilizados para excitar o espalhamento Raman em um semiconductor, os fótons acoplam-se em geral apenas com os elétrons via Hamiltoniana de interação elétron-radiação. Este processo pode ser descrito pelos diagramas de Feynman como apresentado na Figura 2-4.

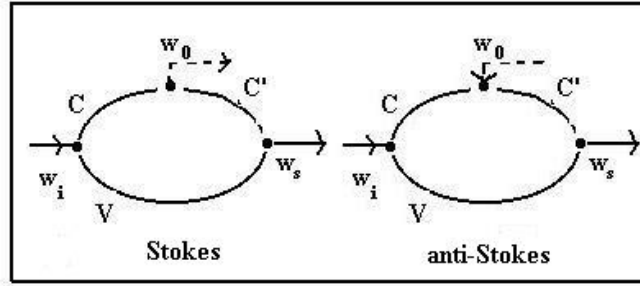


Figura 2-4: Diagramas de Feynman para os processos: Stokes e anti-Stokes.

- (i) A primeira transição eletrônica para um estado intermediário elétron-buraco ocorre com a aniquilação do fóton incidente (w_i);
- (ii) A segunda transição para outro estado elétron-buraco ocorre com a criação (ou destruição) de um fônon (w_0);
- (iii) A terceira transição ao estado fundamental (recombinação do par elétron-buraco) ocorre com a criação de um fóton espalhado (w_s).

As leis de conservação para o processo Raman de primeira ordem são:

$$\hbar w_s = \hbar w_i \pm \hbar w_0 \quad (2.0)$$

$$\hbar \vec{k}_s = \hbar \vec{k}_i \pm \hbar \vec{q} \quad (2.0)$$

onde $\hbar w_{i,s}$ e $\hbar \vec{k}_{i,s}$ são as energias e os momentos dos fótons incidente e espalhado, sendo que $\pm \hbar w_0$ e $\pm \hbar \vec{q}$ são as respectivas energias e momentos para os fônons criados (+) e aniquilados (-).

O vetor de onda do fóton é relacionado com seu comprimento de onda no vácuo pela expressão:

$$\left| \vec{k}_{i,s} \right| = \frac{2\pi}{\lambda_{i,s}} n_{i,s} \quad (2.0)$$

onde $n_{i,s}$ é o índice de refração do meio.

A magnitude do vetor de onda do fônon é determinada pela configuração experimental. Da Figura 2-5 observa-se que a norma do vetor de onda do fônon é

$$|\vec{q}| \approx 2\vec{k}_i \text{sen} \frac{\theta}{2} \quad (2.0)$$

para retroespalhamento ($\theta = \pi$)

$$|\vec{q}_{\text{max}}| \approx 2k_i \approx 10^5 \text{ cm}^{-1} \quad , \quad (2.0)$$

considerando $\lambda_i = 5145 \text{ \AA}$ (comprimento de onda típico em experimentos Raman).

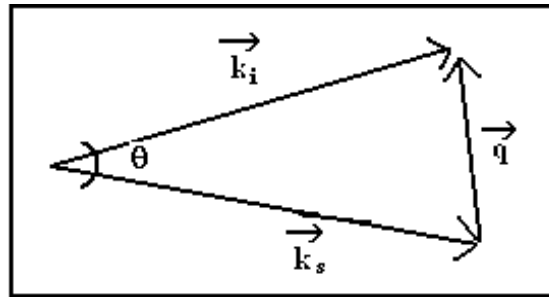


Figura 2-5: Cinemática de espalhamento inelástico de luz.

O vetor de onda máximo dos fônons em sólidos é tipicamente dado por:

$$q = \frac{2\pi}{a_0} = 1,2 \times 10^8 \text{ cm}^{-1} \quad (2.0)$$

sendo o valor do espaçamento entre átomos $a_0 \approx 5 \text{ \AA}$.

Destas duas últimas equações nota-se que os vetores de onda da luz incidente (\vec{k}_i) e da luz espalhada (\vec{k}_s) são muito pequenos em comparação com o vetor da borda

da ZB em semicondutores. Então, para satisfazer a Eq. 2.4.2, os fônons criados ou destruídos devem ter um vetor de onda de magnitude próxima de zero ($\vec{q} \approx 0$), ou seja, próximo ao centro da ZB.

Nos processos de segunda ordem em que 2 fônons participam do espalhamento (vide Figura 2-6), as regras de conservação de energia e momento são facilmente expandidas para as somas de momento e energia:

$$\hbar\omega_s = \hbar\omega_i \pm (\hbar\omega_{01} \pm \hbar\omega_{02}) \quad (2.0)$$

$$\vec{k}_s = \vec{k}_i \pm (\vec{q}_{01} + \vec{q}_{02}) \quad (2.0)$$

Da equação 2.4.2, nota-se que os vetores de onda não são necessariamente pequenos como no espalhamento de primeira ordem, mas podem ter valores por toda a ZB já que $|\vec{q}_{01}| \approx -|\vec{q}_{02}|$ também satisfaz a equação 2.4.2. O espectro de segunda ordem apresenta um número maior de estruturas e singularidades, porém, a intensidade é muito menor.

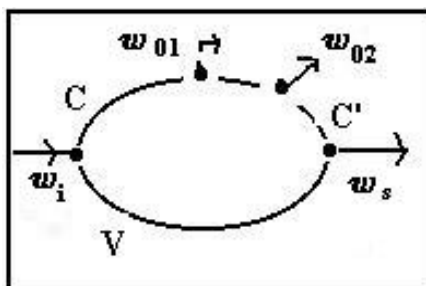


Figura 2-6: Diagrama de Feynman para o caso de dois fônons.

2.4.3 Principais mecanismos de espalhamento

Os mecanismos de espalhamento por fônons em um semicondutor podem ser separados em dois grupos: os mecanismos que são induzidos por deformações da rede (potencial de deformação acústico, potencial de deformação óptico, potencial intervalas) e os que são induzidos pelas ondas de polarização que acompanham um fônons polar, seja ele acústico ou óptico.

No caso de fônons ópticos ($q \approx 0$), Loudon [15] mostrou que existem duas contribuições que devem ser consideradas na interação elétron-rede. A primeira é a Interação do Potencial de Deformação (IDP), produzido pela modulação do potencial periódico do cristal como consequência do deslocamento atômico relativo dos fônons e, a segunda, é a Interação de Frohlich (IF) do elétron com o campo elétrico macroscópico longitudinal associado às vibrações da rede. Este último termo somente aparece em semicondutores polares.

Espalhamento por Potencial de Deformação

Para cristais com dois ou mais átomos por célula unitária, um fônons óptico do centro da ZB provoca distorções microscópicas na célula unitária, diferentemente dos fônons acústicos que provocam deformações na rede.

Similarmente ao caso dos fônons acústicos, o Hamiltoniano para a interação elétron-fônons óptico é dado por [7]

$$H_{e-OP} = D_{n,k}(u/a_0) \quad (2.0)$$

onde $D_{n,k}$ é o potencial de deformação do fônons óptico para a banda de energia definida por n . Já que a interação não depende do vetor de onda do fônons, tem-

se uma interação de curto alcance. Embora, os elementos da matriz óptica e da matriz acústica sejam parecidas, sua natureza é bastante diferente já que no caso de fônons ópticos as duas sub-redes do cristal vibram uma contra outra. Essa situação é diferente da mudança de volume que ocorre no caso acústico. Nota-se, assim, que o espalhamento por fônons ópticos é sensível à simetria da região particular da estrutura de bandas na qual o elétron é espalhado. Por exemplo, se os elétrons são espalhados próximos ao mínimo em Γ e se a função de onda tem simetria esférica, o elemento de matriz desse tipo de espalhamento se anula, isto é, espalhamento por potencial de deformação é proibido. Este é o caso do mínimo da banda de condução do GaAs e do AlGaAs [16, 17].

Espalhamento por fônons ópticos via Interação de Frohlich

O espalhamento por fônons ópticos via Interação de Frohlich provém das polaridades de dois átomos com cargas diferentes em compostos III-V. O deslocamento relativo de cargas opostas gera um campo elétrico macroscópico que interage com os elétrons. Este campo elétrico pode ser dado por [7, 14]:

$$\mathbf{E}_{LO} = \left[\frac{N\mu w_{LO}^2}{\varepsilon_0} (k_\infty^{-1} - k_0^{-1}) \right]^{1/2} \mathbf{u}_{LO} \quad (2.0)$$

onde k_∞ e k_0 são as permissividades relativas para $w = \infty$ e $w = 0$ respectivamente, \mathbf{u}_{LO} é o deslocamento relativo dos íons na célula unitária, N é o número de células unitárias por unidade de volume e, μ , é a massa reduzida da célula primitiva.

O campo longitudinal da equação 2.4.3 pode ser expresso em termos do potencial escalar

$$\phi_{LO} = - \left[\frac{N\mu w_{LO}^2}{\varepsilon_0} (k_\infty^{-1} - k_0^{-1}) \right]^{1/2} \frac{1}{iq} \mathbf{u}_{LO} \quad (2.0)$$

A interação entre um elétron de carga $-e$ e este potencial Coulombiano é conhecida como interação de Frohlich e o Hamiltoniano, que pode ser obtido do Modelo do Contínuo Dielétrico é dado por:

$$H_F = -e\phi_{LO} \quad (2.0)$$

Expressando \mathbf{u}_{LO} em termos dos operadores de criação e de destruição [7], pode-se escrever H_F como

$$H_F = \delta V(\mathbf{q}) \cdot \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) = -\frac{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{e}}{q^2} \sqrt{\frac{C_F}{V}} (a_{-\mathbf{q},LO}^+ + a_{-\mathbf{q},LO}^*) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \quad (2.0)$$

onde C_F , ou Constante de Frohlich é dada por:

$$C_F = \left[2\pi e^2 \left(\frac{1}{k_\infty} - \frac{1}{k_0} \right) \hbar \Omega_{LO} \right]^{1/2} \quad (2.0)$$

O Hamiltoniano de Frohlich é inversamente proporcional a q e diverge para $q = 0$. Como w_{LO} é sempre diferente de zero, esta situação não é possível. No entanto, a conservação de momento e de energia impede que os elétrons produzam um espalhamento intrabanda através de fônons $q \approx 0$. Mas, dependendo da dispersão da banda eletrônica, q pode ser pequeno e finito e o mecanismo de espalhamento pode dominar quando um número significativo de fônons for excitado ($k_B T \geq \hbar w_{LO}$).

Capítulo 3

Super-Redes

3.1 Estrutura eletrônica de Super-Redes

As SL's são estruturas periódicas criadas artificialmente e constituídas por camadas alternadas de semicondutores diferentes com espessuras da ordem de nanômetros. O conceito de SL foi proposto por Esaki e Tsu [18] em 1969 com a finalidade de fabricar um semicondutor cuja estrutura de bandas pudesse ser controlada. Este conceito permite estender a periodicidade de uma célula primitiva para um valor arbitrário dado pelo período da SL. Como a periodicidade é um fator fundamental para o conceito de bandas de energia em semicondutores, a nova periodicidade cristalina imposta pelas SL's tem consequências importantes para a estrutura eletrônica. Uma consequência imediata recai sobre o tamanho da ZB: como o período da SL é muito maior que o período atômico, o tamanho da ZB será diminuído na mesma proporção no espaço recíproco, como se observa na Figura 3-2.

A junção de dois materiais semicondutores de gaps diferentes provoca o aparecimento de uma descontinuidade nas bandas de energia dessa estrutura, resultando na

formação de um poço de potencial, como mostrado na Figura 3-1. As alterações causadas na estrutura de bandas devido à presença de um poço quântico são enormes, sobretudo na direção de crescimento (eixo z neste trabalho) da estrutura, com o aparecimento de níveis eletrônicos confinados. Assim, na direção de crescimento, os portadores ficam confinados nos poços e a solução da equação de Schrodinger nesta direção é semelhante à solução de equação de Schrodinger para um poço quântico quadrado finito porém, neste caso, as condições de contorno nas interfaces devem levar em conta a mudança da massa efetiva dos elétrons para semicondutores diferentes.

O movimento de portadores livres ao longo do eixo z pode ser descrito por um quase-momento p_z com energia sendo uma função periódica de p_z de período $2\pi\hbar/d$ (d : período da SL). O espectro de energias numa SL consiste da alternância de subbandas de energias $E_N(p_z)$ permitidas e de gaps proibidos. Essas subbandas resultam do dobramento ("folding") da banda de condução inicial (estruturas tipo n) e da banda de valência (estruturas tipo p) e são frequentemente chamadas de minibandas.

As minibandas formadas de níveis de poços quânticos mais baixos com larguras $2\Delta_N$ são determinadas pela probabilidade de tunelamento entre poços adjacentes. Tais minibandas podem ser descritas pela aproximação "Tight Binding". Incluindo somente acoplamento entre poços quânticos adjacentes, a relação de dispersão resultante é dada por [19]:

$$E_N(p_z) = E_N + \Delta_N \cos\left(\frac{p_z z}{\hbar}\right) \quad (3.0)$$

onde E_N é a energia de cada nível discreto.

Existe uma considerável diferença entre o espectro de energia da SL e aquele da rede cristalina usual já que o espectro de bandas de energia refere-se somente ao

movimento de portadores ao longo do eixo z . No plano xy , os portadores movem-se como partículas livres e, portanto, o espectro de energia é anisotrópico, similar a sistemas bi-dimensionais puros. Assim, a solução da equação de Schrodinger é dada por:

$$E = E_N(p_z) + \frac{p_x^2 + p_y^2}{2m} \quad (3.0)$$

A medida que as barreiras estreitam, as funções de onda do elétron nos poços adjacentes se sobrepõem, tornando possível o tunelamento de elétrons entre poços; cada nível localizado num poço torna-se uma minibanda larga [20]. Neste limite, os elétrons comportam-se como um gas de elétrons 3D. Agora, os elétrons podem mover-se através de toda a estrutura como partículas livres, mas com uma nova massa efetiva determinada pela dispersão de uma minibanda. No caso das superredes desordenadas, não existe a minibanda como definida anteriormente. Neste caso pode se assumir uma distribuição gaussiana de níveis de energia como mostrado na Figura 3-1c.

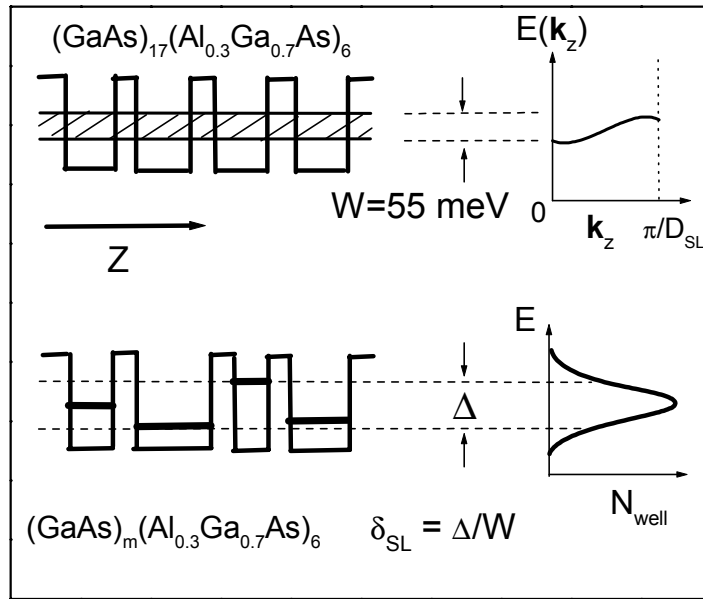


Figura 3-1: Perfil da banda de condução das SL's a) SL's não desordenadas com minibanda W , b) SL's desordenadas e c) distribuição gaussiana de níveis de energia das SL's desordenadas.

3.2 Fônons em Super-Redes

Na Figura 3-2 são representados, com linhas hachuradas, os ramos longitudinais dos "bulks" do GaAs e do AlAs comparando-as com os efeitos de dobramento (linhas sólidas) da SL $(GaAs)_4(AlAs)_4$. Neste último caso, novos modos aparecem em $q = 0$ que podem agora ser ativos em Raman. Estes novos modos são separados em duas classes: os fônons acústicos dobrados, que podem propagar-se por toda a estrutura da SL, e os modos ópticos confinados que, teoricamente, não se sobrepõem mas estão restringidos a um ou outro constituinte correspondente. No caso das SL's $GaAs/AlAs$, as duas bandas ópticas são bem separadas devido às diferentes massas dos cátions; portanto, as vibrações correspondentes nas SL's são "confinadas" em

cada material decaindo exponencialmente longe da interface.

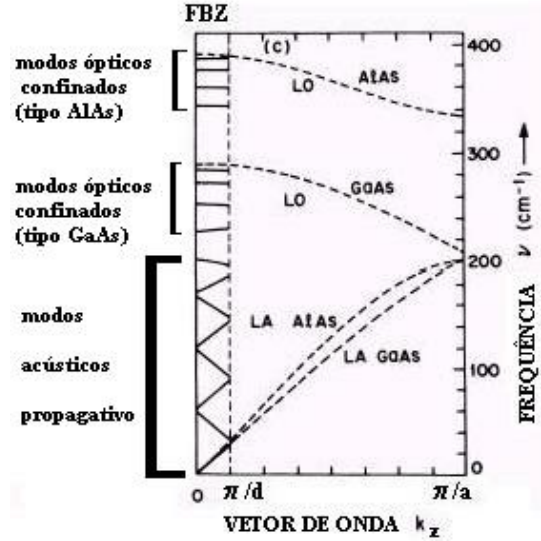


Figura 3-2: Exemplo de dobramento numa SL de $(\text{GaAs})_4(\text{AlAs})_4$. As linhas pontilhadas correspondem às curvas de dispersão do GaAs e do AlAs "bulks" e as linhas sólidas representam os ramos dobrados de acordo com a nova periodicidade d ao longo do eixo da SL [21].

A magnitude do vetor de onda dos modos ópticos, confinados na região do GaAs, é dada por [22]:

$$q_A = \frac{m}{(n_A + 1)} \left(\frac{\pi}{a} \right) \quad 1 \leq m \leq n_A \quad (3.0)$$

onde m é um número inteiro e representa a ordem do dobramento, n_A é o número de monocamadas no material A (GaAs). Obviamente uma relação similar à Eq.3.2 existe para os modos confinados AlAs.

3.3 Regras de Seleção em Super-Redes

Existem dois efeitos que devem ser levados em conta nas regras de seleção da SL tipo blenda do zinco crescida ao longo da direção [001]:

1. Redução da simetria do cristal do cúbico (grupo pontual T_d) para tetragonal (grupo pontual D_{2d}) e
2. Expansão da célula primitiva de 2 para $2(n + m)$ átomos.

A redução da simetria se origina pela super-periodicidade ao longo da direção [001] e pela deformação elástica dos compostos constituintes. Este último efeito pode ser desprezado no caso de SL's GaAs/AlAs (descasamento da rede $\approx 1\%$). Enquanto o grupo pontual da SL, orientada na direção [001], é sempre D_{2d} (tetragonal) seu grupo espacial depende dos detalhes da estrutura. Por exemplo, no caso de SL's $(GaAs)_n(AlAs)_m$, dependendo da paridade relativa de n e m dois grupos espaciais são possíveis (aqui n e m são as células primitivas dos constituintes GaAs e AlAs respectivamente):

$$n + m = \begin{cases} \text{par} \rightarrow P4m2 (D_{2d}^5) \text{ tetragonal primitiva} \\ \text{ímpar} \rightarrow I4m2 (D_{2d}^9) \text{ tetragonal de corpo centrado} \end{cases} \quad (3.0)$$

As representações das vibrações em Γ (centro da zona) são:

$$\Gamma_M = 2(B_2 + E) + (n + m)(A_1 + B_2 + 2E) \quad (3.0)$$

incluindo os fônons acústicos em $\vec{q}=0$. Para o tensor Raman [24]:

$$\Gamma_R = 2A_1 + B_1 + B_2 + E \quad (3.0)$$

Assim, todos os modos são ativos em Raman. O primeiro termo na Eq. 3.3 corresponde às representações cúbicas em Γ , que são separadas pela distorção tetragonal. O segundo termo contém os modos que se originam dos pontos de fora do centro da ZB cúbica, devido ao aumento do tamanho da célula primitiva. Na configuração de retroespalhamento na direção axial, os modos de simetria E são proibidos e os modos de simetria A_1 e B_2 são permitidos na configuração $z(x, x)\bar{z}$ e $z(x, y)\bar{z}$, respectivamente. Os modos E e B_2 obedecem às mesmas regras de seleção dos modos cúbicos dos quais eles se originaram, enquanto que o modo A_1 é inativo em Raman na mesma configuração. Contudo, os modos de simetria A_1 tornam-se dominantes perto da ressonância. Isto é devido à Interação de Frohlich.

Os tensores Raman para os fônons de simetria A_1 e B_2 com os eixos cristalográficos (x, y, z) (z é o eixo de crescimento da SL) são dados por [23]

$$R_{A_1} = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{pmatrix}, R_{B_2} = \begin{pmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.0)$$

para modos z polarizados (modos longitudinais) e

$$R_{E(x)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e \\ 0 & e & 0 \end{pmatrix}, R_{E(y)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & e \\ 0 & 0 & 0 \\ e & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.0)$$

para vibrações no plano (modos transversais).

Estes tensores foram escritos na base $x//[100]$, $y//[010]$, $z//[001]$. Como os planos de clivagem de amostras crescidas na direção $[001]$ são os planos $(1\bar{1}0)$ e (110) e geralmente as polarizações da luz incidente e espalhada são paralelas a estes planos

($x'/[1\bar{1}0]$, $y'/[110]$, $z//[001]$), é necessário construir uma nova base. Os fônons de simetria B_2 são ativos nas configurações $z(x', x')\bar{z}$ e $z(x', y')\bar{z}$, enquanto que os fônons de simetria A_1 são ativos em $z(x', x')\bar{z}$. Observa-se disto que o espalhamento na configuração $z(x', x')\bar{z}$ contém ambos os modos. Porém, cálculos usando o *modelo de polarizabilidade de ligação* aplicados em SL's de $GaAs/(GaAl)As$ [24] sugerem que, para o espalhamento fora da ressonância, a seção de choque Raman para a simetria A_1 será muito menor do que para a simetria B_2 .

Na Tabela 2 são expressas as regras de seleção para diferentes configurações.

Configuração	face de espalhamento	polarização incidente	polarização de espalhamento	seção reta Raman
$z(x, x)\bar{z}$	(001)	(100)	(100)	a^2
$z(x, y)\bar{z}$	(001)	(100)	(010)	d^2
$z(x', x')\bar{z}$	(001)	($1\bar{1}0$)	($1\bar{1}0$)	$a^2 + d^2$
$z(x', y')\bar{z}$	(001)	($1\bar{1}0$)	(110)	0

Tabela 2. Regras de seleção Raman para geometrias de retroespalhamento em super-redes: x, y e z representam os eixos [100], [010] e [001] respectivamente e y' e x' representam os eixos [$1\bar{1}0$] e [110] [7].

3.4 Teoria de Excitações Coletivas em Super-Redes

3.4.1 Anisotropia dos modos vibracionais

No limite de comprimento de onda longo (quando $\lambda \gg d_1, d_2$ onde d_1 e d_2 são as espessuras das camadas da SL), o espectro óptico da SL pode ser calculado considerando a constante dielétrica anisotrópica da SL que tem a forma de um tensor,

que para os eixos principais x , y e z é dado por:

$$\varepsilon_{SL} = \begin{bmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{bmatrix}$$

onde o eixo z é normal à interface e $\varepsilon_x = \varepsilon_y$. Impondo condições de continuidade nas interfaces para o campo elétrico (continuidade de E_x , E_y), e para o deslocamento (continuidade de eE_z), pode-se obter a componente axial e as componentes no plano, da constante dielétrica da SL [25–27]:

$$\varepsilon_{x,y}(w) = \frac{(\varepsilon_1 d_1 + \varepsilon_2 d_2)}{(d_1 + d_2)} \quad (3.0)$$

$$\varepsilon_z(w) = \frac{(d_1 + d_2)}{\left(\frac{d_1}{\varepsilon_1} + \frac{d_2}{\varepsilon_2}\right)} \quad (3.0)$$

onde ε_1 e ε_2 são as constantes dielétricas das camadas.

Modos de Interface

Resultados de pesquisas anteriores [27–29] mostram que, além dos fônons confinados nos ramos ópticos de super-redes GaAs/AlAs, aparecem novos modos com frequências ópticas próximas às frequências do GaAs e do AlAs. As frequências e dispersão desses modos podem ser analisados em termos do modelo anteriormente descrito.

Dentro deste modelo os zeros de ε_z e os polos de $\varepsilon_{x,y}$ correspondem aos modos longitudinais e transversais propagando-se ao longo do eixo da SL. Ou seja, quando

$\vec{k} // x, y$, os modos interfaciais obtêm-se de

$$\begin{aligned}\varepsilon_{x,y}(w) &= 0 \Rightarrow \text{modos LO}_{x,y} \\ \varepsilon_z^{-1}(w) &= 0 \Rightarrow \text{modos TO}_z\end{aligned}\quad (3.1)$$

Como as SL's estudadas neste trabalho são constituídas por dois semicondutores polares $GaAs$ e $Al_xGa_{1-x}As$, espera-se encontrar dois modos de interface: um modo tipo GaAs e outro tipo AlAs. Este modelo macroscópico permite obter os modos vibracionais básicos que são importantes na pesquisa das propriedades ópticas das SL's. Quando as camadas das SL's são espessas, a quantização dos fônons não é importante e a função dielétrica de cada camada tem a forma da função resposta do cristal "bulk" [25, 30]:

$$\varepsilon_i(w) = \varepsilon_{\infty,i} \frac{w_{LO,i}^2 - w^2}{w_{TO,i}^2 - w^2} \quad \text{com } i = 1, 2 \quad (3.0)$$

onde $\varepsilon_{\infty,i}$ é a constante dielétrica de alta frequência da camada correspondente, $w_{LO,i}$ e $w_{TO,i}$ são as frequências dos fônons longitudinal e transversal ópticos da i -ésima camada. Na Eq. 3.4.1 omitiu-se o efeito de amortecimento.

A dispersão dos modos IF é dada por [31]:

$$\cos(k_z d) = \left[\frac{\eta^2 + 1}{2\eta} \right] \cdot \sinh(k_x d_1) \sinh(k_x d_2) + \cosh(k_x d_1) \cosh(k_x d_2) \quad (3.0)$$

onde $\eta = \frac{\varepsilon_1(w)}{\varepsilon_2(w)}$.

As soluções numéricas da Equação 3.4.1 foram estudadas [31] e comparadas com os resultados experimentais de SL's de $GaAs/AlAs$ [29]. Esses resultados estão ilustrados na Figura 3-3. Para cada valor de k_x e k_z são obtidas quatro frequências

diferentes que formam duas bandas de energia na região dos modos ópticos de cada constituinte. Suas frequências situam-se entre as frequências "bulk" TO e LO.

Casos limites da Equação 3.4.1:

(i) $k_z \rightarrow 0$

Neste caso, a relação de dispersão se reduz a duas bandas:

$$-\frac{\varepsilon_1(w)}{\varepsilon_2(w)} = \begin{cases} \tanh\left(\frac{k_x d_1}{2}\right) \coth\left(\frac{k_x d_2}{2}\right) \\ \tanh\left(\frac{k_x d_2}{2}\right) \coth\left(\frac{k_x d_1}{2}\right) \end{cases} \quad (3.0)$$

Para bandas interfaciais correspondendo ambas aos compostos 1 e 2, as duas soluções acima consistem nas linhas pontilhadas da Figura 3-3 que coalescem para $d_1 = d_2$. Neste caso, as frequências interfaciais são obtidas resolvendo $\eta = -1$.

(ii) $k_x, k_z \rightarrow 0$

Neste limite, os modos IF da SL podem ser entendidos em termos da interação entre os modos das várias interfaces, formando modos coletivos simétricos e anti-simétricos com relação ao plano bissetor de uma camada individual. Quando $d_1 = d_2$, as componentes tornam-se degeneradas. Similarmente, o modo simétrico pertence aos ramos superior e inferior dependendo da magnitude relativa entre d_1 e d_2 .

Modos Acoplados

No caso de SL's dopadas é possível examinar o efeito dos elétrons sobre o tensor função dielétrica da SL. Na aproximação de comprimento de onda longo, os elétrons em camadas adjacentes interagem fortemente; para polarização elétrica no plano, tem-se vibrações 3D com a frequência de plasma dada por:

$$\Omega_{px}^2 = (4\pi n_s e^2 / m_{x1} d_1) \quad (3.0)$$

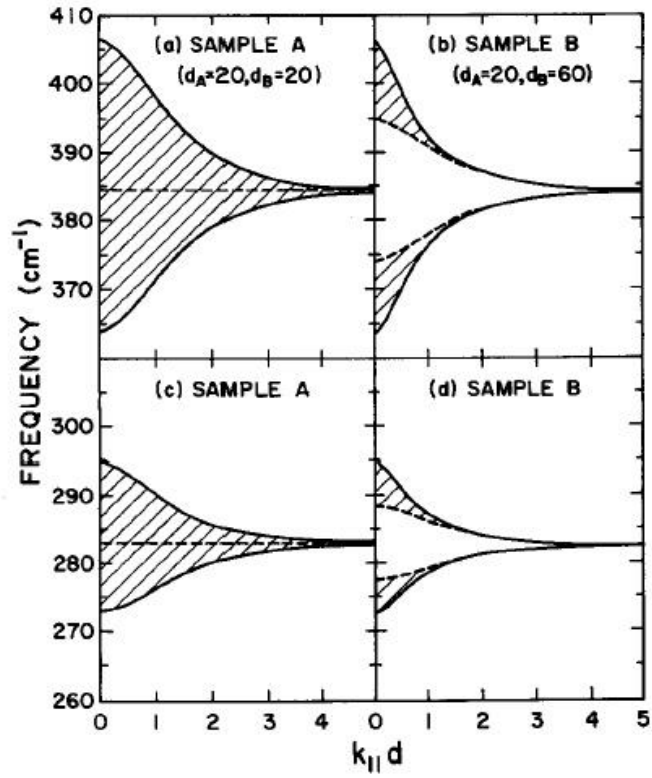


Figura 3-3: Modos interfaciais calculados através da expressão 5.5. As frequências permitidas formam bandas entre as curvas para $k_z d = \pi$ (linhas sólidas) e $k_z d = 0$ (linhas pontilhadas). a) modos tipo AlAs, amostra A. b) modos tipo AlAs, amostra B. c) e d) modos tipo GaAs, amostra A e B, respectivamente [29].

onde n_s é a densidade eletrônica bi-dimensional em um poço quântico de espessura d_1 (supondo que a camada 1 seja o poço e a camada 2 seja a barreira), m_{x1} é a massa efetiva dos elétrons no plano das camadas do poço. A distribuição da função dielétrica produzida pelas vibrações de plasma deve ser incrementada na Eq 3.4.1, tal que

$$\varepsilon_{x,y}(w) = \frac{(\varepsilon_1 d_1 + \varepsilon_2 d_2)}{(d_1 + d_2)} - \frac{\Omega_{px}^2}{w^2} \quad (3.0)$$

A componente normal do tensor da função dielétrica da SL ε_z , deve conter a contribuição devida aos elétrons que se movem paralelo ao eixo da SL. Dois casos são de interesse. O primeiro é o caso do poço quântico isolado onde os elétrons são fortemente confinados nos poços e o segundo é o caso dos elétrons delocalizados quando as barreiras são finas de tal forma que se originam minibandas. No primeiro caso [25],

$$\varepsilon_1(w) = \varepsilon_{\infty,1} \left[\frac{w_{LO,1}^2 - w^2}{w_{TO,1}^2 - w^2} + \frac{\Omega_{d1}^2}{w_{01}^2 - w^2} \right] \quad (3.0)$$

enquanto que $\varepsilon_2(w)$ é o mesmo da Eq 3.4.1. Aqui, w_{01} é a frequência de ressonância das transições inter-subbanda de uma partícula dos níveis quânticos 0 para 1 do poço, $\Omega_{d1}^2 = \frac{(4\pi N_s e^2 w_{01} L_{01})}{\varepsilon_{\infty 1} h}$ é a frequência de plasma que descreve o efeito do campo de depolarização, L_{01} é o elemento de matriz da interação Coulombiana expressa como comprimento. No segundo caso, onde as SL's tem barreiras estreitas, a estrutura de minibanda é formada e a componente z do tensor função dielétrica é:

$$\varepsilon_z(w) = \frac{(d_1 + d_2)}{\left(\frac{d_1}{\varepsilon_1} + \frac{d_2}{\varepsilon_2}\right)} - \frac{\Omega_{pz}^2}{w^2} \quad (3.0)$$

onde $\Omega_{pz}^2 = (4\pi N e^2 / m_z)$ é a frequência de plasma 3D que caracteriza as vibrações plasmons inter-subbanda ao longo do eixo da SL. N é a densidade eletrônica 3D e

m_z é a massa efetiva dos elétrons numa minibanda parcialmente cheia. Nesta última equação, ε_1 tem a mesma forma que a Eq. 3.4.1, porém, quando as minibandas são largas, a contribuição devida ao plasmon inter-subbanda pode ser omitida [25]. Isso se deve a que, para a existência de plasmon inter-subbanda, é indispensável que a largura dos níveis quânticos seja pequena comparada à energia de depolarização Ω_d . No caso de forte confinamento dos elétrons as larguras dos níveis são aproximadamente nulas. Quando estas larguras tornam-se maiores que Ω_d , o plasmon inter-subbanda pode não existir [25].

3.4.2 Espalhamento por modos acoplados Fônons LO-Plasmon

No limite de comprimentos de onda longos, os elétrons oscilam coletivamente numa frequência w_p (frequência de plasma) devido à atração coulombiana entre eles. Um quantum desta oscilação é chamado de plasmon. Os plasmons correspondem a um deslocamento quase uniforme de portadores livres, gerando um campo elétrico que interage com o campo de polarização dos fônons LO em materiais polares tal como o GaAs.

De acordo com a hipótese de Varga [32], a função dielétrica do sistema fônon-plasmon pode ser escrita na forma:

$$\varepsilon(w, \vec{q} \rightarrow 0) = \varepsilon_\infty + \chi_v + \chi_e \quad (3.0)$$

onde ε_∞ é a constante dielétrica fundamental para $w \rightarrow 0$, χ_v e χ_e são as contribuições atômica e eletrônica à susceptibilidade elétrica. No limite de grandes comprimentos de onda:

$$\chi_v = \varepsilon_\infty \frac{w_L^2 - w_T^2}{w_T^2 - w^2 - i\Gamma_v w} \quad \text{e} \quad \chi_e = \varepsilon_\infty \frac{w_p^2}{-w^2 - i\gamma_p w} \quad (3.0)$$

em que Γ_v (γ_p) é a constante de amortecimento fenomenológica relativa à vibração atômica (eletrônica).

A frequência de plasma, w_p , no limite $\vec{q} \rightarrow 0$, satisfaz a relação:

$$w_p^2(\vec{q} \approx 0) = \frac{4\pi N e^2}{\varepsilon_\infty m^*} \quad (3.0)$$

onde N e m^* correspondem à densidade de portadores livres e à massa efetiva dos elétrons respectivamente, e é a carga do elétron. Para \vec{q} , próximo ao vetor de onda de blindagem q_s definido por $q_s = \sqrt{3}w_p/v_F$ ($v_F = \frac{\hbar}{m^*} (3\pi^2 N)^{1/3}$ é a velocidade de Fermi dos elétrons), a frequência de plasma é dependente de q de acordo com [33]:

$$w^2(q) = w_p^2(q=0) + \frac{3}{5} (qv_F)^2 \quad (3.0)$$

ou

$$w(q) = w_p \left[1 + \frac{3}{5} \left(\frac{qv_F}{w_p} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (3.0)$$

Usando a expansão $(1+x)^{1/2} \approx 1 + \frac{1}{2}x + \dots$

A relação de dispersão do plasmon é dada por [33]

$$w(q) = w_p \left[1 + \frac{3}{10} \left(\frac{qv_F}{w_p} \right)^2 \right] \quad (3.0)$$

A Figura 3-5 mostra excitações elementares típicas de um cristal e suas propriedades de dispersão. Para $q > q_s$ os plasmons se sobrepõem ao espectro de excitação de uma partícula (área hachurada) e as oscilações eletrônicas coletivas de-

caem em excitações de uma partícula (regime de amortecimento de Landau). O amortecimento de Landau pode ser visto do ponto de vista clássico da seguinte maneira: imagine que uma onda com velocidade de fase $v_\Phi = w/k$ está propagando-se através dos gas de elétrons e consideremos o comportamento de um elétron cuja velocidade (paralela a k) é próxima a v_Φ . Desde o ponto de vista da onda, o elétron está em repouso e sente um campo elétrico estacionario. Este campo continuamente transfere a energia da onda aos elétrons cujas velocidades são equiparáveis. Tais elétrons estão essencialmente "surfando" sobre a onda. Os elétrons cujas velocidades são menores que a velocidade da onda recebem energia dela, enquanto que os elétrons que viajam mais rapido que a onda transferem energia a ela. Como consequência, a taxa neta de energia é proporcional à derivada da velocidade de distribuição, avaliada em $v = v_\Phi$

O efeito do amortecimento de Landau é abrupto em plasmas degenerados devido a que existe um limite superior (v_F) da velocidades das partícula. Na Figura 3-4 são mostradas as excitações de uma partícula de um gás eletrônico degenerado (por simplicidade assume-se temperatura $T=0$), onde a banda de condução acima da energia de Fermi E_F está completamente cheia. As excitações neste "mar de Fermi" de elétrons podem ser produzidas levando um elétron de uma estado abaixo de E_F até um estado acima. O intervalo das energias de excitação é entre zero até valores dados pela largura da banda, ou seja, alguns eV. Pequenas energias de excitação podem ser criadas para todos os vetores de onda entre zero e $2k_F$. Fora desta região, quando o fônon LO e o plasmon tem frequências comparáveis, eles se acoplam formando os modos fônon LO-plasmon, as frequências das quais dependem fortemente da concentração de portadores [22].

Para o caso do GaAs tipo n, desprezando o amortecimento, as frequências dos modos acoplados são obtidas, fazendo $Re\{\varepsilon(w)\} = 0$. Logo, a solução da Equação

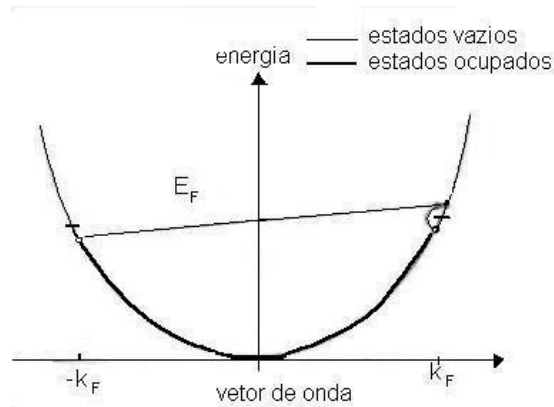


Figura 3-4: Excitação de uma partícula dentro de uma banda com população degenerada [34].

3.4.2 é dada por:

$$w_{\pm}^2 = \frac{1}{2} \left\{ (w_p^2 + w_L^2) \pm \left[(w_p^2 - w_L^2)^2 + 4w_p^2 (w_L^2 - w_T^2) \right]^{1/2} \right\} \quad (3.0)$$

A Figura 3-6 mostra os dados obtidos por Mooradian e McWorter [35], mostrando que a expressão anterior reproduz razoavelmente bem os resultados experimentais.

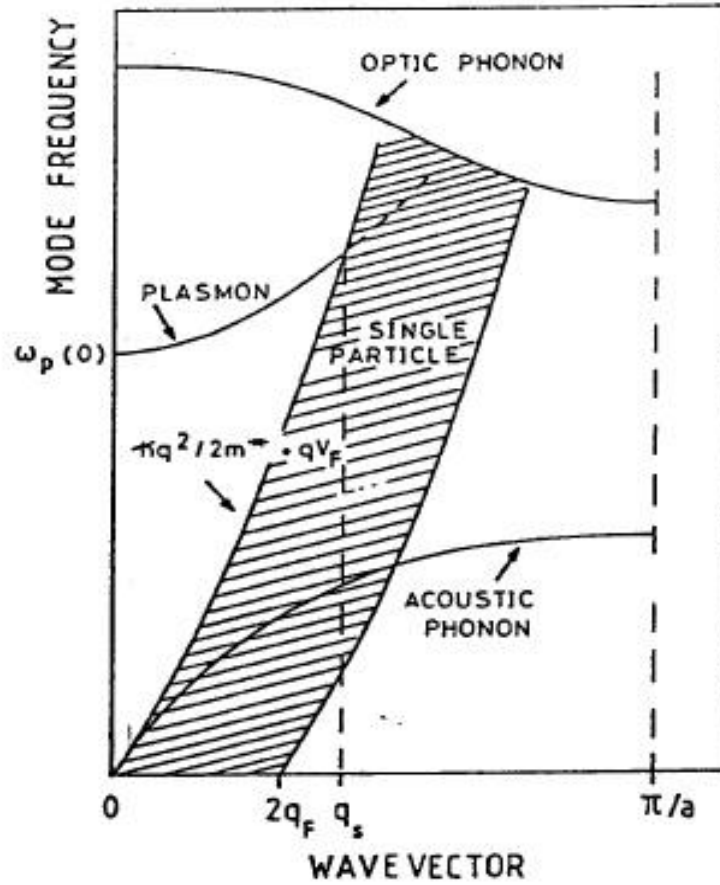


Figura 3-5: Representação das propriedades de dispersão das excitações elementares em cristais. A região hachurada representa o contínuo de excitação de uma partícula (SPE) [22].

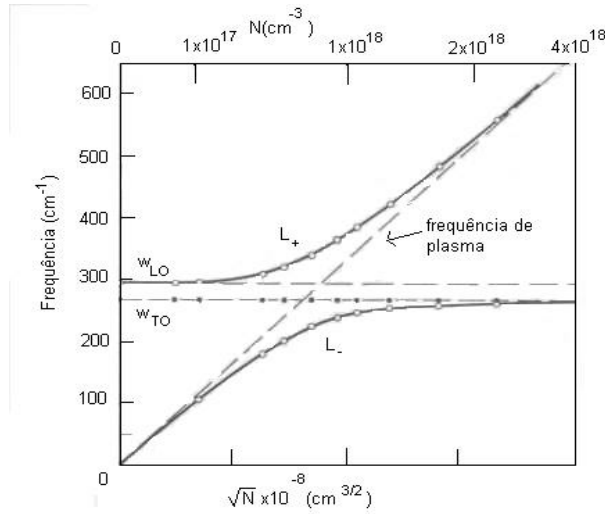


Figura 3-6: Modos acoplados fônon-plasmon de um semiconductor polar dopado (GaAs tipo n) [36].

3.4.3 Excitações Coletivas num material desordenado

A simetria do cristal e a periodicidade da rede impõem regras de seleção que são obedecidas num cristal perfeito. Quando existe desordem no material as regras de seleção são relaxadas. Para tratar estes casos utiliza-se os seguintes argumentos inicialmente propostos por Shuker e Gammon [37]: assume-se em termos de perturbação de primeira ordem que a relaxação na regra de seleção do momento deve-se a uma mistura de ondas planas, que representam as excitações coletivas em um cristal perfeito, e esta mistura pode-se interpretar como decorrente de um confinamento espacial de excitações coletivas. A extensão (ou comprimento) que define a mistura é considerada como um comprimento de coerência e pode ser interpretada de várias formas, dependendo da natureza do fator que inibe a invariância translacional (fronteiras de um grão, defeitos, etc.).

Com este modelo pode-se analisar o alargamento do pico e quantificar o grau de

desordem local. Representando a excitação coletiva em um cristal perfeito como uma função de onda de Bloch

$$\Psi(\vec{q}_0, \vec{r}) = u(\vec{q}_0, \vec{r}) \cdot e^{-i\vec{q}_0 \cdot \vec{r}} \quad (3.0)$$

onde $u(\vec{q}_0, \vec{r})$ reflete a periodicidade da rede, pode-se representar o confinamento das excitações coletivas acrescentando uma função envelope

$$\Psi(\vec{q}_0, \vec{r}) = W(\vec{r}, L) \cdot u(\vec{q}_0, \vec{r}) \cdot e^{-i\vec{q}_0 \cdot \vec{r}} \quad (3.0)$$

ou

$$\Psi(\vec{q}_0, \vec{r}) = \Psi'(\vec{q}_0, \vec{r}, L) \cdot u(\vec{q}_0, \vec{r}) \quad (3.0)$$

onde $W(\vec{r}, L)$ é a função de confinamento. Esta função de confinamento deve levar em conta tanto a geometria do confinamento como a forma de decaimento.

Assumindo que o confinamento é dado em uma região esférica (diâmetro L) com um fator de atenuação gaussiana com valor de máxima amplitude e^{-1} na fronteira, tem-se:

$$W(r, L) = A \exp \left[-\frac{r^2}{2} / \left(\frac{L}{2} \right)^2 \right] \quad (3.0)$$

assim, a amplitude de vibração fica:

$$|\Psi'|^2 = A^2 \exp \left[-r^2 / \left(\frac{L}{2} \right)^2 \right] \quad (3.0)$$

o que mostra que a excitação coletiva está confinada numa região $|\vec{r}| \leq L/2$.

Expandindo a combinação de ondas planas em série de Fourier tem-se:

$$\Psi'(\vec{q}_0, \vec{r}, L) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int C(\vec{q}_0, \vec{q}, L) \cdot e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} d^3q \quad (3.0)$$

os coeficientes de Fourier são dados por:

$$C(\vec{q}_0, \vec{q}, L) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int \Psi'(\vec{q}_0, \vec{r}, L) \cdot e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} d^3r \quad (3.0)$$

substituindo Ψ' nesta última equação:

$$C(\vec{q}_0, \vec{q}, L) = \frac{AL}{(2\pi)^{3/2}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{L}{2} \right)^2 \cdot (\vec{q} - \vec{q}_0)^2 \right\} \quad (3.0)$$

onde $C(\vec{q}_0, \vec{q}, L)$ é o fator peso obtido dos coeficientes de Fourier. Observa-se da equação 3.4.3, que existe contribuição das excitações coletivas com $\vec{q} \neq \vec{q}_0$ que, portanto, são ativos em Raman possuindo elementos de matriz não necessariamente nulos dados por:

$$\left| \langle \vec{q}_0 | \hat{O} | \vec{q} \rangle \right|^2 = \left| \langle \vec{q}_0 | \hat{O} | \vec{q}_0 \rangle \right|^2 \cdot |C(\vec{q}_0, \vec{q}, L)|^2 \quad (3.0)$$

onde \hat{O} é o operador interação fóton-fônon.

Isso significa que, a desordem leva a uma relaxação das regras de seleção, permitindo que um número maior de frequências participem do espalhamento. Cada frequência w possível contribui com uma linha Lorentziana, centrada em w e com largura Γ . A forma de linha esperada para o experimento Raman é:

$$I(w, L) = \int_{z.B.} \frac{|C(0, \vec{q}, L)|^2}{[w - w_\mu(\vec{q})]^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} d^3q \quad (3.0)$$

onde $w_\mu(\vec{q})$ é a relação de dispersão das excitações coletivas. A função peso $C(0, \vec{q}, L)$

contém todas as informações de confinamento da excitação coletiva na rede direta (geometria e decaimento).

De acordo com a equação 3.4.3, as transições adicionais contribuem ao espectro Raman em frequências definidas pela relação de dispersão $w_\mu(\vec{q})$. Por exemplo, como normalmente os semicondutores apresentam dispersão negativa próximo ao centro da ZB o que deve ocorrer é um deslocamento da posição da linha para energias mais baixas [5]. No caso de plasmon, que apresenta dispersão positiva próximo ao centro da ZB, o deslocamento da posição da linha deve ocorrer para energias mais altas [5]. Em ambos os casos o que se observa é uma linha *assimétrica, alargada e deslocada*. À medida que L diminui, estas características se acentuam. Portanto, esta forma de linha reproduz bem o comportamento já conhecido do espectro de materiais microcristalinos, como pode ser observado na Figura 3-7 para o caso dos plasmons.

Assim, a assimetria, o deslocamento e o alargamento da linha Raman estão relacionados entre si através da relação de dispersão $w_\mu(\vec{q})$ e do coeficiente $C(0, \vec{q}, L)$. Entretanto, tanto o coeficiente $C(0, \vec{q}, L)$ quanto o valor da amplitude na fronteira do grão ou região de correlação são dependentes do modelo escolhido para representar o confinamento dos fônons [38].

Super-Redes de $(GaAs)_n(AlAs)_m$ e Ligas de $Al_xGa_{1-x}As$ dopadas

Está bem estabelecido que flutuações do potencial eletrônico que ocorrem nas SL's preferencialmente dopadas devido ao potencial aleatório de impurezas destroem a invariância translacional, estabelecendo um comprimento de coerência espacial das excitações elementares (L_c) e, como consequência, causando a quebra das regras de

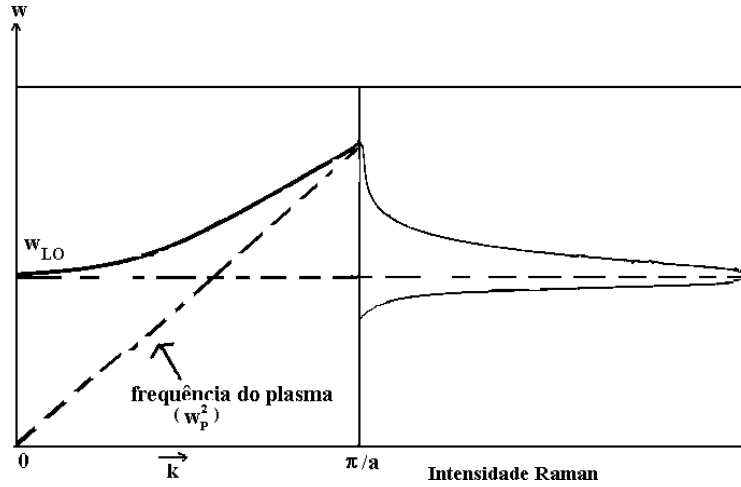


Figura 3-7: Forma da linha para modos acoplados fônon-plasmon.

seleção Raman, o que por sua vez origina a largura e assimetria das linhas Raman [39].

A análise da forma das linhas espectrais permite determinar os comprimentos de coerência das excitações elementares envolvidas no processo Raman e desta forma pode-se estudar os efeitos de localização.

Assim, o estudo de fônons em materiais desordenados está relacionado com a qualidade cristalina do material, enquanto que o estudo do plasmon fornece informação sobre a influência das flutuações do potencial cristalino no transporte eletrônico.

Em SL's $(GaAs)_n(AlGaAs)_m$ e nas ligas $Al_xGa_{1-x}As$ existem dois tipos de fônon LO: os que são devidos às camadas de GaAs (GaAs-like) e os que são devidos às camadas de AlAs (AlAs-like). Estes fônons acoplam-se com os elétrons livres produzindo dois modos ópticos acoplados: w_1^+ e w_2^+ . O primeiro deles é devido ao acoplamento dos fônons LO do GaAs com os elétrons enquanto que o segundo se

origina dos fônons LO da camada do AlAs. Existe também um modo acoplado de baixa frequência w^- (do tipo acústico), que surge no intervalo de frequências abaixo da frequência do fônem TO do GaAs.

Os mecanismos responsáveis para o espalhamento Raman pelos modos acoplados são o Potencial de Deformação e a Interação de Frohlich (discutido na seção 2.4.3). A relaxação da conservação do momento do cristal causada pela desordem pode ser levada em conta através de uma função de correlação espacial gaussiana $\exp(-4R^2/L^2)$; assim a eficiência de espalhamento pode ser escrita como [5, 39]

$$I(w) = \int \exp\left(-\frac{q^2 L_c^2}{4}\right) \frac{dq}{[w - w(q)]^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (3.0)$$

onde $w(q)$ é a dispersão das excitações (fônons e plasmons) que contribuem para o espalhamento Raman e L_c e Γ são o comprimento de localização e a constante de amortecimento, respectivamente.

Nesta última equação algumas suposições foram feitas: a Zona de Brillouin é uma esfera e a relação de dispersão é isotrópica (isto é justificado pelo fato de que apenas uma pequena região de correlação em torno do centro da ZB contribui para o espalhamento). Assim, pode-se representar a relação de dispersão dos fônons por uma função unidimensional da forma [24, 40]

$$w(\vec{q}) = w_{LO} (1 - Aq^2) \quad (3.0)$$

onde w_{LO} é a frequência dos modos ópticos longitudinais. Esta Eq. 3.4.3 constitui uma boa aproximação aos dados experimentais com $A(\text{GaAs})=0.18(a/2\pi)^2$ e $A(\text{AlAs})=0.05(a/2\pi)^2$ sendo a o parâmetro de rede.

A dispersão do plasmon foi obtida pela aproximação de fase aleatória (R.P.A.) e

foi, anteriormente, definida na Equação 3.4.2 [33].

Como nas amostras estudadas $w_p \geq w_{LO}$, a dispersão dos modos acoplados fônon LO-plasmon é quase que completamente determinada pela dispersão dos plasmons, que é muito mais forte que a dos fônons LO.

Capítulo 4

Transporte Eletrônico e Efeitos de Localização

Segundo o modelo do elétron livre a condutividade em metais é dada por [41]

$$\sigma_0 = \frac{ne^2\tau}{m} \quad \text{para } L > L_\Phi \quad (4.0)$$

onde n é a densidade eletrônica, e é a carga do elétron, τ o tempo do livre caminho médio. Este modelo é representado na Figura 4-1a e é válido quando o livre caminho médio (L) é maior que o comprimento de coerência de fase do elétron (L_Φ) definido por

$$L_\Phi = (D\tau_\Phi)^{1/2} \quad (4.0)$$

onde D é o coeficiente de difusão.

Este sistema é utilizado para sistemas que apresentam invariância translacional. Porém, quando existe desordem dentro do material (aumento na concentração de centros de espalhamento), o transporte eletrônico é fortemente influenciado, isto

é, a desordem pode produzir trajetórias fechadas que corresponderiam a uma localização espacial dos elétrons como mostrado na Figura 4-1b. Para levá-lo em conta considerou-se um modelo de elétrons que não interagem, espalhados por um potencial aleatório. Se a desordem é fraca, a função de onda se estenderá sobre toda a amostra. A medida que a desordem aumenta espera-se uma mudança qualitativa na natureza da função de onda. No limite de desordem alta, a função de onda é localizada devido ao fato de que a concentração de centros de espalhamento, N_x , é maior que a concentração crítica de centros de espalhamento, N_c .

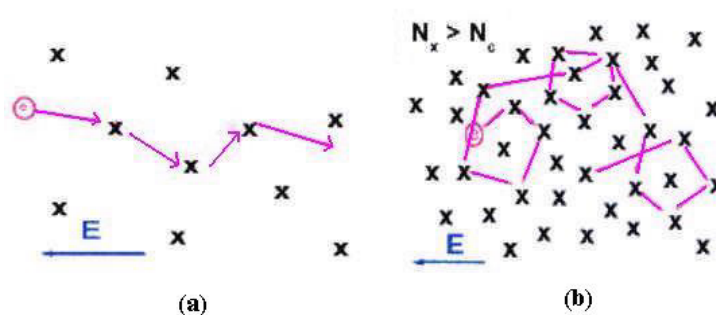


Figura 4-1: Trajetórias de elétrons na presença de centros de espalhamento.

Quando a densidade de defeitos aumenta, tal que a distância média dos centros de espalhamento chega a ser comparável ao comprimento de onda de de Broglie, deve-se levar em conta os efeitos de correlação devido à natureza quântica do transporte eletrônico. Assim, quando a desordem é forte, a função de onda pode ser descrita em termos de comprimento de localização ξ sobre uma distância finita no espaço

$$|\Psi(r)| \sim \exp(-|r - r_0|/\xi) \quad (4.0)$$

como representado na Figura 4-2 .

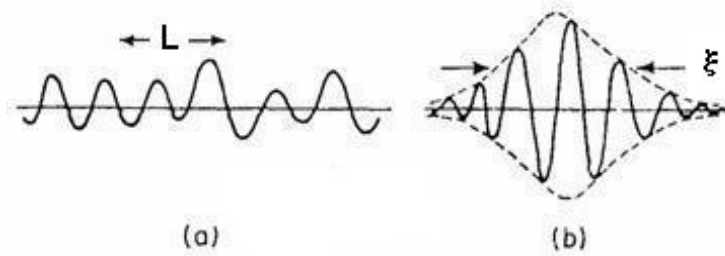


Figura 4-2: Função de ondas típicas para: a) estados estendidos com caminho livre médio L e b) estados localizados com comprimento de localização L_Φ .

Na Figura 4-3a observa-se a propagação do elétron do ponto A até o ponto B. Diferentes trajetórias AB diferem em fases aleatórias, de tal forma que a probabilidade de encontrar a partícula em B seja aproximadamente a soma das probabilidades dos vários caminhos. Sendo assim, a média dos termos de interferência é zero, o que não é certo quando o circuito é fechado (retorno ao ponto inicial). Como os dois caminhos têm o mesmo comprimento (vide Figura 4-3 b), interferem construtivamente no ponto de origem O e, portanto, a probabilidade de achar um elétron no ponto de origem difere da probabilidade clássica por um termo a mais, como observado ao se comparar as equações

$$P_0 = |A_1 + A_2|^2 = A_1^2 + A_2^2 \quad \text{para } L > L_\Phi \quad (4.0)$$

$$P_0 = |A_1 + A_2|^2 = A_1^2 + A_2^2 + 2 \operatorname{Re}(A_1^* A_2) \quad \text{para } L \leq L_\Phi \quad (4.0)$$

Na equação 4 o último termo, que representa a interferência quântica entre as funções de onda do elétron. Este efeito é conhecido como localização fraca do elétron e ocorre quando a concentração de defeitos é baixa.

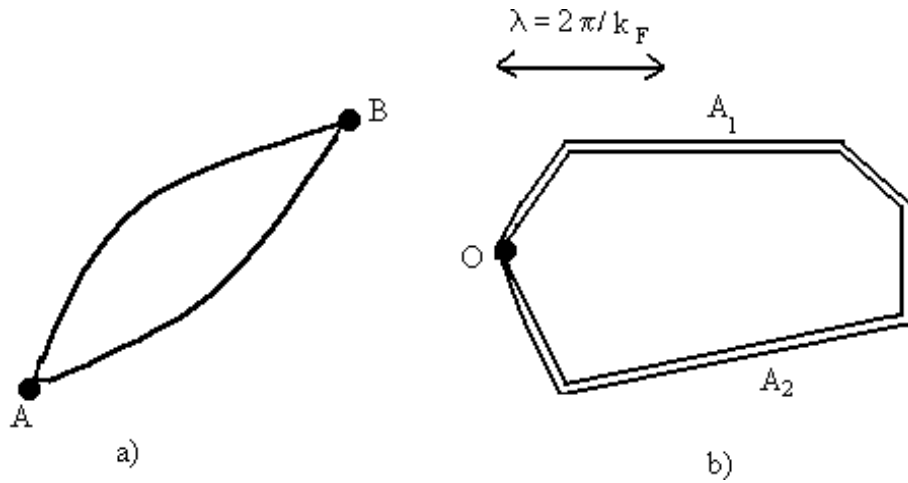


Figura 4-3: Propagação de um elétron de um ponto a outro no sólido. Duas trajetórias típicas descrevendo a) propagação de A até B e b) um circuito fechado.

A confirmação experimental desta idéia veio com a utilização de experimentos de magnetotransporte [44]. A presença de campos magnéticos produz um conjunto diferente de deslocamentos de fase, destruindo a coerência do processo de interferência e diminuindo a resistência. A destruição do processo de interferência também pode ser obtida pelo aumento de temperatura [3]. Conseqüentemente, a redução da resistividade observada quando um campo magnético é aplicado deve ser explicada em termos das correções quânticas ao transporte eletrônico.

Um dos sistemas eletrônicos desordenados mais estudados são os semicondutores altamente dopados onde a desordem é produzida pela distribuição aleatória de impurezas. A dopagem introduz desordem e elétrons no sistema. A condutividade no limite de espalhamento fraco ($k_F L \gg 1$ onde k_F e L são o número de onda de Fermi

e o livre caminho médio) nestes sistemas pode ser escrita na forma [45]:

$$\sigma = \sigma_0 + \Delta\sigma \quad (4.0)$$

onde $\Delta\sigma$ é a correção da condutividade classica.

Em presença de um campo magnético, as duas amplitudes A_1 e A_2 adquirem fases diferentes e a coerência do processo de interferência é destruída, o que significa que a correção quântica da condutividade depende do campo magnético. Considerando o transporte eletrônico, no plano das camadas das super-redes $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$, pode-se escrever as correções esperadas para a condutividade clássica no regime propagativo como [46],

$$\Delta\sigma = \Delta\sigma(H) - \Delta\sigma(0) = \frac{e^2}{2\pi^2\hbar l_H} \alpha F(\zeta) \quad (4.0)$$

onde $l_H = \sqrt{\alpha\hbar/eH_\perp}$ é o comprimento magnético, $\alpha = \sqrt{m_z/m_{||}}$ é o coeficiente de anisotropia, $F(\zeta) = \sum_{n=0}^{\infty} 2 \left[(n+1+\zeta)^{1/2} - (n+\zeta)^{1/2} \right] - (n+1/2+\zeta)^{-1/2}$ é a função de Kawabata [47] e $\zeta = \frac{l_H^2}{4L_\varphi}$ onde L_φ é o comprimento de coerência de fase do elétron. Como mostrado em [46], no caso de magnetoresistencia vertical da SL sujeita a um campo magnético vertical a correção quântica é determinada pela Eq. 4 dividido por α^2 . A correção da condutividade num campo magnético paralelo às camadas pode ser obtido da relação $H_{||} = H_\perp/\alpha$.

Capítulo 5

Procedimento Experimental

5.1 Amostras

Neste trabalho foram analisadas super-redes semicondutoras $GaAs/AlGaAs$ (mostradas na Figura 5-1) e ligas $Al_xGa_{1-x}As$ fornecidas pelo Laboratório de M.B.E. do Instituto de Física da USP de São Carlos. As amostras foram crescidas por Epitaxia de Feixe Molecular à temperatura entre 580 e 600 C com uma taxa de crescimento de 0,5 monocamadas/segundo para ambos materiais (GaAs e AlAs) no caso das superredes e no caso da liga, a taxa de crescimento foi 0,7 monocamadas/segundo (dependendo da concentração de Alumínio)

A primeira parte deste trabalho consiste no estudo de ligas $Al_xGa_{1-x}As$ dopadas (onde se pode observar efeitos de desordem composicional) com variação na concentração de Alumínio, x , e de elétrons, N através de medidas de espectroscopia Raman e Resistividade versus Temperatura. A Tabela 3 detalha as amostras que foram analisadas diferenciando-as por números e por suas concentrações nominais de portadores.

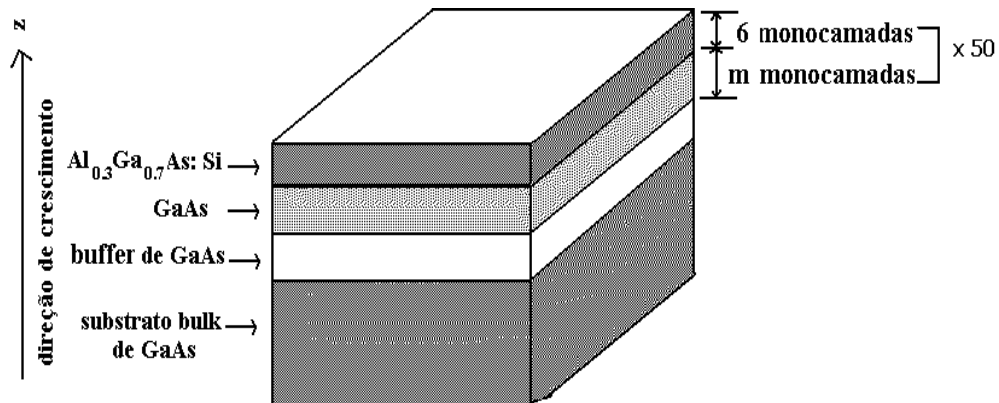


Figura 5-1: Super-rede crescida por M.B.E. sobre substrato de GaAs.

Já na segunda parte deste trabalho, foi medido por espectroscopia Raman e por magnetotransporte, um conjunto de SL's $GaAs/AlGaAs:Si$ intencionalmente desordenadas, crescidas sobre substratos de GaAs (100) e substratos semi-isolantes também para diferentes dopagens. A Tabela 4 detalha as amostras que foram analisadas diferenciando-as por números e por suas concentrações nominais de portadores.

A desordem vertical é produzida pela variação controlada das espessuras dos poços do GaAs em torno do valor nominal $m=17$. As espessuras das barreiras são mantidas fixas (Figura 5-2). A variação aleatória da espessuras das camadas foi determinada por uma distribuição gaussiana de níveis de energia mais baixas ocupadas pelos elétrons. A desordem nestas estruturas pode ser caracterizado por um parâmetro δ

$$\delta = \frac{\Delta}{W} \quad (5.0)$$

onde Δ é a largura da distribuição gaussiana de níveis de energia e W é a largura da

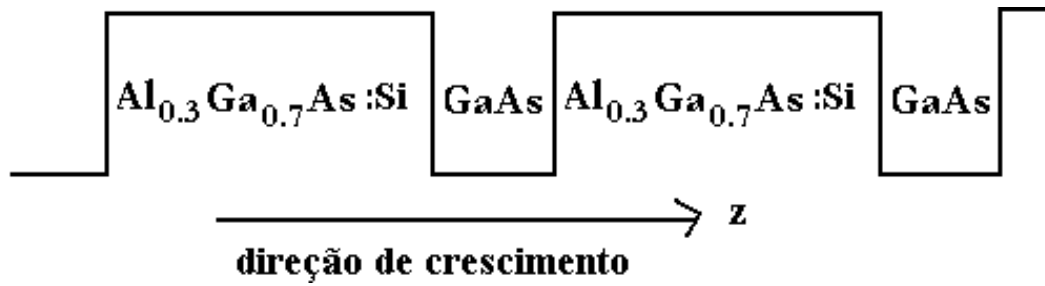


Figura 5-2: Desordem vertical produzida pela variação aleatória das espessuras do GaAs.

minibanda na estrutura sem desordem.

Para analisar as influências da desordem provocada na direção do crescimento sobre as excitações coletivas, tanto na direção perpendicular, quanto no plano das camadas da SL, as medidas foram feitas em macro-Raman (incidência do laser sobre a superfície da amostra) e em micro-Raman (incidência do laser tanto sobre a superfície da amostra como na superfície lateral).

$Al_x Ga_{1-x} As:Si$	x (concentração de Alumínio)	N (concentração de portadores em cm^{-3})
22	0.11	$0,6 \times 10^{18}$
23	0.11	9×10^{17}
24	0.11	$1,2 \times 10^{18}$
25	0.11	$2,5 \times 10^{18}$
26	0.11	$3,4 \times 10^{18}$
27	0.11	$4,9 \times 10^{18}$
201	0.12	$4,4 \times 10^{17}$
205	0.12	8×10^{17}
206	0.12	1×10^{17}
905	0.2	2×10^{18}
908	0.2	1×10^{18}
909	0.2	3×10^{18}
894	0.2	2×10^{18}
895	0.2	1×10^{18}
896	0.4	2×10^{18}
897	0.6	2×10^{18}

Tabela 3. Ligas semicondutoras dopadas e suas respectivas concentrações de portadores e concentrações de Alumínio.

$(GaAs)_m(Al_{0.3}Ga_{0.7}As)_6:Si$	N (concentração de portadores em cm^{-3})	δ (parâmetro de desordem)
<i>TP825</i>	$2,0 \times 10^{17}$	0,82
09/02	$6,5 \times 10^{17}$	0,4
<i>TP864</i>	$1,2 \times 10^{18}$	0,35
<i>TP867</i>	$1,2 \times 10^{18}$	0,59
<i>TP872</i>	$1,2 \times 10^{18}$	0,72
<i>TP874</i>	$1,2 \times 10^{18}$	1,13

Tabela 4. Superredes semicondutoras intencionalmente desordenadas e suas respectivas concentrações de portadores.

5.2 Descrição do equipamento Raman

Como a intensidade do espalhamento Raman é muito fraca quando comparada com as intensidades da luz de excitação (da ordem de 10^{-8} da radiação incidente), requer-se uma fonte de luz muito intensa e monocromática, um sistema dispersivo e detectores de luz extremamente sensíveis.

A fonte de luz geralmente utilizada é o laser por suas características de potência, resolução e estabilidade. Existem muitos tipos de lasers comerciais no mercado. A escolha de um determinado laser depende das linhas do laser que se deseja utilizar, assim como a potência que se requer no experimento Raman.

Os sistemas dispersivos disponíveis para experimentos Raman são os monocromadores duplos ou triplos devido à alta razão de rejeição de luz quando comparado aos monocromadores simples.

O equipamento utilizado neste trabalho consiste de um monocromador triplo Jobin-Yvon T64000 com grades holográficas de 1800 linhas/mm que trabalha na

faixa de comprimentos de onda entre 450 e 950 nm. O conjunto T64000 funciona nos modos macro-Raman e micro-Raman. No modo micro-Raman possui um microscópio de estágio mecânico regular acoplado com objetivas de 10X, 50X, 100X convencionais mais uma objetiva de 50X de longa distância de trabalho (11 mm).

A leitura da intensidade da luz foi realizada com um sistema CCD acoplado a um microcomputador responsável pela aquisição e armazenamento de dados. A figura 5-3 mostra o diagrama esquemático do espectrômetro Raman. Este sistema pode operar em uma das duas configurações possíveis: aditiva ou subtrativa. Neste trabalho usou-se somente a configuração subtrativa. Na configuração subtrativa, os monocromadores triplos são dispostos de tal forma que um monocromador desfaz o que o anterior fez (subtração de efeitos), de tal forma que separa a luz filtrada para análise. Esta configuração está representada na figura 5-4.

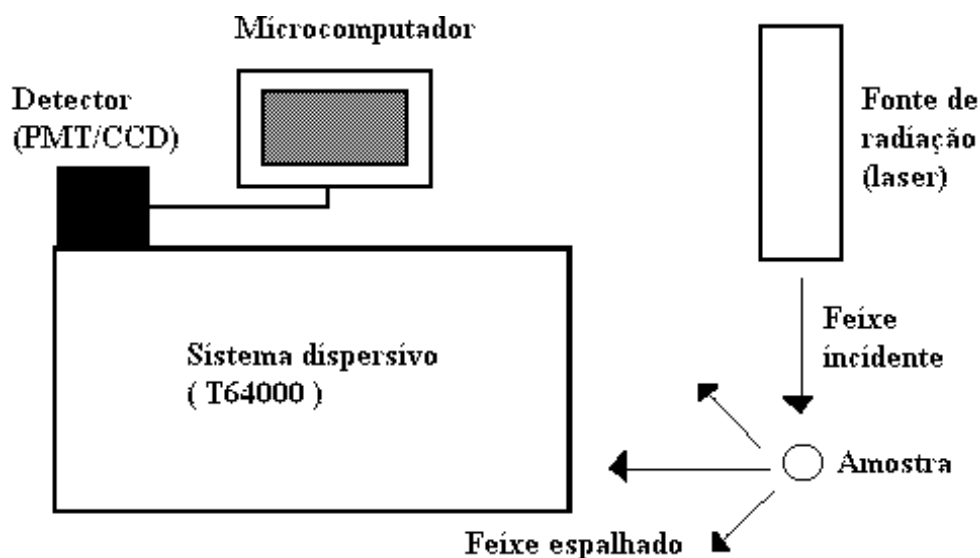


Figura 5-3: Representação do conjunto experimental empregado em Espectroscopia Raman.

A fonte de luz utilizada foi fornecida por um laser de Argônio operando na linha 5145 Å. Este laser emite um feixe colimado de 1 mm de diâmetro ajustado para fornecer uma potência local de 200 mW. Usou-se uma lente cilíndrica para focalizar o feixe em forma de uma linha (em vez de um ponto, como no caso de uma lente esférica) para desta forma reduzir a densidade de potência incidente e minimizar o aquecimento da amostra.

As fendas do espectrômetro foram ajustadas em $200 \mu m$, 30 mm, $200 \mu m$ (resolução do espectrômetro $\sim 6.24 \text{ cm}^{-1}$) ou em $100 \mu m$, 30 mm, $100 \mu m$ (resolução do espectrômetro $\sim 3.30 \text{ cm}^{-1}$) dependendo do experimento. Para obter linhas Raman mais intensas e com maior definição, as medidas de macro-Raman

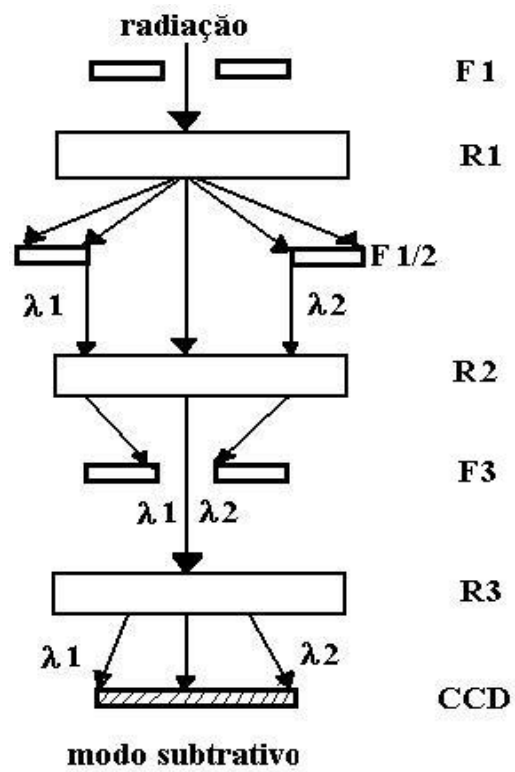


Figura 5-4: Configuração do modo subtrativo do espectrômetro T64000. F1, F1/2 e F3 são as fendas de entrada, intermediária e de saída, respectivamente. R1, R2 e R3 são as redes.

foram realizadas em baixa temperatura ($T \approx 10K$). Para isso, foi utilizado um criostato de ciclo fechado de Hélio líquido. As medidas de micro-Raman foram realizadas à temperatura $T \approx 80K$. Em todos os casos utilizou-se a geometria de quase retro-espalhamento.

5.3 Litografia

Existem vários tipos de litografia usados na fabricação de microestruturas. Neste trabalho utilizou-se litografia óptica por proximidade.

Na litografia óptica por proximidade usa-se uma máscara, colocada a uma pequena distância do filme a ser gravado (Figura 5-5). Como vantagem tem-se a diminuição dos riscos de danificação das máscaras, mas por outro lado, aparecem os efeitos de difração que reduzem a resolução.

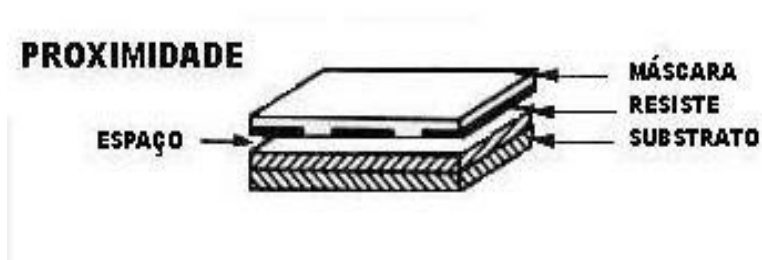


Figura 5-5: Ilustração de litografia óptica por proximidade [48].

5.4 Descrição do equipamento para Magnetotransporte

O equipamento utilizado para as medidas de magnetotransporte foi o sistema criostato + magneto supercondutor da Oxford Instruments Inc. Para as medidas de magnetoresistência foram produzidas mesas verticais e horizontais (conhecidas estas últimas como "Hall bar") de $1 \times 1 \text{ mm}^2$ de área, como mostradas na Figura 5-6 ambas preparadas por litografia e ataque químico. Os contatos elétricos foram feitos com a deposição de uma liga de Au-Ge-Ni e posterior tratamento térmico a $450 \text{ }^\circ\text{C}$ por 120 s.

Foi usada uma configuração convencional de quatro pontas baseada na utilização de pequenos sinais *ac* de baixa frequência (10 Hz) monitorados por um amplificador "lock in" (Perkin Elmer modelo 7280) num criostato de He líquido, com campo magnético perpendicular à corrente, no intervalo de temperaturas entre 1,6 K e 80 K. O esquema elétrico do circuito de medidas está mostrado na Figura 5-7.

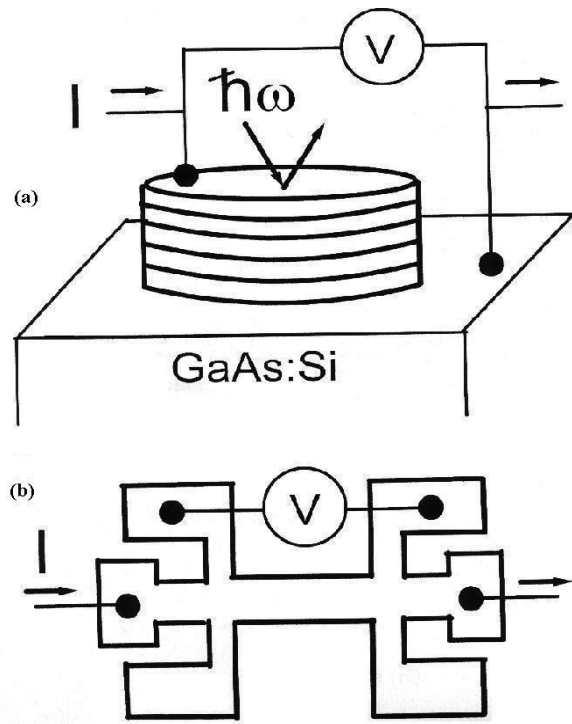


Figura 5-6: Esquema dos contatos elétricos na amostra AlGaAs:Si sobre a mesa: a) vertical e b) horizontal.

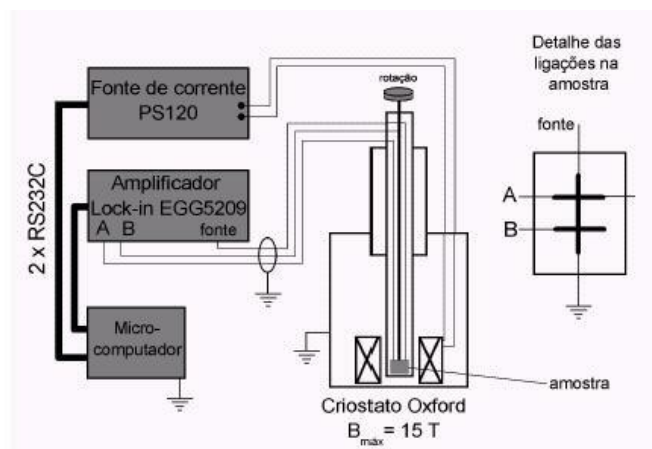


Figura 5-7: Esquema da montagem experimental para as medidas de magnetotransporte.

Capítulo 6

Resultados e Discussões

6.1 Ligas $Al_xGa_{1-x}As:Si$

Foram analisadas por espectroscopia Raman amostras das ligas $Al_xGa_{1-x}As:Si$ dopadas, com espessura $0.5 \mu m$ crescidas sobre substrato de GaAs (001) semi-insolante. A Figura 6-1 mostra os espectros obtidos das ligas $Al_xGa_{1-x}As$ com x variando entre 0,1 até 0,6 mantendo a concentração de portadores fixa ($N=2 \times 10^{18} cm^{-3}$). Também são apresentados na Figura 6-2 os espectros das ligas com concentração de Al fixa ($x= 0,2$) e concentração de portadores variando entre $1,2 \times 10^{17} cm^{-3}$ e $4,4 \times 10^{18} cm^{-3}$. Para uma melhor visualização, a Figura 6-5 mostra o espectro Raman de uma das ligas $Al_{0,2}Ga_{0,8}As:Si$ com $N=2 \times 10^{18} cm^{-3}$. Nas Figuras 6-1, 6-2 e 6-5 as linhas indexadas por w_1^+ e w_2^+ correspondem aos modos acoplados fônon LO-plasmon do tipo GaAs e AlAs, respectivamente. Assim mesmo foi observado o modo LO da camada do GaAs em $286 cm^{-1}$.

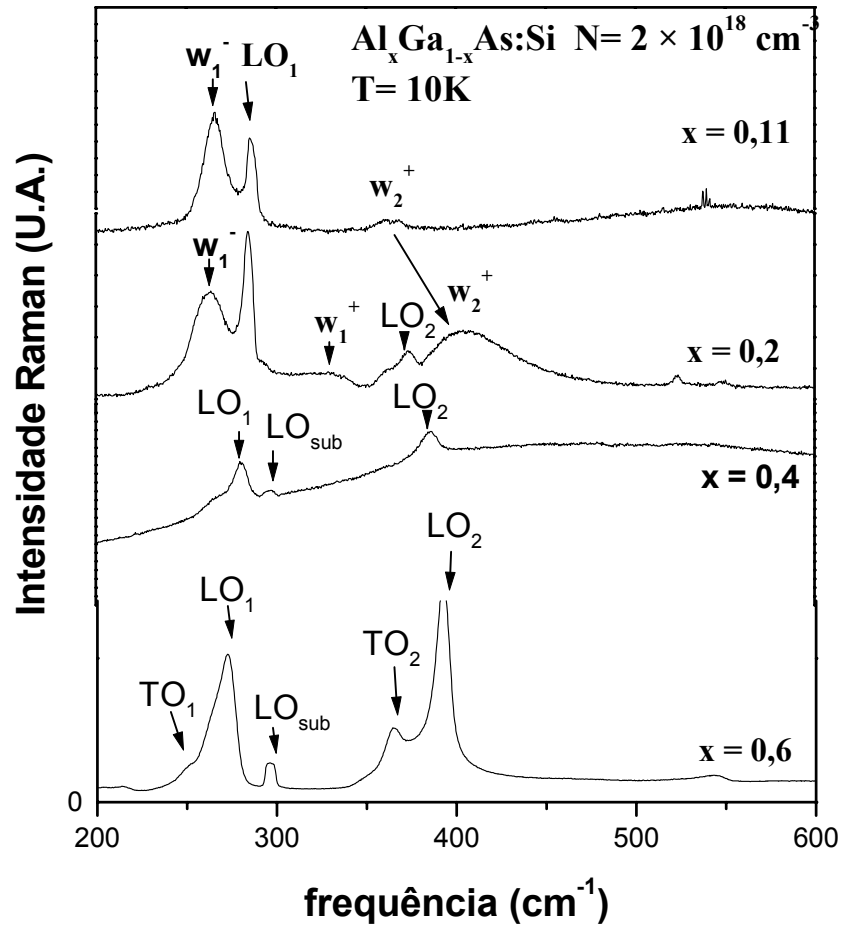


Figura 6-1: Espectro Raman das ligas de $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As:Si}$ dopadas. A concentração de portadores N é mantida em um valor fixo.

O aparecimento desta linha tem sua origem na camada de depleção de cargas na superfície, em virtude da transferência dos elétrons da primeira camada para estados de superfície gerando um campo elétrico. Também observa-se o modo acoplado fônon LO-plasmon w_1^- . Na mesma liga com concentração de Al igual a 0,6 são observados os modos longitudinais e transversais correspondentes ao GaAs e AlAs da liga e o modo LO do substrato. Os modos acoplados fônon LO-plasmon não são observados nas ligas $Al_xGa_{1-x}As$ com concentração de Al igual ou maior a 0,4 (Figura 6-1). A ausência destes modos é um indício da formação de centros profundos conhecidos como centros DX [52]. Estes centros aprisionam os elétrons livres que não respondem mais ao espalhamento Raman sendo um indicativo de uma transição para um estado isolante. O modo LO do substrato, que aparece quando $x \geq 0,4$, confirma a ausência dos elétrons livres nestes espectros.

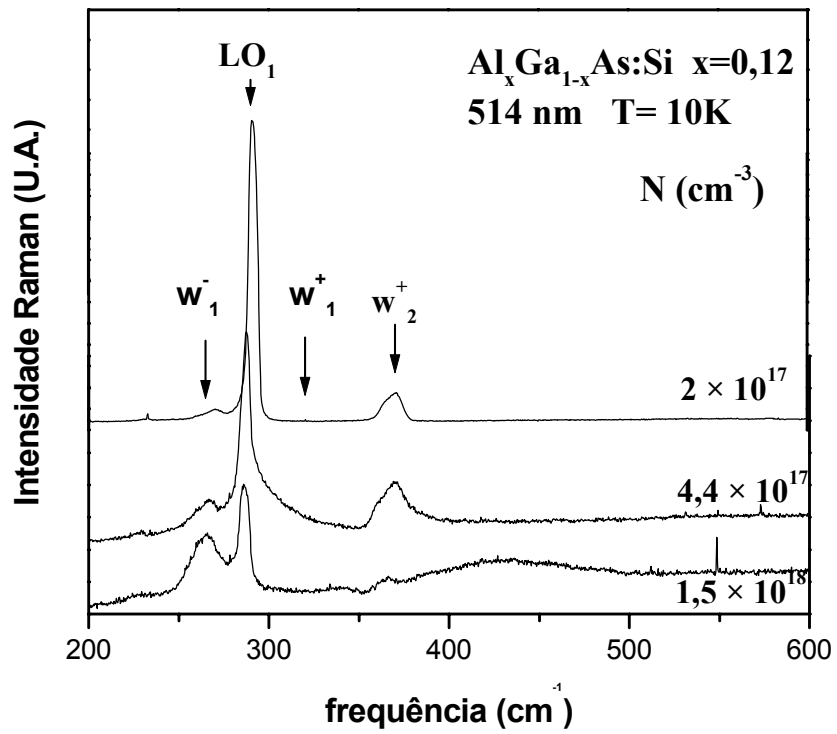


Figura 6-2: Espectro Raman das ligas de $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As:Si}$ dopadas. A concentração de alumínio, x , é mantida em um valor fixo.

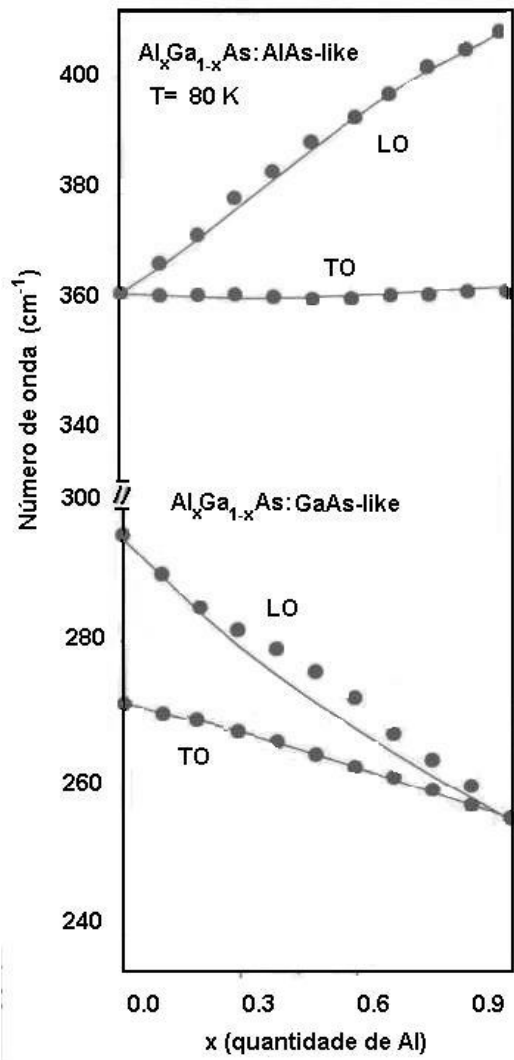


Figura 6-3: Dependência dos fônons ópticos do centro da zona para $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ [49].

O acoplamento dos fônons LO com os plasmons em ligas dopadas produz um deslocamento da linha para regiões de frequências mais altas além de alterar drasticamente sua forma: a assimetria da linha Raman correspondente a estes modos $w_{1,2}^+$ possui sentido inverso àquele observado para o fônons LO como observado nas Figuras 6-1 e 6-2. Este comportamento está de acordo com a dependência dos fônons ópticos nas ligas $Al_xGa_{1-x}As$ quando a concentração de Al varia [49] como mostra a Figura 6-6. Isto é melhor observado na Figura 6-4, onde são apresentados os espectros Raman obtidos no intervalo espectral do AAs para duas densidades eletrônicas.

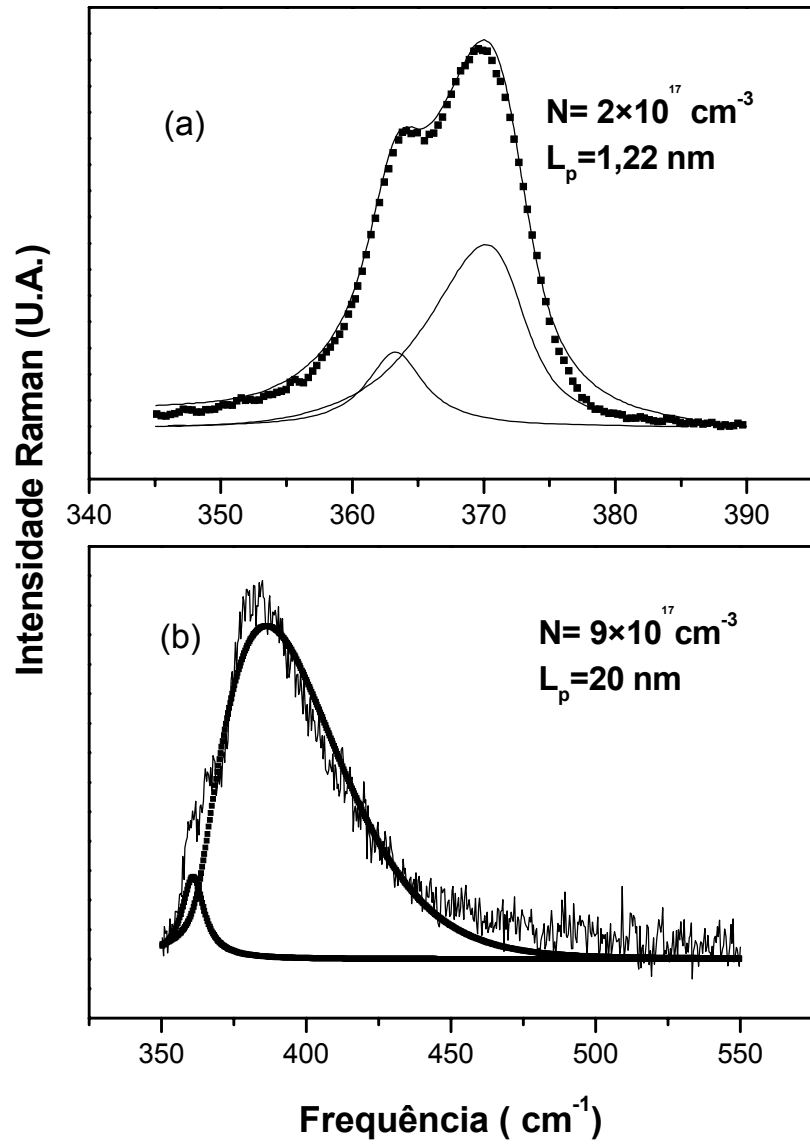


Figura 6-4: Espectro Raman da liga $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}:\text{Si}$ dopada medido à temperatura $T = 10\text{K}$ no intervalo espectral do AlAs. a) $N = 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ e b) $N = 4,4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. A linha pontilhada mostra o ajuste de curva do espectro.

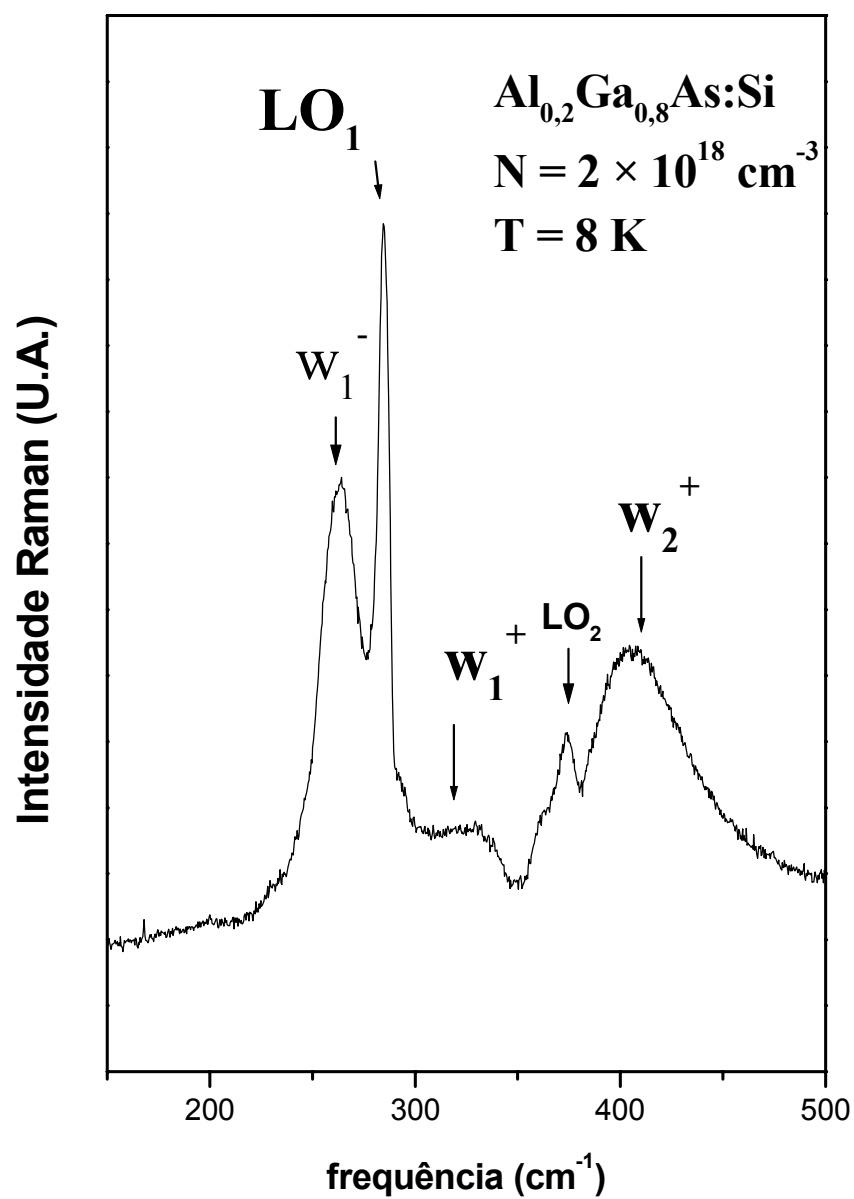


Figura 6-5: Espectro Raman da liga Al_{0,2}Ga_{0,8}As:Si dopada com uma densidade eletrônica N = 2 × 10¹⁸ cm⁻³.

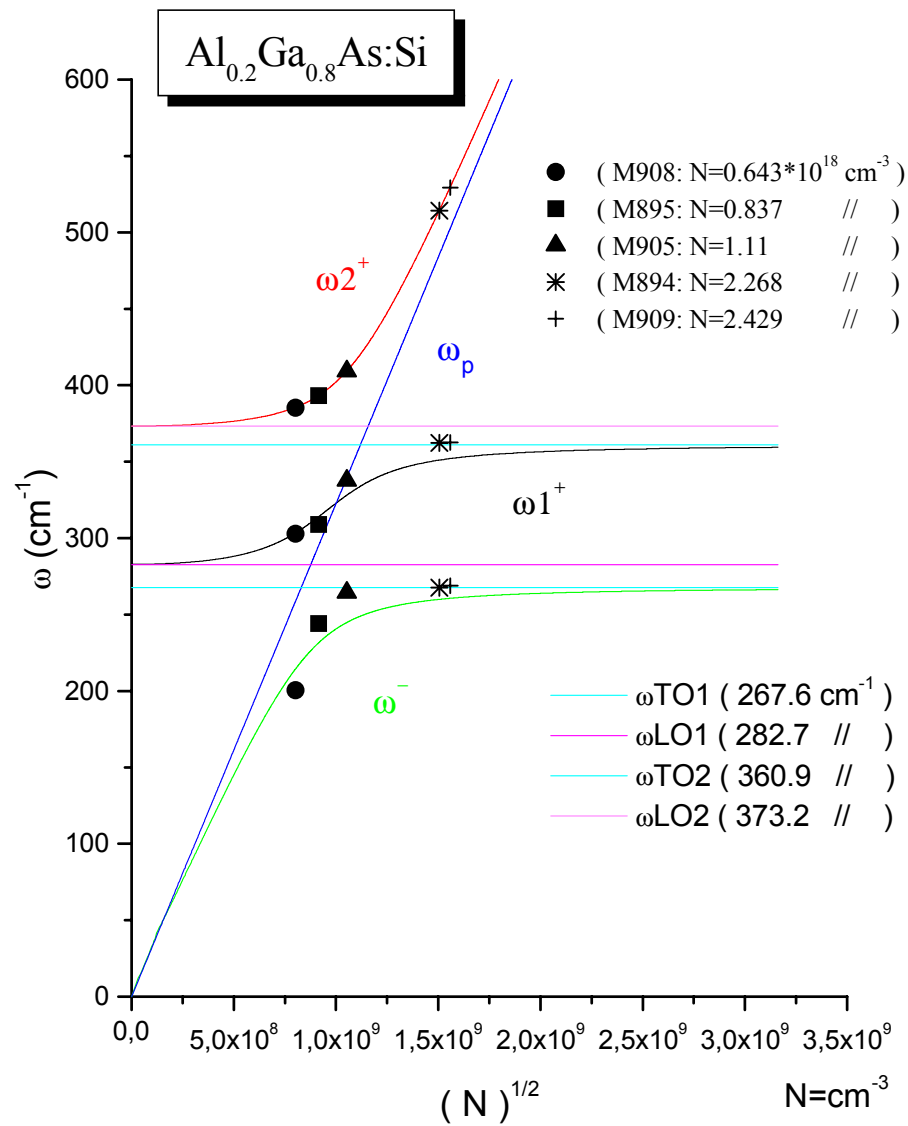


Figura 6-6: Gráfico dos modos acoplados fônon LO-plasmon da liga semicondutora dopada *Al-GaAs:Si*. As linhas retas e horizontais indicam, as frequências dos modos longitudinais e transversais ópticos w_{TO1} e w_{LO1} (do GaAs) e w_{TO1} e w_{LO1} (do AlAs) [51].

Observa-se que o comportamento da linha do modo acoplado w_2^+ quanto à sua forma, é alterado à medida que a concentração aumenta. Quando o comprimento de localização é muito pequeno, grande parte das excitações coletivas participam do espalhamento Raman. Neste caso, a largura da linha assimétrica Raman é determinada pela dispersão das excitações coletivas relevantes. Os resultados apresentados (Figura 6-4 a) mostram que quase todos os estados de fônons da ZB contribuem para o espalhamento Raman na liga $Al_{0,2}Ga_{0,6}As:Si$ com $N=2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, pois a largura da meia altura da linha assimétrica do fônon LO ($\approx 13 \text{ cm}^{-1}$) é quase igual à dispersão do fônon LO pertencente à camada do AlAs ($\approx 17 \text{ cm}^{-1}$). Já no caso da liga com maior concentração, a situação é um pouco diferente. Como se observa da relação de dispersão das excitações coletivas (Figura 6-6) a essa concentração a dispersão dos modos acoplados fônon LO-plasmon é quase que completamente determinada pela dispersão dos plasmons que é muito mais forte que a dos fônons LO. Como dito anteriormente, a assimetria da linha Raman para o plasmon possui sentido inverso daquele do fônon LO devido à diferença nas curvas de dispersão dos fônons ópticos e dos plasmons: uma dispersão negativa para os fônons e uma positiva para os plasmons.

Do conjunto de ligas medidas por espectroscopia Raman, foram utilizadas duas amostras $Al_{0,11}Ga_{0,89}As:Si$ com concentrações $9 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ e $4,4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ para ser analisadas por magnetoresistência. A influência da desordem sobre as propriedades eletrônicas dinâmicas depende da relação entre a energia de desordem (Δ) que é a largura da distribuição gaussiana de níveis de energia e a energia de Fermi (E_F). A composição da liga (concentração de Al) determina a energia da desordem (potencial da liga) que, em nosso caso, é igual a $\Delta_{liga} = 0,2 \text{ eV}$ [50]. Assim, os dois regimes, metal e isolante podem ser obtidos numa mesma liga com concentração de Al fixa, variando a concentração de dopagem. A liga com concentração $N=9 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

apresenta regime metálico ($E_F \approx \Delta$) enquanto que a mesma liga com concentração $4,4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ apresenta regime isolante ($E_F < \Delta$). Na Figura 6-7, observa-se a dependência da resistividade com a temperatura para duas amostras. A variação da resistividade com a temperatura obtida para ligas *AlGaAs* com baixa concentração de dopagem é bem explicada pelo mecanismo de salto ("hopping "):

$$\rho(T) = \rho_0 \exp \left[\left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/4} \right]$$

O melhor ajuste da resistividade calculado pelos dados experimentais foi obtido à temperatura $T_0 = 341 \text{ K}$ e corresponde a uma energia de desordem $\Delta = 0.29 \text{ eV}$ que concorda razoavelmente bem com o potencial da liga *AlGaAs*. A fraca variação da resistividade observada na liga *AlGaAs* metálica (Figura 6-7 b) é causada pela destruição da interferência quântica com o aumento da temperatura. **Disto pode-se concluir que as medidas de magnetoresistência mostram uma transição metal-isolante.**

Para calcular as intensidades das linhas Raman considerando os modos acoplados fônon LO-plasmon nas amostras sob investigação e extrair os valores do comprimento de localização do plasmon, utilizou-se a equação 3.4.3. Neste caso, usou-se as relações de dispersão dos fônons ópticos (Eq.3.4.3) e dos plasmons (Eq 3.4.2.) para obter as formas das linhas relevantes, como é mostrado na Figura 6-4 para duas concentrações diferentes. O espectro, calculado de acordo com as equações 3.4.3 e 3.4.2 para uma das amostras com concentração eletrônica $N = 9 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, é mostrado na Figura 6-8 inserida.

A Figura 6-8 representa os comprimentos de localização das excitações coletivas (tais como plasmons), obtidos por espalhamento Raman nas ligas $Al_x Ga_{1-x} As$ em função da concentração de dopagem. A baixas concentrações os elétrons são localiza-

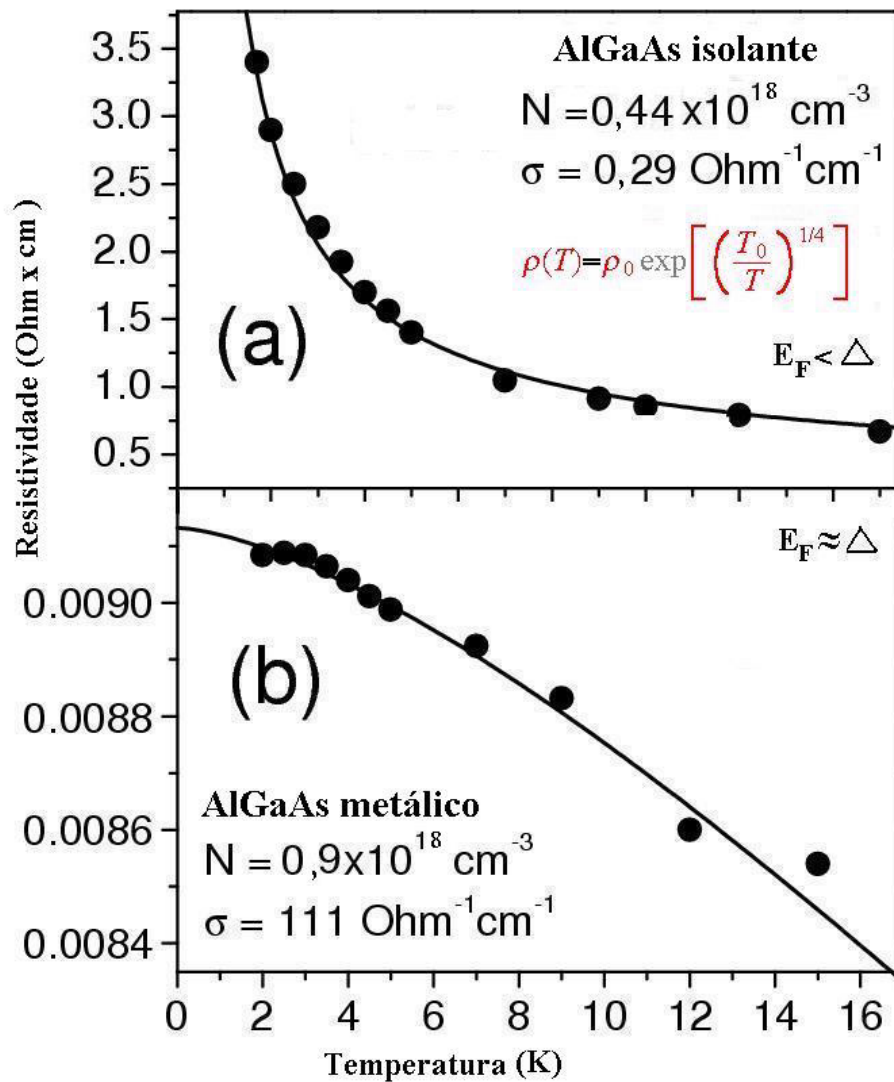


Figura 6-7: Resistividade de campo magnético zero em função da temperatura medida no estado a) isolante e b) metálico nas ligas AlGaAs:Si. As linhas cheias em a) representam a resistividade calculada considerando-se processos de transporte por "hopping" e em b) as linhas cheias representam a resistividade devido à destruição do processo de interferência quântica.

dos por um potencial aleatório. Neste caso a linha Raman é devida ao espalhamento inelástico por fônons LO e, conseqüentemente, o comprimento de localização obtido corresponde à localização espacial das vibrações da rede óptica. Com o aumento da concentração, a energia de Fermi cresce e os elétrons chegam a ser delocalizados, resultando em excitações coletivas tipo plasmon. Na Figura 6-8 nota-se um acréscimo abrupto do comprimento de localização dos modos acoplados w_2^+ . **Este acréscimo abrupto do comprimento de localização reflete a localização dos elétrons e serve como uma evidência para uma transição Metal-Isolante**, ou seja, uma transição de um regime onde a propagação é possível a um estado localizado quando a concentração eletrônica excede $0,5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (linha vertical). Para maiores concentrações de dopagem ($N > 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), o comprimento de localização diminui devido ao espalhamento por impurezas ionizadas [52] (linha hachurada).

A intensidade Raman para as excitações coletivas da liga $Al_{0.11}Ga_{0.89}As:Si$ altamente dopada ($N = 9 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), obtida do ajuste, é apresentada na Figura 6-9a. Na Figura 6-9b são representadas as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons do AlAs com linhas pontilhadas e cheias respectivamente. A linha tracejada representa o espectro de energia das excitações de uma partícula (SPE). A linha vertical mostra o número de onda da luz de excitação. A região mostrada com um círculo mostra a sobreposição da dispersão das excitações coletivas e da dispersão de uma partícula: à direita dessa linha hachurada (SPE), a localização das excitações coletivas tipo plasmon é dominada pelo amortecimento de Landau. Nosso resultado de $L_p \approx 20 \text{ nm}$, obtido para esta amostra, mostra que os efeitos de localização ($2\pi/L_p$) são determinados pelo amortecimento de Landau e não pela desordem como no caso da localização dos elétrons.

O efeito do amortecimento de Landau pode ser evitado em SL's onde a energia das excitações coletivas se encontram dentro da região do "minigap" já que por conser-

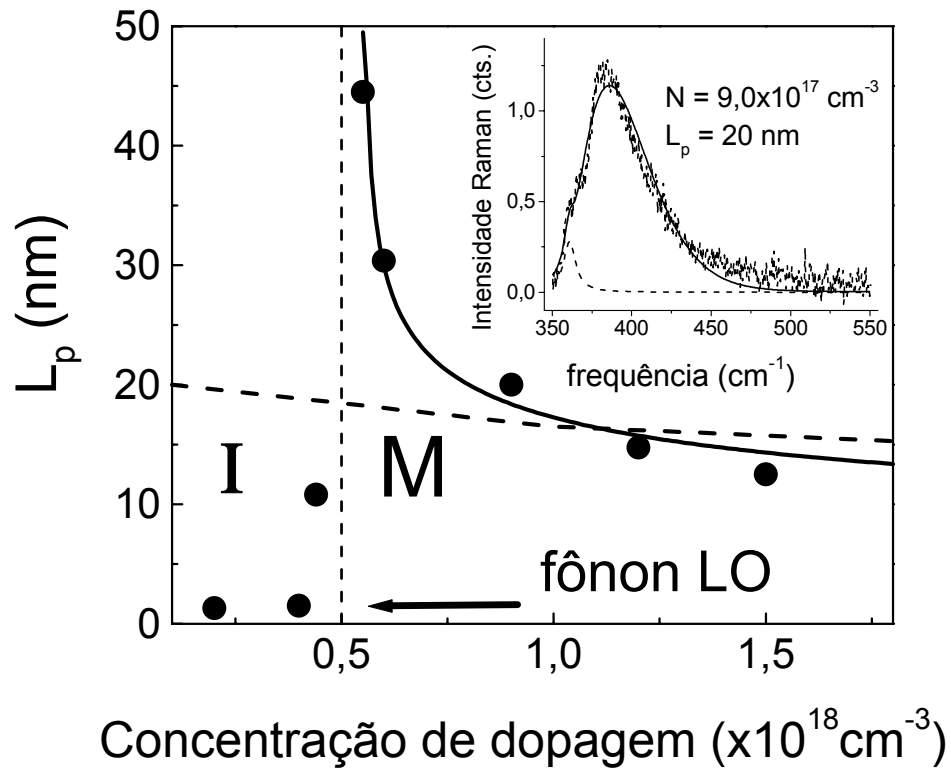


Figura 6-8: Comprimentos de localização das excitações coletivas fônon-plasmon no intervalo espectral do AIs medidas nas ligas $\text{Al}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{As}:\text{Si}$ em $T= 10\text{K}$ para diferentes concentrações de dopagem. I refere-se ao estado isolante e M ao estado metálico. A linha vertical mostra o limite entre os estados I e M. A linha cheia exhibe o decréscimo do comprimento de localização do plasmon causado pelo espalhamento por impurezas ionizadas.

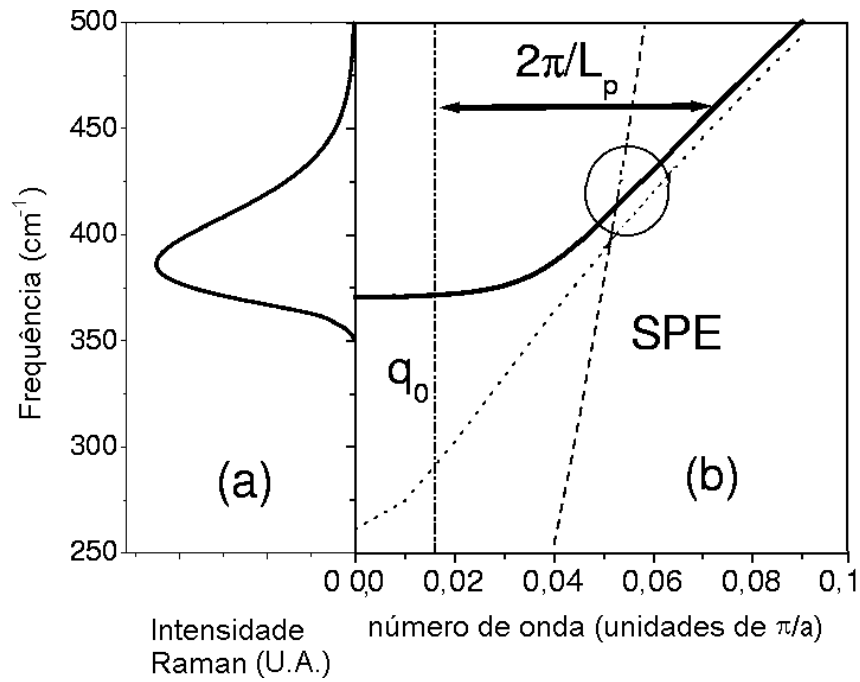


Figura 6-9: Em a) mostra-se a intensidade da linha Raman da liga $\text{Al}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{As:Si}$, obtida do ajuste do espectro. As linhas pontilhadas e cheias em b) representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons do AlAs, respectivamente. A linha tracejada representa o espectro de energia das excitações de uma partícula (SPE) a partir do qual aparece o regime de amortecimento de Landau. A linha vertical mostra o número de onda da luz de excitação.

vação de energia e momento é proibida nesta região as excitações de uma partícula. Neste caso a interação estabelece a diferença entre localização dos elétrons e das excitações coletivas.

6.2 Super-Redes $(GaAs)_m(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6$: Si ($\delta = 0, 82$)

As intensidades de espalhamento Raman, obtidas em $T = 80$ K na configuração de retroespalhamento $z(x, x)\bar{z}$ e $x'(z, z)\bar{x}'$ (onde z é a direção de crescimento $[001]$ e $x // [100]$ e $x' // [110]$) na SL $(GaAs)_m(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6$:Si com parâmetro de desordem $\delta = 0, 8$ e espessura $0,9 \mu m$ (150 períodos), são mostradas na Figura 6-10. De acordo com as regras de seleção, em ambos os casos as vibrações ópticas longitudinais são ativas [23]. Na geometria $z(x, x)\bar{z}$ é observada uma linha assimétrica em 294 cm^{-1} que tem duas contribuições: a primeira é devido ao fônon LO do GaAs da camada superficial de depleção e, a segunda, devido ao modo acoplado fônon LO-plasmon w_2^z do tipo GaAs, induzido por desordem (o índice superior indica a direção de propagação do modo). Também foi observado o modo acoplado w_3^z tipo AlAs em aproximadamente 380 cm^{-1} . As linhas fracas indexadas LO_1^z e por LO_2^z correspondem aos fônons LO do tipo GaAs e do AlAs respectivamente das barreiras de $Al_xGa_{1-x}As$ devido à camada de depleção. Nessas ligas $(Al_xGa_{1-x}As)$ os modos são esperados em 282 cm^{-1} e 375 cm^{-1} , respectivamente. Também foram observadas as linhas dos fônons TO_1^z e TO_2^z atribuídos aos poços do GaAs (272 cm^{-1}) e às barreiras de $Al_{0,3}Ga_{0,7}As$ (363 cm^{-1}). Estas linhas provêm da desordem na amostra.

O espectro Raman medido na geometria $x'(z, z)\bar{x}'$ mostra as mesmas características que as observadas na referência [53]: fônons TO proibidos e fônons LO mais fracos. Não obstante, a assimetria do modo acoplado fônon LO-plasmon na direção ao longo das camadas w_2^{\parallel} (o índice superior indica que a direção de propagação do modo é paralelo às camadas) é mais pronunciada.

Os ajustes dos espectros Raman foram calculados pela Eq. 3.4.3 nas diferentes configurações, permitindo obter os comprimentos de localização das excitações tipo plasmon propagando-se nas respectivas direções. Os resultados dos ajustes são

mostrados na Figura 6-10. Em $T = 80$ K encontrou-se os comprimentos de localização para excitações tipo GaAs e AlAs propagando-se normal às camadas como sendo $L_{p2}^z \approx 3,5$ nm, $L_{p3}^z \approx 2,1$ nm respectivamente; o comprimento de localização para excitações tipo plasmon do GaAs propagando-se ao longo das camadas como $L_{p2}^{\parallel} \approx 8,4$ nm. Nesta configuração não foi possível obter o comprimento de localização para excitações tipo plasmon do AlAs.

Os espectros de energia das excitações de uma partícula (SPE) e das excitações coletivas, calculadas nas direções paralela (linhas finas) e perpendicular (linhas espessas) às camadas da SL $(GaAs)_{11}(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6:Si$, são mostradas na Figura 6-11a. Na Figura 6-11b, a linha tracejada espessa e as linhas cheias representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons LO respectivamente. A linha vertical tracejada mostra o número de onda transferido pela luz de excitação. Observa-se que, como no caso das ligas, a localização das excitações coletivas, propagando-se ao longo das camadas ($2\pi/L_{p2}^{\parallel}$) é dominada pelo efeito de amortecimento de Landau. Ao mesmo tempo nota-se que o amortecimento de Landau não influencia a localização das excitações coletivas propagando-se na direção perpendicular às camadas ($2\pi/L_{p2}^z, 2\pi/L_{p3}^z$) devido à diferença significativa entre sua energia e a energia da minibanda mais baixa das excitações de uma partícula. A inserção na Figura 6-11 mostra o espectro eletrônico de energias das excitações de uma partícula (SPE) propagando-se normal às camadas.

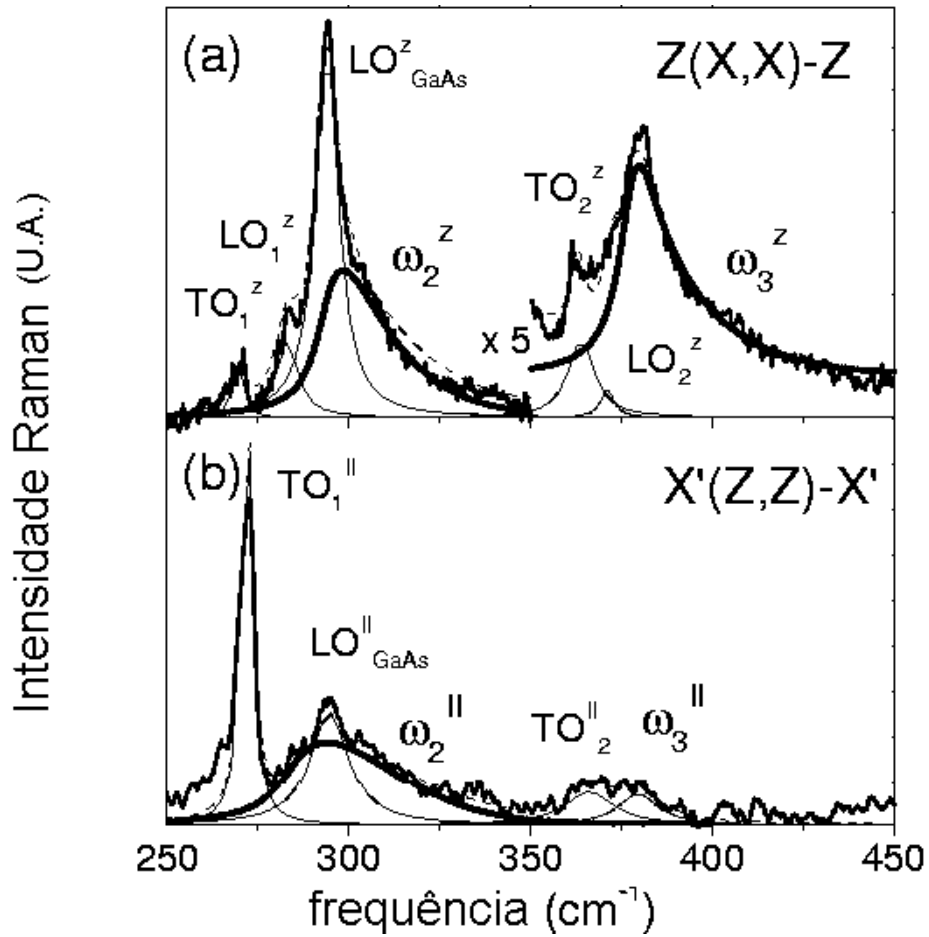


Figura 6-10: Intensidade Raman medidas em $T = 80$ K na SL $(\text{GaAs})_m(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$ com parâmetro de desordem 0,82 para geometria de retroespalhamento: a) $z(x,x)-z$ e b) $x'(z,z)x'$. As linhas tracejadas foram calculadas de acordo com a Eq. 3.4.3. As contribuições dos picos assimétricos tipo plasmon são mostrados com linhas espessas.

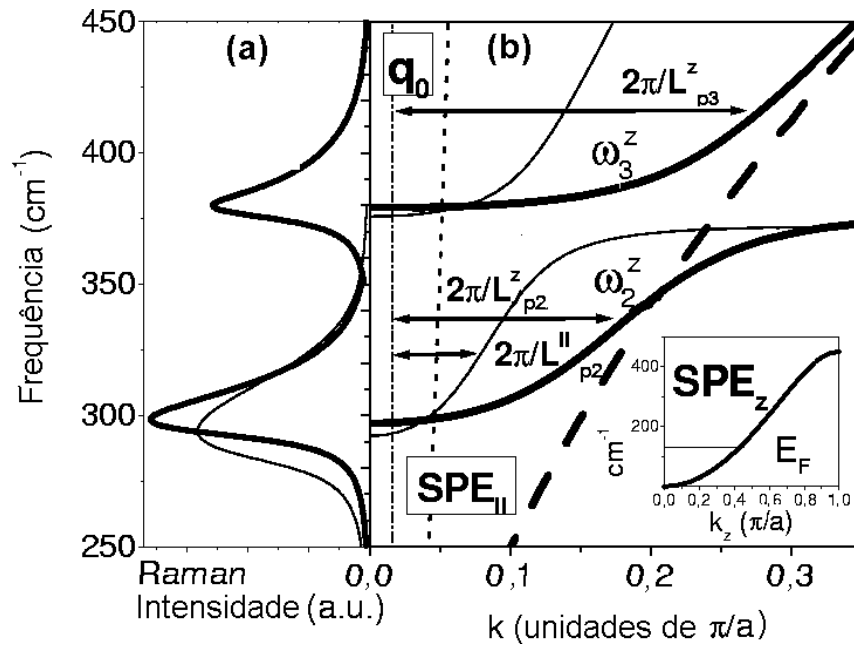


Figura 6-11: Espectro de energia das excitações de uma partícula e das excitações coletivas calculadas nas direções paralela (linhas finas) e perpendicular (linhas espessas) às camadas da SL $(\text{GaAs})_{17}(\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As})_6$: Si. A linha tracejada espessa e as linhas cheias representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons LO respectivamente. A linha vertical tracejada mostra o número de onda transferido pela luz de excitação. A figura inserida mostra o espectro eletrônico de energias das excitações de uma partícula (SPE), propagando-se normal às camadas.

Para comparar o comprimento de localização das excitações coletivas (localização induzida por desordem) com aquele dos elétrons foram feitas medidas Raman em geometria de retroespalhamento na superfície (001) da SL em T= 10 K. A esta temperatura (T=10K) os elétrons expõem localização isotrópica¹. O comprimento de localização correspondente das excitações do GaAs tipo plasmon junto com o comprimento de coerência de fase do elétron obtido à mesma temperatura são dados na Tabela 5.

δ_{SL}	η_H (cm^{-3})	μ_H (cm^2/Vs)	E_F (eV)	$k_F l$	L_{p3}^z (nm)	L_ϕ^z (nm)
0,82	$2,0 \times 10^{17}$	2143	0,015	4,0	7,3	140

Tabela 5: Parâmetros determinados à temperatura T= 10K na super-rede $(GaAs)_m (Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6 : Si$ com parâmetro de desordem 0,82.

Observa-se que o comprimento de coerência de fase do elétron é muito maior que o comprimento de localização correspondente às excitações do GaAs tipo plasmon, o que indica que o carácter coletivo dos plasmons impõe diferenças significativas nas propriedades de localização em comparação com aquelas dos elétrons individuais.

Resultados similares foram obtidos com outra SL com alta concentração de dopagem e parâmetro de desordem diferente ($\delta = 0,4$).

6.3 Super-Redes $(GaAs)_m (Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6 : Si$ ($\delta = 0,4$)

A intensidade do espalhamento Raman, obtido em T= 10 K, na configuração de retroespalhamento em amostras $(GaAs)_m (Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6 : Si$, com parâmetro de desordem

¹A baixas temperaturas os elétrons revelam uma forte magnetoresistência negativa anisotrópica. O comprimento de coerência de fase paralelo decresce fortemente com a temperatura enquanto que não há variação significativa do comprimento de coerência na direção vertical. Assim, pode-se considerar que à temperatura T= 10K os elétrons expõem localização isotrópica.

$\delta = 0,4$ e espessura $0,3 \mu m$ (50 períodos), crescidas sobre um substrato dopado na direção z , é mostrada na figura 6-12. Um espectro similar foi obtido na amostra crescida sobre um substrato semi-isolante. Novamente, observa-se o pico TO_2^z proveniente da desordem na amostra. Nota-se na Figura 6-12, uma assimetria bastante pronunciada tipo plasmon no modo acoplado fônon LO-plasmon do tipo AlAs na direção normal às camadas w_3^z . Entretanto, o modo acoplado fônon LO-plasmon do tipo GaAs na direção normal às camadas w_2^z exibe uma assimetria oposta tipo fônon como esperado em SL's altamente dopadas. A assimetria observada ocorre pelo seguinte: ao contrário do cristal perfeito (em que somente excitações coletivas em q_0 contribuem para o espalhamento Raman), na presença de desordem, todos os modos no intervalo de incerteza do número de onda $\Delta q \approx 2\pi/L_p$ (onde L_p é o comprimento de localização das excitações coletivas dadas pela intensidade Raman) contribuem para o espalhamento Raman. Para comprimentos de localização pequenos, o intervalo relevante do número de onda pode cobrir a região de dispersão significativa, onde o movimento eletrônico correlacionado determina os modos coletivos e, então, a forma da assimetria da linha Raman emerge. Neste caso, as magnitudes do comprimento de localização das excitações coletivas relevantes são um indicativo da intensidade dos efeitos de correlação: quanto maior o comprimento de localização, maior a correlação entre os elétrons.

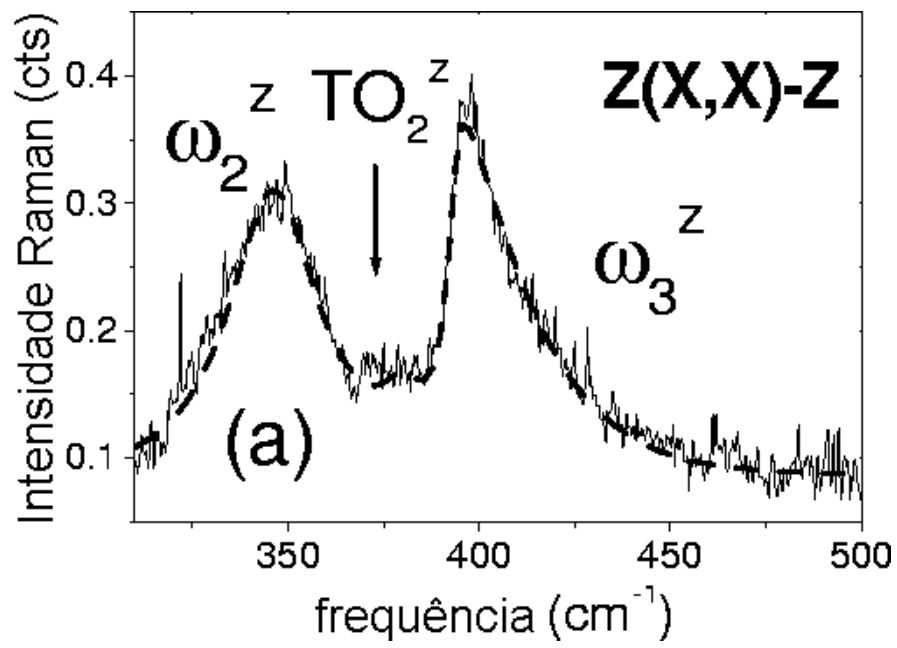


Figura 6-12: Intensidade Raman medidas em $T=10$ K, na SL $(GaAs)_m(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6:Si$ com parâmetro de desordem 0,4. As linhas tracejadas foram calculadas de acordo a Eq. 3.4.3.

O ajuste da linha Raman, calculada pela Eq. 3.4.3, permite determinar o comprimento de localização das excitações coletivas como sendo $L_p \approx 5$ nm. O espectro de energia das excitações de uma partícula (Figura inserida) e das excitações coletivas propagando-se verticalmente para a SL $(GaAs)_{17}(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6$:Si são mostradas na Figura 6-13. As linhas tracejadas espessas e as linhas cheias representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons LO do AlAs respectivamente. A linha vertical tracejada mostra o número de onda transferido pela luz de excitação. No lado esquerdo mostra-se a intensidade da linha Raman calculadas pelos ajustes dos picos. Todos os modos coletivos, com número de onda menores que o valor $2\pi/L_p$, contribuem para o espalhamento Raman resultando na assimetria da linha. Como observado na figura 6-13, o comprimento de onda longo tipo fônon contribui ao pico da linha Raman enquanto que o lado de alta frequência da linha, que causa a assimetria observada é formada pelas excitações coletivas tipo plasmon. Consequentemente, o comprimento de localização, L_p , encontrado no ajuste da linha Raman assimétrica, fornece uma estimativa razoável do comprimento de localização do plasmon.

Já que existe uma diferença significativa entre as energias das excitações coletivas (Figura 6-13) e as de uma partícula, como mostrado (Figura 6-13 inserida), o comprimento de localização obtido para as excitações coletivas é determinado pela desordem e não devido ao amortecimento do Landau. Neste caso, a validade do RPA foi confirmada.

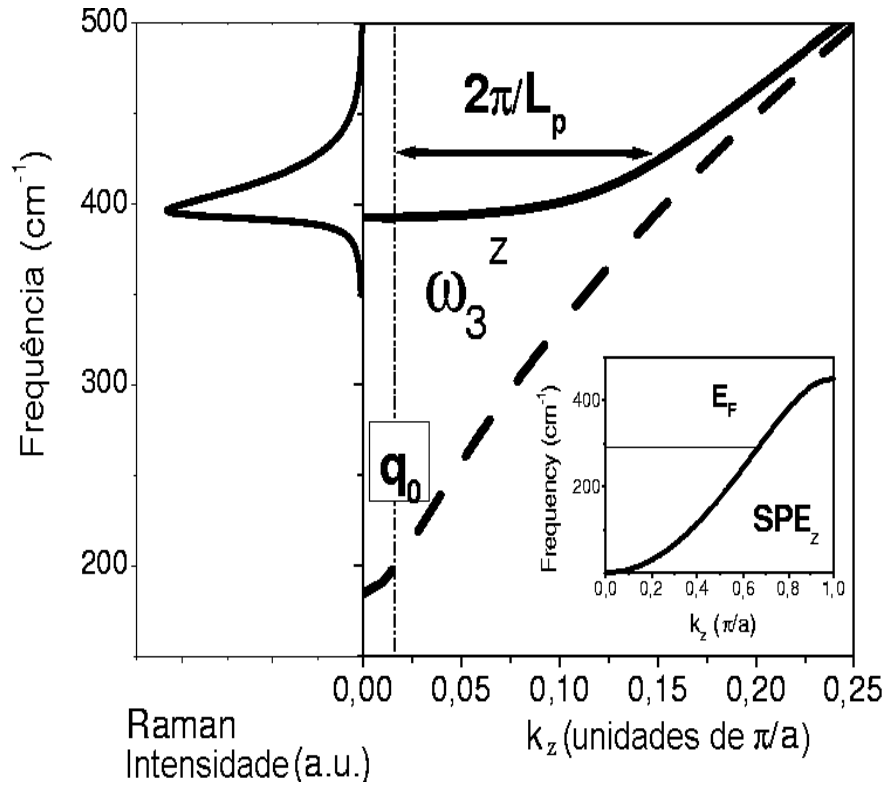


Figura 6-13: Espectro de energia das excitações de uma partícula (inserção) e das excitações coletivas propagando-se verticalmente para a SL $(\text{GaAs})_{17}(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$. As linhas tracejadas espessas e as linhas cheias representam as dispersões dos plasmons não acoplados e acoplados aos fônons LO do AlAs, respectivamente. A linha vertical tracejada mostra o número de onda transferido pela luz de excitação. No lado esquerdo mostra-se a intensidade da linha Raman calculada.

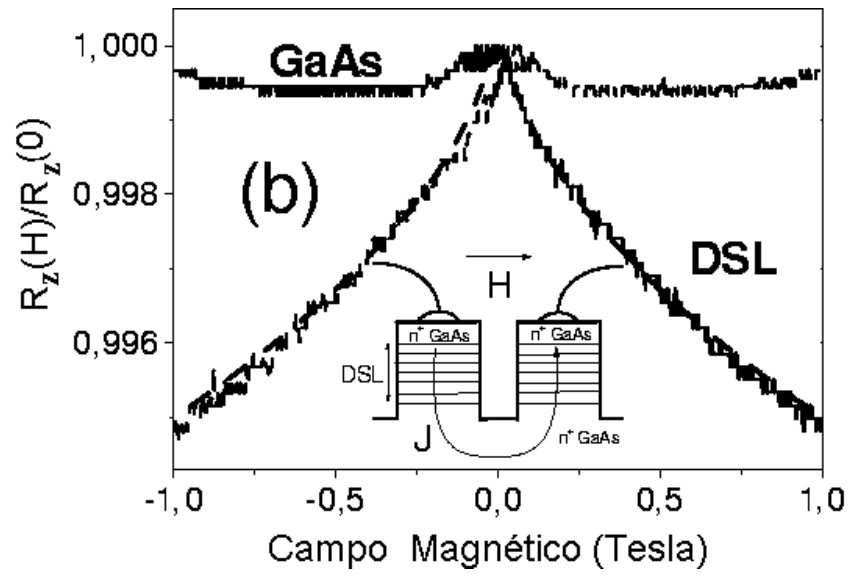


Figura 6-14: Magnetoresistência vertical do campo fraco medido num campo magnético paralelo às camadas na SL à temperatura $T= 10K$ (denotada por DSL). A linha tracejada foi calculada pela Eq 3.4.3. A linha correspondente ao GaAs relaciona a estrutura da mesa fabricada no mesmo substrato dopado sem a SL. No interior da figura mostra-se a mesa dupla da SL usada nas medidas de transporte vertical, assim como as orientações do fluxo de corrente e do campo magnético.

Encontrou-se que o comprimento de localização das excitações coletivas é menor que a distância média entre os elétrons [$r = \left(\frac{3}{4\pi n}\right)^{1/3} \approx 7$ nm]. Isto significa que a correlação relativamente fraca entre elétrons é reduzida pela desordem. Entretanto, ainda neste caso, a resposta coletiva pode ser claramente detectada em Raman.

A magnetoresistência vertical do campo fraco medida na estrutura tipo mesa é mostrada na Figura 6-14 junto àquela do substrato dopado sem a SL. A figura inserida mostra a mesa dupla da SL usada nas medidas de transporte vertical assim como as orientações do fluxo de corrente e do campo magnético. Como se observa da Figura 6-14, o substrato GaAs tipo mesa não revelou uma magnetoresistência significativa e, portanto, a contribuição desta é desprezível. A magnetoresistência de campo fraco nas SL's desordenadas, estudadas aqui, é devida a processos de interferência quântica e não a efeitos de interação [54]. O melhor ajuste da magnetoresistência, calculada nesta forma, foi obtido para os dados experimentais com $L_\phi \approx 250$ nm, e o resultado do ajuste é mostrado na Figura 6-14 por linhas tracejadas. Do mencionado anteriormente se tem uma estimativa boa do comprimento de localização das excitações de uma partícula. O comprimento de localização correspondente das excitações do GaAs tipo plasmon junto com o comprimento de coerência de fase do elétron obtido à mesma temperatura são dados na Tabela 6.

δ_{SL}	η_H (cm^{-3})	μ_H (cm^2/Vs)	E_F (eV)	$k_F l$	L_{p3}^z (nm)	L_ϕ^z (nm)
0,4	$6,5 \times 10^{17}$	1400	0,036	5,9	5,0	250

Tabela 6: Parâmetros determinados à temperatura T= 10K, na super-rede $(GaAs)_m (Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6$:Si com parâmetro de desordem igual a 0,4.

Conseqüentemente, em SL's intencionalmente desordenadas encontrou-se que o

comprimento de localização das excitações coletivas (~ 5 nm) foi consideravelmente menor que a do elétron individual (≥ 250 nm) o que significa que **a desordem afeta as excitações coletivas numa forma mais intensa que nas excitações de uma partícula.**

6.4 Super-redes desordenadas $(GaAs)_m (Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6$ altamente dopadas

A Figura 6-15 mostra os espectros Raman das super-redes $(GaAs)_m (Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6$ altamente dopadas ($N = 1, 2 \times 10^{18} cm^{-3}$) obtidos em baixa temperatura ($T = 10K$), na geometria $z(x, x)\bar{z}$, com diferentes parâmetros de desordem. Observa-se uma linha em $292 cm^{-1}$ devida ao fônon LO do GaAs da camada de depleção e os modos acoplados fônon LO-plasmon $w_2^z (\approx 337 cm^{-1})$ e $w_3^z (\approx 392 cm^{-1})$ do tipo GaAs e AlAs, respectivamente, induzidos por desordem. Foi ainda observada uma linha do fônon TO_2^z , atribuído às barreiras de $Al_{0,3}Ga_{0,7}As (\approx 364 cm^{-1})$ devido à desordem na amostra.

Os espectros Raman, medidos no intervalo espectral do fônon LO da camada do AlAs, estão apresentados na Figura 6-16. Como discutido anteriormente, na presença de localização eletrônica, as linhas Raman causadas pelos plasmons, ou pelos modos acoplados fônon LO-plasmon, possuem uma assimetria característica por causa da relaxação das regras de seleção Raman. Desta forma, através dos ajustes dos espectros, obtidos a partir da equação 3.4.3 (linha cheia na Figura 6-16), pode-se determinar os comprimentos de localização e as frequências das excitações coletivas fônon LO-plasmon.

O comportamento do comprimento de localização em função da desordem está

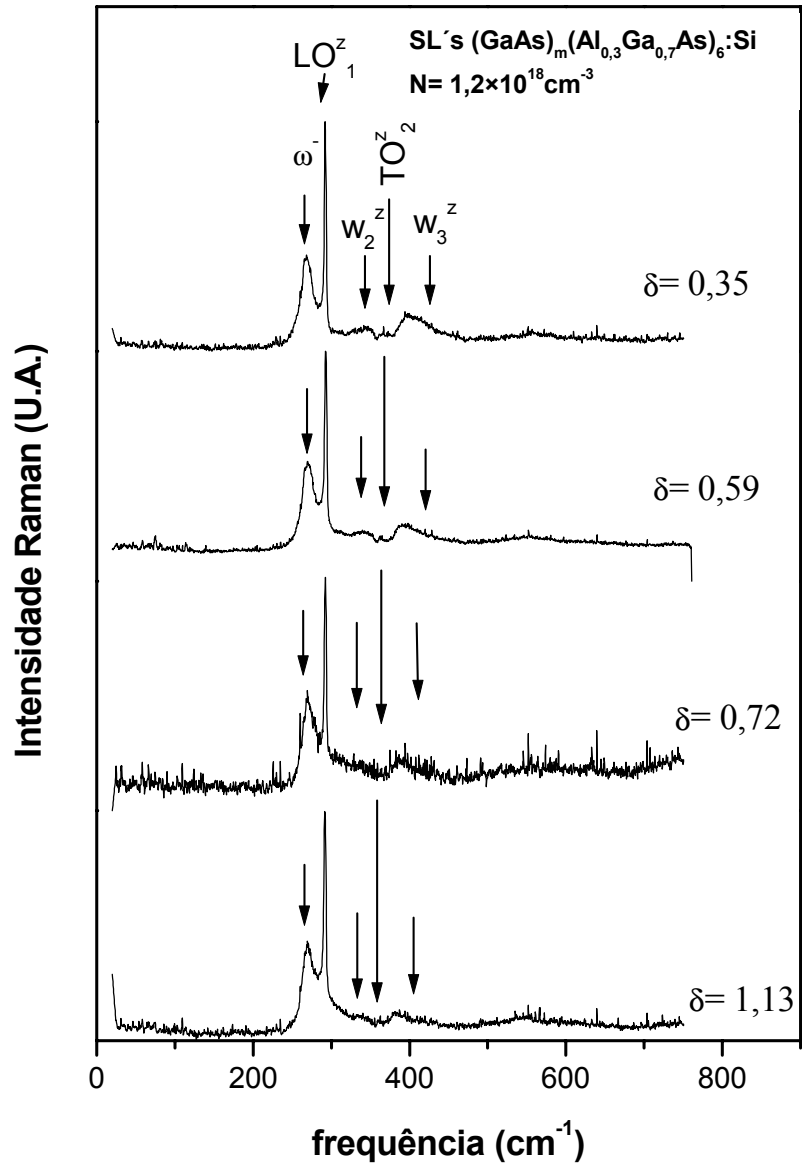


Figura 6-15: Espectros das super-redes $(GaAs)_m(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6:Si$ com concentração nominal $1,2 \times 10^{18} cm^{-3}$, com diferentes parâmetros de desordem, medidos à $T = 10K$.

mostrado na Tabela 5. Observa-se um valor quase constante do comprimento de localização. A desordem pode ser caracterizada por um parâmetro $\delta = \Delta/W$, onde Δ é a largura da distribuição gaussiana de níveis de energia e, W , é a largura da minibanda na estrutura sem desordem. De acordo com os cálculos baseados no modelo de Kronig Penney [55], a largura da primeira minibanda numa super-rede ordenada $[(GaAs)_{17}(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6]$ é de $0.055 eV$ e, para um parâmetro de desordem igual a 1,13, obtém-se uma energia devida à desordem igual a $0,062 eV$. Em nosso caso, a energia da desordem é comparável à energia de Fermi ($0,06eV$), calculada pelas Oscilações de Shubnikov de Haas, o que significaria que os elétrons se movem livremente através da super-rede. Assim, **a altas concentrações de dopagem, a influência da desordem diminui.**

$(GaAs)_{17}(Al_{0,3}Ga_{0,7}As)_6 : Si \quad (N = 1,2 \times 10^{18} cm^{-3})$	
δ (parâmetro de desordem)	L_p (nm)
0,35	15,95
0,59	16,89
0,82	14,07
1,13	14,65

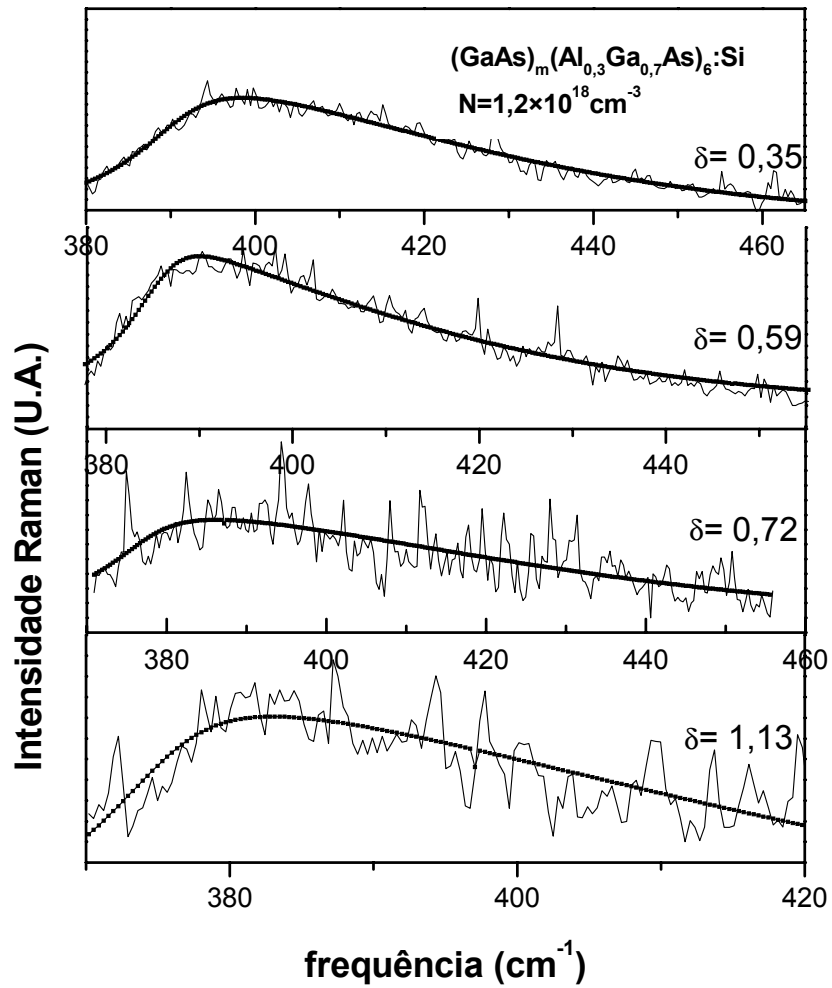


Figura 6-16: Espectros Raman da super-rede $(\text{GaAs})_m(\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As})_6:\text{Si}$ dopada ($N=1,2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), medidos em $T=10\text{K}$, no intervalo espectral dos fônons ópticos tipo AlAs, com diferentes parâmetros de desordem.

Capítulo 7

Conclusões

Através da espectroscopia Raman foi possível estudar os modos vibracionais coletivos fônon LO-plasmon com polarizações normal e paralela às camadas, que ocorrem em heteroestruturas semicondutoras dopadas. Estes modos coletivos são observados nestes sistemas devido à presença de elétrons livres os quais se acoplam aos fônons longitudinais ópticos (LO). Neste trabalho foram estudadas a coerência e localização de excitações coletivas tipo plasmon e das excitações eletrônicas de uma partícula (SPE) em ligas *AlGaAs* e SL's *GaAs/AlGaAs* intencionalmente desordenadas. Os resultados assim obtidos foram comparados com a finalidade de compreender como a interação influencia a localização. Nas ligas a desordem foi produzida pela distribuição aleatória de impurezas enquanto que, no caso das SL's, a desordem vertical é produzida pela variação controlada das espessuras dos poços do GaAs. Sabe-se que a desordem, destruindo a invariância translacional, proporciona o aparecimento de um comprimento de coerência espacial das excitações elementares e, como consequência, causa a quebra das regras de seleção Raman. Isto leva então ao alargamento e assimetria das linhas Raman. A análise das formas das linhas espectrais permite-

nos determinar os comprimentos de coerência das excitações elementares envolvidas no processo Raman, e então estudar suas propriedades de localização.

Um conjunto de ligas $Al_xGa_{1-x}As$, com diferentes concentrações de Al (x) e de portadores N , foi analisado por espalhamento Raman. Para $x \geq 0,4$ não foram observados modos acoplados fônon LO-plasmon devido a que a concentração de elétrons livres é nula, pois eles são aprisionados nos centros profundos.

Também foram medidas, por magnetoresistência, duas amostras $Al_{0,11}Ga_{0,89}As$ com diferentes concentrações de dopagem: $N = 9 \times 10^{17}cm^{-3}$ e $4,4 \times 10^{17}cm^{-3}$. Na Figura 6-7 é observada a variação da resistividade com a temperatura para estas amostras. A liga com baixa concentração de dopagem ($N = 9 \times 10^{17}cm^{-3}$) apresenta regime metálico ($E_F \approx \Delta$), já que a dependência da temperatura com a resistividade é bem explicada pelo mecanismo de salto ("hopping"), enquanto que a liga com concentração $4,4 \times 10^{17}cm^{-3}$ apresenta regime isolante ($E_F < \Delta$). Neste caso, a fraca variação da resistividade observada na liga é causada pela destruição da interferência quântica com o aumento da temperatura. Disto pode-se concluir que as medidas de magnetoresistência mostram uma transição metal-isolante. Também os espectros Raman revelaram uma evidência de uma transição metal-isolante, como mostra a Figura.6-8, onde estão representados os comprimentos de localização das excitações coletivas com o aumento da dopagem. O acréscimo abrupto do comprimento de localização dos modos acoplados w_2^+ é associado a uma transição de um regime onde a propagação é possível (estado metálico) a um estado localizado (estado isolante). Esta transição ocorre quando a concentração eletrônica excede $0,5 \times 10^{18}cm^{-3}$. Na região $0,5 \times 10^{18}cm^{-3} < N < 1 \times 10^{18}cm^{-3}$ os efeitos de localização são devidos à desordem enquanto que, para concentrações maiores que $1 \times 10^{18}cm^{-3}$, o comprimento de localização é devido ao espalhamento por impurezas ionizadas [52]. Assim, mostrou-se que existe uma transição metal-isolante nas ligas $Al_xGa_{1-x}As$ que manifestou-se

tanto nas medidas de magnetoresistência como nas medidas de espalhamento Raman. Esta última foi realizada através do análise das formas das linhas espectrais.

Os comprimentos de localização das excitações de uma partícula e de excitações coletivas foram comparados nas SL's intencionalmente desordenadas onde, devido à ausência do amortecimento de Landau, ambos foram limitados por desordem. Neste trabalho encontrou-se ainda que o comprimento de localização do elétron foi significativamente maior que o correspondente às excitações coletivas tipo plasmon. A diferença entre as excitações de uma partícula e as excitações coletivas deve-se à polarização eletrônica que basicamente determina as propriedades das excitações coletivas. Portanto, a diferença observada entre os comprimentos de localização mostra que a interação resulta num incremento na localização. Já no caso de SL's altamente dopadas, a desordem não influencia os efeitos de localização pelo fato de que a energia de Fermi é comparável à energia da desordem e, portanto, os elétrons se movem livremente pelo material.

Referências Bibliográficas

- [1] W. Kohn, Phys. Rev. **133**, A171 (1964).
- [2] S. Das Sarma, A. Kobayashi and R.E. Parng, Phys Rev. Lett. **56**, 1280 (1986).
- [3] G. Bergmann: Physics Reports **107**, 1 (1984).
- [4] B.L. Altshuler, A.G. Aronov and D.E. Khmel'nitsky, J. Phys. C **15**, 7367 (1982).
- [5] Yu.A. Pusep, M.T.O. Silva, N.T. Moshegov, J.C. Galzerani: Phys. Rev. B **61**,4441 (2000).
- [6] A. Pinczuk, G. Abstreiter, R. Trommer and M. Cardona, Solid State Commun. **21**, 959 (1977).
- [7] P.Yu and M.Cardona : Fundamentals of Semiconductors-Physics and Materials Properties, ed. by Springer-Verlag, Berlin, 1996.
- [8] C. V. Raman: Nature **121**, 619 (1928).
- [9] D.J.Gardiner: Practical Raman Spectroscopy, ed. by Springer-Verlag, Berlin, 1989.
- [10] W.H. Louisell, Quantum Statistical Properties of Radiation, ed. by John Wiley Sons, Inc., 1990.

- [11] M. Cardona and G. Güntherodt: Light Scattering in Solids II ,ed. by Springer-Verlag, Berlin, 1982.
- [12] D.L. Rosseau, R.P. Bauman, S.P.S. Porto: J. Raman Spec. **10**, p.253 (1981).
- [13] G. Zanelatto: Estudo de Espectroscopia Raman de Interfaces em nanoestruturas semicondutoras crescidas por MBE- Super-redes e Pontos Quânticos auto-organizados, Tese de Doutorado, Departamento de Física, Universidade Federal de São Carlos-SP, 1999.
- [14] M. Born, M. and K. Huang: Dynamical Theory of crystal Lattices, ed. by Oxford University Press, 1968.
- [15] W. Hayes and R. Loudon: Scattering of Ligth by Crystals, ed. by Wiley, New York, 1978.
- [16] K. Hess, Advanced Theory of Semiconductor Devices, ed. by Prentice Hall, New York, 1988.
- [17] W.A. Harrison: Phys. Rev. **104**, 1281 (1956).
- [18] L. Esaki and R. Tsu: IBM J. Res. Devel. **14**, 61 (1970).
- [19] H.T. Grahn, Semiconductor Superlattices, ed. by H. T. Grahn, 1995.
- [20] H. Ishida, J. Phys. Soc. Japan **55**, 4396 (1986).
- [21] A.S. Barker Jr, J.L. Merz and A.C. Gossard, Phys. Rev. B **17**, 3181 (1978).
- [22] B. Prevot and J. Wagner, Prog. Crystal and Charact. 1998 vol **22**.
- [23] A. Fainstein, P. Etchegoin, M. P. Chamberlain, M. Cardona, K. Totemeyer and K. Eberl, Phys. Rev.B **51**, 14448 (1995).

- [24] B. Jusserand and M. Cardona: Light Scattering in Solids V ,Topics in Applied Physics, ed. by M. Cardona and G. Guntherodt, Springer-Verlag, 1989.
- [25] Yu. A. Pusep, A. Milekhin, A. Poropov: Superlattices and Microstructures **13** (1), 115 (1993).
- [26] B. Lou, R. Sudharsanan and S. Perkowitz: Phys. Rev. B **38** (3),2212 (1988).
- [27] R. Merlin, C. Colvard, M.V. Klein, H. Morkoc, A.Y. Cho, A.G. Gosard: App. Phys. lett **36** (1), 43 (1980).
- [28] V.M. Agranovich and V.E. Kratsov: Solid State Commun. **55** (1), 85 (1985).
- [29] A.K. Sood, J. Menéndez, M. Cardona and K. Ploog: Phys. Lett. **54** (19), 2115 (1985).
- [30] C. Colvard, T.A. Gant, M.V. Clein, R. Merlin, R. Fischer, H. Moskoc, A.G. Gossard: Superlattices and Microstructures **1**, 81 (1985)
- [31] R.E. Camley and D.L. Mills, Phys. Rev. B **29**, 1965 (1984).
- [32] B.B. Varga, Phys. Rev. **137A**,1896 (1965).
- [33] D.Pines: Elementary Excitations in Solids, ed. by W.A. Benjamin, Inc., New York, 1964.
- [34] C.F. Klingshirn: Semiconductor Optics, Springer-Verlag, 1997.
- [35] A. Mooradian, A.L. McWorther, Phys. Rev. Lett. **19**, 849 (1967).
- [36] M. Cardona: Light Scattering in Solids I ,Topics in Applied Physics, vol. **8**, ed. by M. Cardona, Springer-Verlag, 1983.

- [37] R. Shuker and R. Gammon, *Phys. Rev. Lett.* **25**,222 (1970).
- [38] H. Richter, Z. P.Wang, and L. Ley: *Solid State Commun.* **39**, 625 (1981).
- [39] Yu.A. Pusep, M.T.O. Silva and J.C. Galzerani: *Phys. Rev. B* **58** (16),10683 (1998).
- [40] Yu.A. Pusep, S.W.da Silva, J.C. Galzerani, A.G. Milekhin, V.V. Preobrazhenskii, B.R. Semyagin and I.I. Marahovka: *Phys. Rev. B* **52**,2610 (1995).
- [41] N.W. Ashcroft and N.D. Mermin (eds.): *Solid State Physics* (Holt, Reinhart and Winston, New York, 1976).
- [42] M.T.O. Silva: *Estudos por Espectroscopia Raman da Condutividade Vertical e de Efeitos de Localização em Super-redes semicondutoras dopadas*,Tese de Doutorado, Departamento de Física, Universidade Federal de São Carlos-SP, 1999.
- [43] B. Al'tshuler and P. Lee: *Physics Today*, **36** (1988).
- [44] A. J. Chiquito, Yu. A. Pusep, G. M. Gusev and A. I. Toropov: *Phys. Rev* **66**, 035323 (2002).
- [45] P. Lee, T.V. Ramakrishnam, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 287 (1985).
- [46] A. Cassam and D Mailly: *Phys. Rev. B* **52**, 1984 (1995).
- [47] A. Kawabata, *J. Phys. Soc. Jpn* **49**, 628 (1980).
- [48] G. Mendes: *Litografia na microeletrônica, Rede de Difração para controle e otimização de processos*, Tese de Doutorado, UNICAMP-SP,1984.

- [49] S.W. da Silva: Estudos de Interfaces de Poços Quânticos e de Super-redes do tipo GaAs/AlAs, crescidas em diferentes direções cristalográficas, por Espectroscopia Raman, Tese de Doutorado, Departamento de Física, Universidade Federal de São Carlos-SP, 1995.
- [50] J. Singh: Physics of Semiconductors and their Heterostructures, Mc Graw-Hill, Inc., New York, 1993.
- [51] W. Fortunato: Espalhamento Raman em Ligas Semicondutoras dopadas ($Al_xGa_{1-x}As : Si$), Dissertação de Mestrado, Departamento de Física, Universidade Federal de São Carlos-SP, 2000.
- [52] Yu. A Pusep, S.S. Sokolov, W. Fortunato, J.C. Galzerani and J.R. Leite: J. Phys. Condensed Matter **13**, 1-10 (2001).
- [53] S.W. da Silva, Yu.A. Pusep, J.C. Galzerani, M.A. Pimenta, D.I. Lubishev, P.P. Gonzales-Borrero, P. Basmaji: Phys. Rev. B **53** 1927 (1996).
- [54] Yu.A. Pusep, H. Arakaki, C.A. de Souza, Phys. Rev. B **68** 205321 (2003).
- [55] Yu. A Pusep and A.J. Chiquito, S. Mergulhão, A.I. Toropov: J. of App. Phys **92**, 7 (2002).