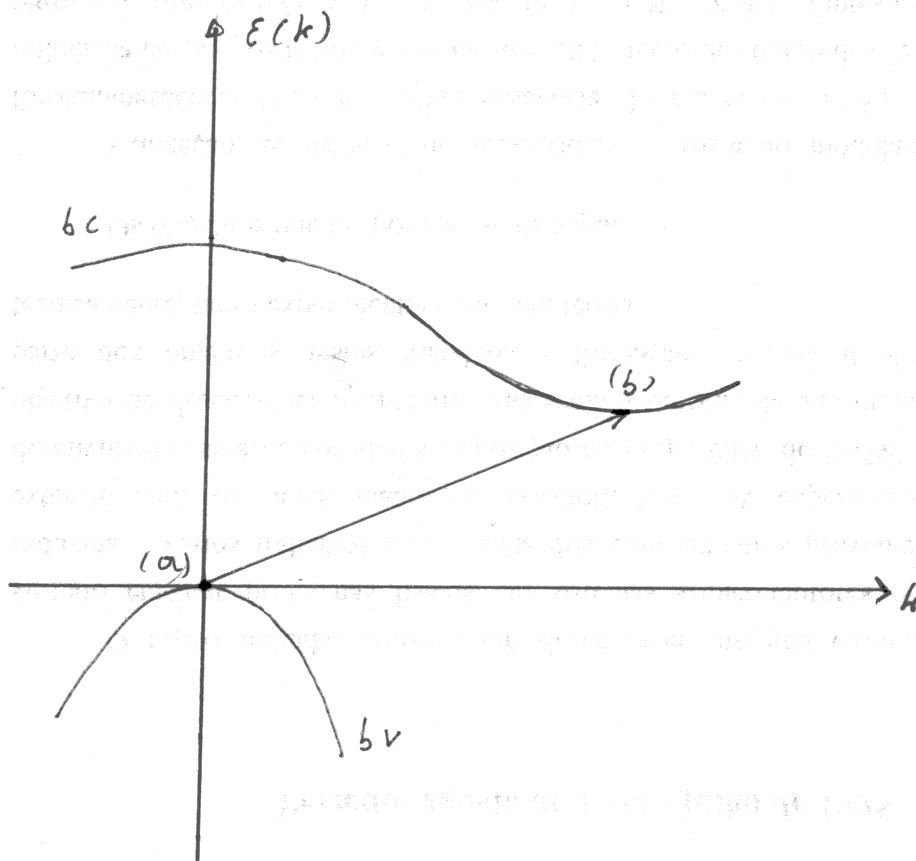


Transições interbandas indiretasinteração elétron-fônon-fóton

Estamos interessados agora no problema da transição ótica em semicondutores isolantes quando o fóton não tem energia suficiente para a absorção direta (se permitida pelas regras de seleção).



Vamos considerar transições onde o fóton tem energia próxima ao gap indireto.

Para o cristal estático, esta transição não é (2) possível. Se relaxarmos esta aproximação e permitirmos o cristal vibrar, é possível para o elétron trocar momento com a rede e realizar a transição. Mesmo a 0 K pode-se emitir um fóton e, portanto, a transição é realizável. Para altas temperaturas, a presença de uma população de fônons torna a transição mais provável.

Consideremos as soluções do cristal não-perturbado:

$$H_0 \Psi_n = E_n \Psi_n \quad (1)$$

Para o cristal perturbado, temos de resolver

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = (H_0 + H') \Psi \quad (2.a)$$

onde

$$i\hbar \frac{da_m}{dt} = \sum_n a_n V_{mn} \left[e^{i(\omega_m + \omega)t} + e^{i(\omega_m - \omega)t} \right] \quad (2.b)$$

$$e \quad V_{mn} = \int \Psi_m^* H'(F) \Psi_n dF \quad (3)$$

Em primeira ordem em teoria de perturbações, temos

$$i\hbar \frac{da_m}{dt} = V_{m0} \left[e^{i(\omega_{m0} + \omega)t} + e^{i(\omega_{m0} - \omega)t} \right] \quad (4)$$

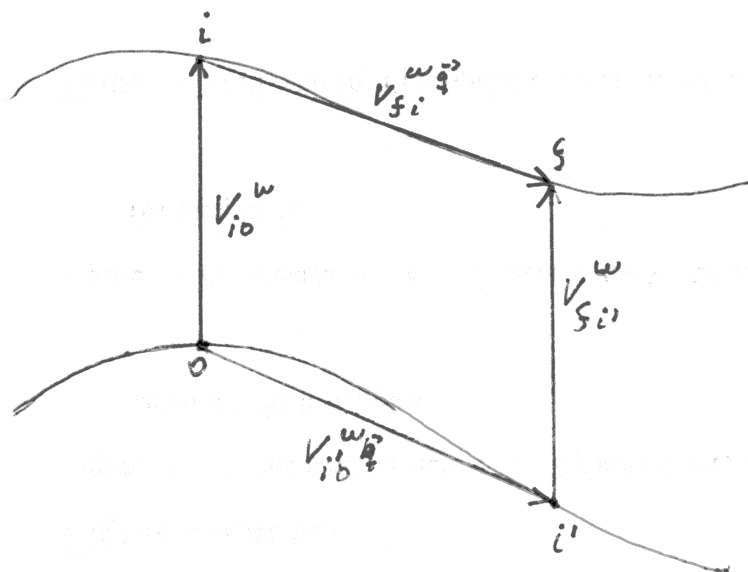
com o sistema inicialmente no estado fundamental. (3)

Como a transição que estamos discutindo envolve um fóton e um fônon, ela deve ser realizada em duas etapas. Não estamos interessados em transições envolvendo fótons que permitam a transição direta. Podemos então desprezar o coeficiente "a₀" na expansão (2.5).

Utilizando segunda ordem, temos

$$i\hbar \frac{d a_m^{(2)}}{dt} = \sum_{n \neq 0} a_n^{(1)} V_{mn} \left[e^{i(\omega_{mn} + \omega)t} + e^{i(\omega_{mn} - \omega)t} \right] \quad (5)$$

Vamos considerar a transição como sendo em duas etapas: (a) absorção de energia pela absorção de um fóton e (b) conservação de momento, ^{do cristal} $\hbar k$, por emissão ou absorção de fônons. Consideraremos apenas transições envolvendo um fônon.



O Hamiltoniano de interação pode ser escrito sob a forma

$$H' = \frac{1}{2} A^{\text{foton}} [e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}] + \frac{1}{2} V^{\text{fonon}} [e^{i\omega_q t} + e^{-i\omega_q t}] \quad (6)$$

onde A^{foton} é o operador elétron-foton que consideramos nas transições diretas e V^{fonon} é o operador fonon-eletron que consideramos nos problemas de espalhamento.

Podemos definir

$$V_{mn}^{\omega} = \int \psi_m^* \left(\frac{1}{2} A^{\text{foton}} \right) \psi_n d\vec{r} \quad (7.a)$$

$$V_{mn}^{\omega_q} = \int \psi_m^* \left(\frac{1}{2} V^{\text{fonon}} \right) \psi_n d\vec{r} \quad (7.b)$$

O termo de primeira ordem é, integrando a Eq. 4,

$$a_n^{(1)} = \frac{V_{n0}^{\omega}}{\hbar} \left\{ \frac{1 - e^{i(\omega_{n0} - \omega)t}}{\omega_{n0} - \omega} \right\} + \frac{V_{n0}^{\omega_q}}{\hbar} \left\{ \frac{1 - e^{i(\omega_{n0} + \omega_q)t}}{\omega_{n0} + \omega_q} \right\} \quad (8)$$

onde não incluímos o termo correspondente à emissão de um fóton.

Se considerarmos apenas os estados intermediários (5) i e i' , temos, em segunda ordem,

$$i\hbar \frac{da_f}{dt} = a_i^{(1)} V_{si}^{\omega_f} [e^{i(\omega_{si} + \omega_f)t} + e^{i(\omega_{si} - \omega_f)t}] + a_{i'}^{(1)} V_{si'}^{\omega} e^{i(\omega_{si'} - \omega)t} \quad (9)$$

onde, novamente, o termo em $\omega_{si} + \omega$ não foi incluído por corresponder a emissão de um fóton.

Substituindo a Eq. 8 em 9 e guardando apenas os termos de interesse, temos

$$i\hbar \frac{da_f^{(2)}}{dt} = V_{si}^{\omega_f} V_{i'o}^{\omega} \left\{ \frac{e^{i(\omega_{si} + \omega_f)t} - e^{i(\omega_{si} + \omega_f + \omega_{i'o} - \omega)t}}{\omega_{i'o} - \omega} \right\} + \frac{V_{si'}^{\omega} V_{i'o}^{\omega_f}}{\hbar} \left\{ \frac{e^{i(\omega_{si'} - \omega)t} - e^{i(\omega_{si'} - \omega + \omega_{i'o} + \omega_f)t}}{\omega_{i'o} + \omega_f} \right\} \quad (10)$$

Os termos em $(\omega_{si} + \omega_f)$ e $(\omega_{si'} - \omega)$ não serão considerados pois envolvem transições diretas e nós estamos ~~considerando~~ considerando situações onde a transição direta é energeticamente impossível.

Escrevendo,

$$\omega_{fi} + \omega_{i0} = \omega_{fi'} + \omega_{i'0} = \omega_{f0} \tag{11}$$

a Eq. 10 torna-se,

$$i\hbar \frac{da_f^{(2)}}{dt} = - \frac{V_{fi}^{\omega_f} V_{i0}^{\omega}}{\hbar(\omega_{i0} - \omega)} e^{i(\omega_{f0} \pm \omega_f - \omega)t}$$

$$- \frac{V_{fi'}^{\omega} V_{i'0}^{\omega_f}}{\hbar(\omega_{i'0} \pm \omega_f)} e^{i(\omega_{f0} \pm \omega_f - \omega)t} \tag{12}$$

Pela conservação de energia total,

$$\omega = \omega_{f0} \pm \omega_f = \omega_{fi'} + \omega_{i'0} \pm \omega_f$$

$$\Rightarrow \omega_{i'0} \pm \omega_f = \omega - \omega_{fi'} \tag{13}$$

e integrando de $t=0$ a t ,

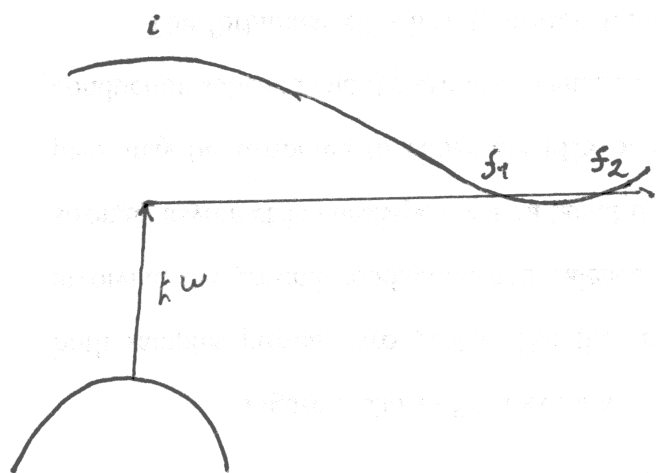
$$a_f^{(2)} = \left[\frac{V_{fi}^{\omega_f} V_{i0}^{\omega}}{\hbar^2(\omega_{i0} - \omega)} + \frac{V_{fi'}^{\omega} V_{i'0}^{\omega_f}}{\hbar^2(\omega - \omega_{fi'})} \right] \left\{ \frac{\exp[i(\omega_{f0} \pm \omega_f - \omega)t] - 1}{\omega_{f0} \pm \omega_f - \omega} \right\} \tag{14}$$

A probabilidade de encontrar o elétron no estado "f" é $|a_f^{(2)}|^2$. Desprezando os termos cruzados (como foi feito para transições diretas; eles produzem termos rapidamente oscilantes), e lembrando escrevendo os termos exponenciais

(que tornam-se termos de tipo $\frac{\sin^2 \frac{1}{2} \omega t}{\omega^2}$ em função de δ para a conservação da energia e, ainda, lembrando que a probabilidade de transição é a derivada temporal de $|a_f^{(2)}|^2$, temos

$$W_{f0} = \frac{2\pi |V_{fi}^{\omega_f}|^2 |V_{i0}^{\omega}|^2}{k^4 (\omega_{i0} - \omega)^2} [\delta(E_{f0} - k\omega_f - k\omega) + \delta(E_{f0} + k\omega_f - k\omega)] + \frac{2\pi |V_{fi}^{\omega}|^2 |V_{i0}^{\omega_f}|^2}{k^4 (\omega - \omega_{fi})^2} [\delta(E_{f0} - k\omega_f - k\omega) + \delta(E_{f0} + k\omega_f - k\omega)] \quad (15)$$

O primeiro termo nos dá a transição entre os estados "0" e "f" via uma transição direta no estado intermediário "i" e uma transição (para) os estados finais "f" por absorção de um fóton:



Neste caso, $V_{fi}^{\omega_f}$ é diferente de zero se \vec{k} (elétron) = \vec{q} (fóton) e a energia total da transição é conservada.

(8)

Se considerarmos agora a transição entre um grupo de estados em "0" e um grupo de estados em "1", via absorção de fótons,

$$w = \frac{2\pi |V_{si}^{u\vec{g}}|^2 |\bar{V}_{i0}^u|^2}{t^4 (\omega_{i0} - \omega)^2} \int_0^{k\omega + k\omega_{\vec{g}} - \epsilon_g} P_v(\epsilon - k\omega - k\omega_{\vec{g}}) P_c(\epsilon) d\epsilon \quad (16)$$

onde $|\bar{V}_{i0}^u|$ é uma média do elemento de matriz ótica.

Para bandas parabólicas,

$$\begin{aligned} w &\propto |V_{si}^{u\vec{g}}|^2 |\bar{V}_{i0}^u|^2 \int_0^{k\omega + k\omega_{\vec{g}} - \epsilon_g} (k\omega + k\omega_{\vec{g}} - \epsilon_g)^{1/2} \sqrt{\epsilon} d\epsilon \\ &\propto |V_{si}^{u\vec{g}}|^2 |\bar{V}_{i0}^u|^2 (k\omega + k\omega_{\vec{g}} - \epsilon_g)^2 \end{aligned} \quad (17)$$

A probabilidade de absorção de um fóton é proporcional à densidade $n_{\vec{g}}$:

$$|V_{si}^{u\vec{g}}|^2 \propto n_{\vec{g}} = \frac{1}{e^{k\omega_{\vec{g}}/k_B T} - 1} \quad (18)$$

O resultado final, é

$$\alpha_{ab} \propto \frac{(k\omega + k\omega_{g^0} - \epsilon_g)^2}{e^{k\omega_{g^0}/k_B T} - 1}$$

(19)

para a absorção, e

$$\alpha_{em} = \frac{e^{k\omega_{g^0}/k_B T}}{e^{k\omega_{g^0}/k_B T} - 1} (k\omega - k\omega_{g^0} - \epsilon_g)^2 \quad (20)$$

Os resultados acima só são possíveis se a transição direta for permitida pela simetria do problema. Caso contrário, temos de utilizar o segundo termo da Eq. 15.

O resultado final é,

$$\alpha_{ab} \propto \frac{(k\omega + k\omega_{g^0} - \epsilon_g)^3}{e^{k\omega_{g^0}/k_B T} - 1} \quad (20.a)$$

$$\alpha_{em} \propto \frac{e^{k\omega_{g^0}/k_B T}}{e^{k\omega_{g^0}/k_B T} - 1} (k\omega - k\omega_{g^0} - \epsilon_g)^3 \quad (20.b)$$

A conservação do momento é necessária para cada etapa da transição. No entanto, a conservação de energia só é necessária para a transição total. Nas etapas intermediárias isto não se verifica (casual em processos de segunda ordem). Isso é possível graças ao princípio de incerteza. O tempo de vida dos estados intermediários

$$\tau_i \approx \frac{\hbar}{|E_0 - E_i|}$$

(21)