UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA E INFORMÁTICA

DINÂMICA DE PLASMA E FÔNON E EMISSÃO DE RADIAÇÃO TERAHERTZ EM SUPERFÍCIES DE GaAs E TELÚRIO EXCITADAS POR PULSOS ULTRACURTOS

FABRÍCIO MACEDO DE SOUZA

Dissertação apresentada ao Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, para obtenção do título de Mestre em Ciências "Física Básica"

Orientador: Prof. Dr. José Carlos Egues de Menezes

USP/IFSC/SBI
8-2-001322

São Carlos – São Paulo
2000

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA INFORMAÇÃO

Souza, Fabrício Macedo.

Dinâmica de plasma e fônon e emissão de radiação terahertz em superfícies de GaAs e Telúrio excitadas por pulsos ultracurtos/Fabrício Macedo de Souza–São Carlos, 2000.
89 p.

Dissertação (Mestrado)–Instituto de Física de São Carlos, 2000.

Orientador: Prof. Dr. José Carlos Egues de Menezes

1. Plasma e Fônon. 2. Emissão terahertz. 3. Equação de Boltzmann. I. Título.

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
Instituto de Física de São Carlos

Av. Dr. Carlos Botelho, 1465
CEP 13560-250 - São Carlos - SP
Brasil

Fone (016) 273-9333
Fax (016) 272-2218

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA DISSERTAÇÃO DE MESTRADO DE FABRÍCIO MACEDO DE SOUZA APRESENTADA AO INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS, DA UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 10 DE ABRIL DE 2000

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. José Carlos Egues de Menezes/IFSC-USP

Prof. Dr. Lidério Citrângulo Ioriatti Júnior/IFSC-USP

Prof. Dr. José Roberto Leite/IF-USP

E mail: wladerez@if.sc.usp.br

Dedico aos meus pais José Trabulo e Graça,
por sempre me terem incentivado nos estudos.

Agradecimentos

- Agradeço a Deus, pela sabedoria concedida para realizar este trabalho.
- Ao Prof. Dr. José Carlos Egues de Menezes, pela orientação dispensada durante a elaboração deste trabalho.
- A minha irmã Alessandra, a minha querida Ana Júlia e as minhas avós Iracilda e Olímpia, pois reconheço o valor de suas palavras de incentivo.
- A todos os colegas, professores e funcionários que de alguma forma contribuiram para a conclusão desta dissertação.

Este trabalho foi financiado pela ***FAPESP***

Sumário

Lista de Figuras **ii**

Resumo **xi**

Abstract **xii**

1 Introdução **1**

2 Motivação Experimental **6**

2.1 Introdução 6

2.2 Medidas de Refletividade 6

2.3 Experimento de Emissão THz 10

3 Modelo Teórico **15**

3.1 Introdução 15

3.2 Equação de Boltzmann 16

3.3 Equações Hidrodinâmicas 17

3.4 Equação de Poisson 19

3.5 Equações de Born & Huang 21

3.6 Sistema de Equações 22

3.7 Modos Normais 24

4 Análise Numérica **32**

4.1 Introdução 32

4.2 Método das Diferenças Finitas 32
4.3 Análise de Estabilidade Linear 38

5 Simulações e Discussões **42**
5.1 Introdução 42
5.2 Simulando Acoplamento Plásmon-Fônon 42
5.3 Campo de Radiação na Aproximação de Dipolo. 53
5.4 Simulando Emissão de Radiação 56

6 Conclusão **63**

A Equações Hidrodinâmicas **66**

B Calculo dos coeficientes b_{ij}. **71**

C Equação de Onda para o Campo de Plasma **74**

D Programação em Fortran **82**

Referências Bibliográficas **88**

Lista de Figuras

2.1 Esboço da montagem experimental utilizada para medir modulações eletro-ópticas da refletividade. Essas modulações ocorrem após a fotoexcitação e se devem ao acoplamento plásmon-fônon. O primeiro pulso *pump* excita a amostra e o segundo *probe* mede variações da refletividade como função do atraso Δt com relação ao *pump*. Para medir a reflexão do segundo pulso utiliza-se um fotodetector. 7

2.2 (a) Variações da refletividade de uma amostra de n-GaAs excitada por luz. As densidades n_{exc} são geradas pelo *pump*. Observamos que a modulação na refletividade é função de n_{exc}. (b) Transformada de Fourier dos sinais em (a). Observamos dois picos L_+ e L_- correspondentes à dinâmica plásmon-fônon e um terceiro pico na freqüência de fônon LO [3]. 8

2.3 Montagem experimental utilizada nos experimentos de emissão de radiação. O pulso (1) excita a amostra gerando pares elétron-buraco. O campo elétrico gerado pelos fotoportadores excita modos infravermelhos da rede. Como modos infravermelhos criam dipolos, a oscilação da rede emite radiação. Reflete-se a radiação por um par de espelhos paraboloidais focando-a sobre uma antena. O pulso (2) aciona a antena com uma defasagem Δt em relação ao pulso (1). Assim observa-se o campo irradiado em diferentes instantes após a fotoexcitação. 11

2.4 (a) Rede do Telúrio vista no plano xy. O eixo c é perpendicular a esse plano. Os três círculos coloridos correspondem a três átomos de Telúrio. (b) Cada trio de átomos pertence a uma célula unitária e estão dispostos numa hélice em torno do eixo c. No modo de simetria A_2 as oscilações da rede são paralelas a c. Nos modos de simetria E suas oscilações são perpendiculares a c. 12

2.5 Resultados experimentais para emissão THz [5]. Em (a) vemos o campo irradiado pela superfície $c_\perp$ do Telúrio. O primeiro ciclo de grande amplitude foi gerado pela corrente transiente que surge logo após a fotoexcitação. Essa corrente se deve ao gradiente da densidade de portadores gerado pelo decaimento exponencial do laser. As oscilações seguintes se devem a fônons. (b) Transformada de Fourier do campo irradiado. Observamos um pico abaixo de TO gerado pela corrente transiente e outro em LO devido a fônons. O mínimo em TO está relacionado ao polo da função dielétrica em ν_{TO}. 14

3.1 Curva de modos normais plásmon-fônon como função da densidade n_0 obtidas com parâmetros do GaAs. Para freqüências positivas temos $Re(\omega_+)$ e $Re(\omega_-)$ para diferentes valores de k. No caso $k = 0$ obtemos as curvas de modos para plasma homogêneo. Observe que essas curvas em altas e baixas densidades tendem para as freqüências desacopladas ν_{pl}, ν_{LO} e ν_{TO} indicadas pelas curvas pontilhadas. Portanto nesses dois limites o sistema tende a se desacoplar. Na parte negativa do eixo de freqüências vemos $Im(\omega_+)$ e $Im(\omega_-)$. Em torno de 6.2x10^{17}cm^{-3} as duas curvas assumem os mesmos valores indicando que o plasma e o fônon amortecem juntos. Em altas e baixas densidades as curvas se separam. Uma vai para próximo de zero devido ao fraco amortecimento de fônon dado por $\tau_f = 4$ ps. A outra converge num valor finito devido ao forte amortecimento do plasma dado por $\tau = 100$ fs. Os valores de $k = \frac{2\pi}{50}$nm^{-1} e $k = \frac{2\pi}{20}$nm^{-1} foram escolhidos de acordo com o comprimento da camada de depleção (de 20 nm a 50 nm). Note que para $k = \frac{2\pi}{20}$nm^{-1} o ramo $Re(\omega_-)$ assume valores no "gap" de freqüências e está bem próxima de ν_{LO} para todo n_0. Isso mostra que com o aumento de k o sistema tende a se desacoplar. 28

4.1 (a)Representação do plano (x, t) em forma de uma malha. Uma função $f(x, t)$ só assume valores sobre os pontos pretos. (b) Mostramos em azul os pontos utilizados no cálculo numérico, quando a iteração estiver em $n = 3$ e $j = 4$. O retângulo tracejado indica os pontos de valores iniciais. 33

4.2 Fator de amplificação como função da temperatura para elétrons (a) e do campo E^0 (b). Em (a) fixamos $E^0 = 10$ kV/cm e em (b) utilizamos $T_e = 343$ K. Como $|\xi_\pm|$ aumenta com a temperatura e com o campo, a divergência deve ocorrer mais rápido em temperaturas e campos maiores. Verificamos o comportamento dado em (a) na Fig.(4.3). 41

4.3 (a)Derivada da densidade eletrônica como função do tempo para parâmetros típicos do GaAs e diferentes temperaturas T_e. Observe que quanto maior T_e mais rápido há divergência. Isso está relacionado ao aumento de $|\xi_\pm|$ com a temperatura. Em (b) ilustramos a divergência exponencial de $\frac{\partial n_e}{\partial t}$ para $T_e = 2000$ K. 41

5.1 (a)Perfil do campo elétrico em t=0 (linha tracejada) e em 2ps após a excitação (linha contínua). O perfil do campo vai a zero mais rápido após a fotoexcitação, mostrando que o campo superficial foi blindado pelos fotoportadores. (b) Dinâmica do campo em x =4 nm para diferentes densidades de excitação da amostra. Note que quanto maior n_{exc} mais o campo é blindado. As oscilações se devem ao acoplamento plásmon-fônon. A linha tracejada em (b) representa o pulso de excitação em $x = 4$ nm. 45

5.2 Gráficos da derivada temporal do campo elétrico para diferentes densidades $n_e(= n_{e(exc)} + n_{e(dop)})$ em (a) $x = 4$ nm (b) e $x = 300$ nm, e suas respectivas transformadas de Fourier. Para $x = 4$ nm todas as curvas apresentam oscilações fracamente amortecidas que permanecem por todo o sinal. Para $x = 300$ nm o mesmo não ocorre. Para as densidades 5.9x10^{17} cm^{-3} e 7.4x10^{17} cm^{-3} vemos claramente que o sinal amortece rápidamente chegando a amplidutes desprezíveis nessa escala em $\sim$ 2.5 ps. Portanto os gráficos em (b) concordam com as curvas de $Im(\omega_\pm)$, que preveem um máximo amortecimento em torno de 6.2x10^{17} cm^{-3}. As oscilações fracamente amortecidas para qualquer densidade em (a) geram o pico próximo a ν_{LO} em (c). Esse pico não pode ser explicado pela análise de modos com $k = 0$; recorremos a $k \neq 0$ para justificá-lo. Os picos L_+ e L_- que aparecem tanto em (c) quanto em (d) correspondem aos dois ramos de modos normais obtidas para $k \sim 0$. 47

5.3 (a) Variações da refletividade de uma amostra de n-GaAs excitada por luz. As densidades n_{exc} são geradas pelo *pump*. Observamos que a modulação na refletividade é função de n_{exc}. (b) Transformada de Fourier dos sinais em (a). Observamos dois picos L_+ e L_- correspondentes à dinâmica plásmon-fônon e um terceiro pico na freqüência de fônon LO [3]. 48

5.4 Comparação das transformadas de Fourier $E(x,t)$ em $x = 4$ nm considerando somente movimento de elétrons (linha pontilhada) e de elétros mais buracos (linha contínua). Observe que a curva somente para elétrons não apresenta a banda larga abaixo de L_-, indicando que essa banda se deve aos buracos. 49

5.5 (a) Transformada de Fourier do campo elétrico em $x = 4$ nm com $n_{exc} = 1\text{x}10^{18}$ cm^{-3}, $n_{dop} = 3\text{x}10^{17}$cm^{-3} e diferentes valores de τ. Com a diminuição de τ os picos L_+ e L_- desaparecem, permanecendo apenas o pico próximo a ν_{LO}. Isso mostra que esse pico vem de um fraco acoplamento plásmon-fônon, o que só é possível nessa densidade para $k \neq 0$. (b) Transformada de Fourier do campo elétrico em $x = 4$ nm e 200 nm com parâmetros do Telúrio e τ =10 fs. No caso $x = 4$ nm o gráfico se assemelha ao do GaAs, enquanto para $x = 200$ nm vemos apenas uma banda larga com um mínimo em ν_{TO}. Isso mostra que o pico em ν_{LO} se deve a efeitos da não homogeneidade superficial do plasma. 50

5.6 (a) Gráfico de $S(t)$ para diferentes densidades de excitação e (b) sua respectiva transformada de Fourier utilizando parâmetros do GaAs. Observe que a blindagem do "campo médio" é mais efetiva quanto maior a densidade de excitação. Como a integração de $S(t)$ envolve uma grande parte de plasma homogêneo pois α^{-1} é muito maior do que o comprimento da camada de depleção, o pico em ν_{LO} é suprimido. O alargamento do pico L_+ se deve às menores densidades no interior do material. 52

5.7 Resultados experimentais para emissão THz [5]. Em (a) vemos o campo irradiado pela superfície $c_\perp$ do Telúrio. O primeiro ciclo de grande amplitude foi gerado pela corrente transiente que surge logo após a fotoexcitação. Essa corrente se deve ao gradiente da densidade de portadores gerado pelo decaimento exponencial do laser. As oscilações seguintes se devem a fônons. (b) Transformada de Fourier do campo irradiado. Observamos um pico abaixo de TO gerado pela corrente transiente e outro em LO devido a fônons. O mínimo em TO está relacionado ao polo da função dielétrica em ν_{TO}. 54

5.8 Ilustração dos vetores envolvidos no cálculo de radiação. O vetor **x** é normal à superfície semicondutora, o vetor **r** indica a posição do detector relativa a superfície, e **p** indica a polarização da radiação. 55

5.9 Componentes não-polarizada, p e s polarizadas da radiação emitida pela superfície $c_\perp$ do Telúrio [12]. Observe que as curvas não-polarizadas e p-polarizadas se assemelham, em contraste com a s-polarizada. 56

5.10 (a) Perfil da densidade de elétrons (preto) e buracos (vermelho) em instantes diferentes. Os perfís se alargam com o tempo devido a difusão dos portadores para o interior do material. Observe que n_e se alarga mais rápido do que n_h gerando o campo de separação de cargas visto em (b). Esse campo é responsável pela excitação do modo $A_{2,LO}$ e subseqüênte emissão THz. 58

5.11 (a) Campo irradiado pela superfície $c_\perp$ do Telúrio. Observe um primeiro ciclo de grande amplitude, seguindo de modulações menores. A linha preta corresponde a emissão de radiação sem considerar fônons. Observe que as duas curvas estão superpostas no primeiro ciclo, indicando que esse ciclo se deve ao plasma. Na transformada de Fourier do campo (b) observam-se dois picos: um abaixo de ν_{TO} e outro exatamente em ν_{LO}, além de um mínimo em ν_{TO} semelhantemente ao experimento. A banda larga em preto corresponde a transformada de Fourier da emissão só de plasma. As curvas verde e preta coincidem em baixas e altas freqüências, indicando que a contribuição de fônon para o sinal só ocorre em torno das freqüências ópticas. O pico em ν_{LO} se deve a não homogeneidade do plasma na superfície. 59

5.12 (a) Campo irradiado para diferentes densidade de excitação e $T_{e(h)}$ fixo e (b) diferentes $T_{e(h)}$ é uma única densidade de excitação. (c) e (d) Transformadas de Fourier de (a) e (b), respectivamente. Notamos que diminuindo a densidade ou a temperatura o sinal perde amplitude. No caso (c) vemos que a amplitude diminui mas o pico próximo a ν_{LO} permanece bem definido. Já no caso (d) esse pico tende a desaparecer sob a banda larga. Isso mostra que esse pico tem relação com a temperatura. Mas como a temperatura aparece nas equações de corrente multiplicadas pelo gradiente da densidade de portadores, concluimos que sua origem está na não homogeneidade longitudinal do plasma. 62

C.1 Gráficos de três termos da equação da corrente para elétrons. Utilizamos parâmetros típicos de nossas simulações (adotados para o GaAs). Notamos que os dois primeiros termos (corrente de arraste e difusão) são aproximadamente iguais, enquanto o t_3 é aproximadamente zero. Com isso vemos que é válido desprezar o t_3 em nossa análise. 75

C.2 Gráfico de n_e(4nm,t) para uma dopagem fixa n_{dop} =3x10^{17} cm^{-3} e diferentes densidades de excitação, n_{exc} =4x10^{17} cm^{-3} (verde), 6x10^{17} cm^{-3} (vermelho) e 1x10^{18} cm^{-3} (preto). O valor inicial de n_e é uma constante dada pela camada de depleção do GaAs. Com a fotoexcitação essa densidade aumenta rapidamente, passando a oscilar em torno de uma nova densidade $n_0 = (n_{e(exc)} + n_{e(dop)})$ com uma pequena amplitude $\delta n_e(x,t)$. Linearizamos nossos cálculos assumindo $\delta n_e(x,t) = 0$ em ω_{pl}^2. 79

C.3 Transformadas de Fourier do campo elétrico em $x = 4$ nm e $x = 300$ nm com parâmetros do GaAs e do Telúrio obtidas analiticamente (resolvendo-se a Eq.(C.9) mais a equação de oscilador para a rede). Em $x = 4$ nm observamos um pico em ν_{LO} nos dois casos. Para $x = 300$ nm vemos os picos L_+ e L_- para o GaAs e apenas um banda larga no Telúrio. Essa diferença se deve ao τ adotados nos dois casos. No GaAs utilizamos $\tau = 100$ fs enquanto no Telúrio $\tau = 10$ fs. A linha pontilhada em verde é o gráfico de $E_{k=0}(\omega)$. Note que $E_{k=0}(\omega)$ e E(300nm,ω) coincidem. Portanto o pico em ν_{LO} se deve a dependência espacial de $f(x,\omega)$, relevante na posição $x = 4$ nm. 81

Resumo

Após a excitação de uma amostra semicondutora por um pulso ultracurto, os fotoporadores interagem com a rede excitando modos longitudinais ópticos. Essa interação provoca variações no índice de refração do material, produzindo modulações na resposta óptica do meio (efeito eletro-óptico). Por outro lado, esta dinâmica origina polarizações dependentes do tempo o que gera emissão de radiação terahertz.

Experimentos recentes (*pump-probe*) observaram modulações do campo através de medidas da refletividade resolvidas no tempo. A refletividade e o campo estão relacionados segundo o efeito eletro-óptico. Também resolve-se temporalmente o campo irradiado pela amostra, através de antenas que operam na faixa de terahertz. Tanto as medidas eletro-ópticas quanto de emissão terahertz fornecem informações sobre a interação dinâmica do plasma com a rede após a excitação óptica.

Nesse trabalho simulamos a interação dinâmica de plasma e fônons em n-GaAs e Telúrio ("bulk") após estes serem excitados por um pulso ultracurto. Utilizamos equações hidrodinâmicas para descrever transporte de cargas e uma equação fenomenológica de oscilador harmônico forçado, para descrever oscilações longitudinais ópticas da rede. Complementando nossa descrição temos a equação de Poisson, com a qual calculamos o campo gerado pelo plasma e pela polarização da rede semicondutora. Essas equações constituem um sistema de seis equações diferencias (quatro parciais) acopladas. Para resolvê-las utilizamos o método das diferenças finitas. Do cálculo numérico obtemos a evolução temporal do campo elétrico no interior do material. Com esse campo determinamos as freqüências de oscilação do sistema e calculamos o campo irradiado. Nossos resultados apresentam acordo qualitativo com os experimentos.

Abstract

Above-band-gap optical excitation of semiconductors generates highly non-equilibrium photocarriers which interact with phonons thus exciting vibrational modes in the system. This interaction induces refractive-index changes via the electro-optic effect. Moreover it gives rise to eletromagnetic radiation at characteristic frequencies (terahertz). Both effects have been measured by time-resolved ultrafast spectroscopy.

Recent pump-probe experiments have found strong modulations of the internal electric field through electro-optic measurements. The emitted eletromagnetic radiation has also been detected by a terahertz dipole antenna. Both electro-optic and terahertz emission measurements provide information about the coupled dynamics of photocarriers and phonons.

In this work we simulate the dynamics of plasmon-phonon coupled modes in n-GaAs and Tellurium (bulk) following ultrafast laser excitation. The time evolution of the photocarrier densities and currents is described semiclassically in terms of the moments of the Boltzmann equation. Phonon effects are accounted for by considering a phenomenological driven-harmonic-oscillator equation which is coupled to the electron-hole plasma via Poisson's equation. These equations constitute a coupled set of differential equations. We use finite differencing to solve these equations. From the numerical results for the evolution of internal fields we can calculate both the characteristic frequencies of system and its terahertz radiation spectrum. Our results are consistent with recent experimental data.

Capítulo 1

Introdução

Experimentos recentes evidenciaram a interação dinâmica de plasma e fônon em semicondutores excitados por luz. Nestes experimentos excita-se uma amostra semicondutora com um pulso ultracurto (50 fs) gerando pares elétron-buraco. Estes fotoportadores interagem com a rede modificando as propriedades ópticas do material (e.g. refletividade) e/ou emitindo radiação na faixa de terahertz. Uma classe de experimentos mede as modulações ópticas e outra a radiação emitida. Ambas fornecem informações sobre a interação dos portadores (plasma) com a rede (fônons). O objetivo desse trabalho é simular a interação do portadores com a rede, visando um acordo qualitativo com resultados experimentais.

Após a geração ótica de elétrons e buracos em semicondutores, estes se acoplam fortemente a modos de vibração longitudinais ópticos (LO). Este acoplamento ocorre das seguintes formas: *(i) Semicondutores com camada de depleção (e.g., n-*GaAs*).* Nestes os fotoportadores blindam o campo de depleção. Através dessa blindagem a rede e os fotoportadores interagem originando modos acoplados de plásmon-fônon. *(ii) Semicondutores com camada de depleção desprezível (e.g.,* Telúrio*).* Aqui os fotoportadores criam um campo elétrico no semicondutor, via separação de cargas por difusão. Através desse campo os portadores interagem com a rede excitando modos ópticos. A dinâmica de plasma e fônon provoca variações no índice de refração do meio, produzindo modulações

na refletividade do material (efeito eletro-óptico). Por outro lado também se originam polarizações dependentes do tempo que emitem radiação próxima à freqüência de fônon.

Aqui descrevemos teoricamente a dinâmica dos portadores após a excitação através de equaçõe de transporte derivadas da equação de Boltzmann. Estas equações são complementadas pela equação de Poisson e por uma equação fenomenológica de oscilador harmônico forçado. Através da equação de Poisson levamos em conta o campo elétrico gerado pelos fotoportadores. Este campo dá origem à forças elétricas que excitam modos longitudinais ópticos. Este acoplamento dos portadores aos modos vibracionais da rede é modelado por um oscilador harmônico forçado. Com isso temos seis equações diferenciais acopladas envolvendo as densidades de elétrons e buracos, $n_e(x,t)$ e $n_h(x,t)$, as densidades de correntes para elétrons e buracos, $J_e(x,t)$ e $J_h(x,t)$, o campo elétrico, $E(x,t)$, e o campo de fônons, $w(x,t)$. A solução desse sistema nos fornece todas estas grandezas como função da posição x e do tempo t. Para ver gráficos em três dimensões de $E(x,t)$ e $w(x,t)$ veja [1]. Obtemos o campo irradiado pelo semicondutor, $E_{ir}(t)$, através do campo $E(x,t)$. Comparamos nossos resultados com medidas experimentais através do cálculo de $E(x,t)$ e $E_{ir}(t)$.

Experimentalmente mede-se modulações da refletividade de uma amostra semicondutora fotoexcitada. Essas modulações estão relacionadas ao campo $E(x,t)$ via o efeito eletro-óptico. Experimentos em n-GaAs mostraram que a refletividade, ou o campo $E(x,t)$, oscila nas freqüências de plásmon-fônon [2],[3]. Também se observa emissão de radiação na freqüência de um modo infravermelho ativo do Telúrio. O espectro de emissão consiste de uma banda larga em torno de 1 THz, um pico estreito na freqüência de fônon LO, 2.83 THz, e um mínimo na freqüência de fônon transversal óptico (TO) 2.6 THz [4],[5]. A emissão terahertz em superfície de GaAs não pode ser detectada com as antenas atuais, pois o modo infravermelho ativo do GaAs tem freqüência acima do limite de detecção dessas antenas. Em nossas simulações obtemos $E(x,t)$ e $E_{ir}(t)$ que reproduzem

as mesmas características das medidas eletro-ópticas e emissão terahertz.

Notamos que as seis equações diferencias utilizadas em nosso estudo englobam modelos anteriores, que descrevem transporte de fotoportadores e acoplamento plásmon-fônon. No modelo de Dekorsy *et al.*[6] utiliza-se a *Drift-Diffusion Equation* (DDE) para descrever transporte de portadores. Esta abordagem utiliza apenas o primeiro momento da equação de Boltzmann [1], dado por

$$\frac{\partial n_{e(h)}(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial J_{e(h)}(x,t)}{\partial x} = G(x,t), \tag{1.1}$$

onde $G(x,t)$ é um termo de geração conhecido [2] . Para determinar $J_{e(h)}(x,t)$ calcula-se o segundo momento da equação de Boltzmann na hipótese de regime estacionário. Neste caso temos $\frac{\partial J_{e(h)}}{\partial t} = 0$ e com isso vem

$$J_{e(h)}(x,t) = \mu_{e(h)} E(x,t) n_{e(h)}(x,t) + D_{e(h)} \frac{\partial}{\partial x} n_{e(h)}(x,t), \tag{1.2}$$

onde $\mu_{e(h)}$ é a mobilidade dos elétrons (buracos) e $D_{e(h)}$ o coeficiente de difusão de elétrons (buracos). As Eqs.(1.1) e (1.2) são complementadas pela equação de Poisson,

$$\frac{\partial E(x,t)}{\partial x} = \frac{q}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}(n_h(x,t) - n_e(x,t) \pm n_{dop}), \tag{1.3}$$

onde q é a carga eletrônica, ε_0 a permissividade do vácuo, ϵ_∞ a constante dielétrica e n_{dop} a concentração de dopantes. De (1.3) calcula-se o campo $E(x,t)$ de maneira consistente com a variação de $n_{e(h)}(x,t)$. Nesta descrição simula-se a camada de depleção do semicondutor através do modelo Schottky. Note que não há acoplamento com fônons. Este acoplamento foi tratado por Kuznetsov e Stanton [7], onde se descreve a interação plásmon-fônon

[1] A definição de momento se encontra no segundo capítulo.
[2] Esse termo simula a fotogeração.

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

através de dois osciladores acoplados da forma[3] ,

$$\frac{d^2E_p(t)}{dt^2} + \frac{1}{\tau}\frac{dE_p(t)}{dt} + \omega_{pl}^2 E_p(t) = \omega_{pl}^2(\frac{b_{12}}{\varepsilon_0}w - E_{ext}) \tag{1.4}$$

e

$$\frac{d^2w(t)}{dt^2} + \frac{1}{\tau_f}\frac{dw(t)}{dt} + \omega_{LO}^2 w(t) = \frac{b_{12}}{\epsilon_\infty}(E_p(t) + E_{ext}), \tag{1.5}$$

onde $E_p(t)$ é o campo gerado pelo plasma, E_{ext} um campo externo, ω_{pl} a freqüência de plasma, b_{12} uma constante de acoplamento, ω_{LO} a freqüência do modo LO, e τ e τ_f são tempos de relaxação de momento e de fônon, respectivamente. Nesse modelo ganha-se o acoplamento mas perde-se a camada de depleção e a dependência espacial das grandezas envolvidas.

O nosso modelo tenta complementar as descrições de Dekorsy *et al.* e Kuznetsov e Stanton. Para isso introduzimos um termo de polarização dielétrica na Eq.(1.3). Esse termo é responsável pelo acoplamento plásmon-fônon em nosso modelo. Assim a Eq.(1.3) se torna

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{q}{\varepsilon_0}(n_h + n_e \pm n_{dop}) - \frac{1}{\varepsilon_0}\frac{\partial P_d}{\partial x},$$

onde P_d é a polarização dielétrica. Para calcular P_d em termos de $E(x,t)$ e $w(x,t)$ utilizamos as equações introduzidas por Born e Huang em [8]. Calculamos também o segundo momento da equação de Boltzmann, considerando $\frac{\partial J_{e(h)}}{\partial t} \neq 0$. Com isso o nosso tratamento vai além da DDE e no lugar da Eq.(1.2) temos

$$\frac{\partial J_{e(h)}(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}\frac{J_{e(h)}^2(x,t)}{n_{e(h)}(x,t)} = \frac{q_{e(h)}}{m_{e(h)}^*}n_{e(h)}(x,t)E(x,t) - \frac{k_B T_{e(h)}}{m_{e(h)}^*}\frac{\partial}{\partial x}n_{e(h)}(x,t) - \frac{J_{e(h)}(x,t)}{\tau_{e(h)}}. \tag{1.6}$$

Utilizamos as Eqs.(1.1) e (1.6) para descrever transporte de portadores. Para simular a dinâmica da rede também utilizamos a Eq.(1.5).

[3]As equações seguintes não estão na notação utilizada por Kuznetsov e Stanton. No lugar de E_p eles utilizam uma polarização para o plasma e adotam o sistema CGS.

Um aspecto importante em nossa descrição é que há dependência espacial das grandezas envolvidas. Nossas simulações indicam que a dependência espacial do plasma influencia as freqüências de oscilação do sistema acoplado. Por exemplo, em certos pontos na camada de depleção, onde o plasma não é homogêneo, o sistema oscila em mais de duas freqüências. A não homogeneidade do plasma introduz uma dependência em k (vetor de onda do plasma) na freqüência de oscilação do sistema. Fazendo uma análise de modos normais verificamos que o acoplamento plasmon-fonon diminui com o aumento de k. Isso ocorre porque a blindagem do campo de fônons pelo plasma torna-se menos efetiva com o aumento de k. Entendemos a dependência da blindagem com o vetor de onda através do modelo clássico de Debye-Hückel [9] que está implícito em nosso formalismo.

Quanto ao espectro de emissão, observamos através de $E_{ir}(t)$ que o sistema de Telúrio irradia em ω_{LO} como visto nos experimentos [4],[5]. Como no Telúrio a densidade de fotoportadores não é homogênea, justificamos oscilações em ω_{LO} através da blindagem inefetiva do modo LO pelos fotoportadores. A banda larga próxima a 1 THz tem origem na corrente de difusão gerada por gradientes nas densidades $n_e(x,t)$ e $n_h(x,t)$. O mínimo em ω_{TO} se deve ao polo da função dielétrica nessa freqüência.

Experimentalmente verificam-se modulações da refletividade e emissão terahertz em ω_{LO}. Contudo, essa oscilação em ω_{LO} pode ter origem diversa. Em [7] mostra-se que a não homogeneidade lateral, provocada pela variação da intensidade do laser sobre seu foco, também contribui para oscilações em ω_{LO} em GaAs. Nesse caso, contudo, considera-se apenas o modo $k = 0$. O que se faz é uma média sobre as diferentes densidades ao longo da superfície excitada, verificando-se que em regiões de baixa densidade o sistema oscila com ω_{LO}. Assim, a freqüência ω_{LO}, observada experimentalmente, pode ter contribuição das não homogeneidades longitudinal e lateral. Evidênciais experimentais em n-GaAs indicam que a não homogeneidade lateral é predominante sobre a longitudinal. Para o Telúrio não há evidências experimentais, mas acreditamos que os dois efeitos são relevantes.

Capítulo 2

Motivação Experimental

2.1 Introdução

Duas classes de experimentos estudam a interação dinâmica dos fotoportadores com fônons em semicondutores. Estes experimentos utilizam espectroscopia ultrarápida, para medir fenômenos numa escala de femto a picosegundos. A primeira classe utiliza a técnica "pump-probe" para gerar pares elétron-buraco numa amostra semicondutora e medir os efeitos dessa fotoexcitação. Com essa técnica resolve-se temporalmente as oscilações acopladas de plasma e fônon e se obtem as freqüências de modos normais do sistema. Na segunda classe de experimentos mede-se a radiação emitida pelo semicondutor após a fotogeração, e determina-se a freqüência da radiação emitida. Verifica-se que o semicondutor irradia na freqüência do modo infravermelho ativo.

2.2 Medidas de Refletividade

Figura (2.1) ilustra uma amostra semicundutora e dois pulsos de luz defasados por um certo intervalo de tempo Δt. O pulso (1) é denominado *pump* e serve para excitar a amostra gerando pares elétron-buraco com energia em excesso, i.e., a energia de excitação E_{laser} é um pouco maior do que o "gap" E_{gap}. Esses fotoportadores mais os elétrons de

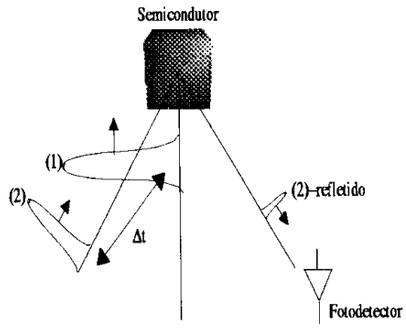

Figura 2.1: Esboço da montagem experimental utilizada para medir modulações eletro-ópticas da refletividade. Essas modulações ocorrem após a fotoexcitação e se devem ao acoplamento plásmon-fônon. O primeiro pulso *pump* excita a amostra e o segundo *probe* mede variações da refletividade como função do atraso Δt com relação ao *pump*. Para medir a reflexão do segundo pulso utiliza-se um fotodetector.

uma possível dopagem tipo n constituem um plasma.

Como o *pump* perde intensidade ao se propagar no interior do semicondutor, cria-se um gradiente na densidade de fotoportadores ao longo do eixo perpendicular à superfície de excitação. Esse gradiente é tanto maior quanto menor for o comprimento de penetração do laser no material (denotaremos esse comprimento por α^{-1}). O fato relevante é que esse gradiente gera correntes de difusão que separa elétrons de buracos, devido a diferença de mobilides dos portadores, gerando um campo elétrico de separação de cargas. Somando-se à corrente de difusão, existem correntes de arraste geradas pelo campo elétrico da camada de depleção do semicondutor.

Devido a este movimento de cargas surgem campos elétricos que excitam modos longitudinais ópticos. Isso dá origem a oscilações acopladas do plasma com a rede. As oscilações plásmon-fônon modulam o campo elétrico no material e com isso a refletividade é modulada via efeito eletro-óptico.

O pulso (2) na Fig.(2.1) ilustra o *probe* que está defasado Δt com relação ao *pump*. Ao incidir na amostra parte do *probe* reflete e é medido por um fotodetector. O sinal refletido informa o quanto variou a refletividade após a excitação. A relação entre a variação da refletividade e o campo elétrico dentro do material é dada pelo efeito eletro-ótico. No

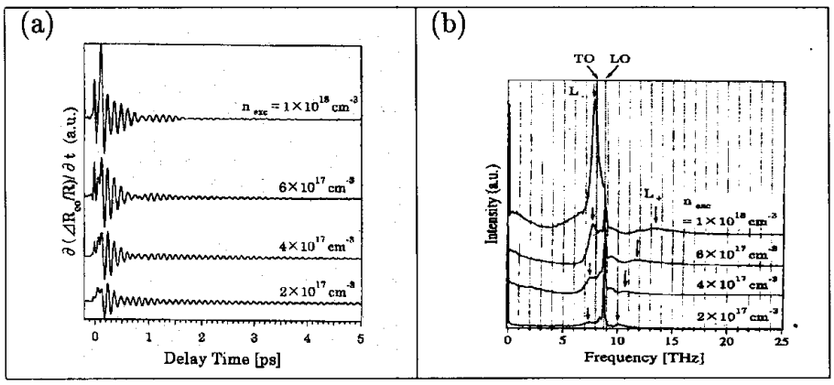

Figura 2.2: (a) Variações da refletividade de uma amostra de n-GaAs excitada por luz. As densidades n_{exc} são geradas pelo *pump*. Observamos que a modulação na refletividade é função de n_{exc}. (b) Transformada de Fourier dos sinais em (a). Observamos dois picos L_+ e L_- correspondentes à dinâmica plásmon-fônon e um terceiro pico na freqüência de fônon LO [3].

efeito eletro-óptico linear temos

$$\frac{\Delta R_{eo}(t)}{R} = s\Delta E(t),$$

onde $\Delta E(t)$ é a variação do campo elétrico, s uma constante dependente do sistema, R a refletividade da amostra antes da fotoexcitação e ΔR_{eo} é o quanto a refletividade variou com a excitação. Para medir $\frac{\Delta R_{eo}(t)}{R}$ alguns experimentos utilizam o efeito eletro-óptico linear enquanto outros se baseiam no efeito eletro-ótico não linear, que relaciona a variação da refletividade com o quadrado do campo elétrico. Em geral, utiliza-se a denominação "Pockels effect" para o caso linear e "Franz-Keldysh effect" para o caso não linear [10].

Figura (2.2)(a) mostra o resultado experimental para uma amostra de n-GaAs com $n_{dop} = 3\text{x}10^{17}\text{cm}^{-3}$ e diferentes densidades de fotoexcitação. Suas oscilações se devem ao acoplamento plásmon-fônon, que modula o campo elétrico e conseqüentemente a refletividade. Determina-se as freqüências de oscilação de $\frac{\Delta R_{eo}(t)}{R}$ por transformada de Fourier. Fig.(2.2)(b) mostra as transformadas de Fourier da Fig.(2.2)(a). Os picos marcados pelas setas correspondem aos modos normais plásmon-fônon. Também indicam-se no gráfico as freqüências transverais e longitudinais ópticas ν_{TO} e ν_{LO}, respectivamente. Observa-

mos que no limite de baixa densidade o pico L_+ tende para a freqüência de fônon ν_{LO}, enquanto no limite de alta densidade o pico L_- tende para a freqüência ν_{TO}. Nesses dois limites o plasma tende a oscilar com a freqüência de plasma ν_{pl}.

Em baixas densidades o plasma não consegue acompanhar o movimento da rede pois sua freqüência de oscilação ν_{pl} é menor do que a freqüência da rede ν_{LO}. Em altas densidades o plasma blinda o campo de polarização dielétrica. Com isso a rede passa a oscilar com ν_{TO}, i.e., ν_{LO} blindado. Verificamos em nossas simulações um comportamento semelhante a esse. O acoplamento plásmon-fônon deve ser máximo quando a freqüência de plasma for igual a de fônon LO, i.e.,

$$\nu_{pl} = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{q^2 n_0}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty \mu}} = \nu_{LO},$$

onde n_0 é a densidade de elétrons e buracos, μ a massa reduzida de elétrons e buracos, q a carga eletrônica, ε_0 a permissividade do vácuo e ϵ_∞ a constante dielétrica. Isso nos dá uma densidade n_0 de aproximadamente $6.2\text{x}10^{17}\text{cm}^{-3}$ para um acoplamento máximo [1] . Quando a densidade estiver muito acima ou abaixo desse valor, o acoplamento deve tender a zero.

Na Fig.(2.2)(b) nota-se um terceiro pico em ν_{LO} que não varia com a densidade. Como o sistema só pode oscilar numa superposição de duas freqüências para cada densidade, um terceiro pico indica que o plasma é não homogêneo. Essa não-homogeneidade pode ocorrer de duas formas: (i) a intensidade do laser varia sobre seu foco na superfície semicondutora [2], criando um gradiente de densidade no plano da superfície (gradiente lateral). (ii) O laser perde intensidade ao penetrar no semicondutor, gerando um gradiente longitudinal da densidade. Kuznetsov & Stanton [7] justificaram esse pico através da

[1] Os parâmetros envolvidos em ν_{pl} serão citados em capítulos futuros.
[2] O *pump* e o *probe* apresentam uma distribuição de intensidade gaussiana sobre seu foco.

não homogeneidade (i). Os autores mostraram que o sinal detectado pode apresentar oscilações em ν_{LO} pois o *probe* mede regiões de alta e baixa densidade sobre a superfície. Assim o sinal é uma espécie de média sobre "ensembles" de diferentes densidades ao longo da superfície. Regiões de baixa densidade são responsáveis pelo pico em ν_{LO}. Em nosso modelo mostramos que a não-homogeneidade longitudinal (ii) também pode gerar um pico em ν_{LO}. Mas em nosso caso não se trata de uma média sobre "ensemble" de densidades variadas. Consideramos uma única densidades mas modos de $k \neq 0$, onde k é o vetor de onda do plasma.

Obtivemos gráficos semelhantes a Fig.(2.2)(b) quanto a posição dos picos, inclusive o pico em ν_{LO}. Porém nossas amplitudes relativas entre os picos L_+ e L_- são diferentes. Verificamos que o pico L_+ tem uma amplitude comparável ao pico L_- em altas densidades, o que não ocorre na Fig.(2.2)(b). Experimentalmente há uma perda de resolução espectral com o aumento da freqüência [2], o que deve diminuir a amplitude do pico L_+. Como numericamente não há essa limitação, preservamos a amplitude desse pico.

Também obtivemos um acordo qualitativo com o amortecimento das modulações de $\frac{\Delta R_{eo}(t)}{R}$. Observe na Fig.(2.2)(b) que para $n_{exc} = 10^{18}\text{cm}^{-3}$ o sistema amortece mais rápido do que para $n_{exc} = 2\text{x}10^{17}\text{cm}^{-3}$. Isso pode ser entendido através da parte imaginária da solução de modos normais do problema.

2.3 Experimento de Emissão THz

Uma outra classe de experimentos que estuda dinâmica de plásma e fônon mede a radiação emitida por uma superfície semicondutora excitada por luz. Estes experimentos complementam a espectrocopia *pump-probe* no estudo da dinâmica da rede. Vale notar que a espectroscopia *pump-probe* mede modos só Raman-ativo ou Raman e Infra-vermelho ativos [3]. Não se observam modos apenas Infra-vermelho por *pump-probe* devido às regras

[3]Os modos TO e LO do GaAs são Raman e infra-vermelho ativos.

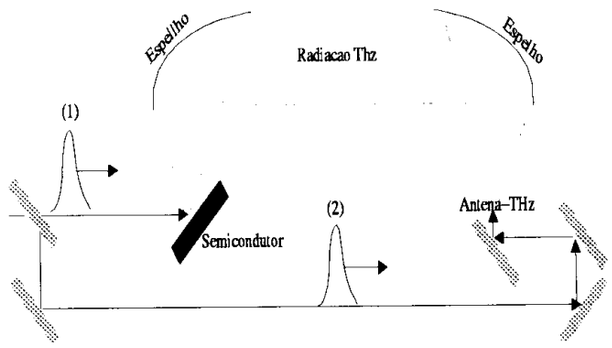

Figura 2.3: Montagem experimental utilizada nos experimentos de emissão de radiação. O pulso (1) excita a amostra gerando pares elétron-buraco. O campo elétrico gerado pelos fotoportadores excita modos infravermelhos da rede. Como modos infravermelhos criam dipolos, a oscilação da rede emite radiação. Reflete-se a radiação por um par de espelhos paraboloidais focando-a sobre uma antena. O pulso (2) aciona a antena com uma defasagem Δt em relação ao pulso (1). Assim observa-se o campo irradiado em diferentes instantes após a fotoexcitação.

de seleção dessa espectroscopia. Utiliza-se emissão de radiação para medir modos apenas Infra-vermelho ativo, uma vez que esses modos criam dipolos oscilantes que irradiam.

Para medir essa radiação utiliza-se a montagem esboçada na Fig.(2.3). O primeiro pulso excita a amostra gerando pares elétron-buraco. Esses fotoportadores criam campos elétricos no material que excitam modos longitudinais ópticos. Aqui ao invés de observar modulações na refletividade mede-se o campo irradiado pela superfície excitada. Na Fig.(2.3) ilustramos um par de espelhos paraboloidais utilizados para desviar a radiação emitida pelo semicondutor e focá-la sobre uma antena que opera na faixa de THz. A tecnologia atual desse tipo de antena restringe as investigações à cristais com modos infravermelhos abaixo de 4THz. A finalidade do segundo pulso é acionar a antena com um certo atraso Δt com relação ao pulso de excitação. Com isso se observa o campo irradiado em diferentes instantes após a fotoexcitação, semelhantemente ao "time delay" da Fig.(2.2)(a).

Monocristais de Telúrio são utilizados com freqüência nos experimentos de emissão THz [4], pois o seu modo Infra-vermelho ativo tem uma freqüência abaixo de 4THz. A

[4] Também utiliza-se InP, PbTe e CdTe [4],[5].

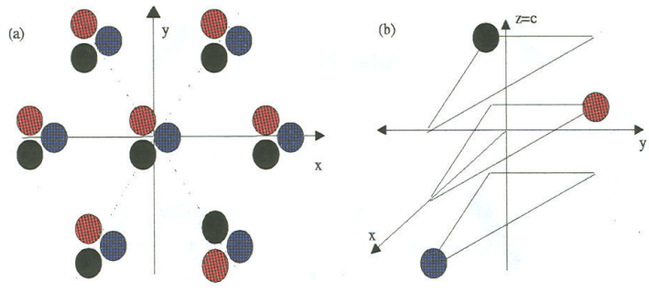

Figura 2.4: (a) Rede do Telúrio vista no plano xy. O eixo c é perpendicular a esse plano. Os três círculos coloridos correspondem a três átomos de Telúrio. (b) Cada trio de átomos pertence a uma célula unitária e estão dispostos numa hélice em torno do eixo c. No modo de simetria A_2 as oscilações da rede são paralelas a c. Nos modos de simetria E suas oscilações são perpendiculares a c.

estrutura cristalina do Telúrio é hexagonal com três átomos por cela unitária, dispostos numa hélice ao longo do eixo de simetria c (veja Fig. (2.4)) [11]. As vibrações ópticas da rede consistem de um modo somente Raman ativo A_1 (3.6 THz), dois modos degenerados Raman e Infra-vermelho ativos ($E^{(1)}_{TO,LO}$:2.76/3.09 THz; $E^{(2)}_{TO,LO}$:4.22/4.26 THz) e um modo somente Infra-vermelho ativo de simetria A_2 ($A_{2\,TO,LO}$:2.6/2.82 THz). Nos modos E a rede oscila prependicularmente ao eixo c enquanto no modo A_2 suas oscilações são paralelas a esse eixo. Utilizam-se técnicas *pump-probe* para medir todos os modos Raman-ativo do Telúrio, i.e., todos menos o modo A_2. Observa-se o modo A_2 somente através de emissão THz [4],[5],[12]. Os modos E por serem Infra-vermelho ativos também são observados por emissão terahertz [4].

Para se observar o modo A_2 incide-se o laser sobre a superfície do cristal perpendicular ao eixo c ($c_\perp$). Nessa geometria, os elétrons e buracos fotogerados se difundem ao longo do eixo c, gerando um campo de separação de cargas. Esse campo deforma a rede devido à piezoeletricidade do Telúrio [13] excitando o modo $A_{2,LO}$. Fig.(2.5)(a) mostra o sinal detectado pela antena-THz em picoAmpere [5]. Esta corrente na antena é gerada pelo campo irradiado pelo Telúrio. A primeira modulação de grande amplitude se deve às correntes de elétrons e buracos geradas pela difusão de portadores logo após a excitação. Verificamos em nossos cálculos que este ciclo se deve apenas ao plasma. As modulações

seguintes são geradas pelo modo $A_{2,LO}$. Outros experimentos excitam a superfície paralela ao eixo c ($c_{||}$) e observam o modo E por emissão THz [4].

Figura (2.5)(b) mostra a transformada de Fourier do sinal em (a). O pico largo em torno de 1 THz corresponde ao primeiro ciclo da Fig. (2.5)(a). O segundo pico em 2.83 THz se deve ao modo $A_{2,LO}$. A amplitude do segundo pico é bem inferior com relação ao primeiro. Na verdade isto é uma evidência de que esse pico tem alta intensidade, pois o sinal medido é uma convolução do campo irradiado com a função resposta da antena. O efeito dessa convolução é reduzir a intensidade do sinal com o aumento da freqüência [4]. Em nossas simulações verificamos que esse pico é de grande amplitude.

Em [5] dá-se uma justificativa para o mínimo em TO no espectro de emissão da Fig.(2.5)(b). Para isso utiliza-se a eficiência da emissão de radiação do semicondutor para o ar. Chama-se eficiência à razão da potência irradiada para o ar pela potência total irradiada, i.e.,

$$G_a(\omega) = \frac{P_a(\omega)}{P_a(\omega) + P_d(\omega)},$$

onde P_a e P_d são as potências irradiadas para o ar e para o dielétrico, respectivamente. Mostra-se em [5] que $G_a(\omega)$ é proporcional ao inverso da função dielétrica de fônon. Como essa função apresenta um máximo em ν_{TO}, a eficiência deve tender a zero nessa freqüência, criando o mínimo no espectro de emissão. Apresentamos uma explicação alternativa para esse minímo também em termos do máximo da função dielétrica em ν_{TO}, mas sem utilizar a definição de eficiência. Mostramos simplesmente que o campo elétrico no interior do semicondutor, $E(x,t)$, varia no domínio de freqüências com o inverso da função dielétrica. Como o campo irradiado $E_{ir}(t)$ é proporcional à $\frac{\partial^2 E(x,t)}{\partial t^2}$ (na aproximação de dipolo), este também deve ir à zero em ν_{TO}.

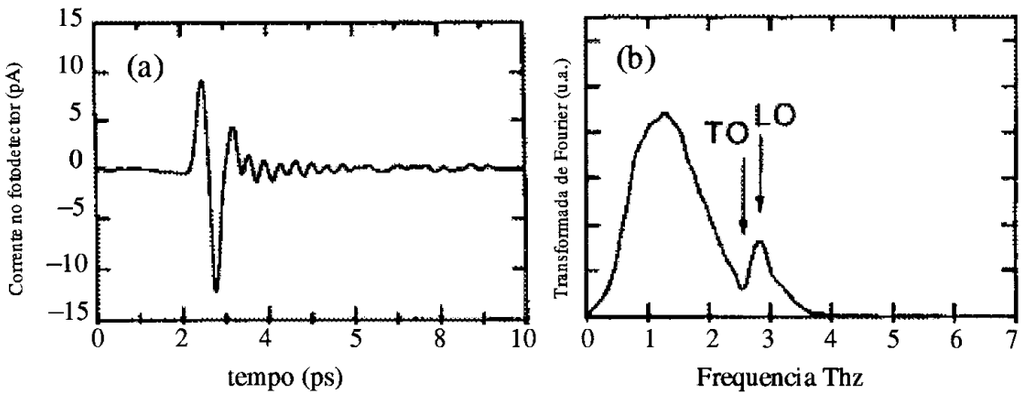

Figura 2.5: Resultados experimentais para emissão THz [5]. Em (a) vemos o campo irradiado pela superfície $c_\perp$ do Telúrio. O primeiro ciclo de grande amplitude foi gerado pela corrente transiente que surge logo após a fotoexcitação. Essa corrente se deve ao gradiente da densidade de portadores gerado pelo decaimento exponencial do laser. As oscilações seguintes se devem a fônons. (b) Transformada de Fourier do campo irradiado. Observamos um pico abaixo de TO gerado pela corrente transiente e outro em LO devido a fônons. O mínimo em TO está relacionado ao polo da função dielétrica em ν_{TO}.

Capítulo 3

Modelo Teórico

3.1 Introdução

Para simular geração de cargas pelo *pump* e a subseqüênte dinâmica transiente dos portadores, utilizamos equações hidrodinâmicas derivadas da equação de transporte de Boltzmann. Estas equações hidrodinâmicas para a densidade de portadores e densidade de corrente são complementadas pela equação de Poisson. Fisicamente, o campo elétrico gerado dá origem à forças elétricas que polarizam a rede induzindo excitações de fônons longitudinais ópticos. Tratamos estes fônons através de uma equação fenomenológica de oscilador harmônico acoplado ao plasma. Este acoplamento do campo elétrico do plasma com os modos vibracionais ópticos fornecem a interação elétron-fônon e buraco-fônon em nossa descrição.

Nosso modelo consiste basicamente de seis equações diferenciais parciais acopladas envolvendo as densidades de elétrons e buracos $n_e(x,t)$ e $n_h(x,t)$, as densidades de correntes para elétrons e buraco, $J_e(x,t)$ e $J_h(x,t)$, o campo elétrico $E(x,t)$ e o campo de fônons $w(x,t)$. A solução desse sistema nos fornece todas estas grandezas como função da posição x e do tempo t.

Uma vez conhecido $E(x,t)$ calculamos sua transformada de Fourier $E(x,\omega)$ para de-

terminar as freqüências de oscilacão do sistema. Uma análise de modos normais nos ajuda a compreender as freqüências obtidas através de $E(x,\omega)$. Nesta análise obtemos $E(k,\omega)$, onde k é o vetor de onda dado pela transformada em x. Mostramos que $E(k,\omega)$ apresenta dois picos em ω que variam com a densidade de portadores e com k. Como $E(x,\omega)$ e $E(k,\omega)$ estão relacionados por uma soma de Fourier, é possível relacionar os pico de $E(k,\omega)$ com os de $E(x,\omega)$.

3.2 Equação de Boltzmann

Seja $f_{e(h)}(\mathbf{r},\mathbf{v},t)$ a função distribuição de um gás de elétrons (buracos) fora do equilíbrio. Sendo $d\mathbf{r}d\mathbf{v}$ um volume infinitesimal do espaço de fase centrado entre $\mathbf{r}$ e $\mathbf{r}$+d$\mathbf{r}$ e $\mathbf{v}$ e $\mathbf{v}$+d$\mathbf{v}$, $f_{e(h)}(\mathbf{r},\mathbf{v},t)d\mathbf{r}d\mathbf{v}$ é o número médio de partículas no volume $d\mathbf{r}d\mathbf{v}$ no instante t. A equação que governa a variação de $f_{e(h)}(\mathbf{r},\mathbf{v},t)$ na presença de uma perturbação externa é a equação de Boltzmann [14],

$$\frac{\partial f_{e(h)}}{\partial t}+\frac{\partial f_{e(h)}}{\partial \mathbf{r}}\cdot\frac{d\mathbf{r}}{dt}+\frac{\partial f_{e(h)}}{\partial \mathbf{v}}\cdot\frac{d\mathbf{v}}{dt}=(\frac{\partial f_{e(h)}}{\partial t})_{coll}. \tag{3.1}$$

O primeiro termo à esquerda é simplesmente a variação explícita da distribuição no tempo. O segundo e terceiro termos estão relacionados ao fluxo de partículas e seu arraste provocado por uma força externa. A derivada $\frac{d\mathbf{r}}{dt}$ é a velocidade de grupo das partículas contidas no volume $d\mathbf{r}d\mathbf{v}$. Na presença de um campo elétrico $\mathbf{E}$ os portadores de massa $m^*_{e(h)}$ e carga $q_{e(h)}$ sofrem a ação da força $q_{e(h)}\mathbf{E}$, e portanto $\frac{d\mathbf{v}}{dt}=\frac{q_{e(h)}\mathbf{E}}{m^*_{e(h)}}$.

O termo à direita na Eq.(3.1) descreve processos de espalhamento dos portadores por fônons, impurezas, etc. Tratamos esse termo na aproximação do tempo de relaxação, i.e. [14],

$$(\frac{\partial f_{e(h)}}{\partial t})_{coll}=-\frac{f_{e(h)}(\mathbf{r},\mathbf{v},t)-f^0_{e(h)}(\mathbf{r},\mathbf{v})}{\tau_{e(h)}}, \tag{3.2}$$

onde $\tau_{e(h)}$ é um tempo de relaxação característico do sistema e $f^0_{e(h)}(\mathbf{r},\mathbf{v})$ é a distribuição

de equilíbrio. Essa aproximação assume que o efeito total dos processos de espalhamento é fazer $f_{e(h)}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ relaxar para a distribuição de equilíbrio.

Devemos notar que simulamos dinâmica transiente em "bulk" (3D). O pulso de excitação *pump* ao incidir numa amostra semicondutora cria portadores em um certo volume dentro do material. As dimensões desse volume são dadas pelo diâmetro (d) do foco do laser sobre o semicondutor ($d \simeq 100\,\mu$m), e pelo comprimento de penetração do laser no material ($\alpha^{-1} \simeq 1\,\mu$m para o GaAs e 40 nm para o Telúrio) [3],[4]. Como d é muito maior do que α^{-1} assumimos que a distribuição de portadores é constante no plano da superfície. Assim a dinâmica ao longo da direção perpendicular à superfície de excitação (denotamos essa direção por $\mathbf{x}$) é muito mais relevante do que paralelamente à superfície. Dessa forma, utilizamos equações de transporte apenas na direção $\mathbf{x}$. Com isso reescrevemos a equação de Boltzmann apenas ao longo de $\mathbf{x}$,

$$\frac{\partial f_{e(h)}(x, \mathbf{v}, t)}{\partial t} + \frac{\partial f_{e(h)}(x, \mathbf{v}, t)}{\partial x} v_x + \frac{\partial f_{e(h)}(x, \mathbf{v}, t)}{\partial v_x} \frac{q_{e(h)} E}{m^*_{e(h)}} = -\frac{f_{e(h)}(x, \mathbf{v}, t) - f^0_{e(h)}(x, \mathbf{v})}{\tau_{e(h)}}, \tag{3.3}$$

onde E é a componente do campo na diração $\mathbf{x}$.

Em nossas simulações não resolvemos diretamente a Eq.(3.3). Aproximamos a solução calculando os dois primeiros momentos da equação de Boltzmann. Estas equações de momentos ou hidrodinâmicas nos fornecem a densidade de partículas (elétrons ou buracos) e a densidade de corrente de partículas. Seguimos com o cálculo dos dois primeiros momentos da equação de Boltzmann.

3.3 Equações Hidrodinâmicas

As equações hidrodinâmicas constituem um conjunto de equações diferenciais parciais acopladas, que utilizamos para descrever conservação e transporte de cargas no semicondutor. Essas equações utilizam a definição de momento da função distribuição. Chama-se

momento de ordem m (m é um inteiro) a integral

$$n(x,t)\,\langle v_x^m\rangle = \int v_x^m f(x,\mathbf{v},t)d^3v, \tag{3.4}$$

onde $n(x,t)$ é a densidade de partículas por unidade de volume, dada por

$$n(x,t) = \int f(x,\mathbf{v},t)d^3v.$$

Vale notar que os momentos não dependem da velocidade, visto que resultam de uma integração nesta variável.

Da Eq.(3.4) vemos que o momento de ordem zero é a densidade de partículas. O momento de ordem um é a corrente de partículas, pois $J_{e(h)}(x,t) = n_{e(h)}(x,t)\,\langle v_x\rangle$. O momento de ordem dois é proporcional a energia cinética ou, pelo teorema da equipartição da energia, à temperatura dos portadores. As equações hidrodinâmicas que utilizamos envolvem apenas os dois primeiros momentos. As demonstrações das duas primeiras equações estão no Apêndice A.

A primeira equação nos fornece o momento de ordem zero, i. e., a densidade de elétrons e buracos como função da posição e do tempo

$$\frac{\partial n_{e(h)}(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial J_{e(h)}(x,t)}{\partial x} = 0. \tag{3.5}$$

Equação (3.5) assegura a conservação de cargas. Em cálculos futuros incluiremos um termo de geração na Eq.(3.5) para simular fotoexcitação de elétrons e buracos.

A próxima equação de momentos fornece a corrente de portadores,

$$\frac{\partial J_{e(h)}(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}\frac{J_{e(h)}^2(x,t)}{n_{e(h)}(x,t)} = \frac{q_{e(h)}}{m^*_{e(h)}} n_{e(h)}(x,t)E(x,t) - \frac{k_B T_{e(h)}}{m^*_{e(h)}}\frac{\partial}{\partial x} n_{e(h)}(x,t) - \frac{J_{e(h)}(x,t)}{\tau_{e(h)}}, \tag{3.6}$$

onde k_B é a constante de Boltzmann e $T_{e(h)}$ é a temperatura para elétrons (buracos).

Assumimos essa temperatura constante no espaço e no tempo. Essa hipótese simplificadora trunca a expansão de momentos na Eq.(3.6). A próxima equação hidrodinâmica forneceria $T_{e(h)}$ como função da posição e do tempo.

A Eq.(3.6) também é uma equação de conservação. Para vermos isso definimos a densidade de momento

$$p_{e(h)} = n_{e(h)} m^*_{e(h)} \left\langle v_{e(h)} \right\rangle ,$$

e reescrevemos a Eq.(3.6) da forma

$$\frac{\partial p_{e(h)}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(\left\langle v_{e(h)} \right\rangle p_{e(h)}) = q_{e(h)} n_{e(h)}(x,t) E(x,t) - k_B T_{e(h)} \frac{\partial n_{e(h)}(x,t)}{\partial x} - \frac{p_{e(h)}}{\tau_{e(h)}}. \quad (3.7)$$

O lado esquerdo da Eq.(3.7) corresponde a uma equação de conservação de momento, onde o termo $\left\langle v_{e(h)} \right\rangle p_{e(h)}$ é um fluxo de momento. O primeiro e segundo termos à direita são forças que geram variação de momento. O primeiro termo é uma força de arraste provocada pelo campo elétrico e o segundo uma pressão de plasma devido à gradientes de concentração. O último termo representa um relaxação de momento, cujo tempo característico varia de dezenas a centenas de femtosegundos.

3.4 Equação de Poisson

Conforme vimos no Cap.(2), medidas da refletividade estão diretamente relacionadas com o campo via efeito eletro-óptico. Assim, da mesma forma que $\frac{\Delta R_{eo}}{R}$, o campo $E(x,t)$ oscila em freqüências características do sistema. Determinamos essas freqüências através da transformada de Fourier de $E(x,t)$. Para calcular o campo utilizamos a equação de Poisson. Como os campos envolvidos no problema estão ao longo de x temos

$$\frac{\partial D(x,t)}{\partial x} = \rho_{ext}, \quad (3.8)$$

onde D é o vetor deslocamento elétrico e ρ_{ext} alguma distribuição de cargas externa ao plasma e a rede. Sendo

$$D = \varepsilon_0 E + P,$$

onde ε_0 é a permissividade elétrica do vácuo e P o campo de plasma mais a polarização dielétrica da rede, i.e., $P = P_{pl} + P_d$, a Eq.(3.8) fica

$$\frac{\partial D(x,t)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x}(\varepsilon_0 E + P) = \rho_{ext},$$

ou

$$\varepsilon_0 \frac{\partial E}{\partial x} + \frac{\partial P_{pl}}{\partial x} + \frac{\partial P_d}{\partial x} = \rho_{ext}.$$

Logo

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{\rho_{ext}}{\varepsilon_0} - \frac{1}{\varepsilon_0}\frac{\partial P_{pl}}{\partial x} - \frac{1}{\varepsilon_0}\frac{\partial P_d}{\partial x}. \tag{3.9}$$

Definimos

$$\frac{\rho_{ext}}{\varepsilon_0} = \frac{\partial E_{ext}}{\partial x}$$

e

$$-\frac{1}{\varepsilon_0}\frac{\partial P_{pl}}{\partial x} = \frac{1}{\varepsilon_0}(q_h n_{dop} + q_h n_h + q_e n_e),$$

onde n_h e n_e são as densidades de partículas determinadas através das equações hidrodinâmicas. n_{dop} representa uma densidade constante dos íons de uma dopagem tipo n. Notamos que $n_e = n_{e(dop)} + n_{e(exc)}$ enquanto $n_h = n_{h(exc)}$. Nas medidas experimentais do Cap.(2) utilizou-se n_{dop} =3x10^{17}cm^{-3} para o n-GaAs. Utilizamos o campo externo E_{ext} para incluir efeitos da camada de depleção do n-GaAs. Com isso (3.9) fica

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{\partial E_{ext}}{\partial x} + \frac{1}{\varepsilon_0}(q_h n_{dop} + q_h n_h + q_e n_e) - \frac{1}{\varepsilon_0}\frac{\partial P_d}{\partial x}. \tag{3.10}$$

A partir das equações de transporte calculamos a evolução temporal da densidade de

portadores. Substituindo essas densidades na equação de Poisson conhecemos também a evolução do campo. O próximo passo é calcular P_d e substituí-lo em (3.10). Para isso utilizamos o sistema de equações acopladas discutido na próxima seção.

3.5 Equações de Born & Huang

Utilizamos as equações discutidas por Born & Huang em [8] para relacionar campo elétrico e deformações longitudinais de um cristal semicondutor. Isso é necessário para acoplar o campo gerado pelos fotoportadores com o modo vibracional da rede na dinâmica plásmon-fônon. Nessa fenomenologia descreve-se vibrações longitudinais da rede através de uma equação de oscilador harmônico forçado pelo campo elétrico no meio. Para isso definimos uma coordenada w que representa "deformações harmônicas" do cristal. Em particular para um cristal diatômico (e.g. GaAs) w é proporcional ao espaçamento relativo entre os dois átomos da base [1]. Em estruturas mais complicadas (e.g. Telúrio) essa visão não é tão simples, mas ainda assim aplicamos o formalismo para descrever modos vibracionais.

A primeira equação, que descreve a dinâmica da rede, é

$$\frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial t^2} = -\omega_{TO}^2 w(x,t) + b_{12} E(x,t), \tag{3.11}$$

onde ω_{TO} é a freqüência de fônon transversal óptica (TO) no limite de longos comprimentos de onda (q=0) e b_{12} é uma constante de acoplamento. Não adotamos notação vetorial para w e E porque assumimos vetores colineares. Embora a freqüência transversal óptica ω_{TO} apareca em (3.11), esta descreve oscilações *longitudinais* ópticas (LO) no limite de longos comprimentos de onda.

Acoplando-se a (3.11) temos uma equação para a polarização P_d em termos de w e do

[1] A dimensão de w é (kg / nm^3)$^{1/2}$nm.

campo elétrico no meio,

$$P_d = b_{21}w + b_{22}E, \tag{3.12}$$

onde b_{21} e b_{22} são constantes. O primeiro termo está relacionado com a criação de momentos de dipolo devido à deformação w. O segundo termo se deve à polarizabilidade atômica. Os cálculos das constantes b_{ij} estão no Apêndice B [2]. Substituimos suas expressões nas Eqs.(3.11) e (3.12), obtendo

$$\frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial t^2} = -\omega_{TO}^2 w(x,t) + \omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}E(x,t), \tag{3.13}$$

e

$$P_d(x,t) = \omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}w(x,t) + \varepsilon_0(\epsilon_0 - 1)E(x,t), \tag{3.14}$$

onde ϵ_0 e ϵ_∞ são constantes dielétricas nos limites de freqüências muito menores e muito maiores do que ω_{TO}, respectivamente.

Substituindo (3.14) na equação de Poisson, acoplamos (3.13) às equações de transporte. Com isso o acoplamento plásmon-fônon fica estabelecido. Na próxima seção resumimos todas as equações utilizadas para simular o acoplamento plásmon-fônon.

3.6 Sistema de Equações

Usamos as equações hidrodinâmicas para calcular densidades e correntes de partículas. Com a equação de oscilador harmônico simulamos as deformações longitudinais da rede no limite de longos comprimentos de onda. Acoplando essas equações temos a equação de Poisson para calcular o campo elétrico gerado pelo plásma e pela polarização da rede. Essas equações constituem um sistema de seis equações diferenciais acopladas.

[2] Mostra-se que $b_{12} = b_{21} = \omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}$ e $b_{22} = \varepsilon_0(\epsilon_0 - 1)$.

Equações da Continuidade:

$$\frac{\partial n_e(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial J_e(x,t)}{\partial x} = G(x,t), \tag{3.15}$$

$$\frac{\partial n_h(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial J_h(x,t)}{\partial x} = G(x,t). \tag{3.16}$$

Equações para Corrente:

$$\frac{\partial J_e(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}\frac{J_e^2(x,t)}{n_e(x,t)} = \frac{q_e}{m_e^*}n_e(x,t)E(x,t) - \frac{k_B T_e}{m_e^*}\frac{\partial}{\partial x}n_e(x,t) - \frac{J_e(x,t)}{\tau_e} \tag{3.17}$$

$$\frac{\partial J_h(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}\frac{J_h^2(x,t)}{n_h(x,t)} = \frac{q_h}{m_h^*}n_h(x,t)E(x,t) - \frac{k_B T_h}{m_h^*}\frac{\partial}{\partial x}n_h(x,t) - \frac{J_h(x,t)}{\tau_h}. \tag{3.18}$$

Equação de Poisson:

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial E_{ext}}{\partial x} + \frac{1}{\varepsilon_0\epsilon_\infty}(q_h n_h + q_e n_e + q_h n_{dop}) - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0\epsilon_\infty}\frac{\partial w}{\partial x}. \tag{3.19}$$

Equação de "vibrações da rede":

$$\frac{\partial^2 w}{\partial t^2} + \frac{1}{\tau_f}\frac{\partial w}{\partial t} + \omega_{TO}^2 w = \omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}E. \tag{3.20}$$

Nas equações da continuidade incluimos o termo $G(x,t)$ para simular fotogeração de portadores. O valor de $G(x,t)$ é o mesmo nas duas equações porque a geração de portadores ocorre em pares, i.e., ao gerar um elétron cria-se também um buraco. Supomos que $G(x,t)$ tem uma forma gaussiana no tempo e decai exponencialmente para o interior do material, simulando assim a atenuação do laser no meio,

$$G(x,t) = N_0 \exp[(t - t_0)/\sqrt{2}\delta]^2 \exp(-\alpha x),$$

onde α^{-1} é o comprimento de atenuação da luz e δ é a meia largura do pulso. Os valores

de α e δ são retirados das referências experimentais. Para o GaAs utilizamos $\delta = \frac{50}{2\sqrt{2\ln 2}}$ fs e α^{-1} =1 μm [2]. Para o Telúrio adotamos $\delta = \frac{120}{2\sqrt{2\ln 2}}$ fs e α^{-1} =40 nm [4]. Note que quanto menor o valor de α^{-1} mais rapidamente o laser perde intensidade para o interior da amostra, e conseqüentemente maior é o gradiente na concentração de portadores. N_0 é um fator de normalização obtido da integral

$$n_{exc} = \int_0^l \int_{-\infty}^{\infty} N_0 \exp[(t - t_0)/\sqrt{2}\delta]^2 \exp(-\alpha x)\, dx\, dt,$$

onde n_{exc} é a densidade de elétrons (ou buracos) fotoexcitados e l o comprimento da amostra ao longo da direção **x**. A expressão para N_0 é

$$N_0 = \frac{n_{exc}}{\sqrt{2\pi}\delta(1 - e^{-\alpha l})}.$$

Nas simulações aproximamos $e^{-\alpha l} \simeq 0$ pois utilizamos l =4 μm e α^{-1} =1 μm para o GaAs, de modo que $(1 - e^{-\alpha l}) \cong 0.98$ e para o Telúrio $\alpha^{-1} = 0.04$ μm de modo que $(1 - e^{-\alpha l}) = 1$.

Na equação de oscilador incluimos o termo $\frac{1}{\tau_f}\frac{\partial w}{\partial t}$ para uma descrição fenomenológica da relaxação de fônons. A relaxação de fônons está relacionado com o decaimento de fônons LO em fônons de mais baixa energia [15]. Pela conservação de energia um fônon LO deve decair em pelo menos dois fônons de mais baixa energia. Isso corresponde a um processo anarmônico envolvendo três fônons. Utilizamos $\tau_f = 4$ ps em nossas simulações de acordo com [15].

3.7 Modos Normais

O sistema acoplado dado pelas Eqs.(3.15)-(3.20) possui freqüências características de vibração. Após a excitação, pelo pulso $G(x,t)$, o sistema começa a oscilar nessas freqüências. Para determiná-las resolvemos numericamente o sistema e calculamos a trans-

formada de Fourier do campo $E(x,t)$. Para uma melhor interpretação das freqüências obtidas, fizemos uma análise linearizada das Eqs.(3.15)-(3.20). Notamos que resolvemos numericamente o sistema sem nenhuma linearização. A hipótese linear é utilizada apenas nesta seção para o cálculo de modos normais. Começamos reescrevendo as equações de transporte mais a equação de Poisson em termos de uma única equação para o campo de plasma [3],

$$\frac{\partial^2 E_p(x,t)}{\partial^2 t} + \frac{1}{\tau}\frac{\partial E_p}{\partial t} + \omega_{pl}^2 E_p = \omega_{pl}^2(E_f(x,t) - E_{ext}) + \frac{k_B T}{m^*}\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2}, \tag{3.21}$$

onde E_p é o campo gerado pelo plasma, $\tau = \tau_e = \tau_h$, $T = T_e = T_h$, $m^* = m_e^* = m_h^*$, $E_f = \frac{b_{12}}{\varepsilon_0} w$ e $\omega_{pl}^2 = \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}(\frac{q_e^2 n_e}{m_e^*} + \frac{q_h^2 n_h}{m_h^*})$. (3.21) é uma equação de onda com termos de restauração, amortecimento e um termo que lhe acopla à rede. Os termos proporcionais aos campos elétricos tem origem na corrente de arraste. O último termo à direita deve-se à difusão. Para uma análise de modos, linearizamos os termos de arraste fazendo $n_e = n_{e(exc)} + n_{e(dop)} = n_0$ e $n_h = 0$, onde n_0 é uma constante. Desprezamos o termo de buracos na freqüência de plasma pois em geral $m_h^* \simeq 10\, m_e^*$.

Acoplando-se à Eq.(3.21) temos a equação de vibração da rede. Multiplicando a Eq.(3.20) por $\frac{b_{12}}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}$, onde $b_{12} = \omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}$, usando a definição de E_f e $E = \frac{E_{ext}+E_p-E_f}{\epsilon_\infty}$ (veja Eq.(3.19)) obtemos

$$\frac{\partial^2 E_f(t)}{\partial t^2} + \frac{1}{\tau_f}\frac{\partial E_f(t)}{\partial t} + \omega_{LO}^2 E_f(t) = (\omega_{LO}^2 - \omega_{TO}^2)(E_p(t) + E_{ext}(t)). \tag{3.22}$$

Equações (3.21) e (3.22) formam um sistema acoplado para E_p e E_f, equivalente às Eqs.(3.15)-(3.20), salvo certas aproximações utilizadas na Eq.(3.21).

[3] A demonstração da próxima equação está no Apêndice C.

Consideremos soluções para (3.21) e (3.22) do tipo

$$E_{e(f)(ext)}(x,t) \sim E^0_{e(f)(ext)}(\omega,k)e^{i(kx-\omega t)}. \tag{3.23}$$

Substituindo (3.23) em (3.21) e (3.22) obtemos o sistema algébrico

$$\begin{bmatrix} -\omega^2 - \frac{i\omega}{\tau} + \omega_{pl}^2 + c^2k^2 & -\omega_{pl}^2 \\ -\omega_{LO}^2 + \omega_{TO}^2 & -\omega^2 - \frac{i\omega}{\tau_f} + \omega_{LO}^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p(k,\omega) \\ E_f(k,\omega) \end{bmatrix} = E_{ext}(k,\omega) \begin{bmatrix} -\omega_{pl}^2 \\ \omega_{LO}^2 - \omega_{TO}^2 \end{bmatrix}. \tag{3.24}$$

De (3.24) calculamos $E_p(k,\omega)$ e $E_f(k,\omega)$ em termos de $E_{ext}(k,\omega)$ e com isso determinamos o campo total

$$E(k,\omega) = \frac{E_{ext}(k,\omega) + E_p(k,\omega) - E_f(k,\omega)}{\epsilon_\infty}.$$

Obtemos

$$E(k,\omega) = \frac{E_{ext}(k,\omega)}{\epsilon_\infty} \frac{(\omega^2 - \frac{i\omega}{\tau_f} - \omega_{TO}^2)(c^2k^2 - \frac{i\omega}{\tau} - \omega^2)}{(\omega_{LO}^2 - \frac{i\omega}{\tau_f} - \omega^2)(\omega_{pl}^2 + c^2k^2 - \frac{i\omega}{\tau} - \omega^2) - \omega_{pl}^2(\omega_{LO}^2 - \omega_{TO}^2)}. \tag{3.25}$$

O numerador tem dois zeros, sendo um deles em ω_{TO}. O denominador de $E(k,\omega)$ é um polinômio de quarta ordem, portanto a solução tem quatro raízes no domínio das freqüências. Essas raízes fornecem as freqüências de oscilação do sistema e um parâmetro de amortecimento. Sua forma é

$$\omega_j = Re(\omega_j) + iIm(\omega_j),$$

onde j =1,2,3 e 4. No domínio do tempo a solução é uma soma de componentes oscilatórias da forma $e^{-i\omega t}$. Assim devemos ter

$$E_{p(f)}(t) \sim e^{-i\omega_j t} = e^{-iRe(\omega_j)t}e^{Im(\omega_j)t}.$$

Veremos que a parte imaginária é sempre negativa e portanto está relacionada a um amortecimento. A parte real é responsável pela freqüência de oscilação do sistema. Note que tanto a parte real quanto a imaginária devem depender da densidade n_0 (que aparece em ω_{pl}) e do vetor de onda k.

Fazendo o gráfio de $Re(\omega_i)$ e $Im(\omega_i)$ descobrimos que

$$Re(\omega_{1,3}) = -Re(\omega_{2,4})$$

e

$$Im(\omega_{1,3}) = Im(\omega_{2,4}).$$

Portanto temos duas freqüências de oscilação para o sistema. A denotaremos por ω_+ e ω_-; sendo $\omega_+ > \omega_-$ para todo n_0 e k.

Figura (3.1) mostra os gráficos de $Re(\omega_+)$ (linhas tracejadas) e $Re(\omega_-)$ (linhas contínuas) como função da densidade n_0 para três valores de k e parâmetros utilizados em simulações futuras, dos quais destacamos $\nu_{TO} = \frac{\omega_{TO}}{2\pi}$=8 THz e $\nu_{LO} = \frac{\omega_{LO}}{2\pi}$=8.8 THz [4]. As linhas pontilhadas indicam os modos desacoplados ν_{LO}, ν_{TO} e ν_{pl} (para $k = 0$) conforme indicações no gráfico.

Para $k = 0$ (linhas pretas) vemos que os ramos $Re(\omega_+)$ e $Re(\omega_-)$ tendem para as curvas pontilhadas nos limites de alta e baixa densidade. Isso mostra que o sistema tende a se desacoplar nesses dois limites. Em baixas densidades a freqüência de plasma é muito menor do que ν_{LO}, de modo que o plasma não consegue acompanhar as oscilações da rede. Em altas densidades o plasma blinda totalmente o campo de polarização da rede, de modo que a freqüência ν_{LO} vai para ν_{TO}, i.e., ν_{LO} blindado. Verificamos isso notando que, se

$$E(x,t) = E_p(x,t) - E_f(x,t) + E_{ext}(x,t) = 0,$$

[4]Esses valores correspondem aos modos TO e LO do GaAs.

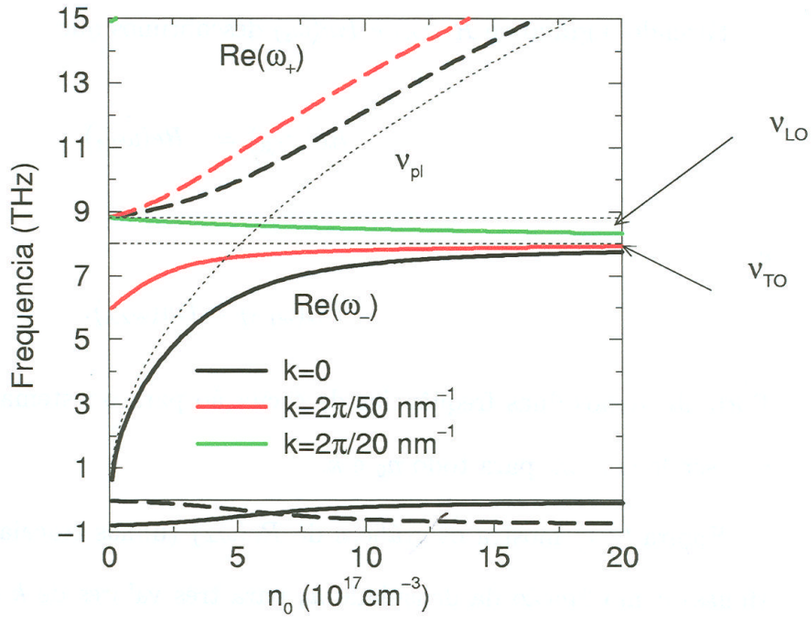

Figura 3.1: Curva de modos normais plásmon-fônon como função da densidade n_0 obtidas com parâmetros do GaAs. Para freqüências positivas temos $Re(\omega_+)$ e $Re(\omega_-)$ para diferentes valores de k. No caso $k = 0$ obtemos as curvas de modos para plasma homogêneo. Observe que essas curvas em altas e baixas densidades tendem para as freqüências desacopladas ν_{pl}, ν_{LO} e ν_{TO} indicadas pelas curvas pontilhadas. Na parte negativa do eixo de freqüências vemos $Im(\omega_+)$ e $Im(\omega_-)$. Em torno de 6.2x10^{17}cm^{-3} as duas curvas assumem os mesmos valores indicando que o plasma e o fônon amortecem juntos. Em altas e baixas densidades as curvas se separam. Uma vai para próximo de zero devido ao fraco amortecimento de fônon dado por $\tau_f = 4$ ps. A outra converge num valor finito devido ao forte amortecimento do plasma dado por $\tau = 100$ fs. Os valores de $k = \frac{2\pi}{50}$nm^{-1} e $k = \frac{2\pi}{20}$nm^{-1} foram escolhidos de acordo com o comprimento da camada de depleção (de 20 nm a 50 nm). Note que para $k = \frac{2\pi}{20}$nm^{-1} o ramo $Re(\omega_-)$ assume valores no "gap" de freqüências e está bem próxima de ν_{LO} para todo n_0. Isso mostra que com o aumento de k o sistema tende a se desacoplar.

ou

$$E_p(x,t) = E_f(x,t) - E_{ext}(x,t),$$

a Eq.(3.22) fica

$$\frac{\partial^2 E_f(t)}{\partial t^2} + \frac{1}{\tau_f}\frac{\partial E_f(t)}{\partial t} + \omega_{TO}^2 E_f(t) = 0,$$

que é um oscilador com freqüência transversal óptica.

As curvas para $k = 0$ são bem conhecidas na literatura [7] e corresponde ao caso de plasma homogêneo. Note que $k = 0$ é equivalente a $\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2} = 0$ na Eq.(3.21). Neste caso a Eq.(3.21) se reduz a um oscilador harmônico acoplado à rede. Portanto o sistema plásmon-fônon passa a ser descrito por dois osciladores acoplados. Um modelo de dois osciladores acoplados já foi utilizado por Kuznetsov e Stanton [7] para descrever dinâmica plásmon-fônon.

Na parte negativa do eixo de freqüências da Fig.(3.1) vemos os gráficos de $Im(\omega_+)$ (linha tracejada) e $Im(\omega_-)$ (linha contínua) obtidos para $k = 0$. Estas curvas mostram como o sistema amortece como função da densidade [5]. Para densidades próximas de 6.2x10^{17} cm^{-3} o sistema amortece de maneira acoplada, i.e., plasma e fônon amortecem juntos. Em baixa e alta densidades uma das curvas tende para um valor próximo de zero (pois τ_f é grande), enquanto a outra vai para um valor finito (devido ao τ). Isso mostra que nesses limites a rede praticamente não é amortecida (ramo que vai a zero) enquanto o plasma tem o seu amortecimento máximo. Com isso vemos que o acoplamento plásmon-fônon por um lado aumenta o "tempo de vida" das oscilações de plasma e por outro diminui o "tempo de vida" das vibrações da rede. Como τ deve variar com a densidade, as curvas de $Im(\omega_+)$ e $Im(\omega_-)$ são aproximadas. Porém nos servem de guia para entender porque na figura experimental (2.2), as modulações de $\frac{\Delta R_{eo}}{R}$ permanecem por mais tempo para $n_{exc} = 2\text{x}10^{17}\text{cm}^{-3}$ do que para 10^{18}cm^{-3}.

Para $k = \frac{2\pi}{50}\text{nm}^{-1}$ (linha vermelha) e $k = \frac{2\pi}{20}\text{nm}^{-1}$ (linha verde) observamos um

[5]Neste gráfico assumimos $\tau = 100$ fs e τ_f =4 ps.

acréscimo na freqüência de ambos os ramos. A medida em que aumentamos k o ramo $Re(\omega_-)$ tende para a freqüência ν_{LO} e $Re(\omega_+)$ vai para a relação de dispersão do plasma $\sqrt{\omega_{pl}^2 + c^2k^2}$. Portanto com o aumento de k o sistema tende a se desacoplar. Isso ocorre porque a função dielétrica do plasma, dada pelo nosso modelo,

$$\epsilon_{pl}(k,\omega) = 1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2 - c^2k^2},$$

tende a *um* com o aumento de k e conseqüêntemente o plasma deixa de blindar o campo de fônon. Note que para $\omega = 0$ temos

$$\epsilon_{pl}(k,\omega) = 1 + \frac{(\frac{\omega_{pl}}{c})^2}{k^2} = 1 + (\frac{k_D}{k})^2,$$

onde k_D é o vetor de onda de Debye-Hückel. Nossa descrição contém a blindagem clássica para plasma *não degenerado* dado pelo modelo de Debye-Hückel, o que é uma boa aproximação para semicondutores no regime "hot-carrier" [9].

A blindagem inefetiva é uma possível explicação para o pico em ν_{LO} no espectro de Telúrio. Como o plasma não é homogêneo o modo LO é fracamente blindado e portanto a rede oscila com ν_{LO}. Para o GaAs esse efeito não deve ser relevante pois o sinal eletro-óptico em GaAs vem de uma região homogênea da amostra.

Notamos que para $k = 0$ e $\tau = \tau_f \to \infty$ a Eq.(3.25) fica

$$E(0,\omega) = E_{ext}(\omega)/\epsilon(0,\omega),$$

onde $\epsilon(0,\omega)$ é a função dielétrica no limite de longos comprimentos de onda e é dada por

$$\epsilon(0,\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 - (\frac{\omega}{\omega_{TO}})^2} - \frac{\omega_{pl}^2\epsilon_\infty}{\omega^2}.$$

Os zeros de $\epsilon(0,\omega)$ fornecem as freqüências de modos normais plásmon-fônon,

$$Re(\omega_\pm) = \omega_\pm = \left\{\frac{1}{2}\left(\omega_{pl}^2 + \omega_{LO}^2 \pm \sqrt{(\omega_{pl}^2 + \omega_{LO}^2)^2 - 4\omega_{pl}^2\omega_{TO}^2}\right)\right\}^{1/2}. \tag{3.26}$$

Neste caso $Re(\omega_\pm) = \omega_\pm$ pois assumimos $\tau = \tau_f \to \infty$ de modo que $Im(\omega_\pm) = 0$. Como em ω_{TO} a constante dielétrica apresenta um polo, o campo $E(0,\omega)$ deve ir a zero nesse valor. Acreditamos que esse polo seja responsável pelo mínimo no espectro de emissão do Telúrio.

Capítulo 4

Análise Numérica

4.1 Introdução

Neste capítulo discutimos o método das diferenças finitas, utilizado para resolver as Eqs.(3.15)-(3.20). Esse método consiste em se discretizar as variáveis x e t, gerando um conjunto de pontos no plano (x, t) que denominamos *malha*. A solução das equações discretizadas poderá divergir se essas forem instáveis. Abordamos a questão da estabilidade através do critério de von Neumann.

4.2 Método das Diferenças Finitas

Diferenças finitas é um método numérico para resolver equações diferenciais parciais e ordinárias [16]. Nesse método discretizamos as variáveis posição e tempo da forma $x = j\Delta x$ e $t = n\Delta t$, onde j e n são inteiros e Δx e Δt são intervalos constantes. Assim, representamos o plano (x, t) por um conjunto discreto de valores, conforme ilustra a Fig.(4.1)(a).

Utilizamos diferenças finitas para calcular derivadas parciais sobre a malha. As expressões de diferenças finitas são obtidas através de uma expansão de Taylor. Seja $f(x, t)$ uma função analítica em torno de um ponto x_0. Sua expansão de Taylor em torno de x_0

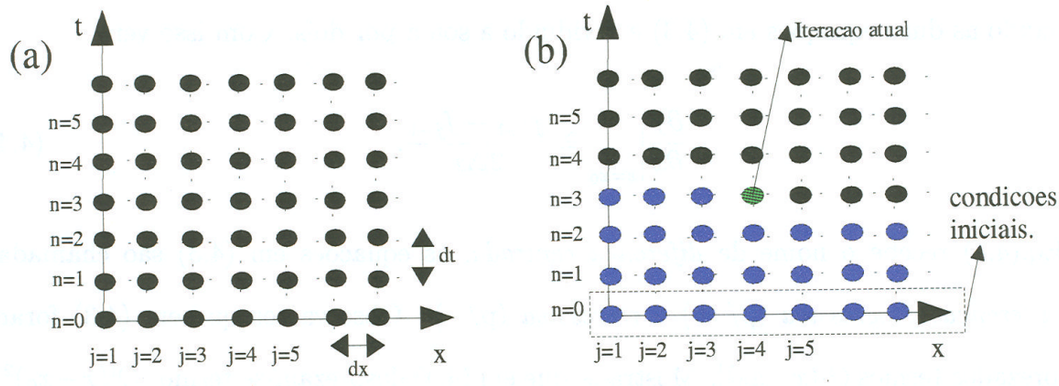

Figura 4.1: (a)Representação do plano (x, t) em forma de uma malha. Uma função $f(x, t)$ só assume valores sobre os pontos pretos. (b) Mostramos em azul os pontos utilizados no cálculo numérico, quando a iteração estiver em $n = 3$ e $j = 4$. O retângulo tracejado indica os pontos de valores iniciais.

para t fixo é

$$f(x) = f(x_0) + \left.\frac{\partial f}{\partial x}\right|_{x=x_0} (x - x_0) + O[(x - x_0)^2], \tag{4.1}$$

onde $O[(x-x_0)^2]$ representa termos de ordem igual e maior do que dois. Não explicitamos a dependência temporal em (4.1).

Da Eq.(4.1) retiramos uma expressão linearizada para a derivada parcial, da forma

$$\left.\frac{\partial f}{\partial x}\right|_{x=x_0} \cong \frac{f(x) - f(x_0)}{(x - x_0)}, \tag{4.2}$$

onde consideramos apenas o termo proporcional a $(x - x_0)$. Como $x = j\Delta x$, escolhemos $x_0 = (j \pm 1)\Delta x$, pois são os dois pontos mais próximos de x na malha. Com isso (4.2) fica

$$\left.\frac{\partial f}{\partial x}\right|_{x=x_0} \cong \frac{f(j\Delta x) - f[(j \pm 1)\Delta x]}{j\Delta x - (j \pm 1)\Delta x} = \begin{cases} \frac{f_{j+1} - f_j}{\Delta x}, \; p/ +, \\ \frac{f_j - f_{j-1}}{\Delta x}, \; p/ -, \end{cases}, \tag{4.3}$$

onde usamos a notação $f(j\Delta x) = f_j$. Obtemos uma terceira aproximação para a derivada

somando as duas equações em (4.3) e dividindo a soma por dois. Com isso vem

$$\left.\frac{\partial f}{\partial x}\right|_{x=x_0} \cong \frac{f_{j+1} - f_{j-1}}{2\Delta x}. \tag{4.4}$$

A Eq.(4.4) recebe o nome de *diferença centrada*, as equações em (4.3) são chamadas de *diferenças progressiva* (p/ +) e *regressiva* (p/ -). Observamos que em (4.3) foram desprezados termos $O[(x-x_0)]$. Mostra-se que em (4.4) desprezam-se termos $O[(x-x_0)^2]$, portanto (4.4) está correta até segunda ordem. Expressões semelhantes são obtidas para a derivada temporal, apenas mudando-se o índice j por n; por exemplo, para o caso progressivo temos

$$\left.\frac{\partial f}{\partial t}\right|_{t=t_0} \cong \frac{f^{n+1} - f^n}{\Delta t}. \tag{4.5}$$

Utilizamos (4.4) e (4.5) para discretizar as equações diferenciais do nosso modelo.

Vale notar que as equações diferenciais podem ser discretizadas por diferenças finitas no esquema explícito ou implícito. Para exemplificar os dois caso tomamos a equação $\frac{\partial f(x,t)}{\partial t} = -c\frac{\partial f(x,t)}{\partial x}$, onde c é uma constante. No caso explícito temos

$$\frac{f_j^{n+1} - f_j^n}{\Delta t} = -c\frac{f_{j+1}^n - f_{j-1}^n}{2\Delta x},$$

onde a função em $n+1$ só aparece no termo de derivação temporal. Assim podemos isolar f_j^{n+1} e calculá-lo diretamente a partir dos seus valores no instante n. No caso implícito temos

$$\frac{f_j^{n+1} - f_j^n}{\Delta t} = -c\frac{f_{j+1}^{n+1} - f_{j-1}^{n+1}}{2\Delta x}.$$

Neste caso não é possível isolar a função no instante $n+1$. Reescrevendo a última equação da forma

$$\frac{c}{2\Delta x}f_{j+1}^{n+1} + \frac{1}{\Delta t}f_j^{n+1} - \frac{c}{2\Delta x}f_{j-1}^{n+1} = \frac{1}{\Delta t}f_j^n,$$

vemos que se trata de um sistema tridiagonal, suplementado pelas condições de contorno

no primeiro e no último ponto da malha. Portando precisamos resolver um sistema linear a cada passo no tempo para o calculo de f_j^{n+1}. Utilizamos o esquema explícito para resolver as equações diferencias (3.15)-(3.20). Seguimos com a discretização dessas equações.

Equações da continuidade:

$$\frac{n_e^{n+1,j} - n_e^{n,j}}{\Delta t} + \frac{J_e^{n,j+1} - J_e^{n,j-1}}{2\Delta x} = G^{n,j}, \tag{4.6}$$

$$\frac{n_h^{n+1,j} - n_h^{n,j}}{\Delta t} + \frac{J_h^{n,j+1} - J_h^{n,j-1}}{2\Delta x} = G^{n,j}, \tag{4.7}$$

Equações para corrente:

$$\frac{J_e^{n+1,j} - J_e^{n,j}}{\Delta t} + \frac{J_e^{n,j}}{n_e^{n,j}} \frac{J_e^{n,j+1} - J_e^{n,j-1}}{\Delta x} - \left(\frac{J_e^{n,j}}{n_e^{n,j}}\right)^2 \frac{n_e^{n,j+1} - n_e^{n,j-1}}{2\Delta x} +$$

$$+ \frac{k_B T_e}{m_e^*} \frac{n_e^{n,j+1} - n_e^{n,j-1}}{2\Delta x} - \frac{q_e}{m_e^*} E^{n,j} n_e^{n,j} = -\frac{J_e^{n,j}}{\tau_e}, \tag{4.8}$$

$$\frac{J_h^{n+1,j} - J_h^{n,j}}{\Delta t} + \frac{J_h^{n,j}}{n_h^{n,j}} \frac{J_h^{n,j+1} - J_h^{n,j-1}}{\Delta x} - \left(\frac{J_h^{n,j}}{n_h^{n,j}}\right)^2 \frac{n_h^{n,j+1} - n_h^{n,j-1}}{2\Delta x} +$$

$$+ \frac{k_B T_h}{m_h^*} \frac{n_h^{n,j+1} - n_h^{n,j-1}}{2\Delta x} - \frac{q_h}{m_h^*} E^{n,j} n_h^{n,j} = -\frac{J_h^{n,j}}{\tau_h}. \tag{4.9}$$

O segundo e terceiro termos nas Eqs.(4.8) e (4.9) se devem a derivada $\frac{\partial}{\partial x}(\frac{J_{e(h)}^2}{n_{e(h)}})$.

A equação do oscilador harmônico é uma equação diferencial de segunda ordem. Mas podemos discretizá-la utilizando o método de diferenças finitas de primeira ordem utilizado acima. Para tanto definimos $\frac{dw}{dt} = v$ o que transforma a equação do oscilador em um sistema acoplado de duas equações diferenciais de primeira ordem,

$$\frac{\partial w}{\partial t} = v,$$

e

$$\frac{\partial v}{\partial t} + \frac{1}{\tau_f} v + \omega_{TO}^2 w = \omega_{TO} \sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)} E.$$

A discretização desse sistema segue de maneira usual, através de diferenças progressivas,

$$\frac{w^{n+1,j} - w^{n,j}}{\Delta t} = v^{n,j}, \tag{4.10}$$

$$\frac{v^{n+1,j} - v^{n,j}}{\Delta t} + \frac{1}{\tau_f} v^{n,j} + \omega_{TO}^2 w^{n,j} = \omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)} E^{n,j}. \tag{4.11}$$

Complementando essas equações, utilizamos o método Runge-Kutta de quarta ordem [17] para resolver a equação de Poisson. Para cada passo no tempo calculamos o campo elétrico em todo o espaço, i.e., para todo j. Com isso obtemos a evolução temporal do campo de maneira consistente com a variação das densidades.

Como temos um problema de valores iniciais, as densidades, correntes, campo elétrico e coordenadas de fônon no instante $n = 0$ são dados para $j = 1, ..., N_L$. Utiliza-se esses valores nas iterações seguintes ($n = 1, 2, ...$). Em particular para simular um semicondutor tipo n, inicializamos a densidade de elétrons no valor da dopagem. Para gerar uma camada de depleção assumimos $E^{n,j} = E_{ext}$ =constante para $n = 0$ e $j = 1, .., N_L$, e propagamos o sistema "dopado" sem incluir fotogeração. Como resultado surge uma camada de depleção em uma superfície (primeiros j) e um acúmulo de elétrons na superfície oposta (últimos j) [1].

O cálculo numérico consiste em dois "loops". Para cada $n + 1$, variamos j de zero até o último ponto espacial da malha. Assim, para calcular o perfil espacial da densidade, campo elétrico, etc., no instante $n = 3$, percorremos todos os valores de j primeiro para $n = 1$, depois $n = 2$ e por último $n = 3$. A Fig.(4.1)(b) ilustra em azul todos os pontos iterados quando o cálculo estiver em $n = 3$ e $j = 4$, por exemplo.

Para que o sistema conserve partículas devemos impor que as correntes de elétrons e

[1] O acúmulo de cargas nos últimos pontos da malha não é relevante em nossas simulações, pois escolhemos N_L de tal forma que $N_L \Delta x$ é grande o suficiente para que esse acúmulo de cargas não influencie nos modos de vibração do sistema em $j = 1, 2, ... \frac{N_L \Delta x}{2}$.

buracos sejam sempre zero nas bordas do sistema, i.e.,

$$J_{e(h)}^{n,j=1} = J_{e(h)}^{n,j=N_L} = 0, \tag{4.12}$$

para $n = 1, 2, ...$ Para garantir a condição (4.12) devemos ter

$$\frac{k_B T_{e(h)}}{m^*_{e(h)}} \frac{n_{e(h)}^{n,2} - n_{e(h)}^{n,0}}{2\Delta x} - \frac{q_{e(h)}}{m^*_{e(h)}} E^{n,1} n_{e(h)}^{n,1} = 0, \tag{4.13}$$

e

$$\frac{k_B T_{e(h)}}{m^*_{e(h)}} \frac{n_{e(h)}^{n,N_L+1} - n_{e(h)}^{n,N_L-1}}{2\Delta x} - \frac{q_{e(h)}}{m^*_{e(h)}} E^{n,N_L} n_{e(h)}^{n,N_L} = 0, \tag{4.14}$$

nas Eqs.(4.8) e (4.9) para todo n. Como $n_{e(h)}^{n,0}$ e $n_{e(h)}^{n,N_L+1}$ não fazem parte do sistema, i.e., não pertencem à malha (observe na Fig.(4.1) que iniciamos em $j = 1$), escolhemos os seus valores de modo a satisfazer (4.13) e (4.14). Assim obtemos um perfil de corrente que vai suavemente à zero nas bordas do sistema.

O cálculo de $n_{e(h)}^{n,j}$ nos pontos $j = 1$ e $j = N_L$, através das Eqs.(4.6) e (4.7) requer os valores de $J_{e(h)}^{n,j}$ nos pontos $j = 0$ e $j = N_L + 1$. Podemos resolver esse problema de duas formas. Na primeira utilizamos diferenças progressivas para $j = 1$ ($\frac{J_e^{n,2} - J_e^{n,1}}{\Delta x} = \frac{J_e^{n,2}}{\Delta x}$) e regressiva para $j = N_L$ ($\frac{J_e^{n,N_L} - J_e^{n,N_L-1}}{\Delta x} = -\frac{J_e^{n,N_L-1}}{\Delta x}$). Assim "evitamos" $j = 0$ e $j = N_{L+1}$. Num procedimento alternativo (mas totalmente equivalente) continuamos usando diferença centrada mas definimos $J_e^{n,0} = -J_e^{n,2}$ e $J_e^{n,N_L+1} = -J_e^{n,N_L-1}$. Neste caso obtemos para $j = 1$

$$\frac{J_e^{n,2} - J_e^{n,0}}{2\Delta x} = \frac{J_e^{n,2}}{\Delta x},$$

e para $j = N_L$

$$\frac{J_e^{n,N_L+1} - J_e^{n,N_L-1}}{2\Delta x} = -\frac{J_e^{n,N_L-1}}{\Delta x}.$$

Observe que o resultado final é o mesmo das duas formas.

4.3 Análise de Estabilidade Linear

Seja $f(x,t)$ uma solução analítica de um problema de valores iniciais e f_j^n a solução da equação de diferenças finitas correspondentes. Para saber como se comporta o erro de aproximação, $f_j^n - f(j\Delta x, n\Delta t)$, como função do tempo e dos parâmetros Δx e Δt, utilizamos o critério de estabilidade de von Neumann. Diz-se que uma solução numérica f_j^n é estável se $[f_j^n - f(j\Delta x, n\Delta t)] \rightarrow 0$ com n. Caso divirga a solução é instável.

O critério de estabilidade de von Neumann assume que a solução discretizada pode ser escrita numa combinação linear da forma

$$f_j^n = \sum_m A_m [\xi(m)]^n e^{imj\Delta x}, \tag{4.15}$$

onde A_m e $\xi(m)$ são constantes para cada m. Ao substituirmos essa solução nas equações de diferenças finitas, criamos um vínculo para $\xi(m)$ que garante a validade de (4.15). A hipótese central desse critério é a dependência temporal da solução (4.15) dada pela sucessão de potências inteiras de $\xi(m)$. Assim, se $|\xi(m)| > 1$ para qualquer m, a medida em que n aumentar a solução diverge exponencialmente. Neste caso diz-se que a solução numérica é instável. Caso contrário a solução será dita estável. Em geral chama-se $\xi(m)$ de *fator de amplificação* [18].

Aplicamos o critério de von Neumann para estudar a estabilidade das equações de transporte. Como esse critério se aplica a equações lineares, devemos primeiro linearizar as equações de corrente. Para isso assumimos $E_j^n = E^0$ =constante, desacoplando as equações hidrodinâmicas das demais. Também desprezamos o termo $\frac{\partial}{\partial x}\frac{J_{e(h)}^2(x,t)}{n_{e(h)}(x,t)}$ por ser muito menor do que os termos de geração de corrente (veja Apêndice C). Como temos um sistema de equações para $n_{e(h)}$ e $J_{e(h)}$, aplicamos o procedimento de von Neumann

assumindo soluções da forma

$$\begin{bmatrix} n_e \\ J_e \end{bmatrix} = \xi^n e^{i\beta j\Delta x} \begin{bmatrix} n^0 \\ J^0 \end{bmatrix}, \tag{4.16}$$

onde n^0 e J^0 são contantes. Consideramos soluções semelhantes para a densidade e corrente de buracos. Substituindo (4.16) nas Eqs.(4.6) e (4.8) obtemos

$$\begin{bmatrix} \frac{\xi-1}{\Delta t} & \frac{i\sin(m\Delta x)}{\Delta x} \\ \frac{ik_bT_e}{m_e^*}\frac{\sin(m\Delta x)}{\Delta x} - \frac{q_eE^0}{m_e^*} & \frac{1}{\tau} + \frac{\xi-1}{\Delta t} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} n^0 \\ J^0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}. \tag{4.17}$$

O sistema (4.17) admite solução não trivial somente se o determinante da matriz à esquerda for nulo. Essa condição nos leva à seguinte expressão para o fator de amplificação,

$$\xi_\pm = 1 - \frac{\Delta t}{2\tau}\{1 \pm \sqrt{1 - \frac{4k_BT_e\tau^2}{m_e^*\Delta x^2}\sin^2(m\Delta x) - \frac{i4q_eE^0\tau^2}{m_e^*\Delta x}\sin(m\Delta x)}\}. \tag{4.18}$$

A condição de estabilidade $|\xi| < 1$ deve ser satisfeita pelas duas raízes.

Verificamos que para qualquer conjunto de parâmetros utilizados, uma das raízes é sempre maior ou igual a um. Para exemplificar, Fig.(4.2) mostra o gráfico de $|\xi_\pm|$ como função da temperatura (a) e do campo E^0 (b) utilizando $m = 1$ e parâmetros típicos do GaAs [2]. Como $|\xi_-|$ é sempre maior do que um, concluimos que o método de diferenças finitas é sempre instável e portanto a solução das equações hidrodinâmicas diverge. Apesar disso, resolvemos as equações diferenciais pelo método das diferenças finitas, utilizando um conjunto de parâmetros que aproxima $|\xi_-|$ de um. Note que o fator de amplificação cresce com T_e e E^0, mostrando que a solução numérica diverge cada vez mais rápido com o aumento da temperatura e do campo.

Para ilustrar a divergência do cálculo numérico, iteramos as equações de transporte para diferentes temperaturas T_e. Nesse cálculo não linearizamos a equação de corrente e

[2] Tais parâmetros serão discutidos em seções futuras.

incluimos também a equação de Poisson. Apesar de utilizarmos equações não lineares, os resultados obtidos estão de acordo com a previsão de ξ. A Fig.(4.3)(a) mostra $\frac{\partial n_e}{\partial t}$ com oscilações iniciais geradas pelo plasma. A amplitude dessas oscilações decaem devido ao termo dissipativo $\frac{J^n_{e_i}}{\tau}$. Após atingir uma amplitude de oscilação mínima a densidade começa a divergir, aumentando rápidamente sua amplitude. Os pontos da Fig.(4.3)(b) mostram o crescimento exponencial da curva para T_e =2000K. Verificamos que para temperaturas menores, o cálculo se propaga por mais tempo antes de divergir. Em particular, para T_e=1000K essa divergência está além de 3 ps. Desse modo conseguimos obter a solução do problema dentro de um certo intervalo de tempo no qual o cálculo não diverge. Observamos que as temperaturas utilizadas na Fig.(4.3) não correspondem aos valores utilizados nas simulações, i.e., são apenas valores ilustrativos.

O resultado da Fig.(4.3) concorda com a previsão da Fig.(4.2), i.e., quanto maior T_e maior o fator de amplificação e conseqüêntemente mais rápido há divergência. Isso mostra que apesar da linearização para se obter $|\xi_\pm|$, o comportamento geral da estabilidade do nosso sistema pode ser obtido a partir da análise de von Neumann. Esse critério linearizado nos serve de guia na escolha de alguns dos parâmetros utilizados em nossas simulações, tais como E_{ext}, Δx e Δt.

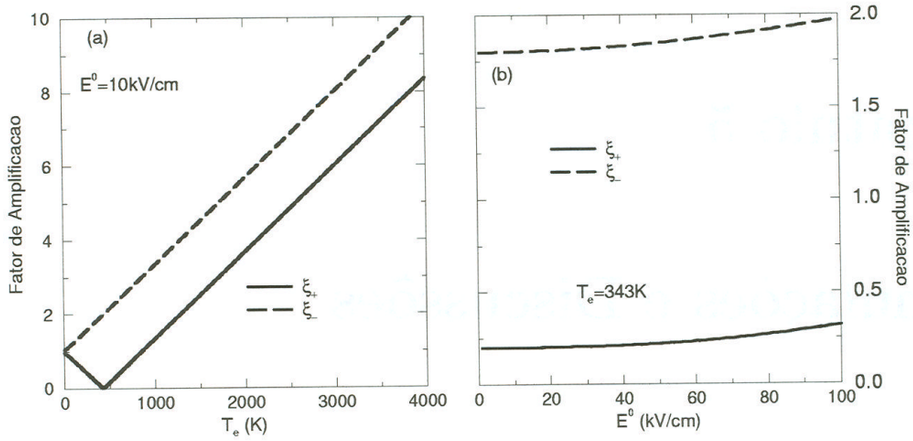

Figura 4.2: Fator de amplificação como função da temperatura para elétrons (a) e do campo E^0 (b). Em (a) fixamos $E^0 = 10$ kV/cm e em (b) utilizamos $T_e = 343$ K. Como $|\xi_\pm|$ aumenta com a temperatura e com o campo, a divergência deve ocorrer mais rápido em temperaturas e campos maiores. Verificamos o comportamento dado em (a) na Fig.(4.3).

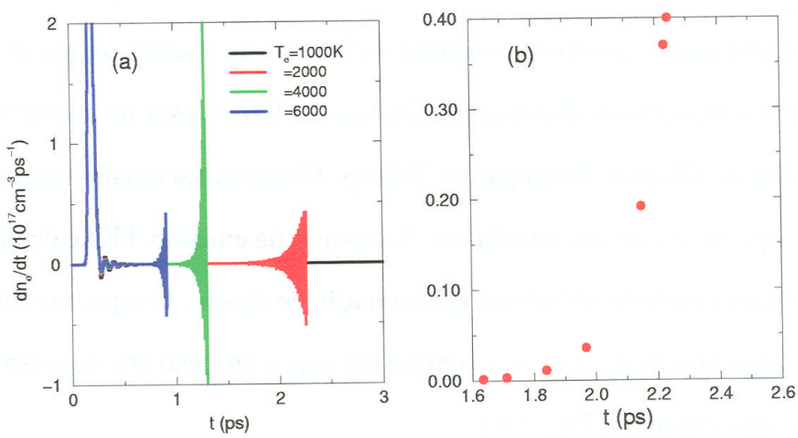

Figura 4.3: (a)Derivada da densidade eletrônica como função do tempo para parâmetros típicos do GaAs e diferentes temperaturas T_e. Observe que quanto maior T_e mais rápido há divergência. Isso está relacionado ao aumento de $|\xi_\pm|$ com a temperatura. Em (b) ilustramos a divergência exponencial de $\frac{\partial n_e}{\partial t}$ para $T_e = 2000$ K.

Capítulo 5

Simulações e Discussões

5.1 Introdução

Com o conjunto de equações descrito nos capítulos anteriores, simulamos dinâmica de portadores e fônons e emissão de radiação. Para o estudo de dinâmica utilizamos parâmetros do GaAs e do Telúrio. Verificamos oscilações do campo elétrico nas freqüências de plásmon-fônon para o GaAs. Também observamos oscilações próximas da freqüência ν_{LO} devido a blindagem inefetiva do campo de fônon pelo plasma para $k \neq 0$. A principal diferença entre o espectro de dinâmica do GaAs e do Telúrio está na ausência de oscilações nas freqüências de plásmon-fônon para o Telúrio. Observamos apenas oscilações próximas a freqüência ν_{LO} para este semicondutor. No estudo de emissão THz calculamos o campo irradiado pela superfície de Telúrio na aproximação de dipolo. O espectro obtido apresenta uma banda larga abaixo de ν_{TO}, um mínimo em ν_{TO} e um pico em ν_{LO}; semelhantemente ao resultado experimental (Fig.(2.5)).

5.2 Simulando Acoplamento Plásmon-Fônon

Simulamos o acoplamento plásmon-fônon em superfície de $n-$GaAs com n_{dop}=3x10^{17}cm^{-3}

[1]. Utilizamos valores para os parâmetros utilizados nas Eqs.(3.15)-(3.20), $m^*_{e(h)}$, ν_{to}, ν_{lo}, ϵ_0 e ϵ_∞, de acordo como GaAs. Para $\tau_{e(h)}$ e τ_f utilizamos 100fs e 4ps, respectivamente [19],[15]. Simulamos fotogeração de elétrons e buracos através do termo $G(x,t)$ nas duas equações da continuidade (Eqs.(3.15) e (3.16)). Utilizamos $\delta = \frac{50}{2\sqrt{2\ln 2}}$ fs e $\alpha^{-1} = 1\mu$m de acordo com dados experimentais [2]. Assumimos que a geração de pares elétron-buraco se dá entre bandas parabólicas (vale Γ) com massas efetivas $m^*_e = 0.067m_e$ e $m^*_h = 0.52m_e$ [7]. O GaAs é um semicondutor polar com estrutura *zincblend.* Como sua base é formada por dois átomos, o número de modos de vibração é 3x**2**=6. Três modos são acústicos e três são ópticos. As freqüências ópticas em $\mathbf{q} = 0$ valem ν_{TO} =8.0 THz e ν_{LO} =8.8 THz [20]. A constante dielétrica no limite de altas freqüências vale ϵ_∞ =10.9, e no limite estático é $\epsilon_0 = \epsilon_\infty \left(\frac{\omega_{LO}}{\omega_{TO}}\right)^2$ =13.2 [2].

A aplicação do nosso modelo na descrição da dinâmica dos portadores, se baseia na hipótese de que os elétrons e buracos, criados pelo pulso ultracurto, rápidamente entram em equilíbrio térmico entre si (elétron-elétron e buraco-buraco). Isso se deve ao fato da termalização entre elétrons e entre buracos ocorrer em um tempo da ordem de dezenas de femtosegundos [21]. Com essa termalização o sistema atinge o regime denominado "Hot-Carrier", no qual tem-se distribuições de energia caracterizadas por temperaturas para elétrons e buracos inicialmente diferentes entre si. Essas temperaturas variam no tempo até atingir o equilíbrio com a rede em aproximadamente 100 ps. Assumimos essas temperaturas constantes o que corresponde aos primeiros picosegundos do regime *Hot-Carrier.* Nossa intenção é entender qualitativamente resultados experimentais que ocorrem numa faixa de alguns picosegundos após a excitação. Calcular variações nas temperaturas seria fundamental se estivéssemos interessados em uma descrição mais detalhada (quantitativa) dos experimentos.

Para estimar as temperaturas iniciais para elétrons e buracos dividimos a energia

[1]Essa dopagem é utilizada no experimento discutido no capítulo (2).
[2]Para o cálculo de ϵ_0 utilizamos a relação de Lyddane-Sachs-Teller.

óptica excedente entre elétrons e buracos. Para isso usamos o teorema da equipartição de energia,

$$\frac{3}{2}k_B(T_e + T_h) = E_{laser} - E_{gap}, \tag{5.1}$$

onde E_{laser} é a energia do pulso de laser e E_{gap} o "gap" do semicondutor. Como a massa dos elétrons m_e^* é menor do que a dos buracos m_h^*, sua energia cinética deve ser maior e por isso $T_e > T_h$. Para calcular T_e e T_h proporcionalmente às massas de cada portador, fazemos

$$\frac{3}{2}k_B T_e \propto \frac{1}{m_e^*} \qquad e \qquad \frac{3}{2}k_B T_h \propto \frac{1}{m_h^*},$$

e calculamos a razão das duas proporcionalidades. Assumimos que

$$\frac{T_e}{T_h} = \frac{m_h^*}{m_e^*}. \tag{5.2}$$

Através das Eqs.(5.1) e (5.2) estimamos as temperaturas T_e e T_h. Utilizando E_{laser} =1.47 eV e $E_{gap} = 1.42$ eV obtemos $T_e = 343$ K e $T_h = 44$ K para o GaAs.

Para tornar mais realístico o nosso modelo, incluimos efeitos da camada de depleção do n-GaAs. Para gerar uma "camada de depleção" consideramos E_{ext} constante ao longo do semicondutor e propagamos as Eqs. (4.6)-(4.11) sem incluir fotogeração ($G(x,t) = 0$). Os elétrons dopados tendem a blindar E_{ext}, acumulando-se na superfície semicondutora. Isso cria um perfil de campo que parte de um valor não nulo na superfície e vai a zero no interior do material, i.e., o campo é totalmente blindado dentro do semicondutor. A curva tracejada da Fig. (5.1)(a) ilustra o perfil do campo superficial simulado. O seu valor em x=0 é E_{ext} e é um parâmetro em nosso modelo. O valor do campo superficial é estimado através do modelo Schottky em ~ -200 kV/cm para uma dopagem de $n_{dop} = 3\text{x}10^{17}\text{cm}^{-3}$ [10]. Em nosso modelo utilizamos -20kV/cm por problemas de estabilidade numérica. Em altos campos o cálculo diverge rapidamente. Essa diferença entre o campo real e o simulado não prejudica nossa análise pois o nosso objetivo é apenas um acordo qualitativo

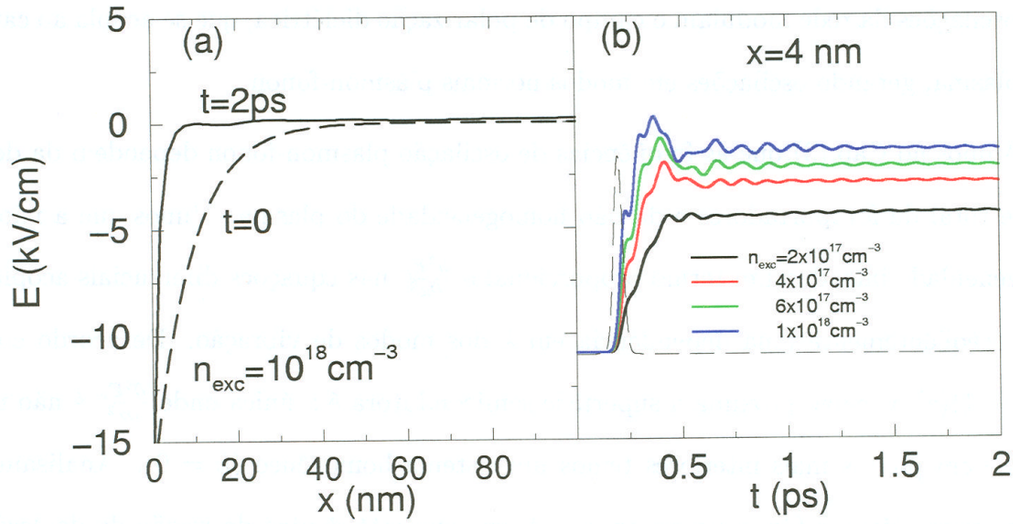

Figura 5.1: (a)Perfil do campo elétrico em t=0 (linha tracejada) e em 2ps após a excitação (linha contínua). O perfil do campo vai a zero mais rápido após a fotoexcitação, mostrando que o campo superficial foi blindado pelos fotoportadores. (b) Dinâmica do campo em x =4 nm para diferentes densidades de excitação da amostra. Note que quanto maior n_{exc} mais o campo é blindado. As oscilações se devem ao acoplamento plásmon-fônon. A linha tracejada em (b) representa o pulso de excitação em $x = 4$ nm.

com experimentos em termos das freqüências de oscilação do sistema.

Após a geração óptica dada pelo termo $G(x,t)$ nas equações da continuidade, os elétrons e buracos tendem a blindar o campo superficial simulado. Assim surge uma corrente de buracos na direção $-\mathbf{x}$ e uma de elétrons na direção $\mathbf{x}$. Essa separação de cargas cria um campo elétrico oposto ao campo superficial, diminuindo o campo total no meio. A linha contínua na Fig.(5.1)(a) ilustra o perfil do campo após 2 ps da fotoexcitação. Observe que seu valor vai à zero mais rápido do que em $t = 0$, ilustrando a blindagem do campo superfícial.

Figura (5.1)(b) mostra a evolução temporal do campo na posição $x = 4$ nm (indicada pela seta) para diferentes densidades de fotoexcitação n_{exc}. O campo está inicialmente por volta de -11 kV/cm, permanecendo nesse valor até a chegada do pulso de excitação em 200 fs (linha tracejada). Após a fotogeração o campo é blindado e diminui rapidamente em módulo. Isso excita a rede que passa a oscilar em torno de uma nova posição de equilíbrio.

As oscilações da rede modulam o campo de polarização dielétrica, que se acopla ao campo de plasma, gerando oscilações em modos normais plásmon-fônon.

Vimos no Cap.(3) que as freqüências de oscilação plásmon-fônon dependem da densidade total de fotoportadores e da não homogeneidade do plasma. Vimos que a não homogeneidade introduz um termo proporcional a $\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2}$ nas equações diferenciais acopladas e conseqüêntemente uma dependência em k dos modos de vibração. De acordo com a Fig.(5.1)(a) a região próxima a superfície semicondutora é a única onde $\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2}$ é não nulo. Então em pontos mais interiores temos um sistema homogêneo ($k = 0$). Analisamos a dinâminca plásmon-fônon no ponto $x = 4$ nm, que está dentro da região de depleção, e em $x = 300$ nm.

Figuras (5.2)(a) e (b) mostram os gráficos da derivada do campo elétrico [3] para diferentes densidades de fotoexcitação em $x = 4$ nm e $x = 300$ nm. Estes gráficos se caracterizam por oscilações nas freqüências de modos normais plásmon-fônon. Quanto maior $n_e(= n_{e(exc)} + n_{e(dop)})$, maior as amplitudes de oscilação; semelhantemente aos resultados experimentais (veja Fig.(5.3)) . Isso ocorre porque o campo de plasma aumenta com a densidade, produzindo uma maior variação do campo elétrico total. Também podemos notar que o período das oscilações iniciais diminui com o aumento da densidade. Isso é uma característica da freqüência de plasma ($\nu_{pl} \propto \sqrt{n_0}$).

Figura (5.2)(b) ilustra a variação do "tempo de vida" das oscilações como função da densidade de portadores. Note que para densidades próximas de 6.2x10^{17}cm^{-3} o amortecimento é máximo, tendendo a diminuir em altas e baixas densidades. Esse fato está de acordo com as curvas de $Im(\omega_+)$ e $Im(\omega_-)$. Vimos que $Im(\omega_+)$ e $Im(\omega_-)$ são simultaneamente máximos em torno de 6.2x10^{17}cm^{-3} indicando que o amortecimento das oscilações de plasma e da rede são iguais. Em baixas densidades $Im(\omega_+) > Im(\omega_-)$ e portanto a

[3]Fizemos o gráfico da derivada e não simplesmente do campo para definir melhor as oscilações. Enquanto $\frac{\partial E}{\partial t}$ oscila sempre em torno de zero, $E(t)$ oscila sobre a variação do seu módulo. A derivada elimina do sinal a variação do módulo, i.e., retira o "fundo" de $E(t)$.

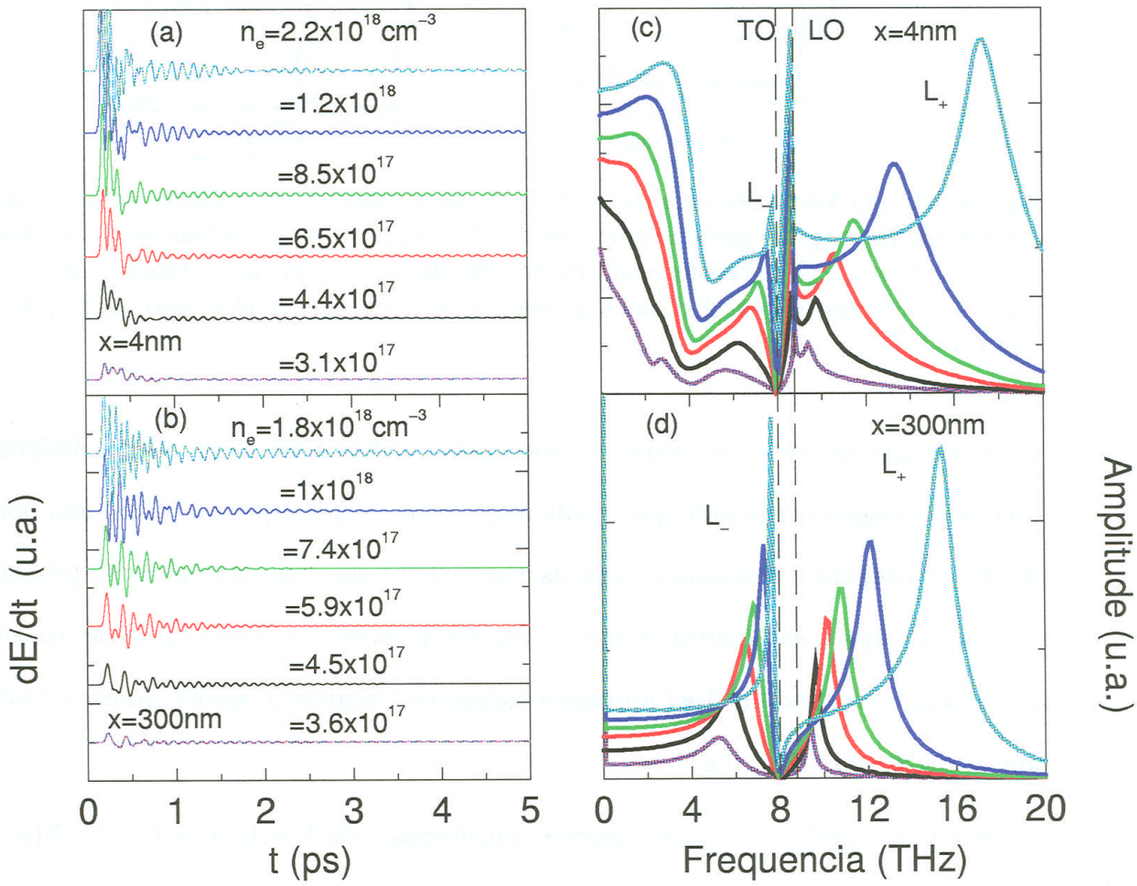

Figura 5.2: Gráficos da derivada temporal do campo elétrico para diferentes densidades $n_e(= n_{e(exc)} + n_{e(dop)})$ em (a) $x = 4$ nm (b) e $x = 300$ nm, e suas respectivas transformadas de Fourier. Para $x = 4$ nm todas as curvas apresentam oscilações fracamente amortecidas que permanecem por todo o sinal. Para $x = 300$ nm o mesmo não ocorre. Para as densidades 5.9x10^{17} cm^{-3} e 7.4x10^{17} cm^{-3} vemos claramente que o sinal amortece rápidamente chegando a amplidutes desprezíveis nessa escala em ~ 2.5 ps. Portanto os gráficos em (b) concordam com as curvas de $Im(\omega_\pm)$, que preveem um máximo amortecimento em torno de 6.2x10^{17} cm^{-3}. As oscilações fracamente amortecidas para qualquer densidade em (a) geram o pico próximo a ν_{LO} em (c). Esse pico não pode ser explicado pela análise de modos com $k = 0$; recorremos a $k \neq 0$ para justificá-lo. Os picos L_+ e L_- que aparecem tanto em (c) quanto em (d) correspondem aos dois ramos de modos normais obtidas para $k \sim 0$.

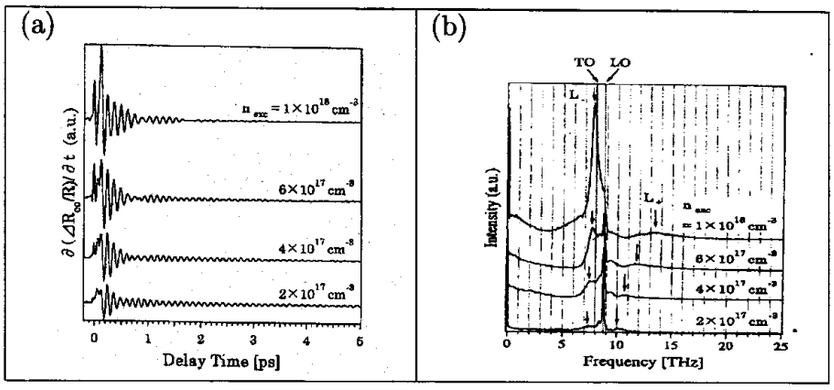

Figura 5.3: (a) Variações da refletividade de uma amostra de n-GaAs excitada por luz. As densidades n_{exc} são geradas pelo *pump*. Observamos que a modulação na refletividade é função de n_{exc}. (b) Transformada de Fourier dos sinais em (a). Observamos dois picos L_+ e L_- correspondentes à dinâmica plásmon-fônon e um terceiro pico na freqüência de fônon LO [3].

rede deve oscilar por mais tempo do que o plasma. Em altas densidades a desigualdade inverte indicando novamente que a rede oscila mais do que o plasma. Com isso podemos dividir o primeiro e o último gráfico da Fig.(5.2)(b) em dois intervalos. O primeiro vai de zero a ~1ps e caracteriza-se por oscilações de plasma e pelo rápido decaimento da amplitude. O segundo (>1ps) apresenta oscilações fracamente amortecidas e o período é aproximadamente de fônon.

Nas Figs.(5.2)(c) e (d) mostramos a transformada de Fourier das Figs.(5.2)(a) e (b), respectivamente. Nas Figs.(5.2)(c) e (d) vemos os picos L_+ e L_- correspondentes a modos de $k \sim 0$. Notemos que o pico L_- tende para ν_{TO} em altas densidades enquanto L_+ vai para ν_{LO} em baixas densidades, confirmando as curvas de modos normais da Fig.(3.1). Na Fig.(5.2)(c) também vemos um terceiro pico próximo a ν_{LO}. Para justificar esse pico recorremos a não homogeneidade do plasma na superfície. Essa não homogeneidade faz a blindagem do modo LO ser inefetiva e portanto a rede oscila com ν_{LO}.

A banda larga abaixo de L_- na Fig.(5.2)(c) se deve aos buracos. Calculando a freqüência de plasma só para os buracos ($\nu_{pl_h} = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{q_h^2 n_h}{\epsilon_\infty \epsilon_0 m_h^*}}$) obtemos freqüências variando entre 1.7 THz a 5 THz para as densidades utilizadas. Essa faixa de freqüências corre-

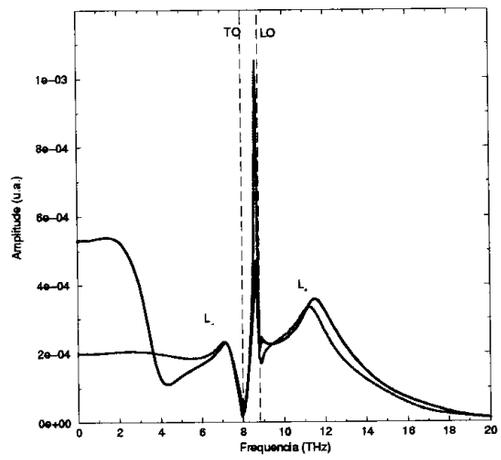

Figura 5.4: Comparação das transformadas de Fourier $E(x,t)$ em $x = 4$ nm considerando somente movimento de elétrons (linha pontilhada) e de elétros mais buracos (linha contínua). Observe que a curva somente para elétrons não apresenta a banda larga abaixo de L_-, indicando que essa banda se deve aos buracos.

sponde ao intervalo onde aparece a banda larga. Apesar dos buracos contribuirem pouco para a dinâmica pois $m_h^* \simeq 10\, m_e^*$, em pontos superficiais há um acúmulo de buracos devido ao campo superficial. Com esse acúmulo, os buracos devem perturbar o sistema na faixa de freqüências que varia de 1.7 THz a 5 THz. Para verificar esse efeito repetimos as simulações permitindo apenas movimento eletrônico e verificamos que abaixo de L_- o espectro fica constante (veja a Fig.(5.4)).

Fixando agora a posição em $x = 4$ nm variamos o parâmetro $\tau_{e(h)}$. Fig.(5.5)(a) mostra a transformada de Fourier do campo elétrico para $\tau_{e(h)}$ =100, 50 e 10 fs. Com a diminuição de $\tau_{e(h)}$ os picos L_+ e L_- desaparecem pois ambos tem contribuição de plasma. De acordo com as curvas de $Im(\omega_\pm)$ em densidades mais altas ou menores esse efeito seria menos marcante em um dos picos, pois o sistema estaria mais desacoplado. O pico próximo ν_{LO} apresenta uma pequena diminuição de amplitude mostrando que sua origem é essencialmente de fônons. Para justificar o fraco acoplamento que gera o terceiro pico e o forte acoplamento que produz os picos L_+ e L_- na mesma posição, i.e., na mesma

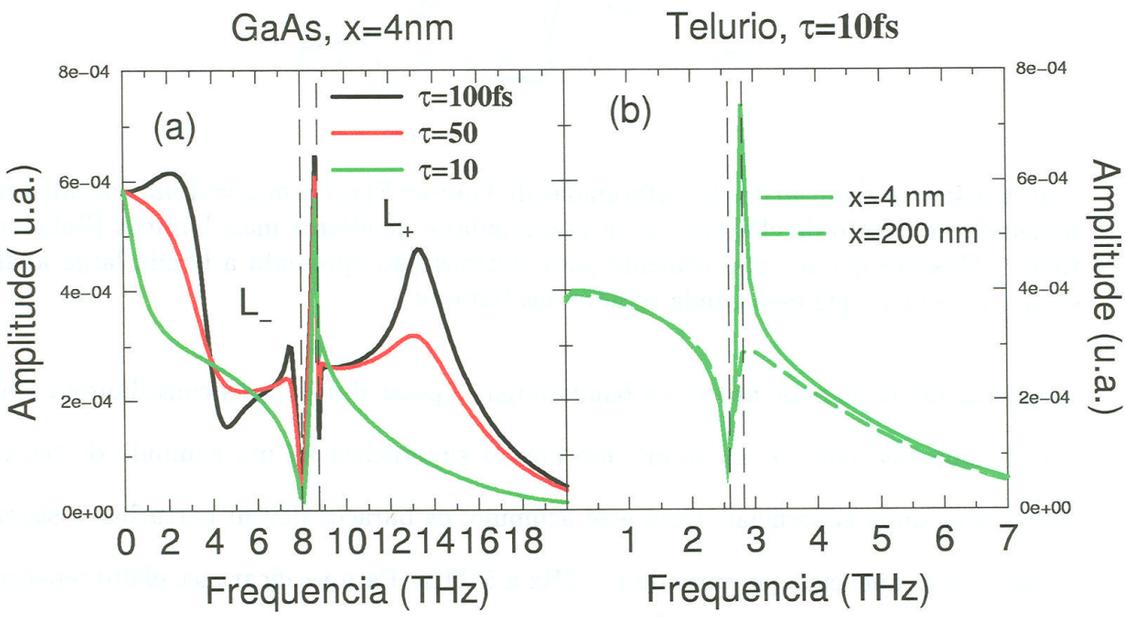

Figura 5.5: (a) Transformada de Fourier do campo elétrico em $x = 4$ nm com $n_{exc} = 1\text{x}10^{18}$ cm^{-3}, $n_{dop} = 3\text{x}10^{17}$cm^{-3} e diferentes valores de τ. Com a diminuição de τ os picos L_+ e L_- desaparecem, permanecendo apenas o pico próximo a ν_{LO}. Isso mostra que esse pico vem de um fraco acoplamento plásmon-fônon, o que só é possível nessa densidade para $k \neq 0$. (b) Transformada de Fourier do campo elétrico em $x = 4$ nm e 200 nm com parâmetros do Telúrio e τ =10 fs. No caso $x = 4$ nm o gráfico se assemelha ao do GaAs, enquanto para $x = 200$ nm vemos apenas uma banda larga com um mínimo em ν_{TO}. Isso mostra que o pico em ν_{LO} se deve a efeitos da não homogeneidade superficial do plasma.

densidade, recorremos novamente ao fato da não homogeneidade do plasma ($k \neq 0$) levar a uma blindagem inefetiva do campo de fônon, de modo que a rede oscila com freqüência próxima a ν_{LO}.

Repetimos as simulações utilizando parâmetros do Telúrio [4] e utilizando $\tau_{e(h)} = 10$ fs. Fig.(5.5)(b) compara os resultados obtidos em $x = 4$ nm e $x = 200$ nm. Na posição superficial $x = 4$ nm vemos o pico em ν_{LO} enquanto para $x = 200$ nm só há uma banda larga com um mínimo em ν_{TO}. Como a única diferença entre os pontos $x = 4$ nm e $x = 200$ nm, capaz de gerar o pico em ν_{LO}, é a não homogeneidade longitudinal do plasma, concluimos que esse pico se deve a blindagem inefetiva do modo LO para $k \neq 0$. Veremos que o espectro de emissão do Telúrio é semelhante a Fig. (5.5)(b).

Um dos aspectos interessantes das Figs. (5.5)(a) e (b) é que para $\tau = 10$ fs eliminamos oscilações de plasma do sistema. Apesar disso o pico próximo a ν_{LO} varia pouco com relação ao caso $\tau = 100$ fs (curva preta em (a)). Portanto mesmo se o plasma for fortemente amortecido a sua blindagem inefetiva (devido a não homogeneidade) faz a rede oscilar com freqüência próxima a ν_{LO}.

Até aqui mostramos resultados em pontos específicos dentro da amostra ($x = 4$ nm e $x = 300$ nm). Mas experimentalmente o *probe* mede efeitos de toda a região de penetração do laser. Para nos aproximarmos dos resultados experimentais, calculamos um sinal médio proporcional à integral do campo elétrico,

$$S(t) \sim \int_0^{\alpha^{-1}} E(t) \exp(-2\alpha x) dx, \tag{5.3}$$

onde o peso exponencial simula a perda de intensidade da luz ao se propagar no meio. Fig.(5.6) mostra $S(t)$ para diferentes densidades de excitação. Em (a) vemos o "campo médio" sendo blindado pelos fotoportadores, seguido de modulações nas freqüências de plásmon-fônon. Fig.(5.6)(b) mostra a transformada de Fourier de $S(t)$. Observe que o

[4] Os parâmetro utilizados para o Telúrio estão citados na seção (5.3).

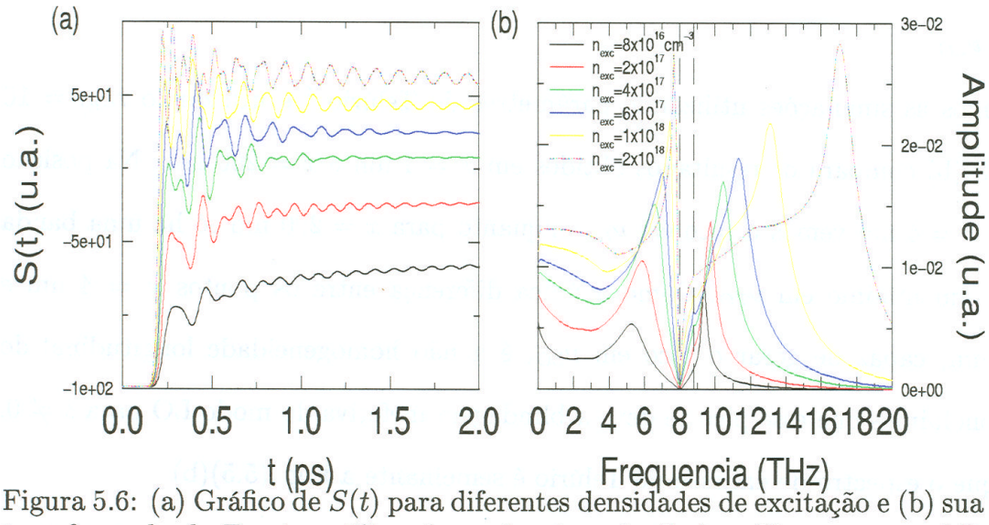

Figura 5.6: (a) Gráfico de $S(t)$ para diferentes densidades de excitação e (b) sua respectiva transformada de Fourier utilizando parâmetros do GaAs. Observe que a blindagem do "campo médio" é mais efetiva quanto maior a densidade de excitação. Como a integração de $S(t)$ envolve uma grande parte de plasma homogêneo pois α^{-1} é muito maior do que o comprimento da camada de depleção, o pico em ν_{LO} é suprimido. O alargamento do pico L_+ se deve às menores densidades no interior do material.

pico em ν_{LO} desaparece, permanecendo os picos L_+ e L_-. Como no sinal $S(t)$ mede-se principalmente regiões homogêneas, pois α^{-1} é muito maior do que o comprimento da camada de depleção, os efeitos de regiões homogêneas são predominantes em $S(t)$. Devemos notar que o pulso $G(x,t)$ decai para o interior do material de modo que a densidade superficial é maior do que próxima a α^{-1}. O alargamento do pico L_+ se deve a essa diminuição da densidade, que tende a deslocar o pico L_+ para ν_{LO}.

A transformada de Fourier de $S(t)$ apresenta duas características diferentes do resultado experimental reproduzido na Fig.(5.3): (i) o pico em ν_{LO} é fortemente atenuado e (ii) o pico L_+ tem amplitude comparável ao L_-. A amplitude experimental do pico L_+ é bem inferior a do pico L_- porque no experimento perde-se resolução espectral com o aumento da freqüência [3]. Quanto ao pico em ν_{LO}, experimentalmente sua origem não está apenas na não homogeneidade longitudinal ($k \neq 0$). A não homogeneidade lateral, provocada pelo pulso de excitação, também contribui para esse pico. Fig.(5.6)(a) é uma

indicação de que a não homogeneidade longitudinal deve contribuir pouco para o pico em ν_{LO} no espectro experimental.

5.3 Campo de Radiação na Aproximação de Dipolo.

As figuras experimentais (5.7)(a) e (b) mostram o campo irradiado por uma superfície de Telúrio excitada por luz e a sua respectiva transformada de Fourier. Para simular esse experimento de emissão THz calculamos o campo elétrico E no interior do material. Em seguida calculamos o campo irradiado E_{ir} a partir do campo E, e fazemos a transformada de Fourier de E_{ir} para determinar a freqüência da radiação. Notamos que as freqüências de oscilação de $E(t)$ e $E_{ir}(t)$ são as mesmas, salvo ligeiras alterações na forma espectral.

O campo irradiado por uma distribuição de cargas oscilante é dado na aproximação de dipolo por [22]

$$\mathbf{E}_{ir}(t+\frac{r}{c}) = \frac{\mu_0}{4\pi r^3}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathbf{p}(t) \times \mathbf{r} \times \mathbf{r}, \tag{5.4}$$

onde $\mathbf{p}$ é o momento de dipolo da distribuição, $\mathbf{r}$ o vetor que liga a distribuição de cargas a um detector, r o seu módulo e μ_0 a permeabilidade do vácuo. O momento de dipolo é calculado a partir da polarização do meio,

$$\mathbf{p} = \int_V \mathbf{P}\, dv, \tag{5.5}$$

onde $\mathbf{P}$ é a polarização do plasma (campo de separação de cargas) mais a polarização da rede, i. e., $\mathbf{P} = \mathbf{P}_{pl} + \mathbf{P}_d$. A integração é feita em princípio sobre todo o volume de cargas. Substituindo (5.5) em (5.4) vem

$$\mathbf{E}_{ir}(t+\frac{r}{c}) = \frac{\mu_0}{4\pi r^3}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\int_V \mathbf{P}\, dv \times \mathbf{r} \times \mathbf{r}.$$

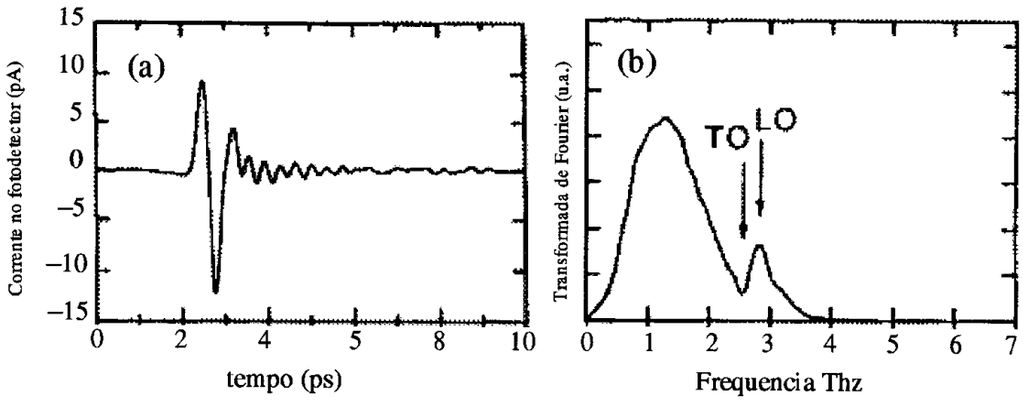

Figura 5.7: Resultados experimentais para emissão THz [5]. Em (a) vemos o campo irradiado pela superfície $c_\perp$ do Telúrio. O primeiro ciclo de grande amplitude foi gerado pela corrente transiente que surge logo após a fotoexcitação. Essa corrente se deve ao gradiente da densidade de portadores gerado pelo decaimento exponencial do laser. As oscilações seguintes se devem a fônons. (b) Transformada de Fourier do campo irradiado. Observamos um pico abaixo de TO gerado pela corrente transiente e outro em LO devido a fônons. O mínimo em TO está relacionado ao polo da função dielétrica em ν_{TO}.

Na ausência de campos externos a polarização e o campo $\mathbf{E}$ estão relacionados por

$$\mathbf{P} = -\varepsilon_0 \mathbf{E}.$$

Assim,

$$\mathbf{E}_{ir}(t + \frac{r}{c}) = -\frac{\varepsilon_0 \mu_0}{4\pi r^3} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_V \mathbf{E}\, dv \times \mathbf{r} \times \mathbf{r}. \tag{5.6}$$

Assumimos que $\mathbf{E}$ tem somente componentes longitudinais e denotamos por $\hat{\mathbf{x}}$ o versor normal à superfície de excitação, desse modo escrevemos

$$\int_V \mathbf{E}\, dv = \int_V E(x,t)\, dv\, \hat{\mathbf{x}}.$$

Com isso (5.6) fica

$$\mathbf{E}_{ir}(t + \frac{r}{c}) = -\frac{\varepsilon_0 \mu_0}{4\pi r^3} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_V E(x,t)\, dv\, \hat{\mathbf{x}} \times \mathbf{r} \times \mathbf{r}.$$

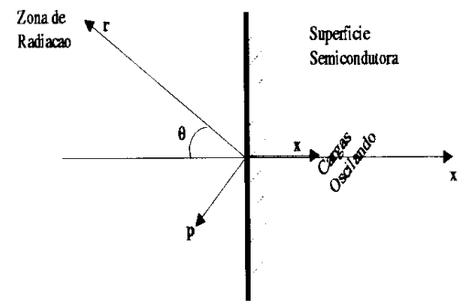

Figura 5.8: Ilustração dos vetores envolvidos no cálculo de radiação. O vetor **x** é normal à superfície semicondutora, o vetor **r** indica a posição do detector relativa a superfície, e **p** indica a polarização da radiação.

Como $\hat{\mathbf{x}} \times \mathbf{r} \times \mathbf{r} = r^2 \sin\theta\, \hat{\mathbf{p}}$, onde θ é o ângulo de radiação e $\hat{\mathbf{p}}$ um versor paralelo ao plano definido por $\hat{\mathbf{x}}$ e $\mathbf{r}$ (veja Fig. (5.8)) , obtemos

$$\mathbf{E}_{ir}(t + \frac{r}{c}) = -\frac{\varepsilon_0 \mu_0 \sin\theta}{4\pi r} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_V E(x,t)\, dv\, \hat{\mathbf{p}}. \tag{5.7}$$

O campo E só depende da coordenada x. Podemos calcular o campo irradiado por unidade de área e reescrever a Eq.(5.7) da forma

$$\frac{\mathbf{E}_{ir}(t + \frac{r}{c})}{A} = -\frac{\varepsilon_0 \mu_0 \sin\theta}{4\pi r} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_0^{\alpha^{-1}} E(x,t)\, dx\, \hat{\mathbf{p}}, \tag{5.8}$$

onde a integração é feita apenas ao longo do eixo x. Note que integramos de zero à α^{-1}, desprezando emissão de regiões além desse intervalo. Estamos admitindo que o campo irradiado se deve às cargas da região de penetração do laser. Não consideramos absorção da radiação THz através da espessura α^{-1}. De acordo com [5] uma radiação com freqüência próxima a fônons ópticos tem uma absorção menor do que 1% ao longo dessa espessura. Da Eq.(5.8) vemos que uma vez conhecido o campo transiente $E(x,t)$ podemos determinar o espectro da radiação eletromagnética (campo distante na aproximação de dipolo) emitida pelo Telúrio. Assim, (5.8) complementa as equações de dinâmica de portadores e de fônons no estudo na emissão de radiação.

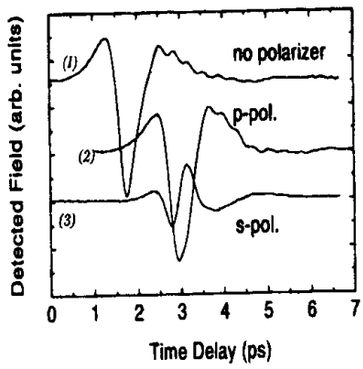

Figura 5.9: Componentes não-polarizada, p e s polarizadas da radiação emitida pela superfície $c_\perp$ do Telúrio [12]. Observe que as curvas não-polarizadas e p-polarizadas se assemelham, em contraste com a s-polarizada.

Chama-se radiação p-polarizada quando o campo elétrico irradiado é paralelo ao plano definido por $\hat{\mathbf{x}}$ e $\mathbf{r}$. Quando sua orientação é perpendicular a esse plano a radiação é dita s-polarizada. Portanto, da Eq. (5.8) concluimos que oscilações perpendiculares à superfície de excitação produzem campos de radiação p-polarizados.

Experimentos em Telúrio confirmam que a radiação emitida nesse processo é p - polarizada. A Fig.(5.9) ilustra três medidas da radiação emitida pela superfície perpendicular ao eixo c do Telúrio ($c_\perp$). Na primeira delas não há polarizador entre a fonte e o detector. Na segunda e terceira a radiação é p e s polarizada, respectivamente. Note que os sinais não-polarizados e p-polarizados apresentam o mesmo comportamento; em ambos há oscilações características de fônons. Na componente s-polarizada não se observa nenhuma contribuição na freqüência de fônon e a forma do sinal está alterada com relação as demais. Isso confirma o tipo de polarização dada pela Eq.(5.8), i.e., polarização p.

5.4 Simulando Emissão de Radiação

Nas simulações de emissão THz utilizamos parâmetros típicos do Telúrio. Assumimos fotogeração entre bandas parabólicas com massas efetivas 0.06 m_e e 0.114 m_e para elétrons

e buracos, respectivamente. As constante dielétricas valem $\epsilon_0 = 27$ e $\epsilon_\infty = 22.9$. As freqüências transverais e longitudinais relevantes para a superfície de excitação $c_\perp$ são $\nu_{LO} = 2.83$ e $\nu_{TO} = 2.6$ THz, correspondentes ao modo A_2. Lembramos que as oscilações do modo $A_{2,LO}$ são paralelas ao eixo c e portanto se acoplam ao campo de plasma que também é paralelo ao eixo c. Se a superfície de excitação for paralela ao eixo c ($c_{||}$) o modo relevante será E_{LO}, uma vez que o campo elétrico será perpendicular a c. Quanto a temperatura, considerando $E_{laser} = 1.7$ eV e $E_{gap} = 0.33$ eV obtemos $T_e = 7000$ K e $T_h = 3655$ K. Como altas temperaturas tornam o cálculo numérico instável [5] reduzimos os valores para $T_e = 2000$ K e $T_h = 1050$K, conservando a razão T_e/T_h.

Para $G(x,t)$ consideramos $\delta = \frac{120}{2\sqrt{2\ln 2}}$ fs e α^{-1} =40 nm dados em [4]. Com α^{-1} =40nm a densidade de fotoportadores decai rapidamente para o interior do Telúrio. Isso gera correntes de difusão de elétrons e buracos na direção $\hat{\mathbf{x}}$. Como $\frac{k_B T_e}{m_e^*} > \frac{k_B T_h}{m_h^*}$, os elétrons se difundem mais rápido do que os buracos gerando um campo de separação de cargas. No Telúrio o campo de superfície é desprezível, de modo que o único campo relevante é o campo de separação de cargas. Notamos que no GaAs o efeito relevante é a blindagem transiente do campo de superfície, enquanto no Telúrio é a criação do campo de separação de cargas.

Figura (5.10)(a) mostra $n_e(x,t)$ (preto) e $n_h(x,t)$ (vermelho) em diferentes instantes após a excitação. As densidades se alargam com o tempo devido à difusão dos fotoportadores para o interior do material. A corrente de difusão para elétrons e buracos tem o mesmo sentido mas $J_e > J_h$. Observe que $n_e(x,t) < n_h(x,t)$ para $x \sim 0$ e $n_e(x,t) > n_h(x,t)$ para $x \sim 400$ nm. Essa separação de cargas cria o campo elétrico da Fig.(5.10)(b). O perfil do campo também se alarga, acompanhando a difusão das cargas. Notamos que esse campo é sempre longitudinal pois consideramos apenas serparação de cargas ao longo do eixo x (ou c). Como o Telúrio é piezoelétrico [13] esse campo cria deformações

[5] veja o gráfico do fator de amplificação na Fig.(4.2)

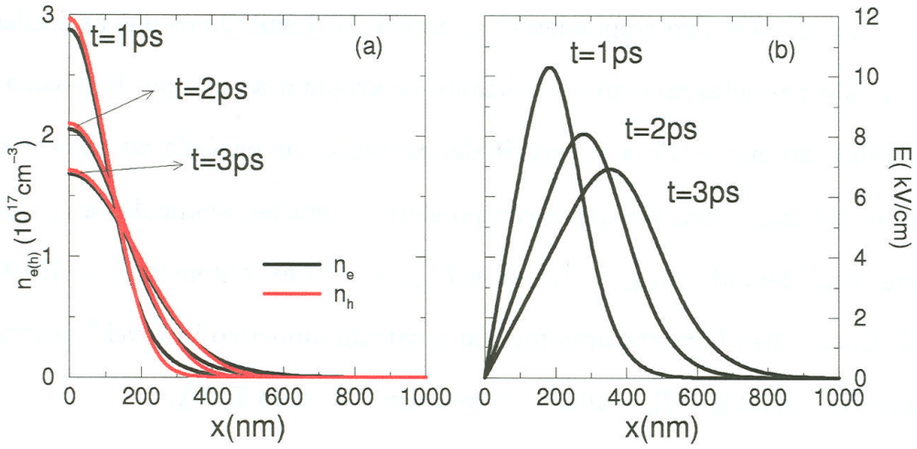

Figura 5.10: (a) Perfil da densidade de elétrons (preto) e buracos (vermelho) em instantes diferentes. Os perfís se alargam com o tempo devido a difusão dos portadores para o interior do material. Observe que n_e se alarga mais rápido do que n_h gerando o campo de separação de cargas visto em (b). Esse campo é responsável pela excitação do modo $A_{2,LO}$ e subseqüênte emissão THz.

longitudinais da rede, excitando o modo longitudinal óptico $A_{2,LO}$. Como esse modo é infravermelho ativo surgem dipolos oscilando na freqüência de fônon e conseqüêntemente há uma radiação emitida.

Figura (5.11)(a) ilustra o campo irradiado simulado. Note sua semelhança com o resultado experimental da Fig.(5.7)(a); vemos um primeiro ciclo de grande amplitude, seguido de modulações menores. Este primeiro ciclo se deve ao campo transiente provocado pelas correntes de difusão. As oscilações seguintes são geradas pelo modo $A_{2,LO}$ excitado pelo campo. Para verificar se o primeiro ciclo é realmente gerado pela difusão de plasma, simulamos o sistema sem considerar fônons, i.e., desacoplamos as Eqs.(4.6)-(4.11) assumindo $b_{12} = 0$. O gráfico obtido corresponde à curva preta da Fig.(5.11)(a). Note que essa curva coincide com o primeiro ciclo mostrando que sua origem é o campo transiente gerado pela difusão. O plasma não permanece irradiando porque o campo elétrico de separação de cargas cria uma corrente de arraste oposta à corrente de difusão que se cancelam mu-

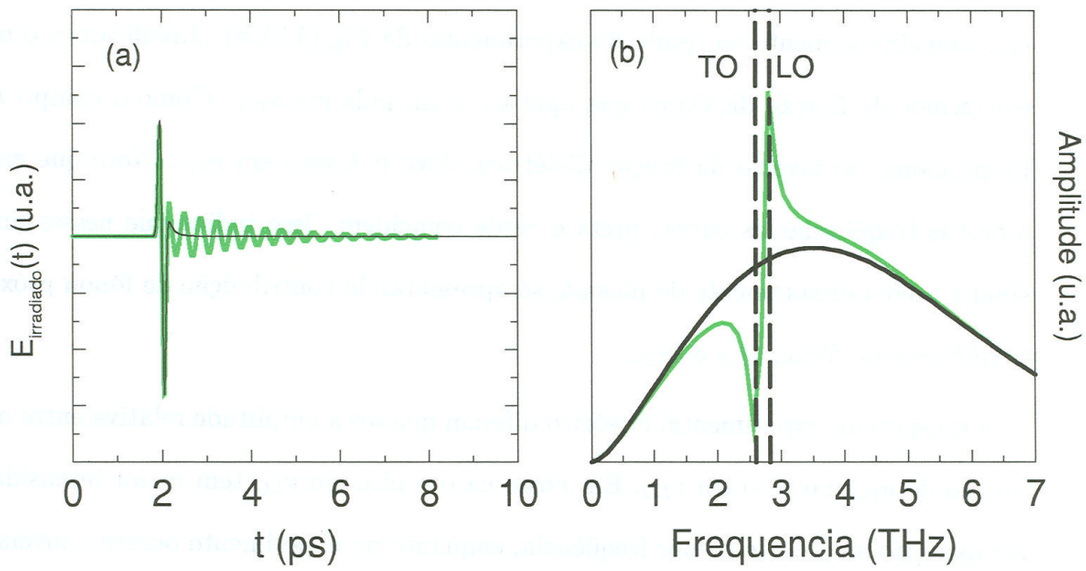

Figura 5.11: (a) Campo irradiado pela superfície $c_\perp$ do Telúrio. Observe um primeiro ciclo de grande amplitude, seguindo de modulações menores. A linha preta corresponde a emissão de radiação sem considerar fônons. Observe que as duas curvas estão superpostas no primeiro ciclo, indicando que esse ciclo se deve ao plasma. Na transformada de Fourier do campo (b) observam-se dois picos: um abaixo de ν_{TO} e outro exatamente em ν_{LO}, além de um mínimo em ν_{TO} semelhantemente ao experimento. A banda larga em preto corresponde a transformada de Fourier da emissão só de plasma. As curvas verde e preta coincidem em baixas e altas freqüências, indicando que a contribuição de fônon para o sinal só ocorre em torno das freqüências ópticas. O pico em ν_{LO} se deve a não homogeneidade do plasma na superfície.

tuamente, levando o plasma a um quase-equilíbrio. Neste caso não vemos oscilações de plásmon-fônon porque $\tau = 10$ fs o que torna o sistema fortemente amortecido.

Figura (5.11)(b) mostra a transformada de Fourier da Fig. (5.11)(a). A curva preta é a transformada da emissão só de plasma. Neste caso obtemos uma banda larga centrada em torno de 3.3 THz. Esta freqüência se deve ao período do ciclo inicial que vale aproximadamente 0.3 ps [6]. A curva em verde é a transformada de Fourier da curva correspondente na Fig.(5.11)(a). Neste caso obtemos um mínimo em ν_{TO} e um pico em ν_{LO}; semelhantemente ao resultado experimental da Fig.(5.7)(b). Justificamos o mínimo em termos da função dielétrica que apresenta um polo em ν_{TO}. Como o campo $E(\omega)$ é proporcional ao inverso da função dielétrica, deve ir à zero em ν_{TO}. Note que em altas e baixas freqüências as curvas preta e verde coincidem. Isso indica que nesses limites o sinal é predominantemente de plasma, só apresentando contribuição de fônon próximo às freqüências de fônon ν_{TO} e ν_{LO}.

Os espectros experimental e teórico diferem quanto a amplitude relativa entre os picos abaixo de ν_{TO} e o pico em ν_{LO}. Em nosso caso o pico em ν_{LO} tem maior intensidade em comparação ao pico de menor freqüência, enquanto no experimento ocorre o inverso. Isso ocorre porque o sinal medido é a convolução do campo irradiado com a função resposta da antena. Essa convolução faz a amplitude do espectro diminuir com o aumento da freqüência, o que não ocorre no cálculo teórico.

Em nosso modelo a emissão em ν_{LO} se deve a não homogeneidade do plasma. Como a blindagem do campo de polarização da rede pelo plasma torna-se cada vez mais inefetiva com o aumento de k, suas oscilações ocorrem em ν_{LO} e não com ν_{TO}, como era de se esperar em densidades da ordem de 10^{18}cm^{-3}. Experimentalmente observa-se o pico em ν_{LO}, que pode estar relacionado tanto com a não homogeneidade longitudinal quanto a lateral, provocada pelo pulso de excitação. Notamos que a superfície irradia de toda

[6] $\frac{1}{0.3}\text{ps}^{-1} = 3.3$ THz

região de excitação, i.e., de regiões de alta densidade, no centro do foco do laser, e de baixas densidades na periferia do foco. Regiões de baixa densidade irradiam próximo da freqüência ν_{LO}, enquanto de densidades altas em ν_{TO}. Assim temos contribuições da não homogeneidade longitudinal e lateral no mesmo sinal. A não homogeneidade longitudinal deve ser relevante porque a radiação é emitida de uma estreira região não homogênea próxima da superfície (~40 nm).

Por último simulamos emissão variando $T_{e(h)}$ e n_{exc}. Primeiro fixamos $T_{e(h)}$ e variamos a densidade de excitação e em seguida fixamos n_{exc} e variamos $T_{e(h)}$. Fig.(5.12) ilustra os resultados obtidos. Na Fig.(5.12)(a) vemos que a amplitude do sinal cresce com a densidade. Isso se deve ao aumento do campo de plasma. Fig.(5.12)(b) também mostra um crescimento das amplitudes de oscilação com a temperatura. Isso ocorre porque em altas temperaturas a difusão de elétrons e buracos cresce aumentando o campo de separação de cargas. Figs.(5.12)(c) e (d) mostram a transformada de Fourier das figuras (a) e (b), respectivamente. Na Fig.(5.12)(c) vemos que para $T_{e/h} = 2000K/1300K$ o sinal perde amplitude com a diminuição de n_{exc} mas o pico em ν_{LO} permanece. Na Fig.(5.12)(d) vemos que diminuindo a temperatura o pico em ν_{LO} tende a desaparecer sob uma banda larga. Isso mostra que esse pico é gerado por termos das equações envolvendo a temperatura. Como esses termos sempre envolvem derivadas espacias da densidade, concluimos novamente que esse pico está relacionado à não homogeneidade do plasma.

Vale notar pela Fig.(5.12)(d) que a nossa redução das temperaturas T_e e T_h, por problemas de estabilidade numérica, deve apenas diminuir a amplitude do espectro, sem alterar as características gerais do resultado.

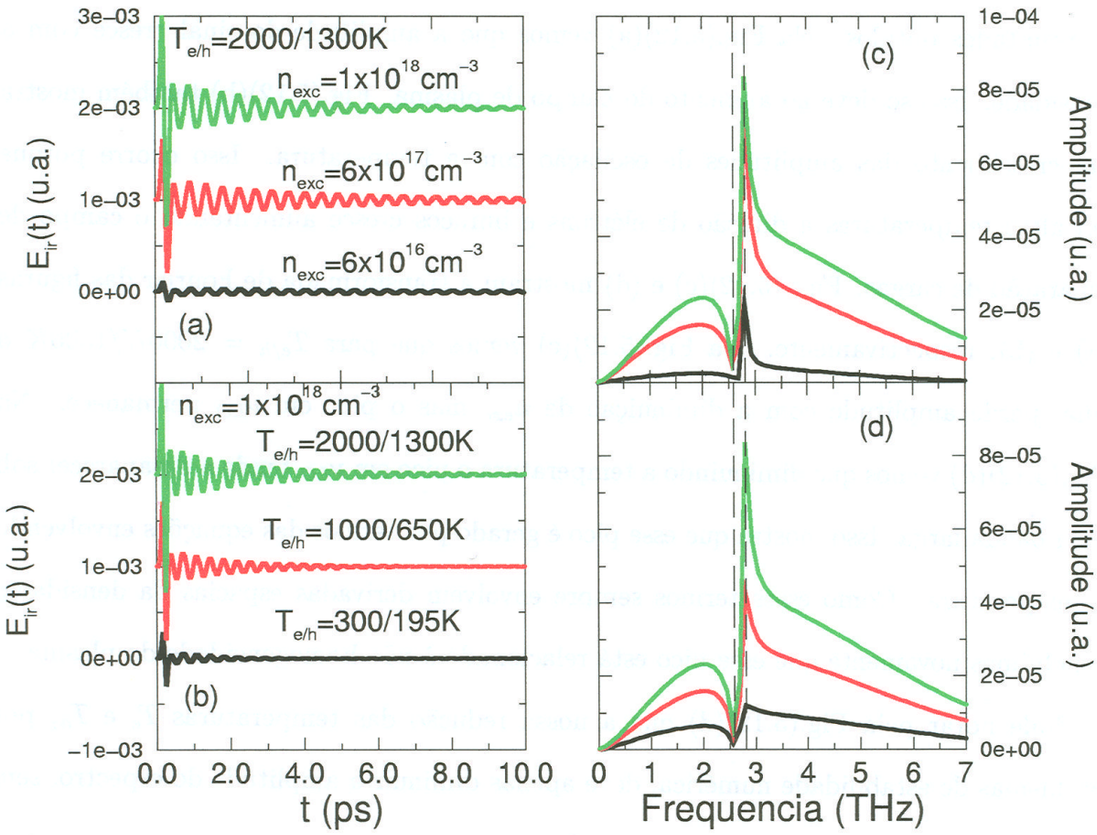

Figura 5.12: (a) Campo irradiado para diferentes densidade de excitação e $T_{e(h)}$ fixo e (b) diferentes $T_{e(h)}$ é uma única densidade de excitação. (c) e (d) Transformadas de Fourier de (a) e (b), respectivamente. Notamos que diminuindo a densidade ou a temperatura o sinal perde amplitude. No caso (c) vemos que a amplitude diminui mas o pico próximo a ν_{LO} permanece bem definido. Já no caso (d) esse pico tende a desaparecer sob a banda larga. Isso mostra que esse pico tem relação com a temperatura. Mas como a temperatura aparece nas equações de corrente multiplicadas pelo gradiente da densidade de portadores, concluimos que sua origem está na não homogeneidade longitudinal do plasma.

Capítulo 6

Conclusão

Nesse trabalho simulamos a interação dinâmica dos portadores com a rede em amostras de n-GaAs e Telúrio excitadas por pulsos ultracurto ($\sim$50 fs). Tivemos como motivação resultados experimentais recentes de espectroscopia ultrarápida com resolução de dezenas de femtosegundos. A nossa descrição envolve equações de transporte, a equação de Poisson e uma equação fenomenológica de oscilador harmônico para descrever vibrações da rede semicondutora. Com essas equações complementamos modelos anteriores pois consideramos o acoplamento plásmon-fônon e a não homogeneidade do plasma, na região de depleção do semicondutor.

Resolvemos numericamente o sistema de equações diferencias do modelo. Para isso utilizamos o método das diferenças finitas que consiste em discretizar o espaço e o tempo fazendo $x = j\Delta x$ e $t = n\Delta t$, onde j e n são inteiros e Δx e Δt são intervalos constantes. Para se estudar o problema da estabilidade da solução numérica utilizamos o critério de von Neumann.

Da solução numérica extraimos o campo $E(x,t)$ gerado tanto pelos portadores quanto pela polarização dielétrica. Desse campo determinamos as freqüências de oscilação do sistema por transformada de Fourier. Também calculamos, através de $E(x,t)$, o campo irradiado $E_{ir}(t)$ pelo semicondutor após a excitação óptica. Por isso $E(x,t)$ é uma

grandeza fundamental em nossa descrição.

Comparamos as freqüências obtidas através de $E(x,t)$ com medidas eletro-ópticas da refletividade em uma amostra de n-GaAs. As freqüências obtidas experimental e teoricamente apresentam concordância. Observamos três freqüências de oscilação do sistema, duas correpondentes a plasma homogêneo ($k = 0$) e uma terceira que atribuímos à não homogeneidade do plasma. Explicamos esse terceiro pico através da blindagem inefetiva do modo LO pelo plasma. Fizemos uma análise de modos normais considerando a dependência em k e mostramos que uma soma em k pode levar ao aparecimento de mais de dois picos na transformada de Fourier do campo.

Quanto a emissão terahertz chegamos a um acordo qualitativo entre os espectros de emissão experimental e simulado. Ambos apresentam uma banda larga abaixo da freqüência de fônon transversal óptico (ν_{TO}), um mínimo em ν_{TO} e um pico na freqüência de fônon longitudinal óptico (ν_{LO}). Entendemos que a banda larga se deve a correntes de difusão de portadores logo após a fotogeração. O mínimo em ν_{TO} está associado ao polo da função dielétrica nessa freqüência. O pico em ν_{LO} se deve às oscilações ópticas da rede. Esse pico apresenta uma amplitude maior do que o pico abaixo de ν_{TO}, enquanto experimentalmente ocorre o inverso. Sabemos que o resultado experimental é uma convolução do campo irradiado com a função resposta da antena. Essa convolução faz a amplitude do sinal diminuir com o aumento da freqüência, o que justifica a diferença das amplitudes teórica e experimental.

Com isso temos explicações alternativas para o pico em ν_{LO} nos resultados experimentais em n-GaAs e Telúrio. Essa explicação em termos da blindagem inefetiva deve, em princípio, ser considerada juntamente com a de Kuznetsov e Stanton [7], cuja justificativa se faz através do modo $k = 0$ com uma média *lateral* sobre densidades variadas. Experimentalmente a não homogeneidade longitudinal deve ter pequena contribuição para o sinal em n-GaAs. Nesse semicondutor o laser tem um comprimento de penetração muito

maior do que a camada de depleção, de modo que o *probe* mede principalmente regiões fora dessa camada. Assim, os efeitos de regiões mais homogêneas são predominantes no sinal. Para o Telúrio, contudo, a não homogeneidade longitudinal deve ser relevante pois o sinal detectado vem essencialmente da região não homogênea (~40 nm) próxima à superfície.

Para eliminar a não homogeneidade lateral, alguns experimentos em GaAs utilizam o *pump* com diâmetro do foco muito maior do que o *probe*. Assim o *probe* mede uma região lateralmente uniforme, eliminando-se efeitos da não homogeneidade lateral no sinal eletro-óptico. Dessa forma não se observa oscilações em ν_{LO}. Isso indica que o pico em ν_{LO} se deve a não homogeneidade lateral no GaAs. Para o Telúrio não há medidas experimentais que eliminem a não homogeneidade lateral. O campo irradiado provem de toda a extensão da superfície excitada. Seria interessante que experimentalmente fosse possível medir o campo irradiado de uma região lateralmente uniforme, para medir efeitos apenas da não homogeneidade longitudinal.

Apêndice A

Equações Hidrodinâmicas

Utilizamos equações hidrodinâmicas para calcular densidade e corrente de partículas como função da posição e do tempo. Essas equações são fundamentais para descrever o transporte de portadores no interior do material simulado. Derivamos essas equações da Eq. de Boltzmann, multiplicando-a por uma potência inteira da velocidade v_x e fazendo uma integração sobre o espaço de velocidades.

Para obter a primeira equação hidrodinâmica multiplicamos a equação de Boltzmann por v_x^0 e integramos sobre todo o espaço das velocidades. Com isso vem

$$\int \frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial t} d^3v + \int \frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial x} v_x d^3v + \int \frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial v_x} \frac{qE}{m^*} d^3v =$$

$$= -\int (\frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial t})_{coll} d^3v. \tag{A.1}$$

O terceiro termo à esquerda vale zero pois

$$\int \frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial v_x} d^3v = \int \nabla_v f(x,\mathbf{v},t) \cdot \mathbf{x} d^3v = \mathbf{x} \cdot \int \nabla_v f(x,\mathbf{v},t) d^3v = \mathbf{x} \cdot \lim_{S_v \to \infty} \oint_{S_v} f(x,\mathbf{v},t) \mathbf{n} ds. \tag{A.2}$$

Como a integração volumétrica é sobre todo o espaço das velocidades, a superfície S_v deve ir a infinito. Mas $f(x,\mathbf{v},t)$ vale zero sobre $S_v \to \infty$ pois o número de partículas com

velocidade infinica é zero. Portanto o integrando de (A.2) vai à zero. Com isso e usando as definições de momentos

$$n(x,t) = \int f(x,\mathbf{v},t)d^3v \tag{A.3}$$

e

$$n(x,t) < v_x >= \int v_x f(x,\mathbf{v},t)d^3v, \tag{A.4}$$

a Eq.(A.1) fica

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(< v_x > n) = (\frac{\partial n}{\partial t})_{coll}. \tag{A.5}$$

Note que o lado esquerdo da Eq.(A.5) corresponde a uma equação de conservação de partículas, i.e., equação da continuidade. O lado direito deve então gerar partículas. Como as colisões entre partículas não criam novas partículas devemos ter $(\frac{\partial n}{\partial t})_{coll} = 0$. Sendo a corrente de partículas dada por $J_x =< v_x > n$ obtemos

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial J_x}{\partial x} = 0. \tag{A.6}$$

Com essa equação calculamos n como função de x e t. Aqui n e J_x são as densidades e correntes de partículas. Para obter a densidade e corrente de cargas devemos multiplicar (A.6) por q_e ou q_h. Note que para o cálculo de (A.6) precisamos conhecer J_x. Para isso recorremos à próxima equação hidrodinâmica.

Multiplicando a equação de Boltzmann por v_x e integrando como no caso anterior vem,

$$\frac{\partial}{\partial t}\int f(x,\mathbf{v},t)v_x d^3v + \frac{\partial}{\partial x}\int f(x,\mathbf{v},t)v_x^2 d^3v + \frac{qE}{m^*}\int \frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial v_x} v_x d^3v =$$

$$= -\frac{1}{\tau}\int f(x,\mathbf{v},t)v_x d^3v + \frac{1}{\tau}\int f^0(x,\mathbf{v})v_x d^3v, \tag{A.7}$$

onde os dois termos à direita vieram da aproximação do tempo de relaxação. O primeiro termo à esquerda e os dois termos à direita podem ser reescritos através da definição

(A.4). Com isso (A.7) fica

$$\frac{\partial J_x}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}\int f(x,\mathbf{v},t)v_x^2 d^3v + \frac{qE}{m^*}\int \frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial v_x} v_x d^3v = -\frac{J_x}{\tau} + \frac{J_x^0}{\tau} = -\frac{J_x}{\tau}, \qquad \text{(A.8)}$$

onde usamos J_x^0=0 pois não há corrente no equilíbrio. O terceiro termo à esquerda também é zero pois

$$\int \frac{\partial f(x,\mathbf{v},t)}{\partial v_x} v_x d^3v = \int \nabla_v f(x,\mathbf{v},t)\cdot \mathbf{x}\, v_x d^3v = \mathbf{x}\cdot\int (\nabla_v f(x,\mathbf{v},t))\, v_x d^3v.$$

Usando

$$\nabla_v(f v_x) = v_x(\nabla_v f) + f(\nabla_v v_x) = v_x(\nabla_v f) + f\mathbf{x},$$

vem

$$\mathbf{x}\cdot\int (\nabla_v f(x,\mathbf{v},t))\, v_x d^3v = \mathbf{x}\cdot\int \nabla_v(f v_x) d^3v - \mathbf{x}\cdot\int f\mathbf{x}\, d^3v =$$

$$= \mathbf{x}\cdot \lim_{S_v\to\infty}\oint_{S_v}(f v_x)\mathbf{n} ds - \mathbf{x}\cdot\mathbf{x}\int f\, d^3v = -\mathbf{x}\cdot\mathbf{x}\, n(x,t) = -n(x,t).$$

Onde a integração superficial é nula pois f tende a zero no limite de velocidades infinitas. Desse modo a Eq.(A.8) fica

$$\frac{\partial J_x}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}\int_{-\infty}^{\infty} f(x,\mathbf{v},t)v_x^2 d^3v - \frac{qEn}{m^*} = -\frac{J_x}{\tau}. \qquad \text{(A.9)}$$

O integral do segundo termo é, por definição,

$$\int f(x,\mathbf{v},t)v_x^2 d^3v = n < v_x^2 >, \qquad \text{(A.10)}$$

onde $< v_x^2 >$ é a média do quadrado da velocidade. Por outro lado

$$\frac{1}{2}m^* < v_x^2 > = < U_x >, \qquad \text{(A.11)}$$

onde $< U_x >$ é a energia cinética média associada a componente x da velocidade. Vale notar que no equilíbrio, a função f é simplesmente a distribuição de Maxwell e conseqüêntemente

$$< U_x >= \frac{1}{2}k_B T, \tag{A.12}$$

segundo o teorema da equipartição de energia. Como fora do equilíbrio $J_x \neq 0$ as partículas possuem uma velocidade de arraste $< v_x >$. Vamos somar um termo relativo a $< v_x >$ na Eq.(A.12),

$$< U_x >= \frac{1}{2}k_B T + \frac{1}{2}m^* < v_x >^2 . \tag{A.13}$$

Usando (A.11) e (A.13) em (A.10) obtemos

$$\int f(x, \mathbf{v}, t) v_x^2 d^3 v = \frac{2n}{m^*}(\frac{1}{2}k_B T + \frac{1}{2}m^* < v_x >^2). \tag{A.14}$$

Substituindo (A.14) em (A.9) chegamos a

$$\frac{\partial J_x}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}[\frac{2n}{m^*}(\frac{1}{2}k_B T + \frac{1}{2}m^* < v_x >^2)] - \frac{qEn}{m^*} = -\frac{J_x}{\tau}, \tag{A.15}$$

ou

$$\frac{\partial J_x}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(< v_x > J_x) = \frac{qEn}{m^*} - \frac{k_B}{m^*}\frac{\partial nT}{\partial x} - \frac{J_x}{\tau}, \tag{A.16}$$

onde usamos $J_x =< v_x > n$. Note que o lado esquerdo de (A.16) apresenta a mesma forma da Eq.(A.5) e portando trata-se de uma equação de conservação com termos de geração à direita. Usando novamente que $J_x =< v_x > n$ eliminamos $< v_x >$ na Eq.(A.16), obtendo assim

$$\frac{\partial J_x}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(\frac{J_x^2}{n}) = \frac{qEn}{m^*} - \frac{k_B}{m^*}\frac{\partial nT}{\partial x} - \frac{J_x}{\tau}. \tag{A.17}$$

Com a Eq.(A.17) calculamos a corrente como função de x e t. Para isso precisamos conhecer n e T. Temos n da Eq.(A.6), mas T precisa ser calculado pela próxima equação

hidrodinâmica. Porém vamos assumir T constante tanto no tempo quanto no espaço de modo a truncar a expansão de equações de momentos. Com isso obtemos um sistema fechado de duas equações acopladas para o cálculo da densidade e corrente de partículas. Como essas equações valem tanto para elétrons quanto para buracos, utilizamos quatro equações hidrodinâmicas para descrever transporte de cargas. Note que a rede semicondutora se acopla ao plasma através do termo $\frac{qEn}{m^*}$, pois E contém campo de plasma e campo de polarização da rede.

Apêndice B

Calculo dos coeficientes b_{ij}.

Considere as equações da fenomenologia de Born e Huang,

$$\frac{\partial^2 \mathbf{w}(x,t)}{\partial t^2} = b_{11}\mathbf{w}(x,t) + b_{12}\mathbf{E}(x,t), \tag{B.1}$$

e

$$\mathbf{P}_d(x,t) = b_{21}\mathbf{w}(x,t) + b_{22}\mathbf{E}(x,t). \tag{B.2}$$

Para determinar as constantes b_{ij} consideramos para (B.1) e (B.2) soluções periódicas da forma

$$\mathbf{E}(x,t) = \mathbf{E}(x,\omega)e^{-i\omega t},$$

$$\mathbf{w}(x,t) = \mathbf{w}(x,\omega)e^{-i\omega t},$$

e

$$\mathbf{P}_d(x,t) = \mathbf{P}_d(x,\omega)e^{-i\omega t},$$

e relacionamos b_{ij} com a constante dielétrica.

Substituindo as soluções anteriores em (B.1) e (B.2) vem

$$-\omega^2\mathbf{w}(x,\omega) = b_{11}\mathbf{w}(x,\omega) + b_{12}\mathbf{E}(x,\omega)$$

e

$$\mathbf{P}_d(x,\omega) = b_{21}\mathbf{w}(x,\omega) + b_{22}\mathbf{E}(x,\omega).$$

Eliminado $\mathbf{w}(x,\omega)$ dessas equações obtemos a seguinte relação entre $\mathbf{P}_d(x,\omega)$ e $\mathbf{E}(x,\omega)$,

$$\mathbf{P}_d(x,\omega) = (b_{22} - \frac{b_{12}b_{21}}{b_{11}+\omega^2})\mathbf{E}(x,\omega). \tag{B.3}$$

Comparando (B.3) com

$$\mathbf{P}_d(x,\omega) = \varepsilon_0(\epsilon - 1)\mathbf{E}(x,\omega),$$

onde ε_0 é a permissividade do vácuo e ϵ a constante dielétrica do meio, vem

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{b_{22}}{\varepsilon_0} - \frac{1}{\varepsilon_0}\frac{b_{12}b_{21}}{b_{11}+\omega^2}. \tag{B.4}$$

No limite $\omega \to \infty$ obtemos de (B.4)

$$\epsilon_\infty = 1 + \frac{b_{22}}{\varepsilon_0}, \tag{B.5}$$

e no limite $\omega \to 0$ vem

$$\epsilon_0 = 1 + \frac{b_{22}}{\varepsilon_0} - \frac{b_{12}b_{21}}{\varepsilon_0 b_{11}}. \tag{B.6}$$

De (B.5) obtemos

$$b_{22} = \varepsilon_0(\epsilon_\infty - 1). \tag{B.7}$$

Mostra-se por conservação de energia que $b_{12} = b_{21}$ [8]. Com isso de (B.6) e (B.7) vem

$$b_{12} = b_{21} = \sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)(-b_{11})}. \tag{B.8}$$

Substituindo (B.7) e (B.8) em (B.4) chegamos a

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + \frac{\omega^2}{b_{11}}},$$

que é a função dielétrica para fônon. Portanto $b_{11} = -\omega_{TO}^2$ de modo que

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 - (\frac{\omega}{\omega_{TO}})^2}.$$

Apêndice C

Equação de Onda para o Campo de Plasma

Podemos reescrever as equações de transporte mais a equação de Poisson numa única equação diferencial parcial para o campo gerado pelo plasma E_p. Isso é útil para notarmos que E_p satisfaz uma equação de onda se $\tau_e = \tau_h$, $m_e^* = m_h^*$ e $T_e = T_h$. Portanto, o sistema plásmon-fônon pode ser descrito por uma equação de onda para o plasma, mais uma equação de oscilador para a rede. Em certos casos a equação de onda se transforma também numa equação de oscilador, de sorte que o sistema passa a ser descrito por dois osciladores acoplados, como no modelo de Kuznetsov e Stanton [7].

Para obtermos a equação de onda, desprezamos $\frac{\partial}{\partial x}\frac{J^2_{e(h)}(x,t)}{n_{e(h)}(x,t)}$ na equação da corrente. Verificamos que esse termo é muito menor do que os demais termos das Eqs.(3.17) e (3.18). Na Fig.(C.1) mostramos três termos da equação da corrente como função do tempo obtida para o GaAs. Os termos são

$$t_1 = \frac{q_e E n_e}{m_e^*},$$

$$t_2 = \frac{k_B T_e}{m_e^*}\frac{\partial n_e}{\partial x},$$

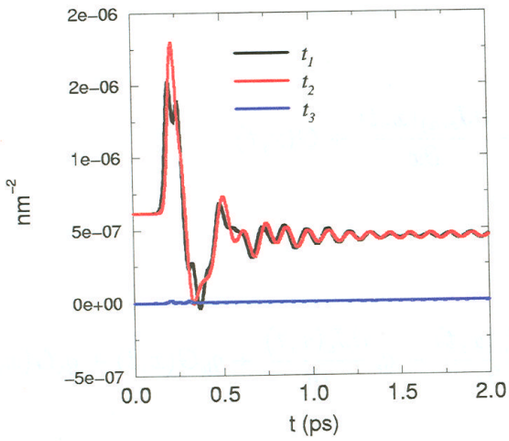

Figura C.1: Gráficos de três termos da equação da corrente para elétrons. Utilizamos parâmetros típicos de nossas simulações (adotados para o GaAs). Notamos que os dois primeiros termos (corrente de arraste e difusão) são aproximadamente iguais, enquanto o t_3 é aproximadamente zero. Com isso vemos que é válido desprezar o t_3 em nossa análise.

e

$$t_3 = \frac{\partial}{\partial x}(\frac{J_{e_x}^2}{n_e}).$$

Note que t_1 e t_2 atingem rápidamente valores próximos. Isso mostra que logo após a separação de cargas, provocada pelo campo de depleção, surge uma corrente de difusão que se opoem a de arraste. Isso tende a anular a corrente total, levando t_3 para aproximadamente zero.

Considere a equação de Poisson

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial E_{ext}}{\partial x} + \frac{1}{\varepsilon_0\epsilon_\infty}(q_h n_h + q_e n_e + q_h n_{dop}) - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0\epsilon_\infty}\frac{\partial w}{\partial x}. \tag{C.1}$$

Derivando (C.1) com relação ao tempo vem,

$$\frac{\partial^2 E(x,t)}{\partial x \partial t} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial^2 E_{ext}}{\partial x \partial t} + \frac{1}{\varepsilon_0\epsilon_\infty}(q_h\frac{\partial n_h(x,t)}{\partial t} + q_e\frac{\partial n_e(x,t)}{\partial t}) - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0\epsilon_\infty}\frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial x \partial t}. \tag{C.2}$$

O termo $q_h n_{dop}$ desaparece porque n_{dop} é constante. Utilizando a equação da continuidade

para elétrons e buracos,

$$\frac{\partial n_{e(h)}(x,t)}{\partial t} = -\frac{\partial J_{e(h)}(x,t)}{\partial x} + G(x,t), \tag{C.3}$$

reescrevermos (C.2) da forma

$$\frac{\partial^2 E(x,t)}{\partial x \partial t} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial^2 E_{ext}}{\partial x \partial t} + \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}(-q_h \frac{\partial J_h(x,t)}{\partial x} - q_e \frac{\partial J_e(x,t)}{\partial t} + q_h G(x,t) + q_e G(x,t)) +$$

$$-\frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}\frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial x \partial t}. \tag{C.4}$$

Os dois termos envolvendo $G(x,t)$ se cancelam mutuamente pois $q_h = -q_e$. Derivando novamente com relação ao tempo, (C.4) fica

$$\frac{\partial^3 E(x,t)}{\partial x \partial^2 t} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial^3 E_{ext}}{\partial x \partial^2 t} - \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}(q_h \frac{\partial^2 J_h(x,t)}{\partial x \partial t} + q_e \frac{\partial^2 J_e(x,t)}{\partial x \partial t}) +$$

$$-\frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}\frac{\partial^3 w(x,t)}{\partial x \partial^2 t}. \tag{C.5}$$

Utilizando as equações para corrente reescrevemos os termos que envolvem $\frac{\partial J_{e(h)}(x,t)}{\partial t}$. Obtemos assim,

$$\frac{\partial^3 E(x,t)}{\partial x \partial^2 t} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial^3 E_{ext}}{\partial x \partial^2 t} - \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}(\frac{\partial}{\partial x}\frac{q_h^2 n_h E}{m_h^*} - \frac{q_h k_B T_h}{m_h^*}\frac{\partial^2 n_h(x,t)}{\partial x^2} - \frac{q_h}{\tau}\frac{\partial J_h}{\partial x} +$$

$$+\frac{\partial}{\partial x}\frac{q_e^2 n_e E}{m_e^*} - \frac{q_h k_B T_e}{m_e^*}\frac{\partial^2 n_e(x,t)}{\partial x^2} - \frac{q_e}{\tau}\frac{\partial J_e}{\partial x}) - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}\frac{\partial^3 w(x,t)}{\partial x \partial^2 t}. \tag{C.6}$$

Substituindo $\frac{\partial J_{e(h)}}{\partial x}$ dado por (C.3) e reagrupando os termos de (C.6) obtemos

$$\frac{\partial^3 E}{\partial x \partial^2 t} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial^3 E_{ext}}{\partial x \partial^2 t} - \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}[\frac{\partial}{\partial x}(\frac{q_h^2 n_h}{m_h^*} + \frac{q_e^2 n_e}{m_e^*})E - \frac{\partial^2}{\partial x^2}(\frac{q_h k_B T_h}{m_h^*}n_h + \frac{q_e k_B T_e}{m_e^*}n_e) +$$

$$+\frac{1}{\tau}\frac{\partial}{\partial t}(q_h n_h + q_e n_e + q_h n_{dop})] - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}\frac{\partial^3 w(x,t)}{\partial x \partial^2 t},$$

onde incluimos a constante $q_h n_{dop}$. Utilizando a equação

$$\frac{\partial E_p(x,t)}{\partial x} = \frac{1}{\varepsilon_0}(q_h n_h + q_e n_e + q_h n_{dop}),$$

obtemos

$$\frac{\partial^3 E}{\partial x \partial^2 t} = \frac{\partial}{\partial x}\{\frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial^2 E_{ext}}{\partial^2 t} - \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}[(\frac{q_h^2 n_h}{m_h^*} + \frac{q_e^2 n_e}{m_e^*})E - \frac{\partial}{\partial x}(\frac{q_h k_B T_h}{m_h^*} n_h + \frac{q_e k_B T_e}{m_e^*} n_e)]+$$

$$-\frac{1}{\epsilon_\infty \tau}\frac{\partial E_p}{\partial t} - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}\frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial^2 t}\}. \tag{C.7}$$

Igualando os argumentos da derivada espacial chegamos a

$$\frac{\partial^2 E(x,t)}{\partial^2 t} = \frac{1}{\epsilon_\infty}\frac{\partial^2 E_{ext}}{\partial^2 t} - \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}[(\frac{q_h^2 n_h}{m_h^*} + \frac{q_e^2 n_e}{m_e^*})E - \frac{q_h k_B T_h}{m_h^*}\frac{\partial n_h(x,t)}{\partial x} - \frac{q_h k_B T_e}{m_e^*}\frac{\partial n_e(x,t)}{\partial x})]+$$

$$-\frac{1}{\epsilon_\infty \tau}\frac{\partial E_p}{\partial t} - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}\frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial^2 t}.$$

Usando

$$E(x,t) = \frac{1}{\epsilon_\infty}[E_{ext}(x,t) + E_{pl}(x,t) - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0} w(x,t)],$$

e definindo

$$\omega_{pl}^2 = \frac{1}{\varepsilon_0 \epsilon_\infty}(\frac{q_h^2 n_h}{m_h^*} + \frac{q_e^2 n_e}{m_e^*}),$$

obtemos

$$\frac{\partial^2 E_p(x,t)}{\partial^2 t} = -\omega_{pl}^2 E_p - \omega_{pl}^2(E_{ext} - \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0} w(x,t))+$$

$$+\frac{1}{\varepsilon_0}(\frac{q_h k_B T_h}{m_h^*}\frac{\partial n_h(x,t)}{\partial x} + \frac{q_h k_B T_e}{m_e^*}\frac{\partial n_e(x,t)}{\partial x}) - \frac{1}{\tau}\frac{\partial E_p}{\partial t}.$$

Definindo $E_f(x,t) = \frac{\omega_{TO}\sqrt{\varepsilon_0(\epsilon_0-\epsilon_\infty)}}{\varepsilon_0} w(x,t)$, vem

$$\frac{\partial^2 E_p(x,t)}{\partial^2 t}+\frac{1}{\tau}\frac{\partial E_p}{\partial t}+\omega_{pl}^2 E_p = \omega_{pl}^2(E_f(x,t)-E_{ext})+\frac{1}{\varepsilon_0}(\frac{q_h k_B T_h}{m_h^*}\frac{\partial n_h(x,t)}{\partial x}+\frac{q_h k_B T_e}{m_e^*}\frac{\partial n_e(x,t)}{\partial x}). \tag{C.8}$$

Para calcular (C.8) precisamos também determinar $n_{e(h)}$ e conseqüentemente $J_{e(h)}$. Para transformar (C.8) numa equação fechada para E_p devemos linearizar os termos de arraste, assumindo $n_e = n_h = n_0$ =constante, e com isso

$$\omega_{pl}^2 = \frac{1}{\varepsilon_0\epsilon_\infty}(\frac{q_h^2 n_0}{m_h^*}+\frac{q_e^2 n_0}{m_e^*}).$$

Note que na prática $n_e \neq n_h$ e essa diferença se acentua se $n_{dop} \neq 0$. A razão para se assumir n_e e n_h constantes pode ser vista na Fig.(C.2). Observe que após sua fotoexcitação, a densidade n_e parte de um valor constante dado pela camada de depleção e passa a oscilar em torno de um novo valor n_0. O que fazemos é desprezar as oscilações $\delta n_e(x,t)$ sobre n_0, pois sua amplitude é pequena. Também assumimos $T_h = T_e$ e $m_h^* = m_e^*$. Com isso obtemos

$$\frac{\partial^2 E_p(x,t)}{\partial^2 t}+\frac{1}{\tau}\frac{\partial E_p}{\partial t}+\omega_{pl}^2 E_p = \omega_{pl}^2(E_f(x,t)-E_{ext})+c^2\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2}, \tag{C.9}$$

onde $c^2 = \frac{k_B T_{e(h)}}{m_{e(h)}^*}$ tem dimensão de velocidade ao quadrado.

Note que (C.9) é uma equação de onda com termos de restauração, amortecimento e um termo que lhe acopla à rede. Com isso o sistema de seis equações diferenciais se reduz a apenas duas equações para E_p e E_f. Observe que se $\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2} = 0$ em alguma região do espaço ou $c = 0$, obtemos dois osciladores acoplados para descrever a dinâmica plásmon-fônon. O nosso modelo generaliza o modelo de Kuznetsov e Stanton [7] pois incluimos a não homogeneidade longitudinal do plasma, dada pelo termo $c^2\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2}$ em (C.9).

Resolvemos a Eq.(C.9) mais a equação de oscilador para E_f (Eq.(3.22)) fazendo uma

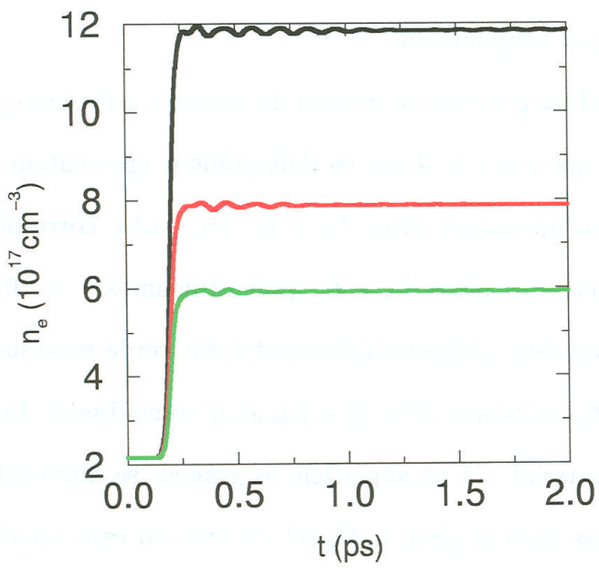

Figura C.2: Gráfico de n_e(4nm,t) para uma dopagem fixa n_{dop} =3x10^{17} cm^{-3} e diferentes densidades de excitação, n_{exc} =4x10^{17} cm^{-3} (verde), 6x10^{17} cm^{-3} (vermelho) e 1x10^{18} cm^{-3} (preto). O valor inicial de n_e é uma constante dada pela camada de depleção do GaAs. Com a fotoexcitação essa densidade aumenta rapidamente, passando a oscilar em torno de uma nova densidade $n_0 = (n_{e(exc)} + n_{e(dop)})$ com uma pequena amplitude $\delta n_e(x,t)$. Linearizamos nossos cálculos assumindo $\delta n_e(x,t) = 0$ em ω_{pl}^2.

transformada de Fourier do tempo para a freqüência nas duas equações. Em seguida resolvemos uma equação diferencial ordinária em x impondo $E_p(0,t) = E_p(l,t) = 0$, onde l é o comprimento da amostra semicondutora. O resultado obtido tem a forma

$$E(x,\omega) = E_{k=0}(\omega) f(x,\omega),$$

onde $E_{k=0}(\omega)$ é o resultado sem o termo $\frac{\partial^2 E_p}{\partial x^2}$ e portanto corresponde ao plasma homogêneo ($k = 0$). $f(x,t)$ é uma função da posição obtida das condições de contorno utilizadas. Admitimos $E_{ext}(x,\omega)$ constante por simplicidade.

Fig.(C.3) ilustra $E(x,\omega)$ para duas posições no interior da amostra utilizando parâmetros do GaAs e Telúrio. Observe que em $x = 4$ nm os dois gráficos apresentam um pico em ν_{LO}. Para $x = 300$ nm vemos apenas os picos L_+ e L_- no GaAs, correspondentes a $k = 0$. No Telúrio não observamos os picos L_+ e L_- pois utilizamos $\tau = 10$ fs [4], o que faz o sistema amortecer fortemente. As curvas tracejadas em verde correspondem a $E_{k=0}(\omega)$. Note que para $x = 300$ nm temos $E(x,\omega)$ e $E_{k=0}(\omega)$ coincidindo. Isso indica que $f(x,t) \to 1$ no interior do material. Já na superfície os gráficos se diferenciam pelo pico em ν_{LO}. Isso mostra que esse pico se deve a $f(x,t)$ e portanto está relacionado à dependência espacial do campo, i.e., à não homogeneidade do plasma.

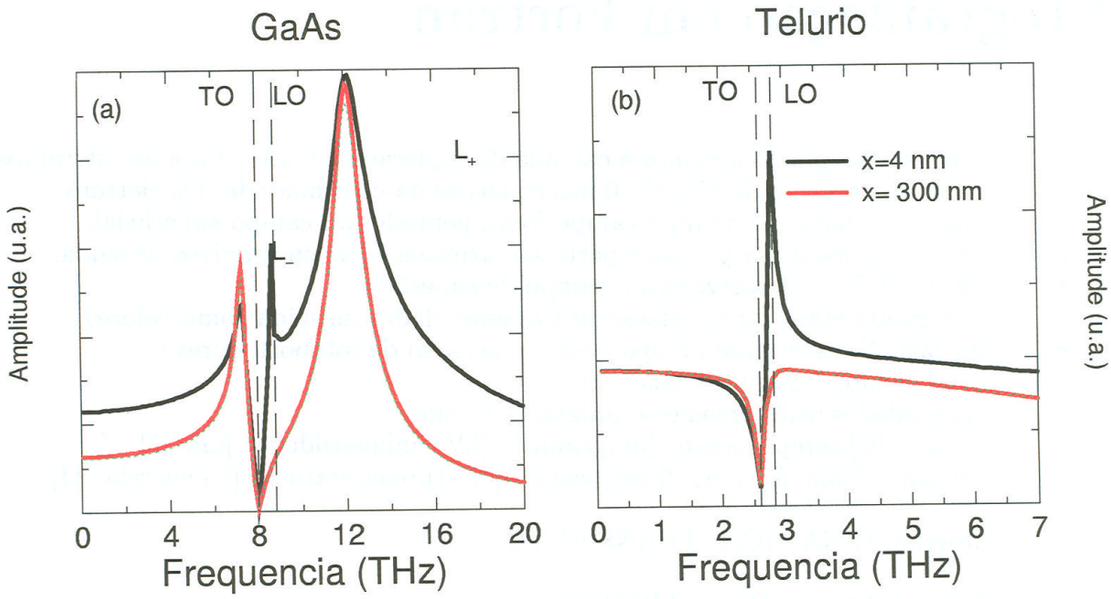

Figura C.3: Transformadas de Fourier do campo elétrico em $x = 4$ nm e $x = 300$ nm com parâmetros do GaAs e do Telúrio obtidas analiticamente (resolvendo-se a Eq.(C.9) mais a equação de oscilador para a rede). Em $x = 4$ nm observamos um pico em ν_{LO} nos dois casos. Para $x = 300$ nm vemos os picos L_+ e L_- para o GaAs e apenas um banda larga no Telúrio. Essa diferença se deve ao τ adotados nos dois casos. No GaAs utilizamos $\tau = 100$ fs enquanto no Telúrio $\tau = 10$ fs. A linha pontilhada em verde é o gráfico de $E_{k=0}(\omega)$. Note que $E_{k=0}(\omega)$ e $E(300\text{nm},\omega)$ coincidem. Portanto o pico em ν_{LO} se deve a dependência espacial de $f(x,\omega)$, relevante na posição $x = 4$ nm.

Apêndice D

Programação em Fortran

```
c       Com este programa geramos a camada de deplecao do GaAs. Para isso iteramos
c        o sistema assumindo G(x,t)=0 nas equacoes da continuidade. Os eletrons
c        dados por ndop  blindam o campo Eext, gerando um campo superficial.
c        Os resultados dessa primeira parte sao armazenados em arquivos de saida.
c        Para o Telurio desprezamos o campo de superficie.
c        A segunda etapa da simulacao utiliza esses dados de saida como valores
c        iniciais. Nesta segunda etapa ocorre a geracao de fotoportadores e a
c        subsequente dinamica transiente.
c        As unidades utilizadas nesse programa foram:
c        tempo=[fs];comprimento=[nm];campo=[kV/cm];densidade=[nm^-3]
c        corrente=[(nm/fs)*nm^-3];frequencia=[fs^-1];temperatura=[K];energia=[J].

         program DINAMICA_TRANSIENTE

c        DECLARACAO DAS VARIAVEIS
         integer j,n,NL,NT,contador
         real*8 eo,einf,permit,w_TO,w_LO,b12
         real*8 qe,me,Te,qh,mh,Th
         real*8 kb,tau,tau_ph,Pi
         real*8 ak1,ak2,ak3,ak4,half
         real*8 Eext
         real*8 fator1,fator2,fator3,fator4
         real*8 dt,dx
         real*8 ndop
         real*8 SOMApar,SOMAimpar,SOMAif
         real*8 N0,Nexc,lambda,delta,t0

c        DECLARACAO DO VETORES
         real*8 ne(0:2000,0:1),je(0:2000,0:1)
         real*8 nh(0:2000,0:1),jh(0:2000,0:1)
         real*8 E(0:2000,0:1),Ep(0:2000,0:1)
         real*8 w(0:2000,0:1),v(0:2000,0:1)
         real*8 G(0:2000,0:1)
         real*8 integral(0:50000)
```

```
c       PARAMETROS: PARA SIMULAR GaAs COMENTA-SE A LISTA
c       DE PARAMETROS DO Teluro E VICE-VERSA.
c       PARAMETROS DO GaAs
        parameter (qe=-1.60219d-19,me=0.067d0*9.11d-31,Te=343.0d0)     !(C,KG,K)
        parameter (qh=+1.60219d-19,mh=0.530d0*9.11d-31,Th=44.0d0)
        parameter (einf=10.9d0)
        parameter (w_TO=2.0d0*3.1415d0*8.0d-3)  !(fs^-1)
        parameter (w_LO=2.0d0*3.1415d0*8.8d-3)
        parameter (tau=100.0d0,tau_ph=4000.0d0) !(fs)
        parameter (Eext=-20.0d0)        !(kV/cm)
        parameter (ndop=3.0d-4)         !(nm^-3)

c       PARAMETROS DO Telurio
        parameter (qe=-1.60219d-19,me=0.06d0*9.11d-31,Te=2000.0d0)
        parameter (qh=+1.60219d-19,mh=0.114d0*9.11d-31,Th=1050.0d0)
        parameter (einf=22.9d0)
        parameter (w_TO=2.0d0*3.1415d0*2.6d-3)
        parameter (w_LO=2.0d0*3.1415d0*2.83d-3)
        parameter (tau=10.0d0,tau_ph=4000.0d0)
        parameter (Eext=0.0d0)
        parameter (ndop=0.0d0)

c       PARAMETROS GERAIS
        parameter (permit=8.854d-12)    !(C^2/N/m^2)
        parameter (Pi=3.1415927d0)
        parameter (kb=1.3807d-23)       !(J/K)

c       FATORES DE AJUSTE DAS UNIDADES
        parameter (fator1=1.0d-12)      !Ajusta o fator kb*T/m
        parameter (fator2=1.0d-16)      !Ajusta o termo de arraste nas Eqs. de Je e Jh
        parameter (fator3=1.0d13)       !Ajusta o campo de fonon
        fator4=dsqrt(1.0d29)            !Ajusta o campo de plasma

c       PARAMETROS DA DISCRETIZACAO
        parameter (dt=0.25d0,dx=2.0d0)          !(fs,nm)
        parameter (NL=2000,NT=32768)

        eo=((w_LO/w_TO)**2)*einf            !Relacao LST
        b12=w_TO*dsqrt(permit*(eo-einf))    !Constante de Acoplamento

c       CONSTANTES REFERENTES AO PULSO DE LASER
        t0=XXX                  !(fs)
        Nexc=XXX                !(nm^-3)
        lambda=XXX              !(nm) lambda=(alfa)^-1
        delta=XXX/2.0d0/dsqrt(2.0d0*log(2.0d0)) !(fs)
        N0=Nexc/(delta*dsqrt(Pi*2.0d0)) !(nm^-3)

c       ABRE ARQUIVOS VELHOS
        open(unit=XXX,file='XXX.dat',status='old')
        ...
```

```
c       CRIA NOVOS ARQUIVOS
        open(unit=XXX,file='XXX.dat',status='unknown')
        ...

c       INICIALIZACAO DE VARIAVEIS
c       NO CASO DE VARIAVEIS ANTIGAS:
        do j=1,NL
          read(XXX,*) ne(j,0)
          read(XXX,*) je(j,0)
          read(XXX,*) nh(j,0)
          read(XXX,*) jh(j,0)
          read(XXX,*) Ep(j,0)
          read(XXX,*) w(j,0)
          read(XXX,*) v(j,0)
        end do
        close(XXX)
        close(XXX)
        close(XXX)
        close(XXX)
        close(XXX)
        close(XXX)

c       NO CASO DE NOVAS VARIAVEIS:
        do j=1,NL
          ne(j,0)=ndop          !dopagem tipo n
          je(j,0)=0.0d0
          nh(j,0)=0.0d0
          jh(j,0)=0.0d0
          Ep(j,0)=0.0d0
          w(j,0)=0.0d0
          v(j,0)=0.0d0
        end do

c       INICIO DO LOOP TEMPORAL
        do 20,contador=0,NT

        n=0

c       CONDICOES DE CONTORNO p/ todo n

        ne(0,n)=ne(2,n)-(fator2*qe*E(1,n)*dt*ne(1,n)/me)/
       $(fator1*(kb*Te/me)*(dt/2.0d0/dx))

        ne(NL+1,n)=ne(NL-1,n)+(fator2*qe*E(NL,n)*dt*ne(NL,n)/me)/
       $(fator1*(kb*Te/me)*(dt/2.0d0/dx))

        nh(0,n)=nh(2,n)-(fator2*qh*E(1,n)*dt*nh(1,n)/mh)/
       $(fator1*(kb*Th/mh)*(dt/2.0d0/dx))

        nh(NL+1,n)=nh(NL-1,n)+(fator2*qh*E(1,n)*dt*nh(1,n)/mh)/
       $(fator1*(kb*Th/mh)*(dt/2.0d0/dx))
```

```
      je(0,n)=-je(2,n)
      je(NL+1,n)=-je(NL-1,n)
      jh(0,n)=-jh(2,n)
      jh(NL+1,n)=-jh(NL-1,n)

      je(1,n)=0.0d0
      je(NL,n)=0.0d0
      jh(1,n)=0.0d0
      jh(NL,n)=0.0d0

c     SOMA "CAMPO DE PLASMA+CAMPO DE FONON+CAMPO EXTERNO"
      do j=1,NL
      E(j,n)=Eext+Ep(j,n)-fator4*gama12*w(j,n)/permit/einf
      end do

c     CALCULO DO PULSO ULTRACURTO
      do j=1,NL
        G(j,n)=N0*exp(-(((contador*dt-t0)/delta)**2)/2.0d0)
     $*exp(-(j-1)*dx/lambda)
      end do

c     RESOLVEMOS A EQ. DE POISSON POR Runge-Kutta DE QUARTA ORDEM
c      PARA O CAMPO DE PLASMA

      do j=1,NL
       ak1=(qh*nh(j,n)+qe*ne(j,n)+qh*ndop)*dx*fator3/permit/einf

       half=((qh*nh(j+1,n)+qe*ne(j+1,n)+qh*ndop)
     $+(qh*nh(j,n)+qe*ne(j,n)+qh*ndop))/2.0d0

       ak2=half*dx*fator3/permit/einf

       ak3=ak2

       ak4=(qh*nh(j+1,n)+qe*ne(j+1,n)+qh*ndop)
     $*dx*fator3/permit/einf

       Ep(j+1,n) =  Ep(j,n) + ak1/6.0d0 +
     $ak2/3.0d0 + ak3/3.0d0 + ak4/6.0d0
      end do

c     EQUACAO DA CONTINUIDADE COM TERMOS DE GERACAO PARA
c     ELETRONS E BURACOS
      do j=1,NL
        ne(j,n+1)=ne(j,n)+dt*G(j,n)
     $-(dt/2.0d0/dx)*(je(j+1,n)-je(j-1,n))
        nh(j,n+1)=nh(j,n)+dt*G(j,n)
     $-(dt/2.0d0/dx)*(jh(j+1,n)-jh(j-1,n))
      end do

c     EQUACAO DA CORRENTE PARA ELETRONS E BURACOS
      do j=1,NL
```

```
      if(ne(j,n) .EQ. 0.0d0) then
        je(j,n+1)=je(j,n)*(1.0d0-dt/tau)
$+fator2*qe*E(j,n)*dt*ne(j,n)/me
$-fator1*(kb*Te/me)*(dt/2.0d0/dx)*(ne(j+1,n)-ne(j-1,n))
      else
        je(j,n+1)=je(j,n)*(1.0d0-dt/tau)
$+fator2*qe*E(j,n)*dt*ne(j,n)/me-
$fator1*(kb*Te/me)*(dt/2.0d0/dx)*(ne(j+1,n)-ne(j-1,n))
$-2.0d0*(je(j,n)/ne(j,n))*(je(j+1,n)-je(j-1,n))*(dt/2.0d0/dx)
$+(je(j,n)/ne(j,n))*(je(j,n)/ne(j,n))*
$(ne(j+1,n)-ne(j-1,n))*(dt/2.0d0/dx)
      end if

      if(nh(j,n) .EQ. 0.0d0) then
        jh(j,n+1)=jh(j,n)*(1.0d0-dt/tau)
$+0.0d0*fator2*qh*E(j,n)*dt*nh(j,n)/mh
$-0.0d0*fator1*(kb*Th/mh)*(dt/2.0d0/dx)*(nh(j+1,n)-nh(j-1,n))
      else
        jh(j,n+1)=jh(j,n)*(1.0d0-dt/tau)
$+0.0d0*fator2*qh*E(j,n)*dt*nh(j,n)/mh
$-0.0d0*fator1*(kb*Th/mh)*(dt/2.0d0/dx)*(nh(j+1,n)-nh(j-1,n))
$-2.0d0*(jh(j,n)/nh(j,n))*(jh(j+1,n)-jh(j-1,n))*(dt/2.0d0/dx)
$+(jh(j,n)/nh(j,n))*(jh(j,n)/nh(j,n))*(nh(j+1,n)-nh(j-1,n))*
$(dt/2.0d0/dx)
      end if
      end do

c     EQUACAO DE OSCILADOR HARMONICO PARA A REDE
      do j=1,NL
        w(j,n+1)=w(j,n)+dt*v(j,n)
        v(j,n+1)=v(j,n)*(1.0d0-dt/tau_ph)-dt*w_TO*w_TO*w(j,n)+
$(1/fator4)*dt*b12*E(j,n)
      end do

c     ATUALIZACAO DAS VARIAVEIS
      do j=1,NL
        ne(j,n)=ne(j,n+1)
        je(j,n)=je(j,n+1)
        nh(j,n)=nh(j,n+1)
        jh(j,n)=jh(j,n+1)
        w(j,n)=w(j,n+1)
        v(j,n)=v(j,n+1)
      end do

c     CALCULO DE S(t)
      SOMApar=0
      do j = 2,(lambda/dx)-1,2
        SOMApar = SOMApar + E(j,n)*exp(-j*dx/lambda*2.0d0)
      end do

      SOMAimpar=0
      do j=3,(lambda/dx)-1,2
```

```
      SOMAimpar = SOMAimpar + E(j,n)*exp(-j*dx/lambda*2.0d0)
     end do

     SOMAif = E(1,n)*exp(-1*dx/lambda*2.0d0)+
    $E((lambda/dx),n)*exp(-(lambda/dx)*dx/lambda*2.0d0)

     Integral(contador) = (dx/3.0d0)*(SOMAif
    $ + 2.0d0*SOMAimpar + 4.0d0*SOMApar)

c    SALVA CAMPO ELETRICO TOTAL COMO FUNCAO DO TEMPO
c    E OUTRAS GRANDEZAS DE INTERESSE

     write(XXX,*) E("POSICAO",n)
    write(XXX,*) XXX("POSICAO",n) !XXX é alguma grandeza de interesse
     write(XXX,*) Integral(contador)

 20  continue              ! FINAL DO "LOOP"  DO TEMPO

c    FECHA ARQUIVOS DE SAIDA

     close(XXX)
     ...

     end
```

Referências Bibliográficas

[1] F. M. Souza e J. C. Egues. *Braz. J. Phys.*, **29**, 831, 1999.

[2] G. C. Cho; T. Dekorsy; H. J. Bakker; R. Hovel e H. Kurz. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 4062, 1996.

[3] M. Hase; K. Mizoguchi; H. Harima; F. Miyamaru; S. Nakashima; R. Fukasawa; M. Tani e K. Sakai. *J. Luminesc.*, **77**, 86, 1998.

[4] T. Dekorsy; H. Auer; H. J. Bakker; H. G. Roskos e H. Kurz. *Phys. Rev. B*, **53**, 4005, 1996.

[5] M. Tani; R. Fukasawa; H. Abe; S. Matsuura; K. Sakai e S. Nakashima. *J. Appl. Phys.*, **83**, 2473, 1998.

[6] W. Kutt e H. Kurz T. Dekorsy; T. Pfeifer. *Phys. Rev. B*, **47**, 3842, 1993.

[7] A. V. Kuznetsov e C. J. Stanton. *Phys. Rev. B*, **51**, 7555, 1995.

[8] M. Born e H. Kun. Dynamical Theory of Cristal Lattices. Oxford University Press, Oxford, 1985.

[9] N. Peyghambarian; S. W. Koch; A. Mysyrowicz. Introduction to Semiconductor Optics. Prentice Hall, New Jersey, 1993.

[10] G. C. Cho; H. J. Bakker; T. Dekorsy e H. Kurz. *Phys. Rev. B*, **53**, 6904, 1996.

[11] R. E. Beissner. *Phys. Rev.*, **145**, 479, 1966.

[12] T. Dekorsy; H. Auer; C. Waschke; H. J. Bakker; H. G. Roskos; H. Kurz; V. Wagner e P. Gross. *Phys. Rev. Lett.*, 1995.

[13] E. Gerlach e P. Grosse. The Physics of Selenium and Tellurium. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York, 1979.

[14] F. Reif. Fundamental of Statistical and Thermal Physics. McGraww-Hill, Singapore, 1965.

[15] F. Vallee; F. Bogani. *Phys. Rev. B*, **43**, 12049, 1991.

[16] W. H. Press; S. A. Teukolsky; W. T. Vetterling; B. P. Flannery. Numerical Recipes in C. Cambridge University Press, New York, 1992.

[17] M. Abramowitz e I. A. Stegun. Handbook of Mathematical Functions. Dover, New York, 1965.

[18] R. D. Richtmyer e K. W. Morton. Differencial Methods for Initial-Value Problems. John Wiley e Sons, New York, 1967.

[19] T. Elsaesser; J. Shah; L. Rota e P. Lugli. *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 1757, 1991.

[20] P. Y. Yu e M. Cardona. Fundamentals of Semiconductor. Springer, New York, 1996.

[21] J. Shah. Ultrafast Spectroscopy of Semiconductor and Semiconductor Nanostructure. Springer, New York, 1996.

[22] J. D. Jackson. Classical Electrodynamics. John Wiley e Sons, New York, 1998.