

TESIS CARRERA DE DOCTORADO EN FÍSICA

**GENERACIÓN Y DETECCIÓN ÓPTICA
DE FONONES COHERENTES EN NANOESTRUCTURAS**

Mgter. María Florencia Pascual Winter
Doctoranda

Dr. Alejandro Fainstein
Director

Dr. Bernard Jusserand
Co-Director

Jurados

Dr. Blas Alascio

Dr. Robson Ferreira

Dr. Pascal Ruello

Dr. Jorge Tocho

Dra. Andrea Bragas

Dr. Gonzalo Usaj

Dr. Bernard Jusserand

Diciembre de 2009

Instituto Balseiro
Universidad Nacional de Cuyo

Laboratorio de Propiedades Ópticas
Centro Atómico Bariloche
Comisión Nacional de Energía Atómica

Université Pierre et Marie Curie
Paris VI

Institut des NanoSciences de Paris
Centre National de la Recherche
Scientifique

Indice

Resumen	v
Résumé	vii
Abstract	ix
1. Contexto y motivación	1
2. Nociones teóricas y técnica experimental	7
2.1. Nanoestructuras acústicas	7
2.1.1. Superredes acústicas	7
2.1.1.a. Generalidades	7
2.1.1.b. Modelo de Rytov	10
2.1.1.c. Reflectividad	14
2.1.1.d. Parámetros	16
2.1.2. Nanocavidades acústicas	17
2.2. Técnica experimental: acústica de picosegundos	20
2.2.1. Descripción general	20
2.2.2. Dispositivo experimental	21
2.2.3. Algunos detalles del experimento	23
2.2.4. Esquemas de detección	25
2.2.4.a. Detección reflectométrica	25
2.2.4.b. Detección interferométrica	26
2.2.5. Señal típica de un experimento	27
2.3. Generación y detección óptica de fonones longitudinales acústicos coherentes en nanoestructuras	28
2.3.1. Generación	28
2.3.1.a. Mecanismos de generación de fonones acústicos coherentes por pulsos ópticos ultra-breves	28
2.3.1.b. Regla de selección para sistemas periódicos	32
2.3.1.c. Cálculo de la función de generación	34
2.3.1.d. Algunos detalles de la función de generación	39

2.3.2.	Detección	41
2.3.2.a.	Mecanismo de detección de fonones coherentes por pulsos ópticos ultra-breves	41
2.3.2.b.	Cálculo de la función de detección	41
2.3.2.c.	Algunos detalles de la función de detección	47
2.3.3.	Comparación entre las funciones de generación y de detección	48
2.4.	Cálculo numérico de la señal de bombeo-sondeo	52
2.4.1.	Cálculo de los modos normales	53
2.4.2.	Cálculo de las trazas temporales	55
2.4.3.	Cálculo de los espectros	56
2.4.4.	Tiempo de vida media y ancho de línea espectral	57
2.5.	Conexión entre la acústica de picosegundos y la dispersión Raman	60
3.	Optimización de la generación y detección de fonones en superredes	65
3.1.	Motivación	65
3.2.	Muestras y condiciones experimentales	69
3.3.	Muestra A	72
3.3.1.	Resultados experimentales	72
3.3.2.	Cálculos y discusión	78
3.3.2.a.	Vida media de fonones terahertz a temperatura ambiente	79
3.3.2.b.	Penetración de la luz: efecto Fabry-Pérot	86
3.3.2.c.	Penetración de la luz: acoplamiento óptico entre superredes	96
3.3.3.	Conclusiones Muestra A	108
3.4.	Muestra B	110
3.4.1.	Resultados experimentales	111
3.4.2.	Cálculos y discusión	119
3.4.2.a.	Tiempos de decaimiento	120
3.4.2.b.	Factor de amplificación	127
3.4.2.c.	Características del espectro en condición de sintonización	131
3.4.3.	Conclusiones muestra B	132
4.	Generación y detección selectiva de modos de nanocavidad	135
4.1.	Motivación	135
4.2.	Funciones de generación y de detección en una nanocavidad acústica	138
4.3.	Muestras, condiciones experimentales y experimentos de caracterización . .	140
4.4.	Resultados Experimentales	142
4.5.	Discusión, experimentos adicionales y cálculos	144
4.5.1.	Variación de la intensidad del modo de cavidad en función de la energía óptica.	145

4.5.2. Cálculo de los espectros	148
4.5.3. Regímenes de decaimiento y tiempos de vida media	150
4.6. ¿Emisión estimulada de fonones de cavidad?	154
4.7. Conclusiones	159
5. Conclusiones	161
A. Interferómetro de Sagnac	167
B. Parámetros de los cálculos	173
B.1. Muestra A	173
B.1.1. Espesores	173
B.1.2. Propiedades físicas	174
B.2. Muestra B	175
B.2.1. Espesores	175
B.2.2. Propiedades físicas	176
B.3. Muestra C	178
B.3.1. Espesores	178
B.3.2. Propiedades físicas	178
Bibliografía	192

Resumen

El presente trabajo de tesis se sitúa dentro del marco de la *nanofonónica*, disciplina en pleno desarrollo que tiene como motivación el diseño y estudio de nanoestructuras con propiedades acústicas específicas. La técnica experimental principal es la acústica de picosegundos, que consiste en generar y detectar vibraciones coherentes en materiales sólidos a partir de pulsos ópticos ultra-breves (aproximadamente 100 fs de duración). El rango frecuencial de las vibraciones estudiadas se extiende desde algunos cientos de gigahertz hasta el terahertz, lo cual las hace particularmente interesantes para aplicaciones de modulación en dispositivos electrónicos y opto-electrónicos. Los sistemas estudiados consisten en nanoestructuras planares semiconductoras (multicapas) basadas en GaAs y AlAs.

La contribución que presentamos aquí se centra en la manipulación espectral de las respuestas de los procesos de generación y de detección óptica de vibraciones en nanoestructuras. Hemos desarrollado dos líneas de trabajo.

Una de ellas está abocada a la optimización del acuerdo espectral entre ambos procesos. La frecuencia acústica correspondiente a la máxima eficiencia de transducción luz-sonido en una superred (apilamiento periódico de bicapas de GaAs/AlAs) no coincide con la frecuencia de mayor sensibilidad del proceso de detección. Cada una de estas respuestas espectrales está determinada principalmente por el espesor de la bicapa que compone la celda unidad de la superred. Para optimizar el solapamiento espectral entre los procesos de generación y de detección, nos hemos servido de una nanoestructura consistente en dos superredes diferentes separadas por una gruesa capa intermedia. Los fonones son generados por un pulso óptico en una de las superredes se propagan a lo largo de la capa intermedia y arriban a la otra superred ubicada en el extremo opuesto de la muestra donde son detectados. Un gradiente de espesores en las capas que componen la segunda superred permiten sintonizar su respuesta espectral de detección a la frecuencia de las vibraciones generadas en la primera. A su vez, el efecto de la sintonización puede analizarse en detalle variando la posición de incidencia de los pulsos ópticos respecto del gradiente de espesores. Hemos verificado un aumento considerable de la sensibilidad experimental en condición de máximo acuerdo espectral. Estimamos que la amplificación de la señal en dicho caso se eleva a un factor 50. El estudio se llevó a cabo sobre dos muestras que diferían principalmente en el espesor de la capa intermedia. Para la muestra más delgada (capa intermedia de 1 μm) efectos extrínsecos originados en la absorción incompleta de

la luz no permitieron el desacoplamiento óptico entre las dos superredes. La optimización del solapamiento espectral entre los procesos de generación y de detección quedó en cierto modo “enmascarada” por estos efectos adicionales. Fue necesario recurrir al cálculo numérico para extraer una medida cuantitativa del efecto del solapamiento. Sin embargo, esto dio lugar a la identificación y el análisis de numerosos efectos propios de una muestra delgada, principalmente, las alteraciones que la reflexión de la luz en las caras de la muestra induce sobre las respuestas de generación y de detección. La muestra más gruesa (capa intermedia de $350 \mu\text{m}$) permitió evitar estos inconvenientes, dando una medida más directa del efecto de solapamiento espectral propuesto. La vida media de las vibraciones generadas y los posibles canales de decaimiento también fueron analizadas. Hemos identificado la dispersión por portadores fotoexcitados y los decaimientos anarmónicos como responsables de tiempos de vida media del orden de 300-800 ps.

La otra línea refiere al control de las propiedades de transducción luz-sonido y sonido-luz de una nanoestructura. La herramienta de control consiste en la elección de la longitud de onda óptica respecto de las transiciones entre estados electrónicos confinados de los pozos cuánticos que componen la muestra. Ésta presenta el interés adicional de tratarse de una nanocavidad acústica, estructura que permite confinar y amplificar sonido en una región específica del espacio. Hemos encontrado que bajo excitación óptica resonante con la transición electrónica fundamental de los pozos cuánticos que componen los espejos acústicos de la nanocavidad, se generan vibraciones extendidas a lo largo de toda la nanoestructura. En cambio, cuando la excitación óptica es resonante con la transición fundamental del pozo cuántico central de la estructura (de características particulares), resulta posible generar selectivamente los modos de cavidad. Desde el punto de vista espectral, en el primer caso las vibraciones presentan variadas componentes frecuenciales, mientras que en el segundo la nanocavidad actúa como una fuente cuasi-monocromática de fonones. De igual manera, la respuesta de detección también puede fijarse de modo que el proceso resulte selectivo a aquellas frecuencias correspondientes a los modos de la nanocavidad. En la segunda condición de excitación óptica hemos obtenido la generación de dos modos de cavidad. Hemos estudiado a su vez sus tiempos de decaimiento, hallando un tiempo inferior al dictado por el confinamiento en el caso del modo de mayor energía, y un tiempo superior al teórico para el modo de menor energía. Esto ha sugerido la hipótesis aún abierta del decaimiento estimulado del modo superior hacia el inferior. Resultados de dispersión Raman sustentan esta hipótesis.

Résumé

Ce travail de thèse se situe dans le cadre de la *nanophononique*, discipline en plein essor ayant pour objectifs la conception et l'étude de nanostructures présentant des propriétés acoustiques spécifiques. La technique expérimentale est l'acoustique picoseconde. Il s'agit de générer et de détecter des vibrations cohérentes dans des solides à l'aide d'impulsions optiques ultra-brèves (durée d'environ 100 femtoseconde). La gamme fréquentielle des vibrations étudiées s'étend depuis quelques centaines de gigahertz jusqu'au térahertz, ce qui les rend particulièrement intéressantes pour des applications de modulation dans des dispositifs électroniques et optoélectroniques. Les systèmes étudiés sont des nanostructures planaires composées de multicouches de matériaux semiconducteurs, notamment GaAs et AlAs.

Notre contribution est liée à la manipulation spectrale de la réponse des processus de génération et de détection des vibrations. On a développé deux axes de travail.

Le premier axe est dédié à l'optimisation de l'accord spectral entre ces deux processus. La fréquence acoustique qui correspond à l'efficacité maximale de transduction lumière-son dans un superréseau (succession périodique de bi-couches de GaAs/AlAs) ne coïncide pas avec la fréquence du maximum de sensibilité du processus de détection. Chacune de ces réponses spectrales est déterminée principalement par l'épaisseur de la bi-couche qui compose l'unité élémentaire du superréseau. Pour optimiser le recouvrement spectral entre les processus de génération et de détection nous avons utilisé une nanostructure composée de deux superréseaux différents séparés par une couche intermédiaire épaisse. Les phonons sont générés par une impulsion optique dans l'un des superréseaux, ils se propagent le long de la couche intermédiaire et arrivent à l'autre superréseau situé de l'autre côté de l'échantillon. Un gradient latéral des épaisseurs des couches du deuxième superréseau permet d'accorder, en décalant l'échantillon, sa réponse spectrale de détection à la fréquence des vibrations générées dans le premier. En plus, il est possible d'analyser en détail l'effet de l'accord spectral en décalant la position d'incidence des impulsions optiques le long du gradient. Nous avons vérifié l'augmentation significative de la sensibilité expérimentale en condition d'accord spectral maximal. Nous estimons que l'amplification du signal dans ce cas-là est d'un facteur 50. Cette étude a été menée sur deux échantillons ayant des épaisseurs de couches intermédiaires très différentes. Pour l'échantillon le plus fin (couche intermédiaire d'épaisseur un micron) des effets extrinsèques dus à l'absorption incomplète de la structure dans la couche intermédiaire n'ont pas permis un découplage

complet des deux superréseaux. L'optimisation de l'accord spectral entre les fonctions de génération et de détection était cachée en partie par ces effets additionnels. Seul un calcul numérique détaillé a permis de démontrer son existence. Cette étude a permis de mettre en évidence de d'analyser de nombreux effets importants spécifiques aux couches minces et principalement les modifications des fonctions de génération et de détection qui résultent des réflexions internes de la lumière dans l'échantillon. L'échantillon épais (couche intermédiaire d'épaisseur 350 microns) a permis d'éliminer ces effets extrinsèques et d'accéder plus directement à l'optimisation de l'accord spectral que nous recherchions. Nous avons examiné les temps de vie de phonons générés dans ces mesures et les mécanismes possibles de leur décomposition. Des temps de vie entre 300 et 800ps ont été mesurés et associés à deux mécanismes prédominants : la diffusion par les porteurs photocréés et l'anharmonicité de réseau.

Le second axe est dédié au contrôle des propriétés de transduction lumière-son et son-lumière dans une nanostructure. L'outil de contrôle est la position de la longueur d'onde optique par rapport aux transitions électroniques de l'échantillon. Nous avons appliqué cette méthode à un échantillon particulièrement intéressant car il s'agit d'une nanocavité acoustique, structure qui permet le confinement et l'amplification du son dans une région spécifique de l'espace. Nous avons observé que des vibrations étendues à toute la structure étaient générées dans le cas où l'excitation optique était résonante avec la transition électronique des puits quantiques dans les miroirs. Au contraire dans le cas d'une résonance avec les niveaux électroniques du puits quantiques d'épaisseur différente constitué par la cavité, il était possible de générer sélectivement le mode acoustique de cavité. Du point de vue fréquentiel, le spectre généré dans le premier contient différentes composantes tandis que la résonance de cavité conduit à un spectre quasi-monochromatique. Les mêmes conclusions s'appliquent à la réponse en détection. La condition de résonance sélective conduit à l'observation de deux modes de cavité correspondant aux deux premières bandes interdites acoustiques. Nous avons comparé les largeurs de raie de ces deux modes aux prévisions associées aux temps d'échappement hors de la cavité. Le mode de plus haute énergie a un temps de vie inférieur au temps d'échappement tandis que la conclusion inverse est obtenue pour le mode de plus basse énergie. Nous proposons que la décomposition stimulée du mode de haute énergie vers le mode de basse énergie pourrait expliquer cette observation. Cette hypothèse est compatible avec des résultats de spectroscopie Raman sur le même échantillon.

Abstract

The present thesis is situated in the framework of *nanophononics*, an area in development whose motivation is the design and the study of nanostructures with specific acoustic properties. The experimental technique is picosecond acoustics, which consists in generating and detecting coherent vibrations in solids by means of ultrafast optical pulses (100-fs-long, approximately). The vibrations' frequency range extends from some hundreds of gigahertz to the terahertz, a feature that makes them particularly interesting for modulation applications in electronic and optoelectronic devices. The systems that we have studied are planar semiconductor nanostructures (multilayers) based on GaAs and AlAs.

The contribution that we present in this work is centered in the spectral manipulation of the optical generation and detection processes of coherent vibrations in nanostructures. We have developed two research lines.

One of them is devoted to the optimization of the spectral match between both processes. The acoustic frequency that corresponds to the maximum light-to-sound transduction efficiency in a superlattice (a periodic stack of GaAs/AlAs bilayers) differs from that of the maximum detection sensitivity. Both spectral responses are mainly determined by the thickness of the superlattice unit cell bilayer. In order to optimize the spectral overlap between the generation and detection processes, we have made use of a nanostructure consisting in two different superlattices separated by a thick intermediate layer. The phonons that are generated by an optical pulse in one of the superlattices propagate through the intermediate layer and arrive at the superlattice situated at the opposite end of the sample where they are detected. A thickness gradient present in all layers that make up the second superlattice allows for the tuning of its detection spectral response to the frequency of the vibrations generated in the first one. Moreover, the effect of the tuning can be analyzed in detail by varying the incidence position of the optical pulses with respect to the thickness gradient. We have verified a considerable increase of the experimental sensitivity in the condition of maximum spectral overlap. We estimate that the signal amplification in such a case reaches a factor of 50. The experimental study has been performed on two samples which differed mainly in the thickness of the intermediate layer. In the case of the thinner sample (with a 1- μm -thick intermediate layer), extrinsic effects originated in the incomplete absorption of light hindered the full optical decoupling of the two superlattices. As a consequence, the optimization of the generation and detection spectral overlap turns

out to be blurred by these additional effects. It has been necessary to turn to numerical calculations in order to extract a quantitative measure of the tuning effect. Nevertheless, this has led to the identification and the analysis of several effects related to the nature of thin samples, namely, modifications in the generation and detection spectral responses induced by the reflection of light off the faces of the samples. The thicker sample (with a 350- μm -thick intermediate layer) has allowed us to avoid these additional features, offering a straightforward measure of the proposed spectral overlap effect. The lifetime of the generated vibrations and the possible decay channels have been analyzed as well. We have identified the scattering by photoexcited carriers and the anharmonic decay as responsible for lifetimes of the order of 300-800 ps.

The other research line refers to the control of the light-to-sound and sound-to-light transduction properties of a nanostructure. The control tool is the choice of the optical wavelength with respect to the transitions between confined electronic states in the quantum wells that make up the sample. The sample presents the additional interest of being an acoustic nanocavity, that is, a structure that allows for the confinement and amplification of sound within a specific region of space. We have found that under optical excitation resonant to the fundamental electronic transition of the quantum wells that make up the acoustic mirrors of the nanocavity, the generated vibrations extend spatially along the whole nanostructure. On the contrary, when the optical excitation is resonant to the fundamental electronic transition of the central quantum well of the nanostructure (which is different from the others), it is possible to selectively generate cavity modes. From the spectral point of view, in the first case the vibration distribution presents several frequency components, while in the second case the nanocavity acts as a quasimonochromatic source of acoustic phonons. In the same way, the detection spectral response can be chosen to be selective to the cavity modes. In the second condition of optical excitation we have actually obtained the generation of two nanocavity modes. We have also studied their decay times, finding a time shorter than the one expected from the confinement effect in the case of the higher energy cavity mode, and the contrary for the lower energy cavity mode. This has suggested a still open hypothesis related to the stimulated decay of the higher mode towards to lower one. Raman scattering results and numerical calculations support this hypothesis.

Capítulo 1

Contexto y motivación

Existe en la actualidad un creciente interés por excitar, controlar, manipular y detectar vibraciones coherentes de la red atómica de los materiales sólidos. Parte de este interés surge de la interacción que dichas vibraciones mantienen con los electrones y, a través de éstos, con la luz. Puede imaginarse entonces un nuevo tipo de dispositivos electrónicos y opto-electrónicos cuyas propiedades electrónicas y/u ópticas estén gobernadas o alteradas con fines específicos por la presencia de vibraciones de frecuencia, amplitud y fase controladas. La frecuencia de la modulación de dichas propiedades se elevaría de esta forma al rango de las centenas de gigahertz o incluso algunos pocos terahertz, es decir, la gama de frecuencias de los fonones acústicos. Por otra parte, la longitud de onda de las vibraciones, situada en el rango de los nanómetros, constituye un punto de interés en sí mismo pues las habilita como posible sonda de una técnica de microscopía con resolución nanométrica, o *nanoscopia*. Puede entonces pensarse por ejemplo, en la detección de defectos en nanoestructuras situados en superficie o a una cierta profundidad, que podrían ser revelados a partir de la interacción con una sonda de algunos nanómetros de longitud de onda. A su vez, los fonones de energías en el rango de los sub-terahertz constituyen la fuente para técnicas de espectroscopía fonónica que brindan acceso a información sobre la estructura electrónica de semiconductores de baja dimensionalidad. Por último, las vibraciones acústicas coherentes de alta frecuencia han brindado información acerca de diferentes propiedades de los materiales, como velocidades del sonido [1, 2], espesores de capas delgadas [1–3], propiedades de atenuación acústica [1, 4–7], conductividad térmica [8], propiedades elásticas de multicapas [9–11], difusión electrónica [12–14] e interacción electrón-fonón en metales [12, 15].

En cuanto a la línea que involucra la manipulación de las propiedades electrónicas, los trabajos más relevantes han demostrado la modulación en el rango de los terahertz del transporte electrónico de portadores fotoexcitados en un diodo túnel a partir de paquetes de onda acústicos generados ópticamente [16], y el transporte de carga a través de pulsos acústicos de picosegundos [17, 18]. La manipulación de las propiedades ópticas ha quedado evidenciada en la emisión de radiación electromagnética de frecuencias de terahertz [19], la emisión de pozos cuánticos controlada de forma ultra-rápida por pulsos

acústicos de picosegundos generados ópticamente [20] y por la modulación hipersónica de la luz en nanoestructuras tridimensionales con brechas de energías prohibidas fotónicas y fonónicas [21]. El ámbito de la nanoscopía ha sido por el momento menos explorado. Puede destacarse el trabajo de Rossignol [11] que ha permitido extraer información acerca de la estructura de interfaces en multicapas planares a partir de la forma de ecos acústicos generados y detectados ópticamente. En cuanto a la espectroscopía fonónica, puede señalarse la determinación del calor específico de sistemas electrónicos bidimensionales a partir de la absorción de un pulso de fonones generados por calentamiento de una capa metálica delgada [22], o el acceso a información relativa a la interacción electrón-fonón en hilos cuánticos [23].

La demostrada utilidad de los pulsos o vibraciones acústicas ultra-rápidas ha motivado el trabajo de numerosos grupos de investigación orientados a lograr la excitación y detección de dichos pulsos, comprender la naturaleza de los mecanismos de generación y de detección, y el estudiar su propagación. La obtención de pulsos acústicos ultra-breves comenzó poco después del advenimiento de los láseres pulsados, con el trabajo de White en el año 1963. White demostró la generación de pulsos elásticos de algunas decenas de microsegundos de duración por calentamiento superficial de muestras metálicas inducido por la absorción de pulsos ópticos [24]. Posteriormente, la escala temporal de los nanosegundos para la duración de los pulsos acústicos fue alcanzada por Tam [25]. En los experimentos efectuados hasta ese entonces la detección de las vibraciones se efectuaba mediante piezo-transducción. Este método no permitía acceder a la duración real de los pulsos acústicos, pues la señal detectada estaba afectada por el tiempo de respuesta de los transductores. Casi simultáneamente al trabajo de Tam, la primera demostración de detección por pulsos ópticos de picosegundos fue reportada por Thomsen [26]. En este nuevo esquema la detección se efectúa a partir de las variaciones que el pulso acústico induce en las propiedades ópticas de la muestra. Más específicamente, la cantidad medida es la variación en la reflectividad o transmisividad del pulso óptico de detección respecto de la situación en ausencia de vibraciones. El control del retardo de dicho pulso respecto del pulso de generación permite acceder a la evolución temporal de las vibraciones presentes en la muestra. A partir de allí, y gracias a la reducción temporal de los pulsos ópticos hasta el rango de los femtosegundos, el acceso a la forma detallada de los pulsos acústicos fue posible, lo cual abrió la puerta al estudio de los procesos físicos involucrados en la generación y en la detección de las vibraciones. Numerosos trabajos fueron dirigidos hacia la comprensión de dichos mecanismos [1, 3, 27–33], permitiendo identificar la dilatación térmica, el potencial de deformación y la electrostricción como responsables del proceso de generación, y el efecto fotoelástico como mediador de la detección.

En un experimento típico, la absorción de la luz en la muestra genera el lanzamiento de un pulso acústico en la superficie, que se propaga luego hacia el interior. El pulso se refleja en las interfaces internas si las hubiera (o en el extremo opuesto de la muestra), y regresa a la región superficial donde se efectúa la detección. La extensión espacio-temporal del

pulso está dictada por el perfil espacial de la energía depositada en la muestra (que puede estar modificada por difusión térmica y electrónica). Naturalmente, existen numerosas variantes al esquema mencionado. La generación del pulso puede ocurrir por ejemplo en interfaces internas donde exista una discontinuidad en las propiedades de absorción. La detección puede tener lugar en la superficie opuesta a la de la incidencia del pulso óptico de generación o en regiones de la muestra que presenten propiedades ópticas particulares.

A medida que los experimentos en el área se fueron sucediendo y la comprensión de los procesos involucrados se fue profundizando, surgió el interés de alcanzar frecuencias acústicas cada vez más elevadas. El espectro acústico generado en muestras masivas (substratos) y capas delgadas está determinado por la longitud de penetración del campo electromagnético en los materiales o por el espesor de las capas, la cantidad que resulte menor. Los sistemas mencionados permiten generar frecuencias que se elevan hasta la centena de gigahertz. Para alcanzar frecuencias superiores se recurrió a la nanoestructuración del espacio, lo cual a su vez fue factible gracias al desarrollo de técnicas de fabricación que permitieron un elevado grado de control del espesor y la composición de las diferentes capas constitutivas. La introducción de una nueva nano-periodicidad al espacio origina el replegamiento de las bandas de fonones acústicos dentro de la nueva zona de Brillouin [34]. Siendo que el acoplamiento de la luz con los fonones es especialmente selectiva con aquellos fonones del centro de la zona de Brillouin, el replegamiento de las bandas acústicas permite acceder ópticamente a fonones acústicos de energía superior, lo cual permitió elevar el rango de las frecuencias acústicas generadas hasta varias centenas de gigahertz e incluso el terahertz. El primer trabajo efectuado sobre superredes (sucesiones periódicas de bicapas compuestas por dos materiales distintos) fue reportado por Yamamoto en el año 1994 [35], quien demostró la excitación de fonones acústicos replegados en una superred de GaAs/AlAs. A partir de allí, numerosos trabajos se sucedieron en superredes semiconductoras [9, 36–48], metálicas [49–51] y mixtas [52–54], revelando las potencialidades de estos novedosos sistemas acústicos. La comprensión de los fenómenos de generación [55] y detección [10, 39, 55] en estas nanoestructuras fue lograda adaptando las nociones ya conocidas de los materiales masivos. Con la incorporación de nanoestructuras se logró una mayor versatilidad en la distribución espectral y espacial de los fonones generados. Particularmente, se avanzó considerablemente en la monocromaticidad de las vibraciones, pues el mecanismo de generación resulta selectivo respecto del vector de onda acústico. La generación en superredes agrega al esquema de pulsos acústicos excitados en materiales masivos o capas delgadas, la posibilidad de obtener pulsos considerablemente más extendidos espacio-temporalmente pero cuasi-monocromáticos. A su vez, a partir del diseño de las nanoestructuras es posible acceder al control de la frecuencia y del ancho de línea espectral de las vibraciones generadas. Además de las superredes, han surgido otros sistemas nanoestructurados de interés desde el punto de vista acústico, como pozos cuánticos [6, 7, 56], puntos cuánticos [57] y nanocavidades acústicas [58]. A partir de las numerosas contribuciones de los diferentes grupos de investigación en cuanto a

variados aspectos como el diseño de nanoestructuras, el desarrollo de diferentes técnicas de detección, la versatilidad del proceso de generación según la longitud de onda óptica, la generación electrónica de vibraciones, y la manipulación activa de las vibraciones mediante pulsos ópticos adicionales de control, se ha constituido una nueva disciplina que ha dado en denominarse *nanofonónica* o *acústica ultra-rápida*. Tiene como motivación el diseño y estudio de nanoestructuras con propiedades acústicas específicas.

Los desafíos actuales se plantean en diferentes líneas. Por un lado, existe el interés de incrementar la débil amplitud del campo de deformaciones generado (del orden de 10^{-7}). En este sentido, se ha recurrido a materiales que brindan un canal de generación adicional: el mecanismo piezoeléctrico. Las nanoestructuras basadas en el sistema InGaN/AlN/GaN presentan campos piezoeléctricos cuyo apantallamiento por electrones fotoexcitados constituye un novedoso mecanismo de generación y de detección que permite elevar en dos órdenes de magnitud la señal detectada [40, 43, 44, 59–63]. Otro desafío consiste en controlar de forma externa y activa la frecuencia y amplitud de las vibraciones a partir de pulsos ópticos de control [6, 59, 64–66]. El traspaso de los conocimientos al ala de las aplicaciones también constituye un desafío que consideramos deberá concentrar la mayor parte del esfuerzo de los años venideros. En este caso el desafío es doble. Por un lado, existe una brecha aún importante entre los conocimientos básicos y las aplicaciones. En esta dirección, algunos grupos de investigación han comunicado resultados interesantes de los que ya hemos hecho breve mención algunos párrafos atrás. Por el otro, para una utilización controlada de las vibraciones existen propiedades que aún deben estudiarse desde el punto de vista básico. Por ejemplo, la extracción controlada de las vibraciones de la región de generación para ser empleadas en otra región de la muestra, la vida media de los fonones, los mecanismos de atenuación [4, 5], y la optimización de los procesos de generación y de detección que por el momento resultan en una débil señal experimental [67–69]. Por último, uno de los desafíos más atractivos consiste en la emisión estimulada de fonones [45, 70] y la concepción de un “láser” de fonones [71].

En el contexto descrito se enmarca entonces el presente trabajo de tesis doctoral. Se relaciona principalmente con los dos últimos desafíos mencionados.

Una de las temáticas de trabajo se centró en el estudio de la generación y detección distante de pulsos acústicos mediante superredes semiconductoras. En particular, se ha logrado optimizar la señal detectada a partir de la sintonización espectral de los procesos de generación y de detección. Uno de los motivos de la débil señal detectada en experimentos de acústica ultra-rápida es el desacuerdo espectral que existe entre las respuestas de generación y de detección de una superred, es decir, las respuestas espectrales de transducción luz-sonido y sonido-luz. Para sortear este inconveniente, se hizo uso de dos superredes diferentes separadas por una capa espaciadora, con el fin de aislar espacialmente ambos procesos. Las características de una y otra superredes fueron elegidas de forma de sintonizar la respuesta espectral de generación de una de ellas con la respuesta de detección de la otra. Se ha logrado así un incremento significativo de la señal que estimamos en un

factor de aproximadamente 50. Este sistema constituye a su vez una herramienta especialmente sensible para estudios futuros relacionados con la atenuación de los fonones en el curso de la propagación a través de largas distancias (cientos de micrones). Numerosos efectos adicionales han surgido en el estudio de dos muestras que difieren principalmente en el espesor de la capa espaciadora. Algunos de ellos son producto del delgado espesor de una de las muestras. Otros están relacionados con la vida media de las vibraciones y los posibles mecanismos de atenuación.

La otra línea de trabajo ha sido dirigida hacia el estudio de las nanocavidades acústicas. El interés de estos sistemas reside en las propiedades de confinamiento y amplificación de las vibraciones, y en su potencial implementación como sistema de retroalimentación de un láser de fonones. A su vez, las nanocavidades acústicas se proponen como sistemas transductores luz-sonido con una respuesta espectral acústica altamente monocromática. En efecto, en el presente trabajo hemos demostrado las propiedades de transducción de las nanocavidades. Hemos analizado de qué manera dichas propiedades de transducción pueden alterarse a partir de la elección de la longitud de onda central de los pulsos ópticos. Hemos encontrado que una misma estructura puede ser utilizada tanto para generar vibraciones extendidas a lo largo de toda la estructura directamente acopladas con el substrato, como para excitar modos acústicos confinados de frecuencias bien definidas propios de la nanocavidad, que presentan a su vez un menor acoplamiento con el exterior. Por otra parte, hemos hallado fenómenos experimentales inesperados, que sugieren la emisión estimulada de un modo de cavidad de mayor energía hacia otro de menor energía. La vida media de los fonones es otro de los conceptos que también ha surgido en el análisis de los resultados experimentales.

En ambas áreas, el trabajo experimental se ha complementado con una importante contribución de cálculo numérico. La comparación entre cálculo y experimento ha permitido una comprensión más acabada de los fenómenos estudiados.

El resto de la tesis se organiza en cuatro capítulos. En el capítulo 2 resumiremos los conceptos teóricos involucrados en los fenómenos físicos que encontraremos en los capítulos subsiguientes. Daremos una descripción de la técnica experimental y analizaremos en detalle los procesos de generación y de detección óptica de fonones en nanoestructuras. El capítulo 3 estará dedicado a la optimización de la generación y detección de fonones longitudinales acústicos en superredes. En el capítulo 4 nos abocaremos al estudio de la generación y detección selectiva de modos acústicos de nanocavidad. Finalmente, en el capítulo 5 sintetizaremos las conclusiones principales.

Los experimentos de acústica de picosegundos que nutren el presente trabajo han sido realizados en el laboratorio del Dr. Bernard Perrin en el *Institut des Nanosciences de Paris* (INSP). Experimentos adicionales de fotoluminiscencia, fotoluminiscencia de excitación y dispersión Raman han sido efectuados en el laboratorio del Dr. Bernard Jusserand en el INSP y en el Laboratorio de Propiedades Ópticas del Centro Atómico Bariloche a cargo del Dr. Alejandro Fainstein.

Capítulo 2

Nociones teóricas y técnica experimental

2.1. Nanoestructuras acústicas

En la presente sección comenzaremos describiendo las nanoestructuras acústicas planares de interés acústico más sencillas: las superredes, de las cuales haremos uso asiduo en el presente trabajo de tesis. Posteriormente estudiaremos las nanocavidades acústicas, estructuras que permiten confinar y amplificar el campo de deformaciones en una región específica del espacio.

2.1.1. Superredes acústicas

2.1.1.a. Generalidades

Una superred consiste en un apilamiento alternado de capas de dos materiales diferentes que indicaremos con los números 1 y 2 (ver Fig. 2.1). Las capas de un mismo material presentan todas el mismo espesor, de modo que la superred muestra una estructura periódica. La celda unidad de la estructura está compuesta por una capa de cada material, de espesores d_1 y d_2 . La suma de estos dos espesores define el período D de la superred. Este período se repite N veces.

El uso más corriente de las superredes se da probablemente en el dominio de la electrónica, para estudiar transporte vertical, estados de minibandas, etc. En el área de la óptica, su utilización se acerca más al uso que se les da en nanofonónica. Una superred óptica es un reflector de Bragg, en el que, para cierto rango de longitudes de onda de un haz incidente perpendicularmente a las capas, el haz reflejado en una de las interfaces de la celda unidad interfiere constructivamente con el haz reflejado en la otra interfaz, de modo que la estructura funciona como un espejo. El período de la superred coincide con la semi-longitud de onda del centro del rango en el que la estructura funciona como un reflector. Por tanto, en las superredes ópticas diseñadas para el rango visible, D es del orden de $0,2 \mu\text{m}$. El coeficiente de reflectividad del reflector está determinado por el

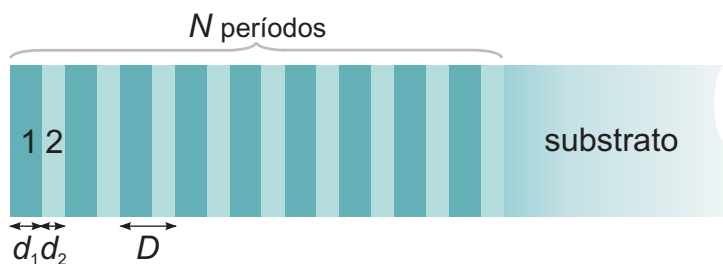


Figura 2.1: Esquema de una superred. Los espesores de las capas de cada uno de los materiales son d_1 y d_2 . El período es D . N es el número de períodos.

contraste de índices de refracción entre los materiales 1 y 2, y por el número de períodos N .

La similitud entre la ecuación de ondas del campo electromagnético y del campo de desplazamientos de la red cristalina permite aplicar el mismo principio para idear reflectores de fonones acústicos. El papel del índice de refracción de las superredes ópticas está suplido por la cantidad conocida como *impedancia acústica*, simbolizada Z , consistente en el producto de la velocidad del sonido y la densidad de cada material.

La principal diferencia estructural entre los reflectores de Bragg ópticos y los acústicos reside en la escala espacial. El período de la superred define el centro de la gama de longitudes de onda para las que la estructura funciona como un reflector. Las bandas de fonones acústicos en la relación de dispersión de los semiconductores se extienden típicamente hasta aproximadamente 0,7 nm de longitud de onda. Sin embargo, el rango en el que puede variarse el período de las superredes está limitado por diferentes factores. La cota inferior está impuesta por la técnica de fabricación y el espesor mínimo de capa que ésta permita (con el límite último de la monocapa atómica). En general, para materiales semiconductores se opta por la técnica de epitaxia por haces moleculares, que permite un control de espesores con una precisión de una monocapa atómica, y genera muestras de excelente calidad. La cota superior está conceptualmente limitada por el camino libre medio de los fonones, que varía según la temperatura, materiales y calidad de la muestra. Típicamente, de la literatura se extrae que el rango de períodos comúnmente utilizado en superredes semiconductores con fines acústicos se extiende aproximadamente de 3 a 30 nm (el límite superior se encuentra muy por debajo del camino libre medio de los fonones ya que en general el interés se centra en frecuencias acústicas elevadas). Es por ello que se suele calificar a las superredes y otras estructuras acústicas de *nanoestructuras*. Esto las distingue de las estructuras ópticas, cuyas capas presentan espesores del orden de los cientos de nanómetros. El rango de períodos mencionado corresponde a reflectores cuyas gamas espectrales de reflexión se ubican en una ventana de 0,2 a 2 THz.

Para estudiar el comportamiento acústico de las superredes, en primer lugar es necesario repasar las características acústicas de los materiales que las componen. Nos centraremos en la dupla arseniuro de galio (GaAs) - arseniuro de aluminio (AlAs) ya que constituye el sistema más usual para este tipo de nanoestructuras debido a la cercanía entre

sus parámetros de red y , consecuentemente, a la alta calidad de las muestras logradas por epitaxia por haces moleculares. Son semiconductores del tipo III-V (esto es, compuestos por un elemento del grupo III (Ga o Al) y otro del grupo V (As)) y presentan estructura cristalina zinc-blenda. Desde el punto de vista acústico, el contraste de impedancias ($Z_{\text{GaAs}}/Z_{\text{AlAs}} = 1,18$) resulta satisfactorio para concebir reflectores de Bragg con elevados coeficientes de reflexión (0,995, por ejemplo) a partir de un número razonable de períodos ($N = 20$). La Fig. 2.2 presenta las relaciones de dispersión de fonones en GaAs y AlAs para varios segmentos de alta simetría de la primera zona de Brillouin, extraídas de la Ref. [72]. Se distinguen las bandas acústicas, cuya energía se anula en el punto Γ , y las bandas ópticas de energía finita en dicho punto. Dentro de las primeras, la banda de fonones longitudinales excede en energía a las bandas transversales, siendo estas últimas degeneradas a lo largo de algunos segmentos de la zona de Brillouin.

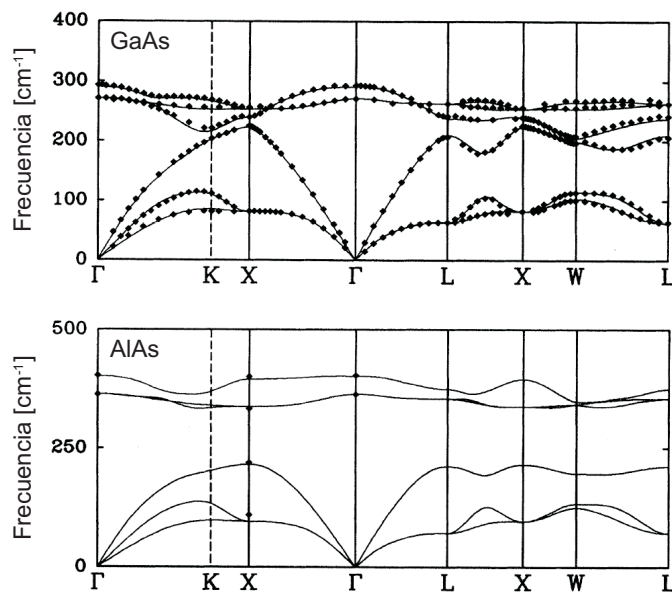


Figura 2.2: Relación de dispersión de fonones en GaAs (panel superior) y AlAs (panel inferior) para los segmentos de la primera zona de Brillouin de mayor simetría. Figura extraída de la Ref. [72].

Al construir una superred a partir de estos dos materiales, los fonones ópticos quedan confinados a cada una de las capas dado que las bandas ópticas en uno y otro material no se superponen energéticamente. Los fonones acústicos, en cambio, pueden propagarse de una capa a la otra estableciendo modos de vibración similares a los de un material masivo (no nanoestructurado). La comprensión del comportamiento de estos modos y la deducción de su relación de dispersión puede realizarse a partir de un modelo de cadena lineal, en la que se tiene una sucesión de átomos alternados de Ga y de As para cada capa de GaAs, y una sucesión de átomos de Al y de As para cada capa de AlAs. Otro modelo, desarrollado por Rytov, considera las capas como un continuo, y resuelve entonces la ecuación de ondas dentro de cada capa, acordando luego las condiciones de contorno de continuidad del desplazamiento y la tensión en las interfaces [73]. Este último modelo es el

usualmente empleado gracias a su simpleza y a la excelente reproducibilidad que logra de los resultados experimentales, incluso para muestras con capas que contienen unas pocas monocapas atómicas [74]. A continuación describiremos este modelo.

2.1.1.b. Modelo de Rytov

Consideremos una superred infinita. El estado vibracional del sistema está descrito por el campo de desplazamientos $\tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{r}, t)$. La ecuación de ondas que debe satisfacerse en la capa de material m de la celda n es

$$\rho^{(m)} \frac{\partial^2 \tilde{u}_i^{(n,m)}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} - C_{ijkl}^{(m)} \frac{\partial^2 \tilde{u}_j^{(n,m)}(\mathbf{r}, t)}{\partial x_k \partial x_l} = 0, \quad (2.1)$$

siendo $\rho^{(l)}$ la densidad del material l y $C_{ijkl}^{(m)}$ su constante elástica (en la expresión (2.1) está implícita la suma sobre índices repetidos).

A lo largo del presente trabajo las vibraciones serán estudiadas por métodos ópticos. Los fonones son generados y detectados por pulsos de luz láser. La dimensión del área transversal del láser focalizado sobre la muestra, típicamente de $\sim 50 \mu\text{m}$ de diámetro, se encuentra en una escala mucho mayor que la longitud de penetración de la radiación en la muestra, del orden de algunos micrones. Puede considerarse entonces que las vibraciones generadas a partir de tal spot presentan simetría de traslación en las direcciones paralelas a las capas de la superred. La dependencia en \mathbf{r} de la ec. (2.1) se reduce a una dependencia únicamente en la dirección normal a las capas que llamaremos z . A su vez, la simetría indica que sólo vibraciones longitudinales podrán ser generadas, con lo cual la única componente de \mathbf{u} a tener en cuenta es u_z , que denotaremos simplemente u . La ec. (2.1) se reduce entonces a

$$\rho_m \frac{\partial^2 \tilde{u}_{n,m}(z, t)}{\partial t^2} - C_m \frac{\partial^2 \tilde{u}_{n,m}(z, t)}{\partial z^2} = 0, \quad (2.2)$$

donde hemos reubicado los supraíndices como subíndices y $C_m = C_{zzzz}^{(m)}$. Planteamos la siguiente separación de variables para $u_{n,m}(z, t)$

$$\tilde{u}_{n,m}(z, t) = u_{n,m}(z) e^{i\omega t}. \quad (2.3)$$

Reemplazando en (2.2) se tiene

$$\frac{d^2 u_{n,m}(z)}{dz^2} = -\frac{\rho_m}{C_m} \omega^2 u_{n,m}(z). \quad (2.4)$$

Proponemos la solución

$$u_{n,m}(z) = a_{n,m} e^{iq_m z} + b_{n,m} e^{-iq_m z}, \quad \text{con } 0 \leq z \leq d_m \quad (2.5)$$

donde d_m es el espesor de la capa de material m y $q_m = \omega/v_m$, siendo $v_m = \sqrt{\frac{C_m}{\rho_m}}$.

En las interfaces entre capa y capa deben cumplirse las condiciones de continuidad del desplazamiento y la tensión, las cuales se escriben

$$u_{n,1}(d_1) = u_{n,2}(0), \quad (2.6a)$$

$$C_1 \frac{du_{n,1}(d_1)}{dz} = C_2 \frac{du_{n,2}(0)}{dz}, \quad (2.6b)$$

$$u_{n,2}(d_2) = u_{n+1,1}(0), \quad (2.6c)$$

$$C_2 \frac{du_{n,2}(d_2)}{dz} = C_1 \frac{du_{n+1,1}(0)}{dz}. \quad (2.6d)$$

Las dos primeras ecuaciones refieren a la interfaz en el interior de una celda y las dos últimas a la interfaz entre una celda y la siguiente. Impuestas estas condiciones, se llega a una relación de recursión para los coeficientes $a_{n,1}$ y $b_{n,1}$,

$$\begin{pmatrix} a_{n+1,1} \\ b_{n+1,1} \end{pmatrix} = \mathbf{M} \begin{pmatrix} a_{n,1} \\ b_{n,1} \end{pmatrix}, \quad (2.7)$$

con

$$M_{11} = M_{22}^* = \left[\cos(q_2 d_2) + \frac{i}{2} \left(\tilde{Z} + \frac{1}{\tilde{Z}} \right) \sin(q_2 d_2) \right] e^{iq_1 d_1}, \quad (2.8a)$$

$$M_{12} = M_{21}^* = \frac{i}{2} \left(\frac{1}{\tilde{Z}} - \tilde{Z} \right) \sin(q_2 d_2) e^{iq_1 d_1}, \quad (2.8b)$$

donde $\tilde{Z} = \frac{Z_1}{Z_2} = \frac{C_1 q_1}{C_2 q_2} = \frac{C_1 v_2}{C_2 v_1} = \left(\frac{C_1 \rho_1}{C_2 \rho_2} \right)^{1/2} = \frac{\rho_1 v_1}{\rho_2 v_2}$ representa el contraste de impedancias acústicas entre dos capas consecutivas.

Por otro lado, del teorema de Bloch sabemos que los coeficientes en dos superceldas consecutivas deben estar relacionados por

$$\begin{pmatrix} a_{n+1,1} \\ b_{n+1,1} \end{pmatrix} = e^{iqD} \begin{pmatrix} a_{n,1} \\ b_{n,1} \end{pmatrix}, \quad (2.9)$$

donde q es el vector de onda del estado fonónico del sistema. Las expresiones (2.7) y (2.9) determinan la siguiente ecuación de autovalores para q

$$|\mathbf{M} - e^{iqD} \mathbf{I}| = 0, \quad (2.10)$$

siendo \mathbf{I} la matriz identidad de 2×2 . La ec. (2.10) puede llevarse a la forma

$$\cos(qD) = \cos\left(\frac{\omega d_1}{v_1} + \frac{\omega d_2}{v_2}\right) - \frac{\epsilon^2}{2} \sin\left(\frac{\omega d_1}{v_1}\right) \sin\left(\frac{\omega d_2}{v_2}\right), \quad (2.11)$$

donde

$$\epsilon = \frac{1 - \tilde{Z}}{\sqrt{\tilde{Z}}} = \frac{\rho_2 v_2 - \rho_1 v_1}{(\rho_1 v_1 \rho_2 v_2)^{1/2}}. \quad (2.12)$$

La expresión (2.11) es la relación de dispersión de fonones en una superred. El primer término representa el arreglo “geométrico” de la superred (replegamiento de las bandas acústicas) mientras que en el segundo ϵ contiene la información acerca de la modulación de las propiedades acústicas a través de la diferencia relativa entre las impedancias acústicas de los materiales masivos. De (2.11) vemos que a dos vectores de onda que difieran en un número entero de veces $2\pi/D$ corresponde la misma frecuencia ω . Esto redefine la primera zona de Brillouin a la región $-\pi/D < q \leq \pi/D$, llamándola *mini-zona de Brillouin* para distinguirla de la zona de Brillouin determinada por el parámetro de red ($-\pi/a < q \leq \pi/a$, donde a es el parámetro de red). En todo lo que sigue nos referiremos casi exclusivamente a la mini-zona de Brillouin. Por tanto, excepto que se dé lugar a confusión, utilizaremos el término *zona de Brillouin* para referirnos a la (primera) mini-zona de Brillouin.

Para superredes de materiales semiconductores de tipo III-V (también para el tipo II-VI o el grupo IV) la modulación acústica es usualmente baja y $\epsilon^2/2 \sim 10^{-2}$. Una primera aproximación consiste entonces en despreciar el segundo término de (2.11) y reducir la expresión a

$$\cos(qD) = \cos\left(\frac{\omega d_1}{v_1} + \frac{\omega d_2}{v_2}\right), \quad (2.13)$$

o equivalentemente,

$$\omega = \pm vq + nv \frac{2\pi}{D}, \quad n \in \mathbb{Z}, \quad (2.14)$$

donde v es una velocidad del sonido efectiva en la superred dada por

$$\frac{D}{v} = \frac{d_1}{v_1} + \frac{d_2}{v_2} \quad \text{o} \quad v = \frac{v_1 v_2}{(1 - \alpha)v_2 + \alpha v_1}, \quad \text{con } \alpha = \frac{d_2}{d_1 + d_2}, \quad (2.15)$$

es decir, v es el promedio de las velocidades inversas pesadas por los espesores de sus correspondientes capas. En otras palabras, lo que define la velocidad efectiva es el tiempo de tránsito a lo largo de una celda, el cual es igual a la suma de los tiempos de tránsito en cada una de las capas. La relación de dispersión aproximada (2.14) se grafica en la Fig. 2.3 con la línea azul (que se superponen con la línea roja lejos del centro y borde de zona). Puede

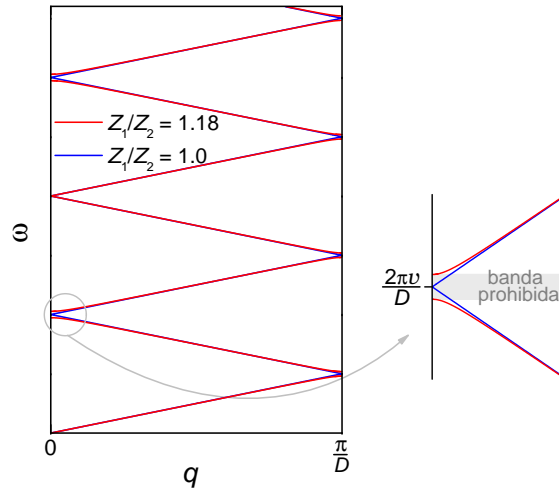


Figura 2.3: Relación de dispersión de fonones acústicos de una superred infinita. Debido a la periodicidad D de la superred la banda acústica se repliega sobre sí misma. La curva roja corresponde al caso con contraste de impedancias acústicas ($\epsilon \neq 0$). En el centro y borde de zona se abren brechas de energía prohibida. La curva azul desprecia la modulación acústica ($\epsilon = 0$). En este caso no existen brechas de energía prohibida.

observarse en la figura el replegamiento de la banda acústica. Los modos correspondientes a las bandas superiores a la primera suelen denominarse *fonones acústicos replegados*. Se advierte además en la figura que surgen modos doblemente degenerados en el centro ($q = 0$) y borde ($q = \pi/D$) de zona con energías

$$\Omega_\gamma = \frac{\gamma\pi v}{D}, \quad (2.16)$$

donde γ toma valores impares en el borde de zona y pares en el centro.

Cuando se recupera el segundo término de (2.11), existen valores de ω para los cuales el módulo del miembro de la derecha es superior a la unidad. En ese caso, la ec. (2.11) no tiene solución con q real. Surgen entonces brechas de energía prohibida en la relación de dispersión de fonones acústicos de una superred infinita. Dicha relación de dispersión se grafica en la Fig. 2.3 con la línea roja. En el caso de una superred semi-infinita, las soluciones $u(z, t)$ para ω perteneciente a estas brechas son ondas evanescentes que penetran dentro de la superred con amplitud exponencialmente decreciente. Si en un medio contiguo a una superred se propaga un fonón de energía perteneciente a una brecha prohibida, el mismo no podrá continuar su propagación por la superred y se reflejará en la interfaz medio/superred retornando hacia el medio. Las superredes funcionan entonces como espejos de fonones para las energías pertenecientes a las brechas prohibidas.

La extensión espectral $\Delta\Omega_\gamma$ de las brechas prohibidas puede hallarse desarrollando el miembro derecho de la ec. (2.11) a segundo orden en $\Delta\Omega_\gamma = \omega - \Omega_\gamma$. Se obtiene la siguiente expresión para la brecha prohibida de orden γ

$$\Delta\Omega_\gamma \simeq 2\frac{v}{D} \left| \epsilon \sin \left[\gamma\pi \frac{(1-\alpha)v_2}{(1-\alpha)v_2 + \alpha v_1} \right] \right|. \quad (2.17)$$

Vemos que al igual que en la teoría de electrones cuasi libres en potenciales periódicos, el desdoblamiento dado por una modulación débil es proporcional a la amplitud de la modulación, dada en este caso por ϵ . A su vez, $\Delta\Omega_\gamma$ muestra un comportamiento oscilatorio como función de α , según se ilustra en la Fig. 2.4. Vale notar que todas las brechas prohibidas de centro de zona se anulan para $\alpha = v_2/(v_1 + v_2)$. Para dicho valor de α , los espesores de las capas de uno y otro material se conjugan de forma tal que los modos de centro de zona aparecen degenerados a pesar de la modulación acústica. Por otra parte, es sencillo probar que el ancho de la brecha prohibida de orden $\gamma = 2$ resulta máximo para las relaciones entre los espesores

$$3d_2/v_2 = d_1/v_1 \quad \text{y} \quad d_2/v_2 = 3d_1/v_1. \quad (2.18)$$

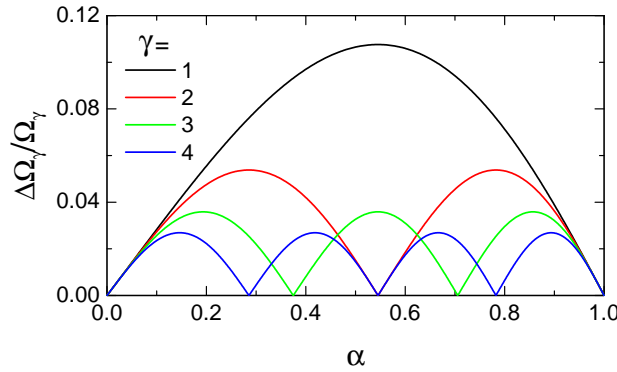


Figura 2.4: Variación del ancho relativo de las primeras brechas prohibidas de centro ($\gamma = 2, 4$) y borde ($\gamma = 1, 3$) de zona como función del espesor relativo $\alpha = d_2/(d_1 + d_2)$ para una superred de GaAs/AlAs.

2.1.1.c. Reflectividad

Es natural caracterizar un espejo a través de su reflectividad. Ésta se define como el cuadrado de la amplitud de una onda reflejada por el espejo, normalizada por la amplitud incidente (para incidencia perpendicular a las capas). En la Fig. 2.5 presentamos el resultado del cálculo de reflectividad para un espejo de 20 períodos de GaAs/AlAs, donde la relación de espesores d_1 y d_2 ha sido elegida de forma de maximizar el ancho espectral de la primer brecha prohibida de centro de zona. Observamos que la reflectividad es $R \sim 0$ excepto para las energías comprendidas dentro de las brechas de energías prohibidas de la superred, para las cuales $R \sim 1$. La figura muestra hasta la tercera brecha prohibida de centro de zona ($\gamma = 6$). Cuando nos referimos a la reflectividad, decimos que las energías de las brechas prohibidas definen una *banda de rechazo*. Notar que la relación de espesores

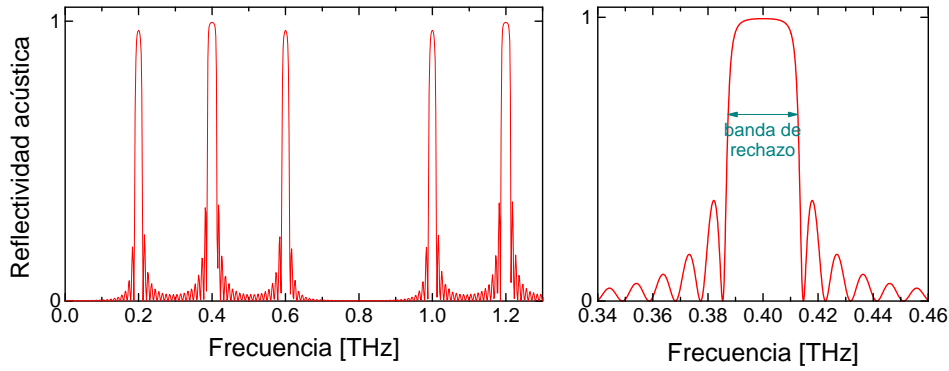


Figura 2.5: Reflectividad acústica de una superred de 20 períodos de GaAs/AlAs. Notamos regiones de $R \sim 1$ que constituyen las *bandas de rechazo* del espejo. La cuarta banda de rechazo tiene ancho nulo debido a la elección de la relación de espesores entre las capas de GaAs y AlAs (ver Fig. 2.4) que maximiza el ancho de la segunda banda.

que maximiza la segunda banda de rechazo (en 0,4 THz) también anula la cuarta banda. Esto puede corroborarse en la Fig 2.4.

Extendiendo las expresiones de reflectividad óptica al dominio acústico se puede expresar la reflectividad R_0 para la energía del centro de la banda de rechazo de una superred en la aproximación de número de celdas $N \gg 1$ como [75]

$$R_0 = 1 - 4 \frac{\rho_{\text{ext}} v_{\text{ext}}}{\rho_{\text{subs}} v_{\text{subs}}} \left(\frac{\rho_{\text{min}} v_{\text{min}}}{\rho_{\text{max}} v_{\text{max}}} \right)^{2N}, \quad (2.19)$$

donde el subíndice “ext” indica el medio exterior desde el cual incide el fonón, “subs” refiere al sustrato, “min” indica el material 1 o 2 que presente la menor impedancia acústica, y “max” corresponde al material de mayor impedancia (en el cálculo de la Fig. 2.5 empleamos GaAs como medio exterior y sustrato). La ec. (2.19) expresa que la calidad del espejo depende tanto del número de períodos como del contraste de impedancias acústicas de los materiales utilizados. En la Fig. 2.6 se exhibe la forma funcional de la ec. (2.19) (línea) junto con el cálculo exacto (puntos) de R_0 a partir del método de matrices de transferencia que describiremos en la sección 2.4.1. El acuerdo resulta satisfactorio a partir de $N = 8$. Se listan en la figura algunos valores de R_0 para diferentes valores de N . Las muestras estudiadas en el presente trabajo contienen superredes que varían de $N = 8$ a $N = 100$.

La reflectividad de una superred fue primeramente estudiada por Narayanamurti en el año 1979[76], demostrando experimentalmente las propiedades de reflexión selectiva de fonones acústicos. En dicho experimento los fonones eran generados y detectados mediante junturas túnel superconductoras. Algunos años más tarde, Jusserand [77] reportó la primer evidencia experimental de la apertura de brechas acústicas de energías prohibidas en superredes, mediante la técnica de dispersión Raman. Más recientemente, el espectro de reflectividad o transmisividad de superredes ha sido medido experimentalmente con la técnica de acústica de picosegundos casi simultáneamente por dos grupos distintos. En la

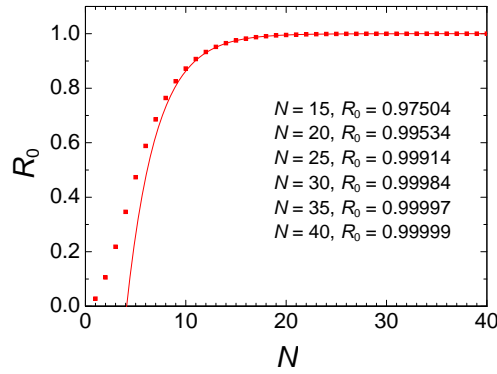


Figura 2.6: Reflectividad acústica a la energía del centro de la primer brecha prohibida de centro de zona en función del número de períodos N de una superred de GaAs/AlAs. *Línea:* cálculo a partir de la ec. (2.19). *Puntos:* cálculo exacto mediante el método de matrices de transferencia (ver sección 2.4.1).

Ref. [78] se reportó la medición del espectro de transmisividad, mientras que en la Ref. [7] se demostró el espectro de reflectividad (tanto la amplitud como la fase de la reflectividad fueron analizadas).

2.1.1.d. Parámetros

Integrando los conceptos que hemos desarrollado hasta ahora, podemos resumir los parámetros que deben ser tenidos en cuenta en el diseño de un espejo de fonones cuya banda de rechazo para la primera brecha prohibida de centro de zona ($\gamma = 2$) esté centrada en la frecuencia ω :

(i) **El período D de la superred.** Debe fijarse de modo que $\omega = v2\pi/D$.

(ii) **El espesor d_1 de las capas de uno de los materiales** (d_2 queda automáticamente fijado por (i)). Si queremos optimizar el ancho espectral de la primer brecha prohibida de centro de zona los espesores deben satisfacer $3d_2/v_2 = d_1/v_1$ o $d_2/v_2 = 3d_1/v_1$. El acuerdo entre esta condición y la impuesta en (i) implica

$$d_1 = 2\pi \frac{3v_1}{4\omega} = \frac{3}{4}\lambda_1, \quad d_2 = 2\pi \frac{1v_2}{4\omega} = \frac{1}{4}\lambda_2, \quad (2.20)$$

donde λ_m es la longitud de onda en el medio m de la vibración de energía ω , es decir $\lambda_m\omega/(2\pi) = v_m$. Naturalmente, la optimización también se satisface si intercambiamos los subíndices 1 y 2 en (2.20).

(iii) **El número total de períodos N .** Para lograr una dada reflectividad, N quedará determinado por el contraste de impedancias acústicas entre los materiales 1 y 2 a través de la relación (2.19).

2.1.2. Nanocavidades acústicas

Conceptualmente, la nanocavidad acústica sigue el mismo principio que una cavidad óptica. Consiste en dos espejos acústicos que encierran una región intermedia en la que los fonones (de ciertas longitudes de onda) quedan confinados. Los espejos son superredes como las descritas en la sección anterior. La región intermedia puede consistir en una capa de un material diferente (compatible con los otros en cuanto a los requerimientos del proceso de fabricación), o bien de alguno de los materiales que componen las superredes, pero con un espesor diferente al que presenta el mismo material en los espejos. Las superredes suelen ser nominalmente idénticas, aunque éste no es un requerimiento necesario. La estructura de una nanocavidad se esquematiza en la Fig. 2.7. Al material de la capa intermedia le asignamos el índice c , por *cavidad* (utilizaremos la palabra *cavidad* para referirnos tanto a la capa intermedia como a la nanoestructura en sí, espejos incluidos). Si queremos que la cavidad confine fonones de frecuencia ω_0 debemos ajustar su espesor l_c de modo que

$$2q_c l_c + \phi_1 + \phi_2 = 2\pi n, \quad n \in \mathbb{Z}, \quad (2.21)$$

donde $q_c = \omega_0/v_c$ es el vector de onda del fonón en la capa intermedia (v_c es la velocidad del sonido en dicha capa) y ϕ_1 y ϕ_2 las fases aportadas por la reflexión en cada uno de los espejos. En cuanto a estos últimos, el período D suele fijarse de modo tal que ω_0 coincida con el centro de la primera brecha prohibida de centro de zona. Esto asegura que la reflectividad a la frecuencia ω_0 sea máxima. A su vez, en ese caso ocurre que $\phi_1 = \phi_2 = 0$, por lo que la condición (2.21) se reduce a

$$l_c = n \frac{\lambda_c}{2} = n\pi \frac{v_c}{\omega_0}, \quad n \in \mathbb{Z}, \quad (2.22)$$

siendo λ_c la longitud de onda del fonón de energía ω_0 en el material del espaciador.

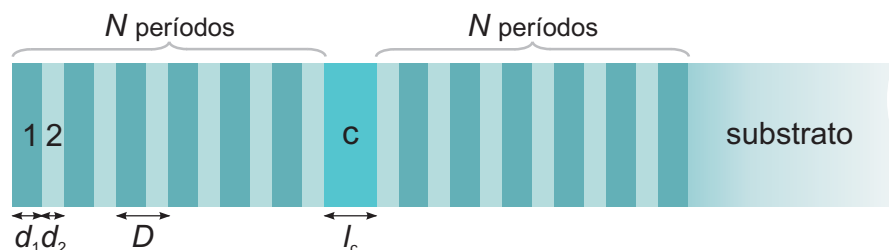


Figura 2.7: Esquema de una nanocavidad acústica. Los espesores de las capas de cada uno de los materiales de los espejos son d_1 y d_2 . El período de los mismos es D . El espesor de la capa intermedia es l_c . N es el número de períodos de cada uno de los espejos.

Una cavidad acústica puede entenderse como un defecto en lo que de otra forma sería una superred perfecta. Desde ese punto de vista, y a partir de los conceptos que nos brinda

la teoría de electrones en potenciales periódicos cuando se incorpora una impureza, la cavidad aporta un modo permitido dentro de la brecha de energías prohibidas. Más aún, dado que existen infinitas frecuencias que satisfacen (2.21) para distintos valores de n , todas aquéllas que se encuentren dentro de alguna banda de rechazo de los espejos darán un modo de cavidad. La Fig. 2.8 muestra la reflectividad de una nanocavidad compuesta por espejos de GaAs/AlAs de 10 períodos cada uno, en los que la relación de espesores α es tal que maximiza el ancho de la primer brecha prohibida de centro de zona. El espaciador es de GaAs y tiene un espesor $l_c = 5\lambda_c/2$, con la frecuencia $\omega_0 = 2\pi v_c/\lambda_c$ ubicada en el centro de la primer brecha prohibida de centro de zona de los espejos. A excepción de la capa intermedia, la muestra es idéntica a la empleada en el cálculo de reflectividad de una superred exhibido en la Fig. 2.5. Distinguimos en la Fig. 2.8 mínimos de reflectividad cercana a cero en el interior de cada banda de rechazo. En particular, para la primer banda de centro de zona (y para la tercera también) el mínimo se ubica en el centro de la misma¹. Estos mínimos corresponden a los modos de cavidad. Un fonón que se propaga por un medio exterior e incide sobre la nanocavidad, sólo podrá atravesarla si su energía corresponde a algún modo de la misma. Un fonón generado en el espaciador (mediante algún mecanismo que veremos más adelante), cuya energía coincida con alguno de los modos, no puede propagarse en los espejos y por tanto se reflejará una y otra vez. En cada reflexión el fonón tiene una cierta probabilidad (dada por su energía y la reflectividad de los espejos) de escapar hacia el medio exterior por efecto túnel, siempre y cuando el medio sea apto para la propagación del fonón (lo que no ocurre con el aire, por ejemplo; en ese caso la reflexión es total). Cabe aclarar que podrían existir varios modos de cavidad en el interior de una misma banda de rechazo. El número de modos queda determinado por la elección del espesor de la capa intermedia.

El concepto de nanocavidad acústica fue propuesto por Trigo y colaboradores en la Ref. [58], quienes demostraron la existencia de un modo de cavidad mediante espectroscopía Raman. Evidencia experimental del espectro de reflectividad de una nanocavidad acústica fue reportada más recientemente en la Ref. [78].

Recurriendo nuevamente a conceptos de cavidades ópticas, puede estimarse el número de veces N_τ que el fonón efectúa el viaje de ida y vuelta a lo largo de la cavidad antes de escapar hacia el substrato a partir de la relación

$$N_\tau = -1/\ln(\sqrt{R_1 R_2}), \quad (2.23)$$

donde R_1 y R_2 es la reflectividad de cada uno de los espejos a la energía del modo de cavidad [75]. Para la estructura empleada en el cálculo de la Fig. 2.8 se tiene $N_\tau = 10$,

¹Para las brechas prohibidas cuyo ancho espectral no es maximizado por la relación de espesores α , en el centro de la brecha la fase $\phi_1 + \phi_2$ acumulada al reflejarse el fonón en uno y otro espejo difiere de $2\pi n$ (n entero). Es por ello que el modo no cae en el centro de la brecha. Las fases ϕ_1 y ϕ_2 dependen de la frecuencia del fonón. Dentro de las brechas prohibidas los modos normales se ubican a frecuencias ω que satisfagan la relación (2.21).

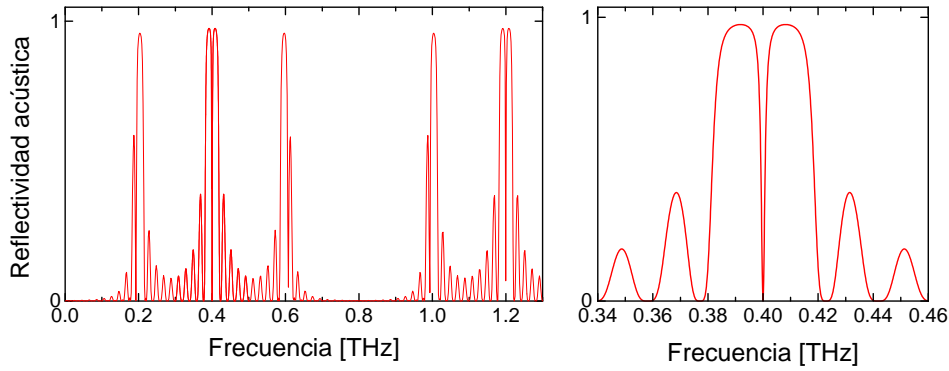


Figura 2.8: Reflectividad acústica de una cavidad consistente en un espaciador de GaAs de espesor $5\lambda_c/2$ y espejos de 10 períodos de GaAs/AlAs. Observamos mínimos deltiformes ubicados en las bandas de rechazo corresponden a los modos de la cavidad.

mientras que con 25 períodos se alcanza $N_\tau \sim 1700$. En la Fig. 2.9 la línea muestra la dependencia en N de N_τ , calculada para una cavidad con superredes idénticas reemplazando (2.19) en (2.23). Los puntos exhiben valores obtenidos a partir del cálculo exacto de R .

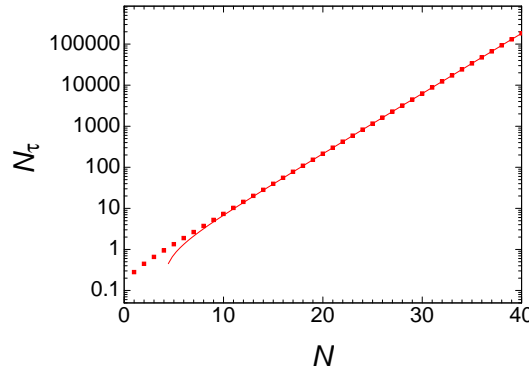


Figura 2.9: Número de viajes de ida y vuelta del fonón en la cavidad, N_τ , en función del número de períodos N . *Línea:* cálculo a partir de las expresiones (2.19) y (2.23). *Puntos:* cálculo a partir de (2.23) y del cómputo exacto de la reflectividad de los espejos.

Resulta de interés analizar las modificaciones introducidas en el campo de desplazamientos por la estructuración espacial de las propiedades acústicas en una nanocavidad. En la Fig. 2.10 presentamos el perfil espacial del modo de cavidad para la misma estructura sobre la que hemos efectuado el cálculo de reflectividad. La curva representa el cuadrado del módulo de $u(z)$ normalizado al valor que toma en el substrato. Observamos que el campo fonónico encuentra su máximo en la región de la cavidad, extinguiéndose exponencialmente hacia los espejos. Se trata por tanto de un modo confinado y amplificado. En el caso de la estructura descrita, incidiendo con una amplitud de desplazamiento igual a 1 en un medio exterior, logramos una amplitud 6 veces mayor en la cavidad (la energía elástica, que va como el cuadrado de la amplitud, es 32 veces mayor que en el medio exterior).

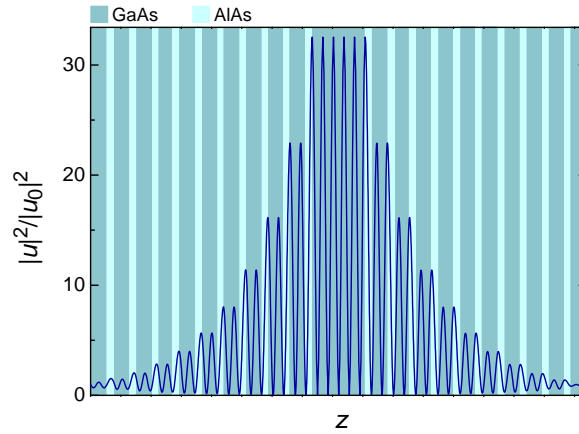


Figura 2.10: Módulo cuadrado del campo de desplazamientos (normalizado al valor en el sustrato) en función de la posición z sobre la estructura. Vemos que el campo se encuentra $\sim \sqrt{32} = 5,6$ veces amplificado en la región de la cavidad respecto de su amplitud en el sustrato.

Una cavidad acústica constituye una valiosa herramienta de confinamiento y amplificación de campo acústico que nos abre numerosas posibilidades de las que haremos provecho para alcanzar distintos fines que describiremos en el capítulo 4 del presente trabajo.

2.2. Técnica experimental: acústica de picosegundos

2.2.1. Descripción general

Con el alcance de la escala de decenas de femtosegundos en la duración de los pulsos de los láseres pulsados, ha sido posible el desarrollo de la técnica de acústica de picosegundos, también llamada acústica ultrarrápida. Consiste en la excitación de vibraciones coherentes en materiales absorbentes o débilmente absorbentes mediante la interacción de la radiación de un pulso láser con el material. El pulso genera a tiempo cero un cierto perfil de deformaciones que luego sigue la evolución temporal dictada por las propiedades acústicas del medio. Transcurrido un cierto tiempo, un segundo pulso, usualmente de menor intensidad, sensa el estado vibrónico de la muestra. La acústica de picosegundos forma parte de lo que se denominan técnicas de *bombeo-sondeo*.

En general, la cantidad medida en un experimento es la intensidad del pulso de sondeo luego de reflejarse en la superficie de la muestra o de transmitirse a lo largo de la misma. El dato experimental es entonces la reflectividad o transmisividad de la muestra a un tiempo t transcurrido entre la incidencia de uno y otro pulso. El retardo entre ambos pulsos se controla con precisión del orden de los 3 fs y puede variarse en un rango de algunos nanosegundos. Luego de la incidencia del pulso de bombeo, la distribución electrónica del sistema está dinámicamente alterada por la presencia de la vibración. En particular, el esquema de bandas electrónicas sigue la modulación impuesta por la frecuencia o distribución de frecuencias de la vibración. Por tanto, el índice de refracción

del medio también evoluciona temporalmente según dichas frecuencias. La reflectividad y la transmisividad de la muestra guardan entonces información del estado vibracional del sistema. El monitoreo de una u otra de estas cantidades en función del retardo entre los pulsos de bombeo y de sondeo da acceso a la evolución temporal de la vibración.

2.2.2. Dispositivo experimental

El dispositivo experimental se esquematiza en la Fig. 2.11. Se emplea un oscilador láser de titanio-zafiro que entrega pulsos de ~ 100 fs de duración, con polarización lineal. Nos hemos servido de dos osciladores diferentes para los experimentos que describiremos. En algunos hemos utilizado un oscilador Maitai y en otros un Tsunami, ambos de la compañía Spectra-Physics. La diferencia entre uno y otro reside principalmente en que el Maitai funciona como una “caja negra” comandada por software, mientras que en el Tsunami la operación es manual. La frecuencia de repetición de los pulsos varía levemente entre ambos equipos, siendo de 79 MHz en el Maitai y de 82 MHz en el Tsunami (~ 12 ns de período de repetición). Los pulsos atraviesan una lámina de media onda y luego un cubo separatriz sensible a la polarización. El conjunto de estos dos elementos permite separar el pulso original en un pulso de bombeo y otro de sondeo, a la vez que facilita la variación en forma continua de la energía destinada a uno y otro pulso. Los haces resultan linealmente polarizados según direcciones perpendiculares.

El haz de bombeo es focalizado sobre un modulador acusto-óptico (en breve veremos por qué) del que se toma el primer orden de difracción (el modulador está optimizado para maximizar la intensidad de dicho orden). Luego, el haz se colecta con una lente similar a la de focalización. La distancia focal de las lentes es extensa (500 mm), de forma de evitar un spot de focalización demasiado pequeño cuya elevada densidad de potencia podría dañar el cristal del modulador (umbral de tolerancia: $\sim 1,5$ W de potencia media). El haz es focalizado sobre la muestra mediante una lente acromática de ~ 60 mm de distancia focal y 25 mm de diámetro.

El pulso de sondeo, por su parte, recorre una línea de retardo consistente en un retrorreflector (tres espejos dispuestos en forma de “esquina” a 90° entre sí) montado sobre una plataforma que se desplaza según un eje. En la práctica se empleó un esquema algo más complejo, contando con dos retroreflectores sobre la plataforma móvil que enfrentaban a otro fijo ubicado en el extremo de la línea de retardo. De esta forma, el haz efectúa 3 viajes de ida y vuelta a lo largo de la línea, logrando un retardo máximo de 12 ns respecto del pulso de bombeo. Luego, el haz de sondeo se focaliza sobre la muestra con la misma lente empleada para la focalización del haz de bombeo. Esto facilita la superposición espacial entre los spots de bombeo y de sondeo sobre la muestra. Para afinar la superposición se recurre a una cámara a la que se adjunta un zoom. La superposición se afina aún más variando levemente la orientación del espejo que envía el haz de bombeo sobre la muestra, de modo de maximizar la señal experimental. El haz de sondeo incide fuera del centro de

orden de magnitud de dicha frecuencia, pues determina la “velocidad” a la que se repite el experimento, y por lo tanto, el tiempo total de medición y/o la calidad de la señal medida. Se utilizó un perfil de onda cuadrado para la modulación.

La salida del amplificador lock-in se envía a una placa conversora analógico-digital, y la salida de esta última a una computadora. Un software especialmente diseñado permite visualizar en tiempo real la señal registrada en función de una escala temporal que responde al tiempo involucrado en el fenómeno físico que se quiere medir. Dicha escala se deduce de la posición a la que se encuentra la línea de retardo. Como dijimos, el rango máximo de la escala es de 12 ns. El mismo software controla la posición de la línea de retardo y su velocidad de desplazamiento.

COMENTARIO

Un modulador acusto-óptico es el equivalente a un “chopper” mecánico que permite elevar la frecuencia de modulación de la señal a medir hasta el rango de los megahertz. Consiste en un cristal (suele emplearse TeO_2) por el que se propaga una onda vibracional generada por un piezoeléctrico. El haz óptico que se desea modular atraviesa el cristal en dirección normal a la propagación del frente de onda acústico. La luz encuentra entonces una red de difracción generada por la variación del índice de refracción inducida por la onda acústica. La salida óptica del modulador es el primer orden de difracción. El perfil acústico está diseñado de forma tal de maximizar la intensidad de dicho orden. La modulación de la luz se logra fijando una tensión oscilante sobre el piezoeléctrico. La amplitud de la oscilación determina la intensidad de la salida óptica del dispositivo.

COMENTARIO

Recientemente ha sido ideado un novedoso esquema experimental que utiliza dos láseres diferentes para los haces de bombeo y de sondeo, cuyas frecuencias de repetición difieren levemente de manera controlada. Esta diferencia asegura un retardo variable entre los dos pulsos, por lo que se prescinde de la línea de retardo. La variación del retardo entre cero y su valor máximo ocurre en tan solo 90 μs , correspondiente a la inversa de la diferencia entre las frecuencias de repetición de los láseres. Esto permite efectuar realizaciones del experimento a una frecuencia $\sim 10^5$ veces superior a la del esquema tradicional, en la que el tiempo del experimento está determinado por la velocidad de la línea de retardo. La detección sincrónica resulta por tanto innecesaria. La relación señal/ruido se mejora efectuando numerosas realizaciones del experimento. La limitación de este nuevo esquema reside en el retardo máximo que puede lograrse (1 ns). Los detalles pueden consultarse en la Ref. [79].

2.2.3. Algunos detalles del experimento

En esta sección ahondaremos en la secuencia de eventos que componen el experimento y estimaremos el valor que debe asignársele a ciertos parámetros para el buen desarrollo

del mismo.

La línea de retardo se fija en una posición, que corresponde a algún retardo t entre los pulsos de bombeo y de sondeo. A este tiempo la intensidad del haz de sondeo luego de la reflexión en la muestra es $R(t)I_0$, siendo I_0 la intensidad de incidencia. La reflectividad $R(t)$ está determinada por la distribución del campo vibracional al tiempo t transcurrido desde la generación de la vibración por el pulso de bombeo. Como dijimos anteriormente, la frecuencia de repetición del láser pulsado es del orden de 80 MHz. Es decir, cada 12,5 ns el detector recibe un pulso de intensidad $R(t)I_0$. El detector es un fotodiodo estándar de silicio que no cuenta con una respuesta ultra-rápida para seguir la sucesión de pulsos, lo que tampoco resulta necesario gracias a la detección sincrónica. Veamos por qué. El detector devuelve una tensión promedio, correspondiente a la potencia media de la luz que recibe. Al modularse la señal de bombeo con una señal cuadrada, los pulsos de sondeo que se corresponden con pulsos de bombeo que han caído en el lapso de voltaje nulo del ciclo de la señal cuadrada (medio ciclo) arriban al detector con intensidad R_0I_0 , siendo R_0 la reflectividad de la muestra en ausencia de vibraciones. La salida del fotodiodo oscila entonces entre un voltaje correspondiente a $R(t)I_0$ y otro correspondiente a R_0I_0 . Esta es la señal que se envía al amplificador lock-in y también a un voltímetro. La lectura del amplificador (que se encarga también de demodular la señal) se asigna a $\Delta R(t) = R(t) - R_0$. Dado que $\Delta R(t)/R_0$ es del orden de $10^{-5} - 10^{-6}$, la sensibilidad del voltímetro no permite distinguir entre $R(t)$ y R_0 . La lectura del voltímetro corresponde entonces a $\simeq R_0$, y se emplea para normalizar la variación $\Delta R(t)$.

Lo dicho en el párrafo anterior corresponde a un único instante t de la dinámica vibracional de la muestra. Debe repetirse entonces a lo largo de todo el intervalo temporal que se quiera estudiar. Para ello, la línea de retardo se desplaza a una velocidad v_L , repitiéndose el experimento para cada posición de la línea. Sin embargo, dado que la línea se desplaza de manera continua, v_L debe ser lo suficientemente lenta como para que el tiempo de respuesta del amplificador lock-in no solape mediciones correspondientes a diferentes tiempos de la dinámica vibracional. Analizaremos ahora cuál es un valor adecuado para v_L .

La dinámica vibracional ocurre a una escala temporal en el rango de los picosegundos. El tiempo inscripto en esta escala lo denotaremos t_{din} . La línea de retardo desplazándose a la velocidad v_L permite transformar esta escala temporal a otra escala compatible con los tiempos experimentales dictados por la respuesta electrónica del sistema de detección. El tiempo que transcurre en esta segunda escala lo indicaremos t_{exp} . La vinculación entre ambas escalas está dada por $t_{\text{exp}} = \frac{c}{6v_L} t_{\text{din}}$, donde c es la velocidad de la luz en el aire y el factor 6 proviene de los seis pasajes que el pulso de sondeo efectúa a lo largo de la línea de retardo (tres viajes de ida y vuelta). Supongamos una vibración en la muestra con un período T_{din} . Típicamente, este período quiere muestrearse con 20 puntos. Es decir que el intervalo temporal que debe resolverse en la escala experimental es $\Delta t_{\text{exp}} = \frac{c}{120v_L} T_{\text{din}}$. El tiempo de respuesta de un amplificador lock-in es de $3/(2\pi)$ veces la constante temporal

τ de su filtro pasabajos ($\tau = 1/(RC)$, R : resistencia del filtro, C : capacitancia). Para que el amplificador no solape dos mediciones separadas por el intervalo Δt_{exp} , debe cumplirse

$$v_L \tau < \frac{\pi c}{180} T_{\text{din}}. \quad (2.24)$$

Conocida la frecuencia característica de la vibración en la muestra, la ec. (2.24) establece una relación entre v_L y τ .² Otro factor para tener en cuenta en la determinación de v_L es el ruido introducido en la medición por el desplazamiento de la propia línea de retardo. En general, cuanto más rápidamente se desplaza la línea, mayor es el ruido generado por inestabilidades mecánicas. Velocidades inferiores a 5 mm/s aseguran un bajo nivel de ruido. El ruido proveniente de esta y otras fuentes puede disminuirse repitiendo numerosas veces el barrido de la línea de retardo. Hemos encontrado que un buen compromiso entre el nivel de ruido y el tiempo total de medición (la velocidad de la línea multiplicada por el número de barridos) se obtiene para una velocidad $v_L = 1$ mm/s. Esto implica que la constante temporal del amplificador debe satisfacer $\tau \lesssim 10$ ms. Para barrer el retardo entre los pulsos de bombeo y de sondeo de 0 a 1 ns a la velocidad mencionada se necesitan 50 s. El número de barridos necesarios para lograr una relación señal/ruido satisfactoria implica que el tiempo total de una medición varía entre 30 y 60 minutos, dependiendo de la intensidad de la señal.

2.2.4. Esquemas de detección

En la descripción del dispositivo experimental mencionamos que el haz de sondeo se refleja sobre la muestra y que la cantidad medida es la variación de reflectividad $\Delta R(t)$ (puede también medirse la transmisividad en el caso de muestras débilmente absorbentes; este no es el caso en los experimentos del presente trabajo de tesis). Suele emplearse también otro esquema de detección que hace uso de un interferómetro. La información que brindan uno y otro esquema es diferente y complementaria. A continuación describiremos cada uno de los métodos y analizaremos qué información aporta cada uno respecto de la cantidad compleja $\Delta r(t)$, siendo $|r(t)|^2 = R(t)$.

2.2.4.a. Detección reflectométrica

La cantidad medida en el experimento en configuración de detección reflectométrica es la variación de la reflectividad de la muestra al instante t respecto de su valor R_0 en ausencia de vibraciones:

²Otra relación que debe satisfacerse entre los tiempos involucrados en el experimento es que dentro del intervalo Δt_{exp} deben estar contenidos muchos ciclos de la modulación del haz de bombeo, de modo que la señal detectada esté efectivamente modulada. Esta condición se satisface ampliamente para los parámetros empleados: del orden de 10^5 ciclos están contenidos en Δt_{exp} para $T_{\text{din}} = 1$ ps, $v_L = 1$ mm/s y 1,8 MHz de frecuencia de modulación.

$$\Delta R(t) = R(t) - R_0 = |r(t)|^2 - R_0 = |r_0 + \Delta r(t)|^2 - R_0, \quad (2.25)$$

donde $|r_0|^2 = R_0$. Despreciando el término en $\Delta r(t)^2$ la variación en la reflectividad puede expresarse como

$$\Delta R(t) = 2\Re(r_0)\Re(\Delta r(t)) + 2\Im(r_0)\Im(\Delta r(t)). \quad (2.26)$$

Si la muestra fuese transparente a la luz del sondeo, se tendría $\Im(r_0) = 0$. En ese caso, el experimento en configuración reflectométrica daría acceso a la parte real de $\Delta r(t)$. En el sistema GaAs/AlAs, el AlAs es transparente a las longitudes de onda que emplearemos en los experimentos (710 – 870 nm). El GaAs, en cambio, es levemente absorbente. La señal estará dominada principalmente por la parte real de $\Delta r(t)$, aunque existirá una pequeña contribución dada por la parte imaginaria.

2.2.4.b. Detección interferométrica

El esquema de detección interferométrica apunta a acceder individualmente tanto a la parte real como a la parte imaginaria de $\Delta r(t)$, independientemente de la mayor o menor absorción óptica de la muestra. La implementación de la interferometría en la técnica de acústica de picosegundos fue propuesta B. Perrin en el año 1996 [10], y adoptada luego en numerosos trabajos (ver por ejemplo las Refs. [11, 14, 69, 80–86]). Podrían en principio utilizarse diferentes tipos de interferómetros (la Ref. [11] hace uso de un interferómetro de Michelson, por ejemplo; las Refs. [10, 14] describen la implementación de un interferómetro de Mach-Zehnder). El esquema que hemos empleado en los experimentos se sirve de un interferómetro de tipo Sagnac. Dicho interferómetro tiene la ventaja de presentar una gran estabilidad dado que ambos brazos del interferómetro recorren el mismo camino (en sentidos inversos). Como la escala temporal de las inestabilidades mecánicas del interferómetro es mucho mayor que el tiempo de viaje a lo largo del mismo, el pulso que lo recorre en un sentido sensa las mismas inestabilidades que el que lo recorre en el sentido opuesto, cancelándose entonces el efecto.

El interferómetro y los cálculos que permiten deducir la señal detectada experimentalmente se describen en el apéndice A. Aquí reproduciremos el resultado relevante a nuestros experimentos:

$$\Delta\Phi(t) = -\Re(r_0)\Im(\Delta r(t)) + \Im(r_0)\Re(\Delta r(t)), \quad (2.27)$$

siendo $\Delta\Phi(t)$ la señal medida experimentalmente. Dado que las muestras que estudiaremos son débilmente absorbentes, $\Delta\Phi(t)$ estará dominada principalmente por la parte imaginaria de $\Delta r(t)$.

Vale mencionar que la técnica de detección interferométrica permite obtener otra cantidad además de $\Delta\Phi(t)$ (ver apéndice A). De la combinación de ambas cantidades puede

individualizarse la parte real y la parte imaginaria de $\Delta r(t)$. En los experimentos efectuados en configuración interferométrica que describiremos en el presente trabajo, no explotaremos esta potencialidad. Como nos interesaremos principalmente en el contenido frecuencial de las vibraciones, el cual está plasmado tanto en la parte real de Δr como en la parte imaginaria, al realizar experimentos en el esquema interferométrico registraremos únicamente la señal $\Delta\Phi(t)$. Si bien de esta manera no accederemos a la cantidad compleja $\Delta r(t)$, la medición de una sola de las cantidades nos permitirá reducir el tiempo de medición a la mitad.

2.2.5. Señal típica de un experimento

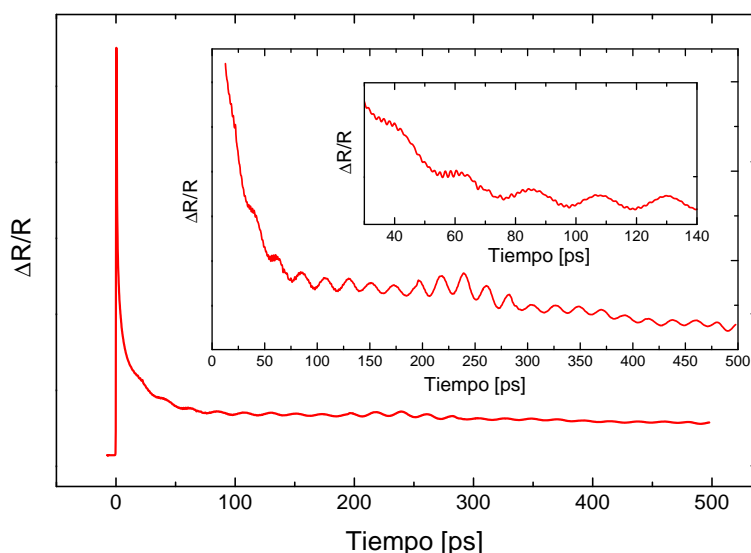


Figura 2.12: Señal típica de un experimento de bombeo-sondeo. La primera ampliación de escala destaca el modo Brillouin. La segunda ampliación permite distinguir oscilaciones de alta frecuencia correspondiente a fonones acústicos replegados coherentes.

La Fig. 2.12 muestra una señal típica de un experimento de bombeo-sondeo. La variación normalizada de la reflectividad de la muestra se grafica en función del tiempo de retardo entre los pulsos de bombeo y de sondeo. Se observa un marcado pico que indica el tiempo $t = 0$, es decir, la coincidencia entre ambos pulsos. Luego, la señal decae lentamente. El pico a $t = 0$ y el decaimiento posterior son producto de fenómenos térmicos y de excitación súbita de la nube electrónica, ambos inducidos por la absorción del pulso de bombeo en la muestra. La relajación de la muestra hacia el equilibrio se traduce en el decaimiento lento de la señal. Superpuesta a este decaimiento se observa una contribución acústica de baja frecuencia (período: ~ 20 ps). Se trata del modo conocido como Brillouin, del que hablaremos más adelante en la sección 2.3.2.c. Es un modo que se observa tanto en nanoestructuras como en materiales masivos o capas delgadas. Ampliando la escala se distinguen oscilaciones de alta frecuencia. Las mismas corresponden a la modulación

del índice de refracción por parte de los fonones acústicos replegados coherentes presentes en la muestra. Esta es la contribución a la señal en la que estaremos interesados. Para deshacernos de las otras contribuciones contamos con dos herramientas. Una consiste en filtrar numéricamente la señal con un filtro pasa-banda de modo de eliminar las bajas frecuencias. La otra se remite al análisis espectral de la señal, que permite individualizar las diferentes contribuciones.

2.3. Generación y detección óptica de fonones longitudinales acústicos coherentes en nanoestructuras

En la presente sección nos abocaremos al estudio de los fenómenos de generación y de detección de fonones acústicos coherentes en nanoestructuras por pulsos ópticos ultra-breves. Primeramente nos centraremos en la generación. Comenzaremos con una breve descripción de los mecanismos involucrados en el proceso de generación. Luego pasaremos a la deducción de la amplitud y distribución espectral de los modos generados. Analizaremos el fenómeno en dos niveles complejidad. En primer lugar, daremos un enfoque simple de la regla de selección de los modos generados, basándonos en la simetría del problema. A continuación, profundizaremos en el desarrollo teórico, definiendo y calculando la respuesta espectral de generación, que llamaremos *función de generación*, una de las cantidades cruciales en la idea y concepción de todos los experimentos que hemos desarrollado en el presente trabajo de tesis. Luego pasaremos al estudio de la detección. Comenzaremos describiendo el mecanismo de detección involucrado, y posteriormente calcularemos de qué manera queda plasmada la información relativa a las vibraciones en la variación de la reflectividad de la muestra. Llegaremos así a la otra cantidad conceptualmente esencial: la respuesta espectral de detección, que denominaremos *función de detección*.

2.3.1. Generación

2.3.1.a. Mecanismos de generación de fonones acústicos coherentes por pulsos ópticos ultra-breves

El esquema conceptual de la generación óptica de fonones coherentes se resume de la siguiente forma: el pulso óptico ultra-breve interacciona con los electrones de la muestra, entregando un exceso de energía que se manifiesta a través de una tensión, esta tensión es el origen del lanzamiento de un pulso de fonones coherentes que se propaga por el material o de la instalación de una oscilación en la muestra. El gradiente espacial de esta tensión constituye el término fuente en la ecuación de ondas responsable de la generación coherente de fonones. La naturaleza de la tensión generada por el pulso de bombeo es un tema ampliamente discutido en la literatura [1, 3, 9, 13, 14, 26, 28–33, 49, 87–92] y que aún despierta interés y controversia.

Existe un grado bastante amplio de acuerdo respecto a que una de las principales contribuciones a la tensión es de origen térmico [1, 3, 9, 13, 14, 26, 49, 90, 93]. Es decir, los electrones fotoexcitados entregan su exceso de energía a los iones la red cristalina mediante la emisión de fonones. Esto ocurre en un lapso de tiempo $\lesssim 1$ ps, generando un súbito aumento de la temperatura $T(z)$ de la red que se traduce en una tensión térmica $\sigma_T(z)$ [1–3, 9, 13, 14, 26, 90, 93]. La expresión para σ_T es

$$\sigma_T(z) = -3B\beta\Delta T(z), \quad (2.28)$$

donde B es el módulo de compresibilidad y β es el coeficiente de expansión lineal. Hemos supuesto una muestra isotrópica. También puede incluirse en este modelo la difusión térmica, lo que devuelve un mejor acuerdo con los datos experimentales [1, 13, 54]. Para lograr una noción cuantitativa de la deformación y de la amplitud del campo de desplazamiento generados por la tensión (2.28), el incremento de temperatura puede estimarse a partir del calor específico a presión constante C_P del material y la energía Q de un pulso óptico. Luego, la ecuación de ondas no homogénea puede resolverse con el término (2.28) como fuente. Para un material masivo se obtiene una deformación cuya amplitud η_0 es [1]

$$\eta_0 = \frac{3\beta B(1-R)Q}{\rho^2 v^2 C_P A}, \quad (2.29)$$

donde ρ es la densidad, v es la velocidad del sonido en el material, R es la reflectividad de la muestra y A es el área transversal del haz focalizado sobre la muestra. Para pulsos de 1 nJ focalizados en un área de $50 \mu\text{m}$ de diámetro sobre GaAs se estima ($C_P \sim 4 \text{ J g}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $B = 7,5 \cdot 10^{10} \text{ N m}^{-2}$, $\beta = 6 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, $\rho = 5,3 \text{ g cm}^{-3}$, $v = 4726 \text{ m s}^{-1}$)

$$\eta_0 \sim 10^{-7}, \quad (2.30)$$

lo cual implica una amplitud u_0 del campo de desplazamientos

$$u_0 \sim 50 \text{ fm}. \quad (2.31)$$

Vemos entonces que la amplitud del campo generado es del orden de un diezmilésimo del parámetro de red.

Retornando a los mecanismos de generación, a un nivel más profundo de análisis [13], se identifican dos temperaturas diferentes para el gas de electrones y para la red cristalina, cuyas evoluciones se encuentran acopladas y están descritas por el modelo de dos temperaturas desarrollado por Kaganov [94]. Se identifica así una tensión de origen electrónico, cuyo tratamiento es diferente si se trata de metales o de semiconductores. En los metales la tensión electrónica es significativa respecto de la tensión térmica únicamente durante el primer picosegundo luego de la incidencia del pulso óptico, debido principalmente al modesto valor del calor específico del gas electrónico (~ 100 veces menor) respecto

del calor específico de la red cristalina (durante el primer picosegundo esta diferencia es compensada por la elevada temperatura del sistema electrónico). En los semiconductores, además de la contribución de tensión electrónica, existe una segunda contribución debida al potencial de deformación. Esta contribución se agrega puesto que los electrones (y huecos) permanecen un largo tiempo (nanosegundos) en estado excitado (fondo de la banda de conducción en el caso de los electrones y tope de la banda de valencia en el caso de los huecos). La componente a la tensión originada en el potencial de deformación se escribe como [1, 90]

$$\sigma_{e-h}(z) = -B \frac{\partial E_Q}{\partial P} n(z), \quad (2.32)$$

donde E_Q es la energía de la brecha de energías prohibidas del semiconductor, P es la presión y $n(z)$ es la densidad electrónica. La tensión electrónica resulta en los semiconductores superior en un factor ~ 6 a la tensión térmica, constituyendo entonces el principal mecanismo de generación. Evidencia experimental de dicha afirmación puede encontrarse en la Ref. [92]. En ese caso, η_0 y u_0 son del orden de $6 \cdot 10^{-7}$ y $0,3$ pm, respectivamente.

Los mecanismos de generación óptica de fonones analizados hasta aquí suponen la absorción de la luz de bombeo en la muestra. Es decir, en semiconductores la energía óptica de excitación debe exceder la energía de la brecha prohibida. Si bien esto aumenta la eficiencia de generación, no es una condición necesaria. Existe un tercer mecanismo de generación que puede activarse incluso para energías inferiores a la brecha prohibida: la dispersión Raman estimulada o mecanismo de electrostricción. Consiste básicamente en la polarización del medio inducida por la presencia del campo eléctrico de bombeo. Esta polarización tiene asociada una energía (energía del campo electromagnético en la muestra), cuya derivada respecto de la deformación es la tensión que actúa como fuente para la generación de fonones [33, 90, 95, 96]. Esta tensión se escribe:

$$\sigma_{RS}(z) = \frac{1}{8\pi} \sum_{ijklmn} P_{klji} \epsilon_{km} \epsilon_{ln} E_m(z) E_n(z), \quad (2.33)$$

donde P_{klji} es el tensor fotoelástico, ϵ_{km} es el tensor dieléctrico y $E_m(z)$ es la componente m del campo eléctrico incidente. No hemos encontrado en la literatura un análisis comparativo de este mecanismo respecto de los mencionados anteriormente. Sin dudas, es la única vía posible de generación para excitación óptica por debajo de la brecha prohibida. Según la literatura [31–33], constituye el principal mecanismo en la generación de fonones ópticos.

Además de las diferencias en los fenómenos físicos involucrados en los mecanismos de generación, existe otra diferencia fundamental relativa a la dependencia temporal de la tensión en cada uno de los casos. En los mecanismos térmico y electrónico, la tensión en el material se pone en marcha en el instante posterior a la incidencia del pulso de

bombeo y se mantiene hasta que el sistema recobre su estado de equilibrio, es decir, hasta que la temperatura alcance su valor inicial o hasta que la recombinación de pares electrón-hueco se complete. La dependencia temporal de estos mecanismos es entonces de tipo función escalón, seguida por un descenso lento y monótono. Matemáticamente esta dependencia puede emularse con la función de Heaviside, aunque tal aproximación desprendería el descenso lento. Este tipo de mecanismos se denomina *displacivo*, término que hace referencia al desplazamiento de la posición “transitoria” de equilibrio del sistema. Para explicar esto recurriremos a una visión un tanto caricatural pero útil del problema: luego de la incidencia del pulso de bombeo, la nueva temperatura en la muestra o la nueva población de los estados de electrones y huecos define un nuevo estado de equilibrio para la red de átomos o iones. Este estado de equilibrio es transitorio pues el sistema alcanzará eventualmente el verdadero equilibrio (el estado que la muestra presentaba antes de la incidencia del pulso de bombeo). La configuración en la que se encuentra la red cristalina en el instante de incidencia deja de ser la de equilibrio para las nuevas condiciones de temperatura o población electrónica. El sistema se encuentra entonces automáticamente fuera del equilibrio y comienza entonces a oscilar. Veremos más adelante que la dependencia temporal de la oscilación es de tipo cosenoidal: $1 - \cos(\omega t)$ ($t = 0$ corresponde al instante de incidencia del pulso de bombeo).

En el caso del mecanismo de generación por dispersión Raman estimulada, la dependencia temporal es radicalmente diferente. Dado que la generación tiene su origen en la polarización inducida en la muestra por el campo eléctrico incidente, la tensión existe sólo durante el tiempo de tránsito del pulso de bombeo en la muestra. Como dicho tiempo es aproximadamente 2 órdenes de magnitud inferior al período de las vibraciones acústicas, la dependencia temporal puede aproximarse por la función delta de Dirac. Este mecanismo se denomina entonces *impulsivo*, puesto que caricaturalmente puede pensarse en una *impulsión* que el pulso de bombeo da al sistema perturbándolo de su posición de equilibrio. Veremos próximamente que el sistema oscila en este caso con una dependencia de tipo senoidal ($\sin(\omega t)$).

Vale hacer notar que más de un mecanismo puede estar presente en un dado experimento. En ese caso, la fase inicial de la oscilación no corresponderá ni a la de la función seno ni a la del coseno (ver por ejemplo la Ref. [31]).

Por último, aclararemos que, independientemente del mecanismo de generación, el hecho que el tamaño lateral del spot del láser sea mucho mayor que la longitud de penetración del haz en la muestra, sólo permite excitar modos longitudinales en el caso de cristales cúbicos orientados según la dirección [001]. Para excitar modos transversales es necesario reducir el tamaño del spot o crecer la muestra según direcciones de baja simetría.

En el presente trabajo de tesis no centraremos la atención en la identificación del mecanismo de generación. Para la tensión inducida por el pulso de bombeo adoptaremos la expresión

$$\sigma_p(z, t) = K(z)|E(z)|^2 T(t), \quad (2.34)$$

donde $K(z)$ es una constante dependiente del material que llamaremos *constante de generación*, $E(z)$ es el perfil del campo eléctrico en la muestra y $T(t)$ es una función que determina la forma temporal de la tensión inducida por el pulso de bombeo según el mecanismo de generación que se considere. Esta expresión para la tensión resulta una aproximación razonable, compatible con cualquiera de los posibles mecanismos de generación descriptos.

A continuación deduciremos una regla de selección para los modos acústicos que pueden ser generados en un sistema periódico. Dicha propiedad es intrínseca a la simetría del problema e independiente del mecanismo de generación, siempre y cuando la tensión inducida por el campo de bombeo presente la misma simetría del sistema. Esto ocurre si la luz es débilmente absorbida, puesto que la tensión (2.34) presentará la misma dependencia espacial que $K(z)$.

2.3.1.b. Regla de selección para sistemas periódicos

Nos proponemos deducir de la simetría de una superred o cualquier otro sistema periódico los modos vibracionales que pueden ser generados por un pulso óptico. Buscamos entonces hallar las restricciones que el mecanismo de generación impone sobre los vectores de onda de los fonones generados.

La física del problema está determinada por la ecuación de onda del sistema. La incidencia del pulso de bombeo agrega un término fuente, consistente en la derivada de la tensión inducida por el bombeo, σ_p , respecto de la posición. La ecuación de onda queda entonces

$$\rho(z) \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} - \frac{\partial}{\partial z} \left[C(z) \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} \right] = \frac{\partial \sigma_p(z, t)}{\partial z}. \quad (2.35)$$

donde $\rho(z)$ y $C(z)$ son respectivamente la densidad y la constante elástica como función de la posición. Transformaremos Fourier espacial y temporalmente la ec. (2.35):

$$\omega^2 \rho(q) * u(q, \omega) + [q C(q)] * [q u(q, \omega)] + C(q) * [q^2 u(q, \omega)] = -iq \sigma_p(q, \omega). \quad (2.36)$$

q y ω son el vector de onda y la frecuencia, respectivamente, y el símbolo $[f] * [g]$ indica el producto de convolución entre f y g . Dada la periodicidad del sistema, las transformadas de Fourier de la densidad y de la constante elástica pueden escribirse

$$\rho(q) = \sum_Q \rho_Q \delta(q - Q) \quad , \quad C(q) = \sum_Q C_Q \delta(q - Q), \quad (2.37)$$

donde $\{Q\}$ son los vectores de la red recíproca del sistema de período D , es decir, $\{Q = \frac{2\pi n}{D} / n \in \mathbb{Z}\}$. Reemplazando (2.37) en (2.36) se tiene

$$\sum_Q [\omega^2 \rho_Q + C_Q q(q - Q)] u(q - Q, \omega) = -iq \sigma_p(q, \omega), \quad (2.38)$$

$$\sum_Q F_Q(q, \omega) u(q - Q, \omega) = -iq \sigma_p(q, \omega), \quad (2.39)$$

donde hemos agrupado la cantidad entre corchetes de la ec. (2.38) en la función $F_Q(q, \omega)$ de (2.39). En cuanto al término fuente, si se desprecia la absorción de la luz en la nanoestructura, $\sigma_p(z, t)$ presenta la periodicidad del sistema, ya que depende de las propiedades electrónicas, térmicas y fotoelásticas de cada capa. Por lo tanto, su transformada de Fourier espacio-temporal puede escribirse como

$$\sigma_p(q, \omega) = \sum_Q \sigma_Q(\omega) \delta(q - Q). \quad (2.40)$$

Reemplazando en (2.39) se tiene finalmente

$$\sum_Q [F_Q(q, \omega) u(q - Q, \omega) + iq \sigma_Q(\omega) \delta(q - Q)] = 0. \quad (2.41)$$

Para resolver el sistema de ecuaciones (2.41) conviene analizar separadamente los casos $q \notin \{Q\}$ y $q \in \{Q\}$. En una y otra situación se obtiene

$$\sum_Q F_Q(q, \omega) u(q - Q, \omega) = 0, \quad q \notin \{Q\} \quad (2.42)$$

$$\sum_Q F_Q(K, \omega) u(K - Q, \omega) = -iK \sigma_K(\omega), \quad q = K \in \{Q\} \quad (2.43)$$

A menos de la restricción $q \notin \{Q\}$, la expresión (2.42) no es más que la transformada de Fourier de la ecuación de onda homogénea correspondiente a la ecuación no homogénea de la que partimos (ec. (2.35)). La contribución de la solución homogénea a la solución total está determinada por las condiciones iniciales. En el instante anterior a la incidencia del pulso de bombeo, la red cristalina vibra según una población térmica de fonones. Para los fonones cuyos vectores de onda cumplen la condición $q \notin \{Q\}$, vemos de (2.42) que el pulso de bombeo no afecta su población. Dado que los fonones térmicos no guardan coherencia entre sí, la modificación neta que inducen sobre la reflectividad de la muestra es nula, resultando en una población “invisible” al pulso de sondeo. Por lo tanto, la solución homogénea es irrelevante a nuestro problema. Nos quedaremos entonces únicamente con la solución particular. Ésta debe satisfacer la expresión (2.43), la cual consiste en un sistema

de ecuaciones que vincula los coeficientes de Fourier del desplazamiento correspondientes únicamente a vectores de la red recíproca. De (2.43) se desprende entonces la regla de selección para la generación de fonones acústicos en sistemas periódicos: sólo los fonones cuyo vector de onda pertenezca a la red recíproca podrán ser generados por el pulso de bombeo. En el esquema de zona reducida, esta regla se reduce a la selección de fonones de vector de onda $q = 0$. La Fig. 2.13 muestra en la relación de dispersión de una superred infinita los modos susceptibles de ser generados (indicados con círculos azules).

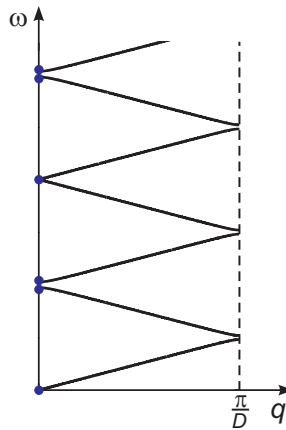


Figura 2.13: Relación de dispersión de una superred infinita. Los círculos azules indican los modos susceptibles de ser generados ópticamente en un experimento de bombeo-sondeo.

2.3.1.c. Cálculo de la función de generación

En el apartado anterior identificamos los modos fonónicos que pueden ser generados mediante una tensión fuente en una superred. Ahora, por un lado, generalizaremos el tratamiento a una nanoestructura arbitraria e incluiremos la absorción de la luz en la muestra, y por el otro, nos propondremos obtener el detalle de la amplitud con la que cada modo normal es generado, cantidad que denominaremos *función de generación* y denotaremos $G(\omega)$. A su vez, a diferencia del desarrollo anterior, será necesario considerar la dependencia temporal de la tensión fuente. Analizaremos dos casos: la dependencia de tipo delta de Dirac y la dependencia de tipo función escalón.

Para llegar a la amplitud con la que se excita cada modo normal, en principio es necesario calcular los modos normales de una nanoestructura arbitraria. El detalle de dicho cálculo se describe en la sección 2.4.1. Cabe mencionar que se fijan condiciones de contorno de tensión nula en las superficies de la muestra. Una vez conocidos los modos normales, nos proponemos resolver la ecuación de onda no homogénea (2.35). Para ello nos serviremos del formalismo de la función de Green para ecuaciones diferenciales de segundo orden en la variable temporal. El formalismo requiere llevar la ecuación diferencial a la forma

$$\left[-\frac{\partial^2}{\partial t^2} - L(z) \right] u(z, t) = \psi(z, t), \quad (2.44)$$

donde $L(z)$ es un operador hermítico cuyos autovalores λ_n y autovectores $u_n(z)$ son conocidos, y las funciones $u(z, t)$ y $\psi(z, t)$ están definidas dentro de un cierto intervalo de la recta real $z_1 \leq z \leq z_2$ en cuyo límite satisfacen las mismas condiciones de contorno. Las autofunciones $u_n(z)$ cumplen la condición de ortonormalidad:

$$\int \varphi(z) u_n(z) u_m(z) dz = \delta_{nm}, \quad (2.45)$$

siendo $\varphi(z)$ una función determinada por el operador $L(z)$ y las condiciones de contorno. $u_n(z)$ es el modo normal de frecuencia ω_n , tal que $\omega_n^2 = \lambda_n$. Para llevar (2.35) a la forma (2.44) basta con hacer

$$L(z) = -\frac{1}{\rho(z)} \frac{\partial}{\partial z} \left[C(z) \frac{\partial}{\partial z} \right], \quad (2.46)$$

$$\psi(z, t) = \frac{1}{\rho(z)} \frac{\partial \sigma_p}{\partial z}(z, t), \quad (2.47)$$

La función de Green $g(z, z', t - t')$ satisface

$$\left[-\frac{\partial^2}{\partial t^2} - L(z) \right] g(z, z', t - t') = \delta(z - z') \delta(t - t'). \quad (2.48)$$

El cálculo de la función de Green se realiza en el espacio de frecuencias a través de su transformada de Fourier temporal $g(z, z', \omega)$ [97]. Al regresar al espacio temporal, la no analiticidad de $g(z, z', \omega)$ para ω coincidente con las frecuencias de los modos normales, lleva a definir la función de Green retardada

$$g^R(z, z', t) = -\Theta(t) \sum_n \frac{u_n(z) u_n^*(z')}{\sqrt{\lambda_n}} \sin(\sqrt{\lambda_n} t), \quad (2.49)$$

donde $\Theta(t)$ es la función de Heaviside. A partir de esta función de Green puede hallarse la solución a la ecuación diferencial no homogénea (2.44) [97]:

$$u(z, t) = - \int_{z_1}^{z_2} dz' \int_{-\infty}^{\infty} dt' \varphi(z') g^R(z, z', t - t') \psi(z', t'). \quad (2.50)$$

Reemplazando (2.49) en (2.50) se obtiene

$$u(z, t) = u^{(0)}(z, t) - \sum_n \frac{u_n(z)}{\sqrt{\lambda_n}} \int_{z_1}^{z_2} dz' \varphi(z') u^*(z') \int_{-\infty}^t dt' \sin \left[\sqrt{\lambda_n} (t - t') \right] \psi(z', t'), \quad (2.51)$$

donde $u^{(0)}(z, t)$ es la solución homogénea. Esta es la solución general para cualquier ecuación diferencial no homogénea del tipo (2.44).

Sustituyendo (2.47) en (2.51) y teniendo en cuenta que $\varphi(z) = \rho(z)$ (ver sección 2.4.1) obtenemos la solución a nuestra ecuación:

$$u(z, t) = - \sum_n \frac{u_n(z)}{\omega_n} \int_{-\infty}^t dt' \sin [\omega_n (t - t')] \int_0^L dz' u_n(z') \frac{\partial \sigma_p}{\partial z}(z', t'), \quad (2.52)$$

donde hemos asumido que la nanoestructura se extiende de 0 a L y hemos descartado la solución homogénea por las razones esgrimidas en el apartado anterior. Hemos a su vez obviado la conjugación compleja de los modos normales ya que los mismos son cantidades reales. Integrando por partes la integral espacial se tiene³

$$u(z, t) = \sum_n \frac{u_n(z)}{\omega_n} \int_{-\infty}^t dt' \sin [\omega_n (t - t')] \times \\ \times \left[-u_n(z') \sigma_p(z', t') \Big|_0^L + \int_0^L dz' \frac{du_n(z')}{dz} \sigma_p(z', t') \right]. \quad (2.53)$$

Para seguir avanzando es necesario especificar la dependencia temporal de $\sigma_p(z, t)$. De la ec. (2.53) se ve que dada una tensión arbitraria, será necesario efectuar aproximaciones de modo de llevar la dependencia temporal a funciones conocidas para que la integral sea resoluble. Hemos visto en la sección 2.3.1.a que existen principalmente dos dependencias temporales relevantes: dependencia de tipo delta de Dirac $\delta(t)$, correspondiente a los mecanismos impulsivos, y dependencia de tipo función escalón $\Theta(t)$, relacionada con los mecanismos displacivos. Analizaremos los dos casos.

i. Delta de Dirac

Para una tensión de la forma $\sigma_p(z, t) = \sigma_p(z) \delta(t)$ la ec. (2.53) queda

$$u(z, t) = \sum_n \frac{u_n(z)}{\omega_n} \sin (\omega_n t) \left[-u_n(z') \sigma_p(z') \Big|_0^L + \int_0^L dz' \frac{du_n(z')}{dz} \sigma_p(z') \right]. \quad (2.54)$$

³En la expresión (2.53) no puede tomarse $\sigma_p = 0$ en los extremos de la muestra pues la condición de tensión nula se satisface para tensión total, es decir, para $\sigma_p + C \partial u / \partial z$.

Vemos aquí la dependencia senoidal característica de los mecanismos impulsivos.

ii. Función escalón

Si la tensión se supone de la forma $\sigma_p(z, t) = \sigma_p(z)\Theta(t)$ la ec. (2.53) resulta

$$u(z, t) = \sum_n \frac{u_n(z)}{\omega_n^2} [1 - \cos(\omega_n t)] \left[-u_n(z')\sigma_p(z') \Big|_0^L + \int_0^L dz' \frac{du_n(z')}{dz} \sigma_p(z') \right] \quad (2.55)$$

Se observa en este caso una evolución temporal de tipo cosenoidal, como corresponde a los mecanismos displacivos.

Las diferencias del mecanismo displacivo respecto del impulsivo son: un factor ω_n^{-1} adicional, un desfase de $\pi/2$ y un término igual a la unidad del que se resta el coseno. Este término desplaza el centro de la oscilación, lo cual responde al argumento esgrimido en la sección 2.3.1.a respecto del establecimiento, luego de la incidencia del pulso de bombeo, de una nueva posición de equilibrio transitoria (en torno de la cual el sistema oscila) en el mecanismo displacivo.

Independiente de si la generación ocurre mediante un mecanismo impulsivo, uno displacivo o una combinación de ambos, según mencionamos en la sección 2.3.1.a, la dependencia espacial de la tensión inducida por el bombeo puede asumirse proporcional a la intensidad del mismo en cada punto de la muestra, es decir,

$$\sigma_p = K(z) |E(z)|^2, \quad (2.56)$$

siendo $K(z)$ lo que llamaremos la *constante de generación*, que supondremos constante en cada capa m de la nanoestructura: $K(z) = K_m$ para $z_m \leq z \leq z_m + d_m$, siendo z_m y d_m el inicio y el espesor de la capa.

El campo de desplazamientos generado es entonces

$$u(z, t) = \sum_n G(\omega_n) u_n(z) f(\omega_n, t), \quad (2.57)$$

donde

$$f(\omega, t) = \begin{cases} \sin(\omega t) & \text{generación impulsiva} \\ 1 - \cos(\omega t) & \text{generación displaciva} \end{cases} \quad (2.58)$$

y se define $G(\omega)$ como

$$G(\omega) = \frac{1}{\omega^\alpha} \left[-u_\omega(z) K(z) |E(z)|^2 \Big|_0^L + \int_0^L dz \frac{du_\omega(z)}{dz} K(z) |E(z)|^2 \right], \quad (2.59)$$

con $\alpha = 1$ para los mecanismos impulsivos y $\alpha = 2$ para los displacivos (hemos denotado cada modo normal a través de su frecuencia en lugar de su índice). La cantidad $G(\omega)$ es lo que llamaremos *función de generación*. Indica la amplitud con la que cada modo normal es excitado por el pulso de bombeo.

Queremos ahora deducir a partir de la función de generación la regla de selección que hallamos anteriormente. Para situarnos en las mismas condiciones que las de la sección 2.3.1.b, debemos considerar que la nanoestructura es una superred infinita y que la absorción de la luz en la muestra es despreciable. A su vez, dado que la longitud de onda de la luz en la muestra (~ 250 nm) es mucho mayor que la escala espacial de la modulación óptica (~ 10 nm), la superred puede asumirse como un medio ópticamente homogéneo que presenta un índice de refracción efectivo. Se tiene entonces $E(z) = Ee^{ikz}$, donde k es el vector de onda de la luz en el medio efectivo. Como la superred es infinita y periódica, el campo de desplazamientos es el producto de una función periódica y un factor de fase. Por lo tanto, su derivada espacial (la deformación) que entra en el segundo término de la ecuación (2.59) también lo será. La denotaremos $du_\omega(z)/dz = \eta_\omega(z)e^{iqz}$, donde $q = \omega/v$ es el vector de onda del modo vibracional (v es la velocidad efectiva de los fonones acústicos en la superred) y η_ω satisface $\eta_\omega(z+D) = \eta_\omega(z)$. Analicemos el segundo término de (2.59). Bajo las consideraciones efectuadas, el mismo resulta proporcional a

$$|E|^2 \int_{-\infty}^{\infty} dz e^{iqz} \eta_\omega(z) K(z), \quad (2.60)$$

donde hemos asumido que no existe absorción en la muestra, de modo que $|E(z)|^2 = |E|^2$. Dado que la superred es infinita y periódica se tiene $K(z) = \sum_{\mathbf{Q}} K_{\mathbf{Q}} e^{-i\mathbf{Q}z}$ y $\eta_\omega(z) = \sum_{\mathbf{Q}} \eta_{\omega, \mathbf{Q}} e^{-i\mathbf{Q}z}$, donde $\{\mathbf{Q}\}$ son los vectores de la red recíproca. La expresión (2.60) queda entonces

$$|E|^2 \sum_{\mathbf{Q}\mathbf{Q}'} K_{\mathbf{Q}-\mathbf{Q}'} \eta_{\omega, \mathbf{Q}'} \int_{-\infty}^{\infty} dz e^{i(q-\mathbf{Q})z}, \quad (2.61)$$

$$|E|^2 \sum_{\mathbf{Q}\mathbf{Q}'} K_{\mathbf{Q}-\mathbf{Q}'} \eta_{\omega, \mathbf{Q}'} \delta(q - \mathbf{Q}). \quad (2.62)$$

Vemos de (2.62) que para que el segundo término de (2.59) resulte no nulo debe satisfacerse $q \in \{\mathbf{Q}\}$. En el esquema de zona reducida esto equivale a $q = 0$. El primer término de (2.59) no modifica esta condición puesto que para $q \in \{\mathbf{Q}\}$ el segundo término diverge y el primero resulta despreciable. Hemos reobtenido entonces la regla de selección hallada en 2.3.1.b.

En el caso de una superred finita, las deltas de Dirac pasan a ser funciones seno cardinal de la variable q (seno cardinal: $\sin(q)/q$) y la regla de selección se relaja. Aclaremos que cuando se eliminan las simplificaciones efectuadas sobre los campos eléctrico y acústico y

se consideran los campos exactos, las deltas de Dirac, en lugar de pasar a ser funciones seno cardinal, devienen en funciones similares a estas últimas aunque no idénticas. Nos referiremos a estas funciones como *de tipo* seno cardinal, es decir que presentan picos ensanchados rodeados de oscilaciones. El ensanchamiento de dichos picos y la aparición de oscilaciones satélite se conocen como efectos de tamaño finito. El ancho de los picos de $G(\omega)$ se incrementa al disminuir el número N de períodos de la superred, y la frecuencia de las oscilaciones satélite aumenta con N . Un análisis de estos fenómenos puede encontrarse en las Refs. [98–100]. La absorción de la luz en la muestra también contribuye a la relajación de la regla de selección, pues en las integrales de (2.61) se debe incluir el factor $e^{\pm \Im m(k)z}$, y la integración ya no resulta en deltas. La función de generación resultante de relajar la regla de selección continúa presentando máximos en los modos de $q = 0$. La forma funcional de $G(\omega)$ cerca del entorno de dichos modos está gobernada por la composición de la función de tipo seno cardinal y la relación de dispersión (es decir, $G(\omega) \sim \sin(q(\omega))/q(\omega)$). Fuera del entorno de los modos de $q = 0$, el primer término de $G(\omega)$ resulta comparable al segundo, por lo que no debe ser despreciado en el cálculo de $G(\omega)$. No obstante, la forma global de $G(\omega)$ queda dominada por los picos de $q = 0$.

2.3.1.d. Algunos detalles de la función de generación

En la Fig. 2.14 se muestra el módulo de la función de generación para una superred de GaAs/AlAs de 20 períodos, junto con la relación de dispersión de una superred infinita de iguales características. Para el pulso de bombeo se utilizó una dependencia temporal de tipo delta de Dirac (generación impulsiva). Se observan picos en los modos de centro de zona rodeados por oscilaciones, en concordancia con lo adelantado en el apartado anterior. Lo que resulta más llamativo de la Fig. 2.14 es la ausencia de picos a las energías correspondientes a algunos modos de centro de zona. Más específicamente, se encuentran ausentes el modo que limita superiormente la brecha prohibida $\gamma = 2$ y el modo que limita inferiormente la brecha $\gamma = 6$ (en la brecha $\gamma = 4$ no se distinguiría el modo superior del inferior pues tiene ancho nulo). Esto se debe a la simetría de dichos modos. Ocurre que en el caso de una superred infinita, los modos de centro (y borde) de zona presentan simetrías bien definidas. De los dos modos que limitan una dada brecha prohibida, uno de ellos muestra un campo de desplazamientos con simetría par respecto de las reflexiones en los planos bisectores de las capas [34] (ver Fig. 2.15). El otro presenta simetría impar. El primero transforma como la representación irreducible B_2 del grupo tetragonal de la superred, mientras que el segundo transforma como la representación irreducible A_1 . Al ingresar la deformación asociada a estos modos en la integral de la expresión 2.59 para el cálculo de $G(\omega)$, el modo B_2 da un resultado nulo puesto que $K(z)$ es una función par. La única contribución para este modo proviene del primer término de (2.59). En el caso de una superred finita, estas propiedades de simetría se relajan. Sin embargo, para un número razonable de períodos ($N \gtrsim 8$), los modos que limitan las brechas prohibidas

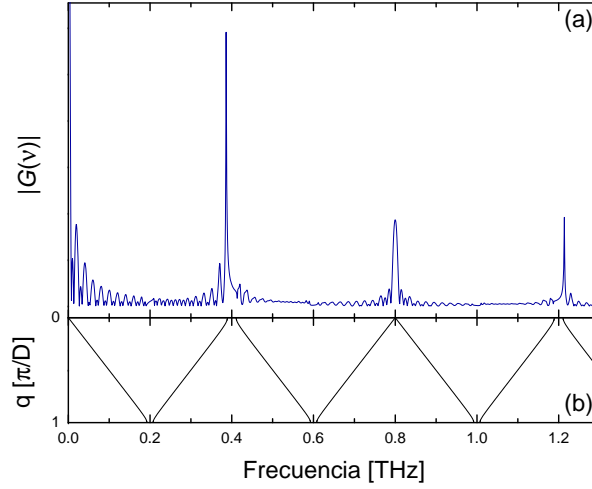


Figura 2.14: (a) Módulo de la función de generación calculada para una superred de GaAs/AlAs de 20 periodos. Los espesores de las capas están fijados de forma tal de maximizar la primera banda de rechazo de centro de zona ($d_{\text{GaAs}} = \frac{3}{4}\lambda_{\text{GaAs}}$, $d_{\text{AlAs}} = \frac{1}{4}\lambda_{\text{AlAs}}$), elegida en 0,4 THz. Se empleó una dependencia temporal de tipo delta de Dirac para el pulso de bombeo. (b) Relación de dispersión de una superred infinita con capas idénticas a las de la superred del panel (a).

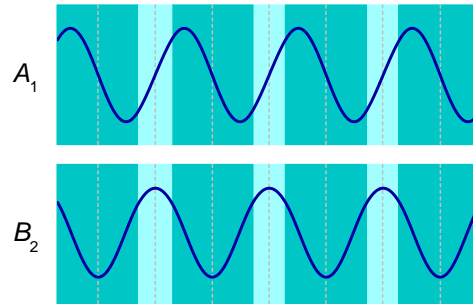


Figura 2.15: Propiedades de simetría de los campos de desplazamiento correspondientes a los modos que limitan una brecha prohibida. Uno de ellos transforma como la representación irreducible A_1 del grupo tetragonal de la superred. El otro transforma como la representación irreducible B_2 . El primero presenta simetría impar ante la reflexión en cualquiera de los planos bisectores de las mismas. El segundo muestra simetría par.

siguen mostrando perfiles similares a los de la Fig. 2.15. Por tanto, los modos con simetría B_2 no presentan picos en la función de generación.

Otro detalle que puede observarse en la función de generación (Fig. 2.14) es la asimetría de los picos asociados a las brechas de energías prohibidas $\gamma = 2$ y $\gamma = 6$. La asimetría surge al componer la función de tipo seno cardinal con la relación de dispersión debido a la ausencia de modos en las brechas de energías prohibidas. En el caso del pico asociado a la brecha $\gamma = 4$, su forma es simétrica puesto que en la brecha mencionada (de ancho nulo) la relación de dispersión es lineal (para la elección que hemos hecho de los espesores de las capas de GaAs y AlAs).

2.3.2. Detección

2.3.2.a. Mecanismo de detección de fonones coherentes por pulsos ópticos ultra-breves

La detección óptica de fonones se efectúa a través del mecanismo fotoelástico. El mismo consiste en la modulación de los estados electrónicos por la presencia de la vibración en el medio. Al modificarse los estados electrónicos se ve alterado también el tensor dieléctrico $\tilde{\epsilon}$ del medio. La modificación de este último se expresa en función de la deformación $\eta_{ij}(z, t) = (1/2)(\partial u_i(z, t)/\partial x_j + \partial u_j(z, t)/\partial x_i)$ según [55]

$$\Delta \tilde{\epsilon}_{ij}(z, t) = \sum_{kl} P_{ijkl} \eta_{kl}(z, t), \quad (2.63)$$

donde P_{ijkl} es el tensor fotoelástico. En la sección 2.3.1.a estimamos que $\eta \sim 6 \cdot 10^{-7}$. Por otra parte, la constante fotoelástica para GaAs es del orden de 200 [101, 102]. Por lo tanto, $\Delta \epsilon \sim 10^{-4}$. A partir de la relación $R = [(1 - \sqrt{\epsilon})/(1 + \sqrt{\epsilon})]^2$, puede estimarse entonces que

$$\frac{\Delta R}{R} \sim 5 \cdot 10^{-6}. \quad (2.64)$$

Si bien (2.63) refleja las modificaciones que las vibraciones inducirán en la reflectividad de la muestra, existen otros fenómenos capaces de alterar la reflectividad. En la Fig. 2.12 observamos que la señal típica de un experimento de bombeo-sondeo contiene contribuciones provenientes de los fenómenos térmicos y electrónicos excitados por el pulso de bombeo (incremento brusco de la señal a $t = 0$ y descenso lento posterior). Éstos modifican el tensor dieléctrico mediante las expresiones [55]

$$\Delta \tilde{\epsilon}_{ij}(z, t) = s(z) \Delta T(z, t) + \gamma(z) \Delta n(z, t), \quad (2.65)$$

siendo $T(z, t)$ la temperatura en la posición z de la muestra, $n(z, t)$ la densidad electrónica, y $s(z)$ y $\gamma(z)$ constantes que dependen del material. Dado que únicamente nos interesaremos a la contribución vibracional no tendremos en cuenta los términos (2.65).

Gracias a que la radiación de sondeo es pulsada, y a que la duración de los pulsos es mucho menor que el período de las vibraciones, será posible seguir la evolución temporal del tensor dieléctrico a través de la medición de la intensidad del haz de sondeo reflejado (o transmitido) en la muestra.

2.3.2.b. Cálculo de la función de detección

La presencia de vibraciones en la muestra modifica su índice de refracción. Esto ocurre a través del mecanismo fotoelástico. El coeficiente de reflectividad de la muestra varía pues con la misma distribución frecuencial que las vibraciones. Nos proponemos en esta sección

calcular la variación que introducen las vibraciones respecto del coeficiente de reflexión de la muestra sin perturbar.

La cantidad a calcular es el campo eléctrico reflejado en la muestra. Para ello, debemos resolver la ecuación de onda derivada de las ecuaciones de Maxwell

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \nabla [\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)] = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2}(\mathbf{r}, t). \quad (2.66)$$

La solución de (2.66) para una multicapa fue propuesta por Perrin en la Ref. [10]. Seguiremos aquí el desarrollo presentado por Matsuda y Wright en la Ref. [55]. En varios trabajos anteriores pueden encontrarse resoluciones simplificadas que arriban a resultados compatibles con los del citado trabajo [1, 10, 103, 104]. Describiremos a continuación la línea general del desarrollo de Matsuda y Wright, aunque omitiremos algunos detalles que podrán consultarse en el artículo original.

Asumiremos que cada capa es ópticamente isotrópica. Bajo la aproximación lineal y la aproximación de respuesta instantánea (independencia del tensor dieléctrico $\tilde{\epsilon}$ respecto de la frecuencia óptica), el desplazamiento eléctrico $\mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega)$ está dado por $\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \tilde{\epsilon}(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$. A su vez, la escala temporal de variación de $\tilde{\epsilon}$ (período de las vibraciones) es muy superior al período de la oscilación óptica. Por tanto, $\tilde{\epsilon}$ puede considerarse como una cantidad cuasiestática, y despreciar entonces su derivada temporal en (2.66). Consideraremos una onda monocromática de frecuencia angular ω . Podemos omitir entonces la dependencia temporal $e^{i\omega t}$ que aparece en ambos miembros de la ec. (2.66). Dicha ecuación queda

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \nabla [\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})] + k^2 \tilde{\epsilon}(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0, \quad (2.67)$$

donde $k = \sqrt{\mu_0 \epsilon_0} \omega$ es el vector de onda de la luz en el vacío. Como el campo vibracional sólo depende de la coordenada z perpendicular a las capas de la superred, el tensor dieléctrico presentará también únicamente dependencia espacial en dicha coordenada: $\tilde{\epsilon}(\mathbf{r}) = \tilde{\epsilon}(z)$. A su vez, dado que la longitud de penetración del campo eléctrico ($\sim 1 \mu\text{m}$) es mucho menor que el diámetro del spot sobre la muestra ($\sim 50 \mu\text{m}$), podemos asumir que $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(z)$. La ec. (2.67) se reduce entonces a

$$\left\{ \begin{bmatrix} \partial^2 / \partial z^2 & 0 & 0 \\ 0 & \partial^2 / \partial z^2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} + k^2 \tilde{\epsilon}(z) \right\} \mathbf{E}(z) = 0. \quad (2.68)$$

Puede probarse que el tensor dieléctrico presenta componentes nulas fuera de la diagonal y que $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon$ [55]. La ec. (2.68) se desdobra por tanto en dos ecuaciones independientes y equivalentes, una para $E_x(z)$ y la otra para $E_y(z)$, además de $E_z(z) = 0$. Consideraremos luz linealmente polarizada que incide en dirección normal a las capas de la nanoestructura. La ecuación a resolver es entonces

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2 \epsilon(z) \right] E(z) = 0, \quad (2.69)$$

donde $E(z)$ es la componente del campo eléctrico en la dirección de polarización de la luz. Asumiremos que la luz arriba en el sentido positivo de la coordenada z , y fijaremos $z = 0$ en el comienzo de la nanoestructura.

Descompondremos $\epsilon(z)$ en la suma de una contribución proveniente de la nanoestructura en equilibrio $\epsilon^{(0)}(z)$ y otra $\Delta\epsilon(z)$ inducida por las vibraciones. $\epsilon^{(0)}(z)$ es una función constante dentro de cada capa:

$$\epsilon^{(0)}(z) = \epsilon_m \quad , \quad z_m < z < z_{m+1}, \quad (2.70)$$

siendo z_m la posición de inicio de la capa m . $\Delta\epsilon(z)$ es la superposición de dos contribuciones, una originada por la modulación que las vibraciones y los fenómenos térmicos y electrónicos inducen en las propiedades ópticas de las capas a través de las ecs. (2.63) y (2.65), $\Delta\epsilon_{\text{op}}(z)$, y la otra proveniente del desplazamiento de las interfaces entre capas, $\Delta\epsilon_{\text{if}}(z)$. Esta última se escribe

$$\Delta\epsilon_{\text{if}}(z) = \begin{cases} \epsilon_{m-1} - \epsilon_m & u(z_m) > 0, \quad z_m < z < z_m + u(z_m) \\ \epsilon_m - \epsilon_{m-1} & u(z_m) < 0, \quad z_m + u(z_m) < z < z_m \\ 0 & \text{en otro caso} \end{cases} . \quad (2.71)$$

El índice m varía de 0 a $N + 1$, siendo N el número total de capas. La capa $m = 0$ es el medio desde el cual incide la luz (generalmente aire), y la capa $m = N + 1$ es el medio que se encuentra más allá de la nanoestructura (en general se trata del sustrato).

Para resolver la ec. (2.69) emplearemos el método de la función de Green para sistemas perturbados. Esta elección encuentra su justificación en el hecho que $\Delta\epsilon \ll \epsilon^{(0)}$. El método de la función de Green supone conocida la solución a la ecuación para el sistema sin perturbar

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2 \epsilon^{(0)}(z) \right] E_0(z) = 0, \quad (2.72)$$

Como solución de (2.72) proponemos una función de tipo

$$a_m e^{ik_m \xi} + b_m e^{-ik_m \xi} \quad , \quad \xi = \begin{cases} z - z_m & m \geq 0 \\ z & m = 0 \end{cases} , \quad (2.73)$$

en cada capa, con $k_m = \sqrt{\epsilon_m} k$. Los coeficientes a_m y b_m pueden hallarse mediante el método de matrices de transferencia, que asegura la continuidad de los campos eléctrico y magnético en las interfaces entre capas (ver por ejemplo [105, 106]). Para dicho cálculo se

fija las condiciones de contorno $a_0 = 1$ (incidencia de la luz desde el medio 0) y $b_{N+1} = 0$ (substrato infinito).

La función de Green $g(z, z')$ satisface

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2 \epsilon^{(0)}(z) \right] g(z, z') = -\delta(z - z'), \quad (2.74)$$

y cumple las mismas condiciones de borde que $E_0(z)$. $g(z, z')$ puede hallarse integrando (2.74) [97]. Se obtiene:

$$g(z, z') = \frac{i}{2k_0 a_0} e^{-ik_0 z} E_0(z'), \quad z' > z \text{ y } z < 0. \quad (2.75)$$

Vale aclarar que únicamente nos interesa el semiespacio $z < 0$ pues buscamos el campo reflejado hacia el medio 0.

A partir de la función de Green puede escribirse una ecuación integral para la solución de (2.69):

$$E(z) = E_0(z) + \int_{-\infty}^{\infty} dz' k^2 \Delta\epsilon(z') E(z') g(z, z'). \quad (2.76)$$

Iterando (2.76) se obtiene

$$\begin{aligned} E(z) = & E_0(z) + \int_{-\infty}^{\infty} dz' k^2 \Delta\epsilon(z') E_0(z') g(z, z') + \\ & + \int dz' dz'' k^2 \Delta\epsilon(z'') \Delta\epsilon(z') E_0(z') g(z, z') g(z', z'') + \dots, \end{aligned} \quad (2.77)$$

que da la solución de (2.69) expresada como una serie dependiente de la solución del problema sin perturbar y la función de Green. Retendremos hasta el primer orden en $\Delta\epsilon$. El campo eléctrico en el medio $m = 0$ es entonces

$$E(z) \simeq E_0(z) + \int_z^{\infty} dz' k^2 [\Delta\epsilon_{\text{op}}(z') + \Delta\epsilon_{\text{if}}(z')] E_0(z') g(z, z') \quad (2.78)$$

$$\begin{aligned} \simeq & E_0(z) + \frac{ik^2}{2k_0 a_0} e^{-ik_0 z} \left\{ \int_0^L dz' \Delta\epsilon_{\text{op}}(z') [E_0(z')]^2 + \right. \\ & \left. + \sum_{m=0}^N (\epsilon_{m-1} - \epsilon_m) u(z_m) (a_m + b_m)^2 \right\} \end{aligned} \quad (2.79)$$

La variación Δr en el coeficiente de reflectividad se obtiene de evaluar la expresión (2.79) en $z = 0$:

$$\Delta r = \frac{ik^2}{2k_0a_0^2} \left\{ \int_0^L dz \Delta\epsilon_{\text{op}}(z) [E_0(z)]^2 + \sum_{\mu=0}^N (\epsilon_{m-1} - \epsilon_m) u(z_m) (a_m + b_m)^2 \right\}. \quad (2.80)$$

Asumiendo valores de la constante fotolástica para GaAs del orden de 200 [101, 102] e índices de refracción típicos de los semiconductores ($n \sim 3,5$), el primer término de (2.80) resulta aproximadamente 20 veces mayor que el segundo. Retendremos por tanto únicamente el primero. Δr se reduce entonces a

$$\Delta r = \frac{ik^2}{2k_0a_0^2} \int_0^L dz \Delta\epsilon_{\text{op}}(z) [E_0(z)]^2. \quad (2.81)$$

La ec. (2.81) expresa la variación en el coeficiente de reflectividad de la nanoestructura inducida por una variación $\Delta\epsilon_{\text{op}}(z)$ de la función dieléctrica, originada por las vibraciones mediante el mecanismo fotoelástico. $\Delta\epsilon_{\text{op}}(z)$ se escribe

$$\Delta\epsilon_{\text{op}}(z) = P(z) \frac{du(z)}{dz}, \quad P(z) = P_{12}^{(m)} \quad z_m < z < z_{m+1} \quad (2.82)$$

donde $P_{12}^{(m)}$ es la componente relevante del tensor fotoelástico de la capa m . du/dz es el campo de deformaciones presente en la muestra. Este campo ha sido generado por el pulso de bombeo. Conocemos su forma funcional, calculada en la sección 2.3.1.c, que se expresa en la ec. (2.57). Reemplazando entonces (2.82) y (2.57) en (2.81) se tiene

$$\Delta r(t) = \frac{ik^2}{2k_0a_0^2} \sum_n G(\omega_n) \sin(\omega_n t) \int_0^L dz \frac{du_n(z)}{dz} P(z) [E_0(z)]^2, \quad (2.83)$$

donde hemos asumido un mecanismo impulsivo de generación (de considerarse un mecanismo displacivo basta con reemplazar $\sin(\omega_n t)$ por $[1 - \cos(\omega_n t)]/\omega_n$) y hemos explicitado la dependencia temporal de Δr proveniente de la evolución temporal de la función dieléctrica. Reformulando la expresión (2.83) de la siguiente manera

$$\Delta r(t) = \sum_n G(\omega_n) D(\omega_n) \sin(\omega_n t), \quad (2.84)$$

$$D(\omega) = \frac{ik^2}{2k_0a_0^2} \int_0^L dz \frac{du_\omega(z)}{dz} P(z) [E_0(z)]^2, \quad (2.85)$$

resulta natural la definición de la *función de detección* $D(\omega)$. Vemos entonces que $\Delta r(t)$ es la suma sobre los modos normales del producto de la función de generación y la función de detección multiplicado por la evolución temporal de cada modo.

Así como fue posible deducir la regla de selección que regula la generación en superredes, será posible extraer una regla de selección para la detección. Para ello, efectuaremos las mismas aproximaciones que en el caso de la generación, es decir, superred infinita, $E_0(z) = \tilde{E}_0 e^{ik_s z}$ y $du_\omega(z)/dz = \eta_\omega(z) e^{iqz}$, donde $\eta_\omega(z+D) = \eta_\omega(z)$ y $k_s = n_{\text{ef}} k$ siendo n_{ef} el índice de refracción efectivo de la superred para la longitud de onda del haz de sondeo. Reemplazando en (2.85) se tiene entonces para una superred infinita

$$D(\omega) \propto \sum_{QQ'} P_{Q-Q'} \eta_{\omega, Q'} \int_{-\infty}^{\infty} dz e^{i(q-Q+2k_s)z} \quad (2.86)$$

$$D(\omega) \propto \sum_{QQ'} P_{Q-Q'} \eta_{\omega, Q'} \delta(q - Q + 2k_s). \quad (2.87)$$

Al pasar de (2.86) a (2.87) hemos supuesto que no existe absorción óptica en la muestra ($k_s \in \mathbb{R}$). De (2.87) se deduce que para que $D(\omega)$ sea no nula debe satisfacerse $q = \pm 2k_s + Q$. Dado que las soluciones a la ecuación de onda acústica con vector de onda $+q$ y $-q$ corresponden a un mismo modo normal, es posible escribir $q = 2k_s + Q$. En el esquema de zona reducida esto equivale a $q = 2k_s$, es decir, sólo podrán ser detectados aquéllos modos acústicos cuyo vector de onda difiera del centro de zona en dos veces el vector de onda óptico del haz de sondeo. En otras palabras, la regla de selección refleja la conservación del vector de onda en el proceso de retrodispersión de la luz por fonones. La Fig. 2.16 muestra el resultado de la regla de selección plasmado en la relación de dispersión de una superred infinita, los modos detectados están indicados con círculos rojos. Al igual que en el caso de la generación, al considerar una superred finita y absorción óptica en la muestra, la regla de selección se relaja y las deltas de Dirac se transforman en funciones de tipo seno cardinal.

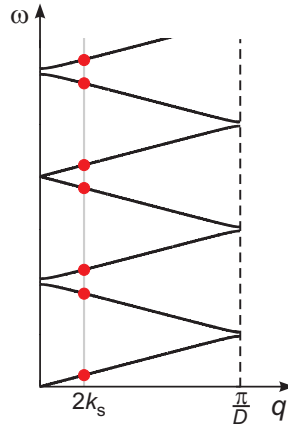


Figura 2.16: Relación de dispersión de una superred infinita. Los círculos rojos indican los modos de mayor sensibilidad de la función de detección.

2.3.2.c. Algunos detalles de la función de detección

El módulo de la función de detección para una superred de GaAs/AlAs de 20 períodos se muestra en la Fig. 2.17, junto con la relación de dispersión de una superred infinita de iguales características. El cálculo se efectuó para una longitud de onda óptica de 800 nm. En la relación de dispersión hemos indicado el vector de onda correspondiente a $2k_s$ ($n_{ef} = 3,5$). Observamos que los picos de la función de detección se ubican a energías que se corresponden con $2k_s$, lo cual verifica la regla de selección. En torno a los picos se distinguen oscilaciones semejantes a las de la función seno cardinal provenientes del tamaño finito de la nanoestructura. Las longitudes de onda experimentales se ubican en el rango del visible y del infrarrojo cercano. Corresponden entonces a valores de $2k_s$ cercanos al centro de zona (excepto para superredes de gran período para las cuales la zona de Brillouin es estrecha). Es por ello que los picos de $D(\omega)$ aparecen de a pares, ambos miembros de un par ubicándose a uno y otro lado de una dada brecha prohibida de centro de zona. Estos pares son llamados *dobletes*, y suele referirse a ellos como *primer doblete de centro de zona*, *segundo doblete de centro de zona*, etc. Además de los dobletes, existe otro modo de menor energía, cercano a la frecuencia cero. Este modo se conoce en el dominio de la espectroscopía Raman con el nombre de *modo Brillouin*. En un material masivo (ausencia de repliegamiento de bandas acústicas) este sería el único modo detectable. En efecto, en numerosos trabajos referidos a la generación y detección de fonones por acústica de picosegundos en materiales masivos o capas gruesas se ha reportado la detección del modo Brillouin (ver por ejemplo la Ref. [27]).

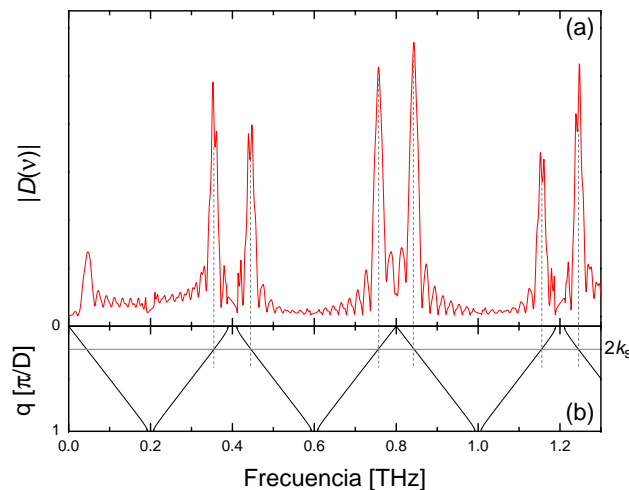


Figura 2.17: (a) Módulo de la función de detección calculada para una superred de GaAs/AlAs de 20 períodos y una longitud de onda óptica de 800 nm ($n_{ef} = 3,5$). Los espesores de las capas están fijados de forma tal de maximizar la primer banda de rechazo de centro de zona ($d_{GaAs} = \frac{3}{4}\lambda_{GaAs}$, $d_{AlAs} = \frac{1}{4}\lambda_{AlAs}$), elegida en 0,4 THz. (b) Relación de dispersión de una superred infinita con capas idénticas a las de la superred del panel (a). La línea horizontal indica el vector de onda correspondiente a $2k_s$ para una longitud de onda óptica de 800 nm y un índice de refracción efectivo de 3,5.

2.3.3. Comparación entre las funciones de generación y de detección

En primer lugar, vale notar la similitud entre las funciones de generación y de detección. Descartando la contribución a la generación de los extremos de la muestra (primer término de (2.59)) y la contribución de las interfaces a la detección (segundo término de (2.80)), ambas funciones son proporcionales a la integral del producto de tres factores: la deformación, una constante propia del mecanismo de generación o de detección en cuestión, y una función cuadrática del campo eléctrico. La principal diferencia reside en que la función cuadrática se trata del cuadrado del módulo del campo eléctrico en el caso de la generación y del cuadrado del campo eléctrico en el caso de la detección. Esto da origen a reglas de selección diferentes en sistemas periódicos, y consecuentemente, a diferentes distribuciones de peso espectral en las funciones de generación y de detección de superredes finitas.

Hemos visto que la generación es máxima para modos de $q = 0$, mientras que la detección es principalmente sensible a modos de $q = 2k_s$. Dado que Δr es el producto de ambas funciones (ver ec. (2.84)), esperaríamos entonces que la señal en un experimento de bombeo-sondeo fuese cercana a cero. Efectivamente, la intensidad experimental resulta pequeña (como hemos dicho, $\Delta R/R \sim 10^{-5} - 10^{-6}$), aunque no solamente debido al desacuerdo espectral entre la generación y la detección, sino también porque las constantes de transducción, es decir, la constante de generación y la constante fotoelástica, presentan valores bajos. No obstante, gracias a la amplificación y tratamiento de la señal (detección sincrónica) resulta posible obtener una señal experimental. El espectro de esta señal presenta en general tres picos en la región cercana a la primer brecha prohibida de centro de zona (también se han reportado fonones asociados a brechas superiores [37, 39]). Estos tres picos pueden identificarse con el modo de $q = 0$ y con el doblete de $q = 2k_s$. Es decir, tanto los modos de generación como los de detección se encuentran presentes en la señal. En la Fig. 2.18 se reproduce la figura del trabajo en el que se identificó claramente por primera vez los picos del espectro de la señal experimental con los modos de generación y de detección [37].

La observación de tres modos en lugar de señal nula se debe al tamaño finito de la muestra y a la absorción óptica. Esto resulta claro ya que ambos fenómenos contribuyen a la relajación de las reglas de selección. Por tanto, si bien existen ciertos modos que son más intensamente generados, las oscilaciones satélite y el ensanchamiento de los picos aseguran que la función de generación no sea estrictamente cero en las energías de los modos de detección. Análogamente, la función de detección, principalmente sensible a ciertos modos, no resulta nula en los modos de generación. El producto de ambas funciones da entonces tres picos, uno correspondiente a la generación y dos a la detección. Esto puede apreciarse en la Fig. 2.19. En la curva correspondiente a $|G(\nu)D(\nu)|$ ($\nu = \omega/(2\pi)$) se distingue claramente el modo de $q = 0$. También se observan picos en las regiones de $q = 2k_s$. La

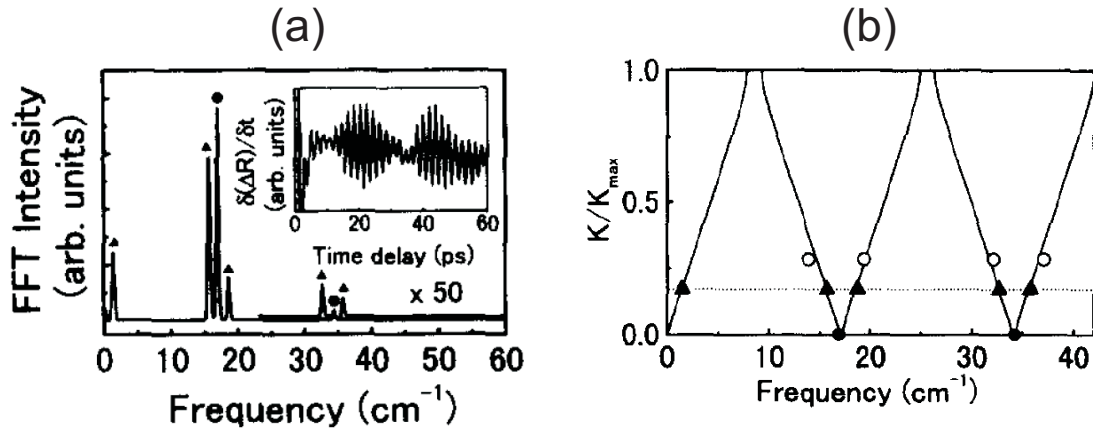


Figura 2.18: Reproducción del primer trabajo donde se estableció claramente la vinculación entre los modos observados en una señal de bombeo-sondeo y los modos de $q = 0$ y de $q = 2k_s$ [37]. (a) Transformada de Fourier de la señal temporal obtenida sobre una superred de 60 periodos de GaAs/AlAs con 18 monocapas atómicas en cada capa. (b) Relación de dispersión para una superred infinita equivalente. Los círculos llenos señalan las posiciones experimentales de los modos de $q = 0$ extraídos del panel (a). Los triángulos corresponden a los modos de $q = 2k_s$ (los círculos vacíos indican resultados de dispersión Raman).

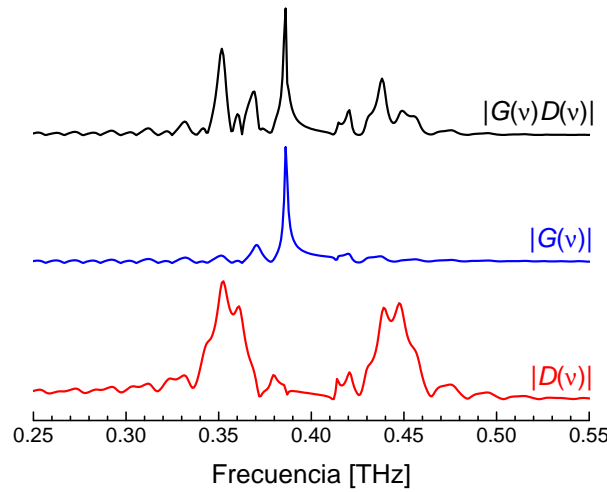


Figura 2.19: Comparación entre las funciones de generación, de detección y su producto, calculadas para la misma superred de las Figs. 2.14 y 2.17.

estructura de estos últimos resulta del producto de los máximos de $D(\nu)$ y las oscilaciones de $G(\nu)$. Esta estructura es apreciable experimentalmente sólo si la resolución espectral lo permite. En caso contrario, suelen distinguirse únicamente tres picos.

Una diferencia que salta a la vista entre $G(\nu)$ y $D(\nu)$ es el ancho de los picos. En la generación el modo de $q = 0$ resulta más angosto que los modos de $q = 2k_s$ de la detección. Esto ha sido analizado experimentalmente en la Ref. [41]. La diferencia de los anchos de línea tiene dos causas. Una es la curvatura de la relación de dispersión en torno al centro de zona, en otras palabras, la velocidad de grupo. La otra es la simetría de los modos cercanos al centro de zona.

Analicemos el primer fenómeno. Hemos dicho anteriormente que al incluir el tamaño finito de la muestra y la absorción de la luz, las deltas de Dirac que seleccionan los modos de generación y de detección se transforman en funciones de tipo seno cardinal ($\delta(q) \rightarrow \sin(q)/q$). Éstas son función del vector de onda q pues las deltas originalmente lo son (ver ecs. (2.62) y (2.87)). Para hallar $G(\nu)$ y $D(\nu)$ es necesario entonces componer las funciones de tipo seno cardinal con la relación de dispersión $q = q(\nu)$. El ancho espectral de los picos $\Delta\nu$ se obtiene entonces a partir de su ancho en la variable q , que en el caso de la función seno cardinal es $\Delta q \simeq 2\pi/(ND)$ (ND es el tamaño total de la superred), a través de la relación

$$\Delta\nu = \tilde{v} \frac{\Delta q}{2\pi} \simeq \frac{\tilde{v}}{ND}, \quad (2.88)$$

donde $\tilde{v} = \left. \frac{d\omega}{dq} \right|_{q_0}$ es la velocidad de grupo para el vector de onda medio q_0 del pico. En el caso de los modos de detección $\tilde{v} \simeq v$ (v es la velocidad efectiva de la superred, definida en (2.15)), puesto que se encuentran en la región recta de la relación de dispersión (ver Fig. 2.16). En cambio, en el caso del modo de generación, la curvatura de la relación de dispersión en torno al centro de zona (ver Fig. 2.13) implica $\tilde{v} < v$. Es por ello que a un mismo ancho Δq corresponden dos anchos espectrales diferentes para los modos de generación y de detección, siendo los primeros más angostos que los segundos. Esto se ilustra en la Fig. 2.20 que muestra la función de generación (panel (a)) y de detección (panel (b)) contrastadas con la relación de dispersión. Queda claro de la figura que el ancho Δq se transforma en un ancho espectral $\Delta\nu$ más estrecho en el caso de la generación que en el de la detección. No obstante, este hecho no basta para explicar la estrechez del modo de generación. Se observa en la figura que el ancho $\Delta\nu$ obtenido a partir de Δq y de la relación de dispersión excede el ancho del modo de generación, mientras que en el caso de la detección $\Delta\nu$ y el ancho a altura mitad del pico de $|D(\nu)|$ se encuentran en buen acuerdo.

La segunda causa de la estrechez del modo de generación es la simetría de los modos normales. Hemos dicho anteriormente que los modos de centro de zona de una superred infinita presentan una simetría definida, par o impar, respecto de la reflexión en los planos que bisecan las capas. En el caso de una superred finita esto deja de ser así. La estructura misma pierde dicha simetría, debido justamente a que el espacio deja de ser infinito. No obstante, resta la simetría de reflexión en el plano bisectriz de la superred. Esto es estrictamente cierto para una superred con un número semientero de períodos (número impar de capas) y sin substrato. De todas formas, en el caso que no se cumplan estas condiciones, la “simetría aproximada” se traduce en una simetría también aproximada de los modos normales de la estructura. Ocurre entonces que existen modos que poseen una simetría cuasi-definida, par o impar, respecto de la reflexión en el plano bisectriz de la superred. El modo para el cual $G(\nu)$ es máximo presenta simetría impar, es decir, la

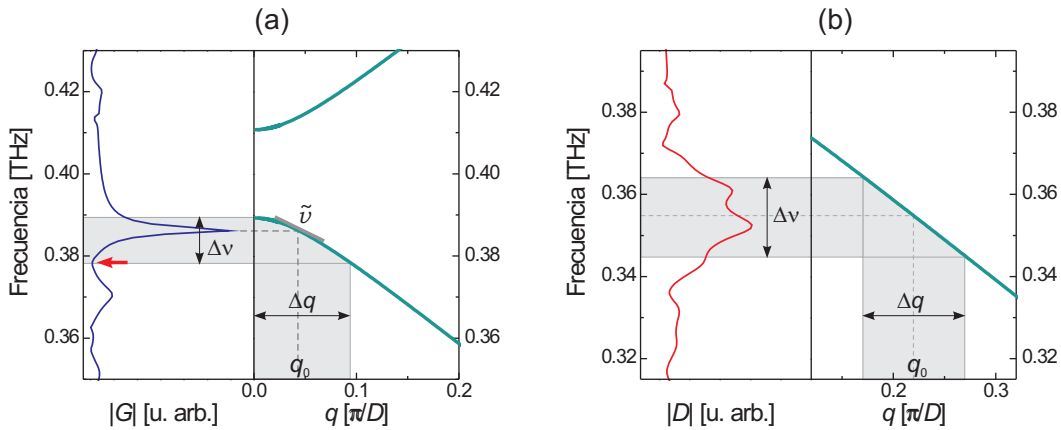


Figura 2.20: Deducción del ancho espectral $\Delta\nu$ del modo de generación en (a) y del de detección en (b), a partir del ancho Δq de la función seno cardinal para una superred de GaAs/AlAs de 20 períodos. En cada una de las figuras, el panel izquierdo muestra el módulo de la función de generación o de detección, y el panel derecho presenta la relación de dispersión. La relación entre $\Delta\nu$ y Δq queda establecida por la pendiente de la relación de dispersión para el vector de onda medio q_0 del modo en cuestión. La flecha roja en (a) indica el modo de simetría par más cercano al máximo de $|G(\nu)|$. La coincidencia de la flecha con el límite inferior de $\Delta\nu$ es mera casualidad.

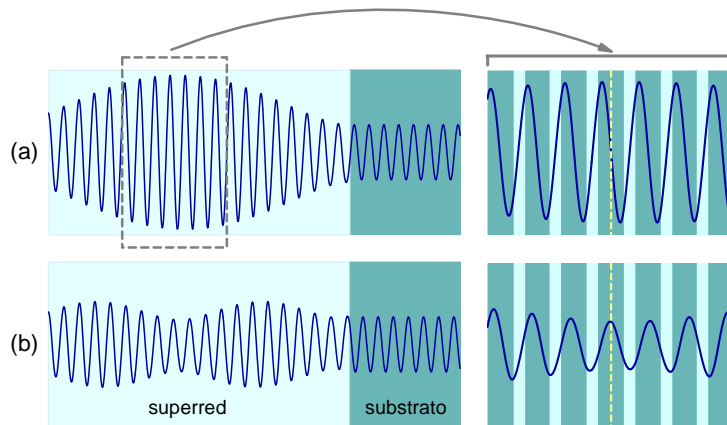


Figura 2.21: Distribución del campo de desplazamientos para: (a) la frecuencia donde ocurre el máximo de $G(\nu)$; (b) la frecuencia indicada con una flecha en la Fig. 2.20. El primer caso presenta simetría aproximada impar respecto de la reflexión en el plano bisectriz de la superred. El segundo caso muestra simetría aproximada par.

simetría permitida por la regla de selección (el campo de desplazamientos correspondiente a este modo se muestra en la Fig. 2.21(a)). A una energía un tanto menor existe un modo de simetría par (ver Fig. 2.21(b)), que anula entonces la función de generación. Este modo se indica con la flecha de la Fig. 2.20. La anulación de $G(\nu)$ en este punto reduce drásticamente el ancho del modo de generación.

COMENTARIO

El ancho del modo de generación está íntimamente ligado con el contraste de impedancias acústicas. En el caso de la primera de las razones esgrimidas más arriba al explicar la estrechez de dicho modo, la conexión entre el ancho del modo y el contraste acústico es directa, pues la existencia de brechas

prohibidas y la consecuente curvatura de la relación de dispersión se debe enteramente al contraste de impedancias acústicas (ver sección 2.1.1.b). Para muestras de muy bajo contraste, la velocidad de grupo del modo de generación no se diferencia apreciablemente de la velocidad efectiva de la superred ($\tilde{v} \approx v$) y el ancho espectral del modo de generación es comparable a los anchos de los modos de detección. En cuanto a la segunda de las razones, la relación es menos directa. Ocurre que la cercanía del modo de simetría par respecto del máximo de $G(\nu)$, que presenta simetría impar, depende también del contraste de impedancias acústicas. La cercanía se dilata a medida que disminuye el contraste. Ambos fenómenos pueden apreciarse en la Fig. 2.22, en la que se muestra la función generación para superredes de 20 períodos de GaAs/AlAs y de $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}/\text{GaN}$, junto con las correspondientes relaciones de dispersión. El sistema $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}/\text{GaN}$ es otro sistema utilizado en superredes, pero que presenta un bajo contraste de impedancias acústicas ($Z_{\text{GaN}}/Z_{\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}} = 1,02$). Se observa en la figura que, por un lado, \tilde{v} es superior en el sistema $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}/\text{GaN}$ respecto de GaAs/AlAs. Por el otro, el modo de simetría par, indicado con una flecha en la figura, se ubica en el primer caso más alejado del modo de simetría impar (máximo de $|G(\nu)|$) que en el segundo caso.

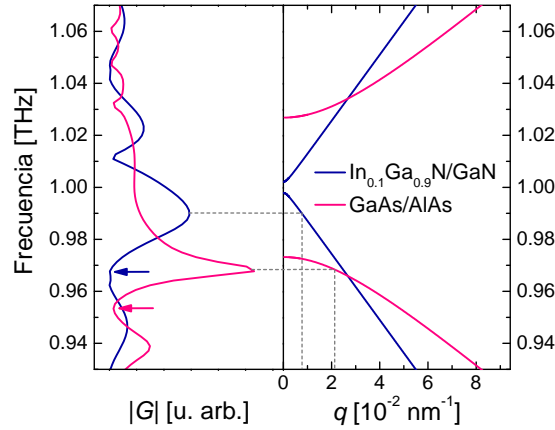


Figura 2.22: Comparación entre las funciones de generación y las relaciones de dispersión correspondientes a superredes de dos sistemas diferentes: GaAs/AlAs y $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}/\text{GaN}$, ambas diseñadas de forma que la primera brecha de energías prohibidas de centro de zona ($\gamma = 2$) se ubique a 1 THz. El bajo contraste de impedancias acústicas en el sistema $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}/\text{GaN}$ se manifiesta en la estrechez de la brecha prohibida y a la débil curvatura de la relación de dispersión en el centro de zona. Las flechas indican el modo de simetría par más cercano al máximo de $|G(\nu)|$ en cada una de las curvas. El modo de generación resulta significativamente más ancho en el caso de $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}/\text{GaN}$.

2.4. Cálculo numérico de la señal de bombeo-sondeo

La comparación de los resultados experimentales con el cálculo numérico de la señal de bombeo-sondeo es la herramienta principal en el análisis y la comprensión de los fenómenos físicos estudiados en el presente trabajo de tesis. En esta sección describiremos los pasos involucrados en el cálculo numérico. La cantidad a calcular es $\Delta R(t)$ o $\Delta \Phi(t)$, según sea la configuración de detección empleada, reflectométrica o interferométrica. Las expresiones

de $\Delta R(t)$ y $\Delta\Phi(t)$, ecs. (2.26) y (2.27), indican que debe conocerse primero $\Delta r(t)$. La ec. (2.84) que determina el valor de $\Delta r(t)$ muestra a su vez que es necesario hallar las funciones $G(\omega)$ y $D(\omega)$. Las expresiones para estas últimas, ecs. (2.59) y (2.85), requieren el conocimiento de la energía y perfil de desplazamiento de los modos normales de la estructura, y del campo eléctrico de bombeo o de sondeo en el interior de la muestra sin perturbar. Estas son entonces las dos semillas que nutren todo el cálculo. Ambos campos son calculados mediante el método de matrices de transferencia, imponiendo condiciones de continuidad del desplazamiento y de la tensión en el caso acústico, y de los campos eléctrico y magnético en el caso electromagnético. Se fijan también condiciones de contorno adecuadas en los extremos de la muestra.

A continuación describiremos el cálculo de los modos normales. La descripción será sintética ya que el método de matrices de transferencia es estándar para la resolución de ecuaciones diferenciales en medios discontinuos. En cuanto al campo eléctrico, no describiremos el detalle del cálculo pues la sistemática es idéntica. Basta reemplazar la impedancia acústica por el índice de refracción y el vector de onda acústico por el vector de onda óptico. La principal diferencia reside en las condiciones de borde. Una descripción completa del cálculo puede encontrarse en las Refs. [105, 106].

Luego de la descripción del cómputo de los modos normales pasaremos al cálculo de la evolución temporal de ΔR y $\Delta\Phi$. Posteriormente detallaremos el cálculo de los espectros de dichas cantidades. Por último, describiremos cómo puede incluirse el tiempo de vida media de los fonones en los cálculos.

2.4.1. Cálculo de los modos normales

El principio del método de matrices de transferencia se delineó ya en la sección 2.1.1.b, al describir el modelo de Rytov. En ese caso, la matriz de transferencia (llamada M en 2.1.1.b) relacionaba la información correspondiente a una capa perteneciente a una dada celda de la superred con la información del mismo tipo de capa de la celda siguiente. La información a la que nos referimos es el vector cuyas componentes son las amplitudes de las ondas propagantes en sentidos opuestos (e^{iqz} y e^{-iqz}) que describen el campo de desplazamientos dentro de la capa m . La diferencia al considerar una nanoestructura arbitraria es que la matriz se define de modo de conectar dos capas consecutivas. En ese caso la matriz definida en la ec. (2.8) se reemplaza por

$$M_m = \begin{pmatrix} (1 + \tilde{Z}_{m,m+1})e^{i\omega d_m/v_m} & (1 - \tilde{Z}_{m,m+1})e^{-i\omega d_m/v_m} \\ (1 - \tilde{Z}_{m,m+1})e^{i\omega d_m/v_m} & (1 + \tilde{Z}_{m,m+1})e^{-i\omega d_m/v_m} \end{pmatrix}, \quad (2.89)$$

donde $\tilde{Z}_{m,m+1} = Z_m/Z_{m+1}$. La matriz (2.89) multiplicada a derecha por el vector de amplitudes de la capa m devuelve el vector de amplitudes de la capa $m + 1$, es decir,

$$\begin{pmatrix} a_{m+1} \\ b_{m+1} \end{pmatrix} = M_m \begin{pmatrix} a_m \\ b_m \end{pmatrix}. \quad (2.90)$$

La principal diferencia entre el desarrollo de la sección 2.1.1.b y el cálculo de los modos normales de una nanoestructura reside en las condiciones de borde. En el caso del modelo de Rytov, la periodicidad de la superred infinita permitía plantear la condición de Bloch como condición de borde. En el caso de una estructura finita deben fijarse las condiciones en los extremos de la estructura. Expresaremos las condiciones como dos fases. Para definir una de ellas expresaremos el campo acústico en la primera capa de la muestra como $u_1(z) = \cos(q_1 z + \theta_1)$, es decir,⁴

$$\begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{i\theta_1} \\ e^{-i\theta_1} \end{pmatrix}. \quad (2.91)$$

Tomaremos θ_1 como la fase sobre la que fijaremos la condición de borde al inicio de la muestra. La condición de tensión nula, por ejemplo, se escribe $\theta_1 = 0$. De tener una superficie fija (desplazamiento nulo) debe imponerse $\theta_1 = \pi/2$. Para definir la otra fase resulta conveniente agregar a la estructura una capa ficticia a continuación de la capa final N . La capa adicional permite simplificar la expresión a la que llegaremos. En dicha capa definimos el campo acústico “ficticio” como $u_{N+1}(z) = A_{N+1} \cos(q_{N+1} z + \theta_{N+1})$, es decir,

$$\begin{pmatrix} a_{N+1} \\ b_{N+1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_{N+1} e^{i\theta_{N+1}} \\ A_{N+1} e^{-i\theta_{N+1}} \end{pmatrix}. \quad (2.92)$$

Las condiciones de tensión nula y desplazamiento nulo también se escribe en este caso $\theta_{N+1} = 0$ y $\theta_{N+1} = \pi/2$, respectivamente. La capa ficticia no introduce ninguna modificación al campo obtenido, y naturalmente, la impedancia acústica y espesor que se le asigne son irrelevantes a los resultados a los que se llega. Las fases que hemos definido están relacionadas por la expresión

$$\begin{pmatrix} a_{N+1} \\ b_{N+1} \end{pmatrix} = M_N M_{N-1} \dots M_1 \begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix} = T \begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix} \quad (2.93)$$

Al fijar θ_1 y θ_{N+1} se obtiene la siguiente ecuación para los elementos de la matriz total $T = M_N M_{N-1} \dots M_1$

$$\begin{aligned} & \sin(\theta_1 - \theta_{N+1}) \Re(T_{11}) + \cos(\theta_1 - \theta_{N+1}) \Im(T_{11}) - \\ & \sin(\theta_1 + \theta_{N+1}) \Re(T_{12}) + \cos(\theta_1 + \theta_{N+1}) \Im(T_{12}) = 0. \end{aligned} \quad (2.94)$$

⁴Tomamos la amplitud en la primer capa igual a 1 pues el campo acústico se calcula a menos de una constante que se deduce posteriormente de la condición de normalización.

La ecuación (2.94) fija una condición sobre la frecuencia ω de los modos normales de la estructura. Dado que (2.94) no presenta solución analítica, los valores de ω que satisfacen la ecuación se calculan numéricamente. Hemos encontrado que el método de Ridder de obtención de ceros de funciones [107] resulta de rápida convergencia y precisión suficiente para nuestro problema. Una vez hallados los valores de ω , el campo de desplazamiento correspondiente a cada modo normal puede calcularse a partir de la matriz de transferencia (2.89) y del vector de amplitudes $\begin{pmatrix} e^{i\theta_1} \\ e^{-i\theta_1} \end{pmatrix}$ para la capa $m = 1$.

En el caso de una nanoestructura sobre un sustrato, la condición de contorno en el extremo libre del sustrato resulta correcta pero innecesaria. Dada la extensa longitud total de la muestra (nanoestructura más sustrato) las frecuencias de dos modos normales contiguos se encuentran muy cercanas respecto de lo que puede resolverse experimentalmente. Es por ello que resulta innecesario calcular las autoenergías, basta con proponer un continuo de frecuencias y sobre ese continuo elegir frecuencias equiespaciadas según un espaciamiento compatible con la resolución experimental (dada por el retardo máximo entre los pulsos de bombeo y de sondeo).

Una vez hallados los modos normales, los mismos deben normalizarse. La ecuación de ondas (2.2) junto con las condiciones de contorno θ_1 y θ_{N+1} constituyen un problema de Sturm-Liouville. Las soluciones $u_n(z)$ de dicho tipo de problemas satisfacen la condición de ortonormalización [108]

$$\int_0^L \rho(z) u_n(z) u_m(z) dz = \delta_{nm}. \quad (2.95)$$

Por lo tanto, el vector de amplitudes del modo normal n debe dividirse por la cantidad

$$\int_0^L \rho(z) [u_n(z)]^2 dz. \quad (2.96)$$

En el caso de una nanoestructura sobre un sustrato, la contribución de la nanoestructura a la integral (2.96) es despreciable frente a la contribución del sustrato. En ese caso, la normalización se reduce a dividir el vector de amplitudes por el cuadrado de la amplitud del campo en el sustrato.

2.4.2. Cálculo de las trazas temporales

Llamamos *trazas temporales* a la evolución de ΔR o de $\Delta \Phi$ en función del tiempo. Conocidos los modos normales de la estructura y el campo eléctrico, se calculan las funciones de generación y de detección a partir de las expresiones (2.59) y (2.85). Dado que los campos acústico y eléctrico se expresan dentro de cada capa como la suma de dos ondas propagándose en sentidos opuestos, las integrales involucradas en (2.59) y (2.85)

tienen solución analítica en cada capa. Las integrales se reducen por tanto a una suma sobre capas. Halladas $G(\omega)$ y $D(\omega)$, se calculan las cantidades

$$\Delta R_n = 2 \{ \Re(r_0) \Re[G(\omega_n)D(\omega_n)] + \Im(r_0) \Im[G(\omega_n)D(\omega_n)] \}, \quad (2.97)$$

$$\Delta \Phi_n = -\Re(r_0) \Im[G(\omega_n)D(\omega_n)] + \Im(r_0) \Re[G(\omega_n)D(\omega_n)]. \quad (2.98)$$

La utilidad de estas cantidades consiste en que, como $\Delta r(t)$ es la suma sobre los modos del producto de $G(\omega_n)D(\omega_n)$ por la función puramente real $f(t)$ (ver ec. (2.84)), las relaciones (2.26) y (2.27) para $\Delta R(t)$ y $\Delta \Phi(t)$ que involucran las partes real e imaginaria de $\Delta r(t)$ se reducen a

$$\Delta R(t) = \sum_n \Delta R_n f_n(t), \quad (2.99)$$

$$\Delta \Phi(t) = \sum_n \Delta \Phi_n f_n(t), \quad (2.100)$$

De esta forma, habiendo calculado ΔR_n y $\Delta \Phi_n$ para todos los modos normales, la evolución temporal se obtiene efectuando las sumas (2.99) y (2.100) para sucesivos valores del parámetro t . Este último se barre a lo largo de la ventana temporal que haya sido empleada en el experimento, eligiendo valores discretos cuyo espaciamiento sea compatible con el espaciamiento experimental.

En este punto, vale aclarar cuál será el mecanismo de generación que emplearemos para los cálculos que presentaremos en los capítulos que siguen. En general, en los diferentes casos que estudiaremos analizaremos una región limitada del espectro. Dentro de esta región, el factor ω^{-1} que agrega el mecanismo displacivo no será significativo, puesto que la extensión espectral del rango a analizar será considerablemente menor que el valor medio del mismo. Desde este punto de vista, será equivalente tomar un mecanismo impulsivo o uno displacivo. En cuanto a la fase de la función $f(t)$ en uno y otro mecanismo, al analizar las trazas temporales experimentales nos centraremos principalmente en el aspecto global de la evolución temporal, algo así como la *envolvente* de la señal, sin focalizar la atención en la fase de la *portadora*. En este aspecto, también será equivalente adoptar uno u otro mecanismo de generación. Optaremos por el mecanismo impulsivo. Probablemente, la señal experimental presente contribuciones de ambos tipos de mecanismos, especialmente si la longitud de onda óptica se encuentra por encima del umbral de absorción -lo cual será generalmente el caso- de modo que tanto el potencial deformación como los mecanismos térmicos y de densidad electrónica participarán a la tensión inducida por el pulso de bombeo.

2.4.3. Cálculo de los espectros

Los espectros podrían computarse efectuando la transformada de Fourier discreta de las trazas temporales obtenidas en el apartado anterior. Sin embargo, esto significaría agre-

gar tiempo de cálculo dado que el espectro está básicamente contenido en las cantidades ΔR_n y $\Delta \Phi_n$ ya calculadas. La diferencia entre dichas cantidades y el espectro obtenido de un experimento es que las primeras corresponden a la “verdadera” transformada de Fourier (con el tiempo variando de $-\infty$ a $+\infty$), mientras que los espectros experimentales se obtienen a partir de una fracción de la evolución temporal ($t_{\min} \leq t \leq t_{\max}$; en general $t_{\min} = 0$). Es por tanto necesario convolucionar ΔR_n y $\Delta \Phi_n$ con la transformada de Fourier de la función $\Theta(0)\Theta(t_{\max} - t)$.

Otro punto a considerar es que en los espectros experimentales la señal se deriva respecto del tiempo antes de transformar Fourier, con el fin de eliminar la componente continua y minimizar la contribución a la señal de los fenómenos térmicos y electrónicos. La evolución lenta de estos fenómenos se traduce espectralmente en un fondo decreciente que suele entorpecer el análisis espectral de los efectos acústicos. Este fondo se minimiza tomando la derivada de la señal. Todos los espectros experimentales y teóricos que mostraremos en los capítulos subsiguientes referirán a la transformada de Fourier de la *derivada* de la señal. Mencionado esto, no se explicitará esta aclaración en lo que sigue del presente manuscrito. Al leer “la transformada de Fourier de la señal” o “el espectro de la señal” debe entenderse “la transformada de Fourier de la *derivada* de la señal” o “el espectro de la *derivada* de la señal”.

Teniendo en cuenta la derivación y la convolución, el espectro calculado se obtiene a partir de la expresión

$$\begin{aligned} \Delta R(\omega) = & \frac{1}{2} \sum_n \omega_n \Delta R_n \left\{ e^{i(\omega+\omega_n)(t_{\min}+\Delta t/2)} \frac{\sin [(\omega + \omega_n)\Delta t/2]}{\omega + \omega_n} + \right. \\ & \left. + e^{i(\omega-\omega_n)(t_{\min}+\Delta t/2)} \frac{\sin [(\omega - \omega_n)\Delta t/2]}{\omega - \omega_n} \right\}, \end{aligned} \quad (2.101)$$

donde $\Delta t = t_{\max} - t_{\min}$. Para calcular $\Delta \Phi(\omega)$ basta con reemplazar ΔR_n por $\Delta \Phi_n$ en (2.101).

2.4.4. Tiempo de vida media y ancho de línea espectral

Para incluir la vida media de los modos normales, sencillamente consideraremos que la población de fonones a un tiempo t ha disminuido respecto de su valor inicial $G(\omega)$ fijado por el pulso de bombeo, en un factor e^{-t/τ_n} . Las trazas temporales quedan entonces

$$\Delta R(t) = \sum_n \Delta R_n e^{-t/\tau_n} f_n(t), \quad (2.102)$$

$$\Delta \Phi(t) = \sum_n \Delta \Phi_n e^{-t/\tau_n} f_n(t), \quad (2.103)$$

y los espectros se expresan

$$\Delta R(\omega) = \frac{1}{2} \sum_n \Delta R_n \left\{ (\omega_n + i/\tau_n) e^{i(\omega + \omega_n + i/\tau_n)(t_{\min} + \Delta t/2)} \frac{\sin [(\omega + \omega_n + i/\tau_n)\Delta t/2]}{\omega + \omega_n + i/\tau_n} + \right. \\ \left. + (\omega_n - i/\tau_n) e^{i(\omega - \omega_n + i/\tau_n)(t_{\min} + \Delta t/2)} \frac{\sin [(\omega - \omega_n + i/\tau_n)\Delta t/2]}{\omega - \omega_n + i/\tau_n} \right\}, \quad (2.104)$$

con la ecuación análoga para $\Delta\Phi(\omega)$. En general, el tiempo de vida media será un parámetro de ajuste en el cálculo que se obtendrá de la comparación con los resultados experimentales. Para ello será necesario asumir que τ_n tiene un valor único τ para todos los modos normales en el rango frecuencial de interés.

A continuación analizaremos la información que brinda el ancho de línea experimental. Si bien, como dijimos, los espectros que mostraremos más adelante referirán a la derivada de la traza temporal, el análisis del ancho de línea puede hacerse a partir del espectro de la traza sin derivar. Esto simplifica las expresiones y no introduce modificaciones significativas puesto que el factor ω_n que se agrega al derivar puede asumirse constante a través de una línea dada, siempre y cuando el ancho de línea sea muy inferior al valor medio de la línea, lo cual se satisface en las muestras y condiciones empleadas. El análisis que sigue devuelve el mismo resultado cualquiera sea la configuración de detección utilizada. Consideraremos el caso reflectométrico. Supondremos Δt suficientemente grande como para obviar la convolución del espectro por la transformada de la ventana temporal de medición ($\Delta t \gg \tau_n \forall n$). Para la señal sin derivar y suponiendo generación impulsiva el espectro se escribe

$$\Delta R(\omega) = \frac{1}{2} \sum_n \Re[r_0^* G(\omega_n) D(\omega_n)] \left(\frac{1}{\omega + \omega_n + i/\tau_n} - \frac{1}{\omega - \omega_n + i/\tau_n} \right). \quad (2.105)$$

donde hemos expresado ΔR_n en función de r_0 , $G(\omega_n)$ y $D(\omega_n)$ empleando una forma más compacta de la ec. (2.97).

Analizaremos el espectro en torno a una línea del producto $G(\omega_n)D(\omega_n)$ (un modo de generación o uno de detección). Para estudiarlo aisladamente es necesario que los picos de generación y de detección estén lo suficientemente separados, es decir, que sus anchos de línea sean menores que la separación entre ellos. Este será en efecto el caso en la gran mayoría de los espectros que analizaremos, por lo cual lo daremos entonces por sentado. La frecuencia de la línea que nos proponemos estudiar es un cantidad positiva, por lo que podemos despreciar el primer término del paréntesis en la Ec. (2.105), quedando

$$\Delta R(\omega) = -\frac{1}{2} \sum_n \Re[r_0^* G(\omega_n) D(\omega_n)] \frac{1}{\omega - \omega_n + i/\tau_n}. \quad (2.106)$$

Consideraremos dos situaciones. La primera supone que el ancho de línea del modo en cuestión es mucho menor que el ancho de la función lorentziana, cuyo orden de magnitud está dado por τ_n^{-1} . En los términos prácticos, puede asumirse que la función $G(\omega_n)D(\omega_n)$ tiene una forma de tipo delta de Dirac, y toma entonces un valor significativamente distinto de cero para un único modo normal. La suma de la Ec. (2.106) se reduce entonces a un solo término que identificaremos con el subíndice 0. Dicha ecuación se reduce a

$$\Delta R(\omega) = -\frac{1}{2} \Re[r_0^* G(\omega_0) D(\omega_0)] \frac{1}{\omega - \omega_0 + i/\tau_0}. \quad (2.107)$$

Al graficar los espectros, normalmente tomaremos el módulo de $\Delta R(\omega)$. La línea espectral estará dada entonces por

$$|\Delta R(\omega)| = \frac{1}{2} |\Re[r_0^* G(\omega_0) D(\omega_0)]| \frac{1}{\sqrt{(\omega - \omega_0)^2 + \tau_0^{-2}}}, \quad (2.108)$$

quedando su forma funcional determinada por la función lorentziana. Su ancho a altura mitad es $\Delta\omega = 2\sqrt{3}/\tau_0$. Es decir que el ancho de línea experimental $\Delta\nu$ estará relacionado con el tiempo de vida media a través de la relación

$$\Delta\nu = \frac{\sqrt{3}}{\pi\tau_0}. \quad (2.109)$$

En el segundo caso, supondremos que el ancho de línea del pico de la función $G(\omega)D(\omega)$ que nos proponemos estudiar es mucho mayor que la inversa de la vida media. En dicha situación, no podemos llevar la Ec. (2.106) a una expresión más sencilla. Según se lee en la ecuación, $\Delta R(\omega)$ será la suma de funciones lorentzianas complejas, cada una centrada en un modo normal, y con peso $\Re[r_0^* G(\omega_n) D(\omega_n)]$. En la práctica, la resolución experimental no nos dará acceso al detalle de la suma de las lorentzianas. El ancho del pico de $|\Delta R(\omega)|$ reflejará el ancho del pico de $G(\omega)D(\omega)$.

Revisemos ahora el rango de validez de cada una de las situaciones estudiadas para el caso de una superred. Dado un pico de la función $G(\omega)D(\omega)$, su ancho de línea Δq en el espacio de vectores de onda está dado por

$$\Delta q = \frac{2\pi}{L}, \quad (2.110)$$

donde L es la longitud de la superred. Según vimos en la sección 2.3.3, Δq se traduce en un ancho espectral

$$\Delta\nu = \frac{\tilde{\nu}}{L}, \quad (2.111)$$

donde $\tilde{v} = \left. \frac{d\omega}{dq} \right|_{q_0}$ es la velocidad de grupo del modo considerado y q_0 su vector de onda medio. Vemos entonces que el primero de los casos estudiados presume que $\tilde{v}/L \ll \sqrt{3}/(\pi\tau_0)$, mientras que el segundo supone que $\tilde{v}/L \gg \sqrt{3}/(\pi\tau_0)$. Reorganizando los factores y aproximando $\pi/\sqrt{3} \approx 2$, tenemos

$$\frac{L}{\tilde{v}} \gg 2\tau_0, \quad (2.112a)$$

$$\frac{L}{\tilde{v}} \ll 2\tau_0, \quad (2.112b)$$

para el primero y segundo caso, respectivamente. Esto significa que el “tiempo de tránsito” del fonón a lo largo de la superred (L/\tilde{v}) debe compararse con su tiempo de vida media para evaluar en qué régimen (2.112a) o (2.112b) se encuentra el experimento. El tiempo de tránsito es naturalmente una medida del tamaño finito de la muestra. Por lo tanto, las expresiones (2.112a) y (2.112b) pueden entenderse como comparaciones entre el ensanchamiento del modo por tamaño finito y el ancho homogéneo.

En el caso de un modo de detección, $\tilde{v} = v$ y su valor es típicamente del orden de los 5 nm/ps en el sistema GaAs/AlAs. Trabajaremos con superredes de 1 μm de espesor como máximo, el tiempo de tránsito será entonces de 200 ps. A temperatura ambiente encontraremos tiempos de vida media del mismo orden, con lo cual la situación se planteará en el rango intermedio entre (2.112a) y (2.112b). En ese caso, el ancho de línea espectral no podrá identificarse ni con el tiempo de vida media ni con el tamaño finito de la muestra. A bajas temperaturas en cambio, se satisfará (2.112b) y el ancho experimental estará determinado por los efectos de tamaño finito de la muestra.

Para un modo de generación, \tilde{v} es menor debido a la curvatura de la relación de dispersión en las cercanías del centro de zona. No sólo eso, el ancho del modo por tamaño finito es aún menor de lo que dicta \tilde{v} debido a las razones de simetría descritas en la sección 2.3.3. Esto hace factible que la relación (2.112a) se satisfaga, aun a temperatura ambiente. En dicho caso, el ancho de línea nos dará acceso al tiempo de vida media de los fonones en el rango de los terahertz a temperatura ambiente.

2.5. Conexión entre la acústica de picosegundos y la dispersión Raman

La dispersión Raman consiste en un proceso de dispersión inelástico de la luz. Un fotón de energía $h\nu_i$ incide sobre un medio, como resultado de la interacción con este último, un fotón de energía diferente $h\nu_s$ es emitido y un fonón de energía $h\nu_f$ es creado o absorbido. El caso en que el fonón es creado se denomina proceso *Raman Stokes* y el caso en que el fonón es absorbido se llama *Raman anti-Stokes*. Esto se ilustra en la Fig. 2.23. La conservación de la energía indica que el espectro de los fonones dispersados presentará dos líneas ubicadas

en posiciones simétricas, a ambos lados de la línea situada en $h\nu_i$ asociada a la dispersión elástica o dispersión Rayleigh. Las líneas se observarán entonces a las energías $h\nu_s = h\nu_i - h\nu_f$ y $h\nu_s = h\nu_i + h\nu_f$ para los procesos Stokes y anti-Stokes, respectivamente. Por tanto, un experimento de dispersión Raman brindará acceso a las energías de los fonones (o excitaciones en general) presentes en la muestra. Los espectros Raman se grafican generalmente ubicando el origen del eje de abscisas en la energía del fotón incidente, de modo que la lectura de la escala indica directamente la energía de las vibraciones (se suele usar la convención de energías positivas para la dispersión Raman Stokes y de energías negativas para la dispersión Raman anti-Stokes).

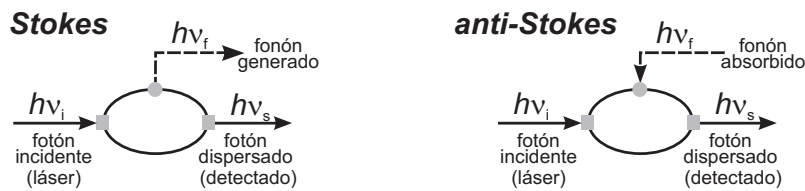


Figura 2.23: Diagramas de la dispersión Raman Stokes y anti-Stokes.

Vale aclarar que el mecanismo que media este proceso no es la interacción fotón-fonón, puesto que es extremadamente débil para las longitudes de onda del visible y del infrarrojo cercano. La dispersión Raman está mediada en cambio por los electrones. El fotón incidente genera un par electrón-hueco en un estado $|n\rangle$. Este par interactúa con la red cristalina generando o absorbiendo un fonón y pasa al estado $|n'\rangle$ de menor o mayor energía, según sea el caso. El par electrón-hueco se recombina emitiendo un fotón de energía $h\nu_i - h\nu_f$ o $h\nu_i + h\nu_f$ y regresa al estado inicial. Este esquema que hemos dado del proceso de dispersión Raman corresponde a una descripción caricatural del tratamiento riguroso del problema, que consiste en una resolución a tercer orden de perturbaciones del hamiltoniano del sistema completo (radiación, electrones, fonones e interacciones entre estos subsistemas). Los estados intermedios son entonces estados *virtuales*, y deben considerarse también los procesos que difieran del descrito en el orden de las tres interacciones mencionadas, todas las permutaciones de ese orden deben ser tenidas en cuenta.

La principal diferencia entre la dispersión Raman Stokes por fonones acústicos y la generación óptica de fonones que hemos analizado en las secciones anteriores reside en que los fonones sensados por dispersión Raman no guardan coherencia entre sí. Los fotones inciden sobre la muestra en forma continua (se emplean láseres continuos en lugar de láseres pulsados) y el proceso de interacción fotón - medio material ocurre de manera no correlacionada para cada uno de los fotones incidentes. Constituye un método para sensar los estados vibracionales de la muestra, pero no permite excitarlos en forma coherente (la dispersión Raman estimulada, discutida en la sección 2.3.1.a, sí permite la excitación coherente).

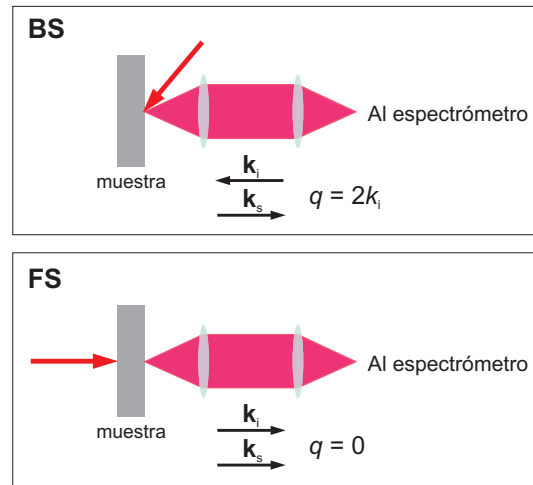


Figura 2.24: Esquemas del experimento de dispersión Raman en configuración de back scattering (BS) y de forward scattering (FS). En BS la luz dispersada es colectada desde el mismo lado de la muestra sobre el que incide la radiación. En FS la luz es colectada desde el lado opuesto.

En un experimento de dispersión Raman suelen utilizarse dos configuraciones diferentes. En la primera, la luz dispersada se colecta mediante una lente desde el mismo lado de la muestra sobre el que que incide el haz, según se ilustra en el panel superior de la Fig. 2.24. En ese caso, el vector de onda de la luz dispersada \mathbf{k}_s es opuesto al de la luz incidente \mathbf{k}_i (pueden despreciarse el ángulo de incidencia y el cono de ángulos dispersados pues ambos disminuyen considerablemente dentro de la muestra debido al elevado índice de refracción). Este esquema experimental recibe el nombre de *retrodispersión*, que abreviaremos BS (del inglés, *back scattering*). La segunda configuración se esquematiza en el panel inferior de la Fig. 2.24. La lente de colección recibe en este caso la luz que es dispersada hacia el lado opuesto al del haz de incidencia, de modo que los vectores de onda incidente y dispersado son paralelos. Este esquema experimental se denomina *dispersión hacia adelante* y la denotaremos FS (del inglés, *forward scattering*). La dificultad que implican los experimentos en FS es que sólo pueden realizarse en muestras transparentes. Este no es el caso para los semiconductores con los que trabajamos, en el rango de longitudes de onda de interés. Es por tanto necesario remover el substrato para poder efectuar experimentos en FS. En ambas configuraciones la luz colectada ingresa a un espectrómetro de alta resolución y es detectada con una CCD (del inglés, *charged coupled device*). El espectrómetro sirve tanto para separar las longitudes de onda del espectro emitido por la muestra, como para filtrar la componente de luz dispersada elásticamente, cuya longitud de onda se encuentra muy cercana a la de los fotones dispersados inelásticamente (la diferencia de energía corresponde a la energía del fonón, de tan solo algunos milielectronvolts)

La conservación de vectores de onda en el proceso Raman implica que

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_i \pm \mathbf{q}, \quad (2.113)$$

donde \mathbf{q} simboliza el vector de onda del fonón creado o absorbido. El signo “-” corresponde a la dispersión Raman Stokes y el signo “+” a la dispersión Raman anti-Stokes. La energía de los fonones es del orden de 2 meV (fonones acústicos), mientras que para la radiación en el visible la energía es de $\sim 2,5$ eV. La conservación de la energía indica entonces que la energía del fotón dispersado es aproximadamente igual a la del incidente, por lo cual el módulo de sus vectores de onda también lo será. En ese caso, la ec. (2.113) se reduce a

$$\begin{aligned} q &= 2k_i && \text{para BS,} \\ q &= 0 && \text{para FS.} \end{aligned} \tag{2.114}$$

Vemos de (2.114) que la geometría BS nos da acceso a aquellos fonones que son *detectados* en la técnica de bombeo-sondeo, mientras que la configuración FS nos permite observar los fonones que son *generados* en bombeo-sondeo. La Fig. 2.25 muestra la región Stokes del espectro Raman de una superred de 12 períodos de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}/\text{AlAs}$, adquirido en configuración BS. Se distinguen los dobletes de $q = 2k$ correspondientes a las tres primeras brechas prohibidas de centro de zona.

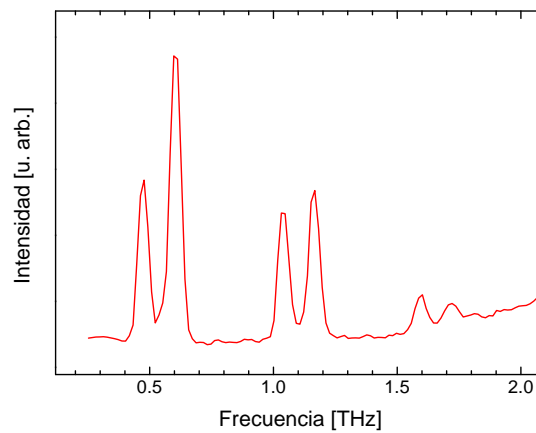


Figura 2.25: Sección eficaz Raman de una superred de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}/\text{AlAs}$ de 12 períodos, obtenido con una radiación de 568 nm. Región Stokes del espectro.

Cabe señalar una particularidad de los espectros Raman obtenidos sobre muestras semitransparentes que carecen de sustrato o que fueron crecidas sobre un espejo de Bragg óptico. En ese caso, la radiación que ingresa a la muestra y se refleja en la cara posterior o en el espejo provee una componente de campo eléctrico con vector de onda opuesto. Es por ello que al efectuar un experimento de dispersión Raman en geometría de BS sobre este tipo de muestras se tiene también acceso a los modos regularmente observables en FS (los modos de $q = 0$), y lo recíproco ocurre al emplear la geometría de FS.

El modelo que describe la dispersión Raman por fonones acústicos para radiación lejana de las transiciones electrónicas es el modelo fotoelástico. Sin entrar en los detalles,

diremos que dicho modelo aproxima la radiación dispersada por los fonones en la muestra como la superposición de la emisión de centros dispersores equidistribuidos en la muestra, cada uno emitiendo a través del mecanismo fotoelástico. La sección eficaz de dispersión está dada por la expresión [109, 110]

$$\sigma(\omega) \sim \frac{1}{\omega} \left[n(\omega) + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \right] \left| \int dz E_i(z) E_s^*(z) \frac{\partial u(z, \omega)}{\partial z} p(z) \right|^2, \quad (2.115)$$

donde $p(z)$ es la constante fotoelástica, $n(\omega)$ es el factor estadístico de Bose-Einstein y $E_i(z)$ y $E_s(z)$ son los campos eléctrico incidente y dispersado, respectivamente. El signo “+” corresponde a la componente Stokes y el “−” a la anti-Stokes. Vale notar la similitud entre la integral de (2.115) y las integrales de las funciones de generación y de detección (ecs. (2.59) y (2.85)). Si se aproximan los campos eléctricos en (2.115) por ondas planas, e^{ikz} para el campo incidente y $e^{\pm ikz}$ para el dispersado (hemos asumido que el módulo de los vectores de onda de ambos campos son iguales), con el signo “+” para FS y el “−” para el BS, la integral para FS resulta idéntica a la de la función de generación y la integral para BS es equivalente a la de la función de detección (aproximando el campo eléctrico en (2.85) también por una onda plana). Es decir, el espectro de acústica de picosegundos puede estimarse a partir de experimentos de dispersión Raman en ambas configuraciones, y viceversa.

Insistimos en que la diferencia principal entre ambas técnicas consiste en que en la dispersión Raman Stokes los fonones generados no son coherentes mientras que en la acústica de picosegundos sí lo son. Ésta última brinda además la posibilidad de acceder a la evolución temporal de las vibraciones, mientras que la dispersión Raman es una técnica netamente espectral. Su resolución espectral, sin embargo, sólo puede equipararse a la resolución de la acústica de picosegundos (una vez efectuada la transformada de Fourier de la traza temporal) si se acopla un espectrómetro triple (tres redes de difracción en serie) con un filtro Fabry-Pérot [111]. La dispersión Raman, por su parte, presenta la ventaja de requerir láseres continuos, para los cuales el acceso a una gama más completa del espectro es posible. La dependencia de la eficiencia Raman con respecto a la longitud de onda incidente es diferente a la dependencia de la señal de acústica de picosegundos. En general, las señales por debajo del umbral de absorción son más eficientes en la dispersión Raman. Esta técnica brinda además el beneficio de que la teoría involucrada en los experimentos en condición de excitación resonante es bien conocida y permite obtener información acerca de las energías de las transiciones electrónicas e incluso de la calidad de la muestra. En acústica de picosegundos, naturalmente también es posible efectuar experimentos en resonancia [39, 112–114], pero no se ha llevado a cabo aún un análisis sistemático ni se ha desarrollado una teoría acabada en el tema. Enumeradas las similitudes y diferencias, concluimos que la acústica de picosegundos y la dispersión Raman son técnicas complementarias.

Capítulo 3

Optimización de la generación y detección de fonones en superredes

3.1. Motivación

Las superredes constituyen dispositivos simples y eficientes para la transducción de luz en sonido de frecuencias de terahertz, desde el punto de vista de la sencillez del diseño y de la amplia versatilidad para la elección de la frecuencia acústica. Sin embargo, el punto débil de las superredes consiste en la débil variación de la reflectividad inducida por las vibraciones, la cual es del orden de $\Delta R/R = 10^{-5} - 10^{-6}$. Existen dos motivos para explicar un valor tan bajo. Uno de ellos es intrínseco a las propiedades elasto-ópticas de los materiales empleados. El otro es propio de la estructuración del espacio en una superred. En cuanto al primero, los mecanismos de transducción de luz en sonido (generación) y la modulación de la luz a partir del sonido (detección) son procesos de baja eficiencia. Para la generación, puede estimarse que sólo una parte en 5×10^7 de la energía del pulso óptico se transforma en energía elástica de la red cristalina (fonones coherentes) en el caso de GaAs. En lo que respecta al proceso de detección, se sabe de la dispersión Raman en semiconductores que sólo uno de cada 10^5 fotones es dispersado inelásticamente por las vibraciones. Siendo que el responsable de tal dispersión es el mecanismo fotoelástico, mecanismo involucrado en el proceso de detección en un experimento de bombeo-sondeo, concluimos entonces que la detección también resulta poco eficiente. El segundo motivo de la débil señal de bombeo-sondeo consiste en que, como hemos adelantado en la sección 2.3.3, la región espectral de máxima eficiencia de generación (modos de $q = 0$) no coincide con la región espectral de máxima sensibilidad de detección (modos de $q = 2k_s$) (ver Fig. 2.19), resultando entonces en una pobre modulación de la reflectividad de la muestra.

Pocas estrategias se han desarrollado para incrementar la señal de bombeo-sondeo. La más exitosa es la propuesta por Sun y colaboradores, quienes demostraron un aumento de la señal de tres órdenes de magnitud [40]. Esta estrategia apunta en el sentido de incrementar la eficiencia de los procesos de generación y de detección. Para ello, Sun recurrió a un sistema semiconductor diferente del usual GaAs/AlAs, aunque también de

tipo III-V, basado en nitruros: $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ en estructura cristalina wurtzita. La ventaja de las superredes crecidas a partir de estos materiales es que presentan altos campos piezoeléctricos (del orden del MV/cm) de carácter permanente debido a la diferencia de parámetros de red entre $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ y GaN. Estos campos piezoeléctricos abren la posibilidad de un nuevo mecanismo de generación y de detección óptica de fonones acústicos, además de los involucrados en el sistema GaAs/AlAs discutidos en la sección 2.3.1.a. La generación se realiza a través del acoplamiento entre los portadores fotoexcitados por el pulso de bombeo que apantallan el campo piezoeléctrico periódico en la superred y el fonón acústico que presenta la misma periodicidad (fonón de centro de zona). A su vez, la presencia del fonón modifica dinámicamente el campo piezoeléctrico causando una modulación de la transmisión a través del efecto Franz-Keldysh cuántico confinado [115]. Esto permite la detección del fonón monitoreando la intensidad de un haz de sondeo transmitido a lo largo de la muestra. El sistema $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ cuenta a su vez con la ventaja adicional de pertenecer al grupo de semiconductores de ancha banda prohibida, gracias a lo cual encuentra aplicaciones en la tecnología de dispositivos emisores de luz en el azul y ultravioleta cercano. Sin embargo, desde el punto de vista acústico existen dos desventajas. En primer lugar, la calidad estructural de las muestras suele ser inferior a la del sistema GaAs/AlAs, justamente debido a la diferencia de parámetros de red entre los materiales constitutivos, lo que puede traducirse en una reducción de la vida media de los fonones debido a la dispersión en defectos y en rugosidades interfaciales. En segundo lugar, el contraste de impedancias acústicas resulta muy débil ($Z_{\text{GaN}}/Z_{\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}} = 1,02$, $Z_{\text{GaAs}}/Z_{\text{AlAs}} = 1,18$), por lo que el interés por desarrollar de una ingeniería de fonones en este sistema (diseño de espejos y cavidades fonónicas) se ve disminuido. En particular, según vimos en el comentario de la página 51, una consecuencia del débil contraste consiste en un ensanchamiento del modo de generación (éste es 2,5 veces más ancho en una superred de $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ que en una de GaAs/AlAs, ambas de 25 períodos; ver Fig. 2.22). Esto se traduce en un corto tiempo de coherencia de los fonones generados. Tanto Sun como Moss han reportado tiempos de coherencia del orden de ~ 10 ps [40, 63] para superredes de 14 y 10 períodos respectivamente, mientras que en el sistema GaAs/AlAs los tiempos de coherencia suelen ser de algunos cientos de picosegundos. Para paliar este inconveniente, en principio podría pensarse ya sea en aumentar la concentración x de InN o en agregar períodos de superred. Sin embargo, no es posible avanzar ampliamente en ninguna de estas estrategias dado que ambas apuntan hacia la relajación de la deformación del material tensionado mediante la formación de dislocaciones, con la consecuente pérdida de los campos piezoeléctricos.

Retornando al sistema GaAs/AlAs, otro enfoque orientado a aumentar la débil señal de experimentos de bombeo-sondeo involucra la utilización de microcavidades ópticas, en cuyo seno se coloca la región acústicamente activa de la muestra. Lanzillotti-Kimura y colaboradores [67] han demostrado una amplificación de la señal en un factor 30, como

resultado de la conjugación de dos fenómenos diferentes. Uno es la amplificación del campo eléctrico de bombeo por confinamiento en la microcavidad. Esto resulta en una mayor amplitud de las vibraciones generadas (ver ec. (2.59)). El otro fenómeno es la superposición espectral de las funciones de generación y de detección. La reflexión de la luz en el espejo óptico de la microcavidad modifica los espectros de generación y detección, de tal forma que ambos resultan sensibles tanto al modo de $q = 0$ como a los modos de $q = 2k_s$. El mayor acuerdo entre las funciones de generación y de detección conlleva un aumento de la señal detectada.

Existe un tercer camino para incrementar la señal en experimentos de bombeo-sondeo. Consiste en aprovechar la versatilidad que brindan los semiconductores en cuanto a las transiciones electrónicas. Aunque no se ha efectuado aún un estudio sistemático variando independientemente las energías de bombeo y de sondeo, existe evidencia experimental de que la intensidad de la señal se maximiza al sintonizar la longitud de onda óptica con las transiciones electrónicas. Esta evidencia experimental será presentada en el capítulo 4.

En el presente capítulo presentaremos otra alternativa para la amplificación de la señal en experimentos de bombeo-sondeo sobre superredes de GaAs/AlAs. Está basada en el desacoplamiento espacial de los procesos de generación y de detección, en dos superredes separadas por una gruesa capa intermedia de GaAs. Los haces de bombeo y de sondeo iluminan extremos opuestos de la muestra. Este esquema se inspira en la propuesta de Trigo *et al.* [47], quienes demostraron detectar fonones en una superred provenientes de otra idéntica separada de la primera por una capa intermedia de $1,6 \mu m$. Aprovechando la versatilidad que agrega el hecho de independizar los procesos de generación y detección, hemos agregado al esquema de Trigo la posibilidad de adaptar los parámetros de una de las superredes de forma tal que su espectro de detección se superponga con el espectro de generación de la primera. Para ello, basta elegir el período adecuado, dado que la posición espectral de los picos de detección (y de generación) dependen de D (ver Fig. 2.17). A su vez, con el fin de testear cuantitativamente la amplificación lograda, hemos introducido un gradiente de espesores en una de las superredes, de modo de disponer de la posibilidad de sintonizar o desintonizar la superposición espectral de las funciones de generación y de detección.

Además del fin cuantitativo de estudiar el aumento de la señal de bombeo-sondeo en función del solapamiento espectral de las funciones de generación y de detección, el esquema propuesto reviste el interés conceptual de independizar ambos procesos. Existen algunos trabajos previos orientados en este sentido. En la Ref. [48], uno de los procesos se logra utilizando un transductor diferente a una superred. Los autores hacen uso de una capa metálica delgada depositada sobre la otra cara del substrato, ya sea para generar o para detectar las vibraciones. En la Ref. [38], ambos procesos ocurren en la misma superred, pero cierta independencia se logra empleando dos longitudes de onda diferentes para los haces de bombeo y de sondeo. Ambos trabajos han contribuido, entre otras cosas, a identificar el modo de $q = 0$ con el proceso de generación y los modos de $q = 2k_s$ con el de detección. El trabajo de Trigo, según mencionamos, fue el primero en emplear dos

superredes para desacoplar los mecanismos de generación y de detección, demostrando la factibilidad de la propuesta. Nos planteamos ahora profundizar esta línea, adicionando al análisis el grado de libertad introducido por la variación gradual del período de una de las superredes.

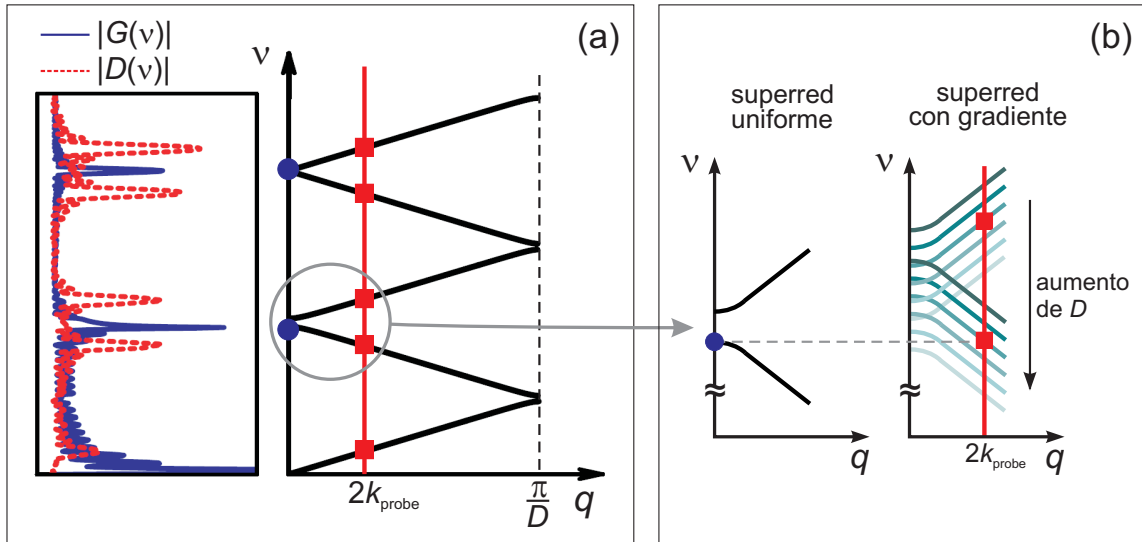


Figura 3.1: (a) Panel derecho: relación de dispersión de una superred infinita. Los círculos azules indican los modos generados por el haz de bombeo en un experimento de bombeo-sondeo. Los cuadrados rojos señalan los modos detectados por el haz de sondeo. Panel izquierdo: Módulo de las funciones de generación ($G(\omega)$) y de detección ($D(\omega)$) para una superred de 20 períodos. (b) Esquema de la sintonización espectral entre el modo de generación de una superred uniforme y el modo de detección de otra superred con gradiente de espesores. Las curvas en escala de colores representan las bandas acústicas replegadas para diferentes puntos de la superred con gradiente. En algún punto de la muestra se logra la superposición espectral entre uno de los modos de detección y el modo de generación de la otra superred.

El principio en el que se basa el experimento se esquematiza en la Fig. 3.1. Según vimos en la sección 2.3.1.b, el haz de bombeo genera modos acústicos longitudinales de vector de onda q nulo, es decir, modos ubicados en el centro de la zona de Brillouin. Estos modos están indicados con círculos azules en la Fig. 3.1(a), la cual exhibe la relación de dispersión de una superred infinita (por cada banda prohibida del centro de zona sólo uno de los modos es excitado debido a las razones de simetría esgrimidas en la sección 2.3.1.d). En la sección 2.3.2.b concluimos que el haz de sondeo, en cambio, es capaz de detectar modos que distan del centro de zona en una cantidad igual al doble del vector de onda de la luz incidente ($q = 2k_s$), identificados en la figura con los cuadrados rojos. Los modos de generación y de detección difieren espectralmente. La discrepancia entre las funciones de generación y de detección puede apreciarse en la Fig. 2.19. En la Fig. 3.1(b), esquematizamos la propuesta a desarrollar para incrementar el acuerdo espectral. La generación ocurre en una de las superredes de la muestra, supongamos que se trata de la superred sin gradiente de espesores. El modo de generación en el primer doblete de centro de zona se identifica con el círculo azul. La detección tiene lugar en la otra superred, la superred con gradiente. En diferentes puntos de la muestra, el espesor variable D hará que las bandas acústicas replegadas se ubiquen a energías distintas, lo

cual se ilustra con la escala de colores en el panel de la derecha. En algún punto del gradiente, D será tal que alguno de los modos de detección (cuadrados rojos) coincida con la energía del modo generado. En este punto esperamos observar un incremento en la señal de bombeo-sondeo. Cabe aclarar que los roles de las superredes podrían invertirse. En ese caso, el modo generado sería el que debería sintonizarse al de detección, el cual quedaría fijo respecto del gradiente.

Las ventajas de este esquema consisten en que, por un lado, la población de fonones generados continúa siendo monocromática, es decir, la función de generación continúa presentando un solo pico en $q = 0$. Por otra parte, el dispositivo descrito encuentra una potencial e interesante aplicación en el estudio de las propiedades de propagación de fonones de frecuencias en el rango de los terahertz a lo largo de grandes distancias (atenuación, dependencia en frecuencia, dependencia en temperatura), de lo cual poco se conoce experimentalmente [111, 116, 117]. Por último, cabe destacar que los materiales de las nanoestructuras se mantienen dentro del sistema GaAs/AlAs, que según hemos visto, permite tiempos de coherencia mayores.

3.2. Muestras y condiciones experimentales

Hemos estudiado dos muestras que difieren principalmente en el espesor de la capa intermedia. Ambas fueron crecidas mediante el método de epitaxia por haces moleculares (MBE por sus siglas en inglés) sobre substratos de GaAs orientados según la dirección cristalina [100]. La fabricación de las muestras estuvo a cargo de Dr. Aristide Lemaître, del *Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, C.N.R.S.*, Francia.

El esquema de las muestras se presenta en la Fig. 3.2. La muestra que estudiamos en primer lugar, que daremos en llamar muestra A, cuenta con 60 períodos en cada superred y una capa intermedia de $\sim 1 \mu\text{m}$ de espesor. En la segunda, que denotaremos muestra B, las superredes (100 períodos cada una) fueron crecidas en sendas caras de un substrato pulido de ambos lados, obteniendo una capa intermedia de $\sim 356 \mu\text{m}$. En ambas muestras, los espesores de las capas d_{GaAs} y d_{AlAs} de las dos superredes fueron elegidos de forma tal que la primer banda prohibida del centro de zona se encontrase a 0,4 THz y tuviese ancho máximo. Los espesores nominales son entonces $d_{\text{GaAs}} = 3v_{\text{GaAs}}/(4\nu) = 88,6 \text{ \AA}$ y $d_{\text{AlAs}} = v_{\text{AlAs}}/(4\nu) = 35,2 \text{ \AA}$, con $\nu = 0,4 \text{ THz}$ y v_{GaAs} , v_{AlAs} las velocidades del sonido en cada material (ver Tabla B.2). El gradiente de espesores se logró suprimiendo la rotación de la plaqueta durante la fabricación de una de las superredes. En ambas muestras se obtuvo un gradiente del $\sim 22\%$, definido como la diferencia entre los períodos correspondientes a puntos diametralmente opuestos de la plaqueta (según la dirección de máximo gradiente) dividido por el diámetro de la misma (5 cm). Las muestras fueron estudiadas por espectroscopia de rayos X. Para la muestra A se hallaron espesores $d_{\text{GaAs}} = 85 \text{ \AA}$ y $d_{\text{AlAs}} = 37 \text{ \AA}$, en el centro de la muestra, para ambas superredes. En el caso de

la muestra B, se obtuvieron los valores $d_{\text{GaAs}} = 89 \text{ \AA}$ y $d_{\text{AlAs}} = 35 \text{ \AA}$ para la superred uniforme, y valores medios $d_{\text{GaAs}} = 88 \text{ \AA}$ y $d_{\text{AlAs}} = 35 \text{ \AA}$ para la superred con gradiente de espesores.

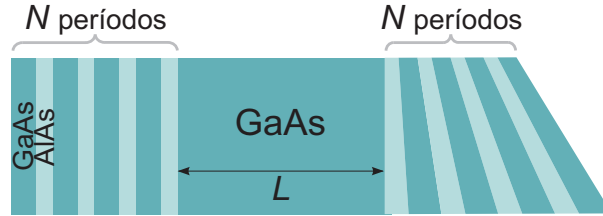


Figura 3.2: Esquema de las muestras estudiadas. Para las muestras A y B los parámetros son $N = 60$, $L \sim 1 \mu\text{m}$ y $N = 100$, $L \sim 356 \mu\text{m}$, respectivamente. En ambas muestras el gradiente de espesores es del $\sim 22\%$.

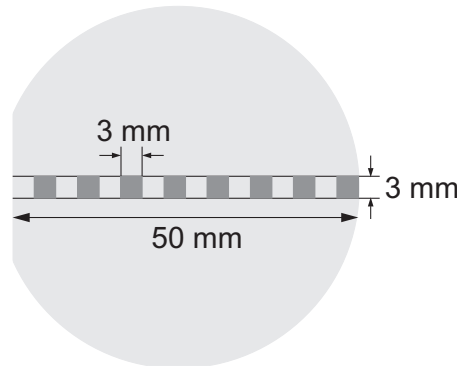


Figura 3.3: Esquema de la plaqueta de la muestra A y de los ocho trozos estudiados (cuadrados oscuros).

En la muestra A el sustrato impide el acceso a la superred más interna (superred uniforme), por lo que resulta necesario removerlo. Para ello, se clivó una lonja de 3 mm de ancho a lo largo del diámetro de la plaqueta. Esta lonja fue luego clivada en 16 pequeños trozos ($\sim 3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$), efectuando la remoción del sustrato sobre 8 de los mismos, seleccionados en forma alternada a lo largo de la lonja (ver Fig. 3.3). Todo el estudio experimental que describiremos en las secciones siguientes se refiere a estos 8 trozos.

COMENTARIO

Remoción del sustrato. Los 8 trozos seleccionados fueron montados sobre pequeñas plaquetas de zafiro de 0,5 mm de espesor (la superred con gradiente de cara al zafiro), con el fin de mantener la solidez y facilitar su manipulación. Para adherir los trozos a las plaquetas se utilizó un pegamento transparente a la radiación visible a base de polímeros (acrilato de uretano). En cada una de las pequeñas muestras, el sustrato fue en primer lugar pulido mecánicamente hasta llevarlo a un espesor de $100 \mu\text{m}$. Luego se procedió al ataque químico del GaAs restante, empleando una solución compuesta de 400 ml de H_2O_2 al 30 %, 8 ml de NH_4OH al 20 % y 100 ml de agua destilada.

El líquido se hace incidir sobre la muestra en forma de jet continuo (1 mm de diámetro) mediante un dispositivo especialmente diseñado. Esta solución ataca selectivamente el GaAs respetando el AlGaAs. Es por ello que la muestra fue crecida con una capa de $\text{Al}_{0,85}\text{Ga}_{0,15}\text{As}$ de 100 nm de espesor entre el substrato y la superred uniforme. Luego de aproximadamente 40 minutos de exposición a la solución, la capa de $\text{Al}_{0,85}\text{Ga}_{0,15}\text{As}$ surge lentamente, revelando una superficie espejada. Si se deja esta capa como última de la muestra, se observa con el paso de los días la aparición de un tinte azulado, que indica la oxidación del $\text{Al}_{0,85}\text{Ga}_{0,15}\text{As}$ (el AlAs es inestable en presencia de oxígeno y se oxida rápidamente, las aleaciones con alto porcentaje de AlAs también resultan inestables). Esta capa se remueve entonces sumergiendo la muestra unos segundos en HF, recuperando el típico color gris-plateado del GaAs (primer capa de la superred uniforme), que resulta estable en presencia de oxígeno.

La calidad de las superficies obtenidas luego del ataque con la solución básica no es perfectamente repetible. En algunas de las muestras, el substrato no fue removido completamente, sino que quedaron *islotos* de GaAs cubriendo regiones de la superficie espejada, al mismo tiempo que la calidad general de esta última resultaba inferior, incluso luego de prolongar la exposición de la muestra a la solución. No pudimos identificar las causas, esta falla ocurrió de manera, a nuestros ojos, aleatoria. Algunos indicios nos inclinan a pensar que un cierto gradiente de espesor en la capa de substrato restante luego del pulido mecánico, favorece el buen desarrollo del ataque químico. De todas formas, la presencia de los islotes no impidió la realización de los experimentos de bombeo-sondeo, dado que siempre fue posible encontrar una región de calidad razonable y tamaño mayor al spot del láser.

Para los experimentos de bombeo-sondeo se utilizó un láser de titanio-zafiro que entrega pulsos de 80 fs de duración con una tasa de repetición de 80 MHz. El dispositivo experimental sigue el esquema de la Fig. 2.11. Los experimentos sobre la muestra A se llevaron a cabo principalmente a temperatura ambiente, y algunos a 77 K, siempre en geometría de reflexión simple. En el caso de la muestra B, como los fonones deben ser capaces de atravesar 356 μm de GaAs, se trabajó en un crióstato de circulación de He, a una temperatura de 15 K. Se utilizó detección interferométrica. Se estudió un único trozo de la plaqueta, de mayor tamaño que los trocitos de la muestra A ($\sim 15 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$), sobre el que se verificó previamente por espectroscopía Raman la superposición entre el modo de $q = 0$ de la superred uniforme (espectro Raman en configuración FS) y uno de los modos de $q = 2k_s$ de la superred de detección (espectro Raman en configuración BS). En el caso de los experimentos sobre la muestra A, las potencias empleadas fueron de 60 mW de potencia media para el haz de bombeo (0,75 nJ por pulso) y de 23 mW para el haz de sondeo (0,30 nJ por pulso). Para la muestra B, se trabajó con 140 mW en el haz de bombeo (1,75 nJ por pulso) en los experimentos en los que los haces de bombeo y de sondeo inciden en caras opuestas de la muestra, y con 33 mW (0,41 nJ por pulso) en el caso en el que bombeo y sondeo inciden sobre la misma cara. Para el haz de sondeo se utilizó una potencia media de 83 mW (1,03 nJ por pulso) en ambos casos.

En ambas muestras se estudiaron cuatro configuraciones experimentales diferentes,

esquemáticas en la Fig. 3.4:

- El haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme y el de sondeo sobre la superred con gradiente (Fig. 3.4(a)).
- El haz de bombeo sobre la superred con gradiente y el de sondeo sobre la superred uniforme (Fig. 3.4(b)).
- Ambos haces sobre la superred con gradiente (Fig. 3.4(c)).
- Ambos haces sobre la superred uniforme (Fig. 3.4(d)).

Con el solo fin de alivianar el lenguaje, a las configuraciones en las que los haces de bombeo y de sondeo inciden sobre la misma superred las llamaremos configuraciones *degeneradas*, y a aquéllas en las que los haces inciden sobre superredes opuestas las llamaremos configuraciones *no degeneradas*. En este último caso, la superred sobre la que se focaliza el haz de bombeo será llamada indistintamente *superred de bombeo* o *de generación*, y la superred sobre la que incide el haz de sondeo será denotada *superred de sondeo* o *de detección*.

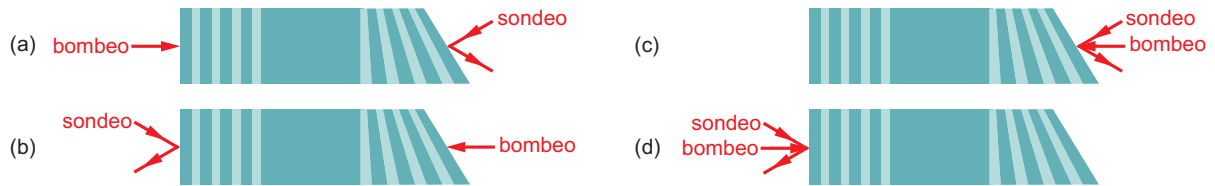


Figura 3.4: Esquema de las configuraciones experimentales utilizadas. (a) Haz de bombeo sobre la superred uniforme y haz de sondeo sobre la superred con gradiente. (b) Haz de bombeo sobre la superred con gradiente y haz de sondeo sobre la superred uniforme. (c) Haz de bombeo y haz de sondeo sobre la superred con gradiente. (d) Haz de bombeo y haz de sondeo sobre la superred uniforme.

3.3. Muestra A

3.3.1. Resultados experimentales

En primer lugar realizamos experimentos en configuraciones degeneradas. El interés de dichas configuraciones consiste en obtener un *mapa espectral* de la muestra, es decir, nos brinda acceso a las frecuencias de los modos de generación y de detección en función del gradiente. La Fig. 3.5(a) presenta la variación normalizada de la reflectividad ($\Delta R/R$) en función del retardo entre los pulsos de bombeo y de sondeo, para los diferentes trozos de la muestra (separados ~ 6 mm entre sí), identificados con el número que figura a la derecha de cada curva. Las trazas 1 - 8 corresponden a los experimentos realizados sobre la superred con gradiente, mientras que la curva identificada “Unif.” se obtuvo del

lado uniforme de la muestra. Los datos han sido tratados numéricamente con un filtro pasabanda de tipo Butterworth [118], de banda pasante alrededor de la primer banda prohibida del centro de zona (el perfil espectral del filtro se muestra en la Fig. 3.6(a)). El proceso de filtrado elimina las oscilaciones Brillouin y la componente de decaimiento electrónico de la señal. Los primeros 80 ps están fuertemente afectados por la acción del filtro, por lo que deben no ser tenidos en cuenta en el análisis posterior. Observamos que las trazas temporales están en general caracterizadas por una oscilación que comienza a tiempo $t = 0$ y que decae posteriormente. A su vez, la amplitud de las curvas no sigue un comportamiento regular en función del gradiente. Discutiremos sobre esta observación en la sección *Cálculos y Discusión*. Vale remarcar la presencia de batidos en las trazas temporales, particularmente apreciables en las curvas 1 a 4. La frecuencia de batido es de ~ 33 GHz.

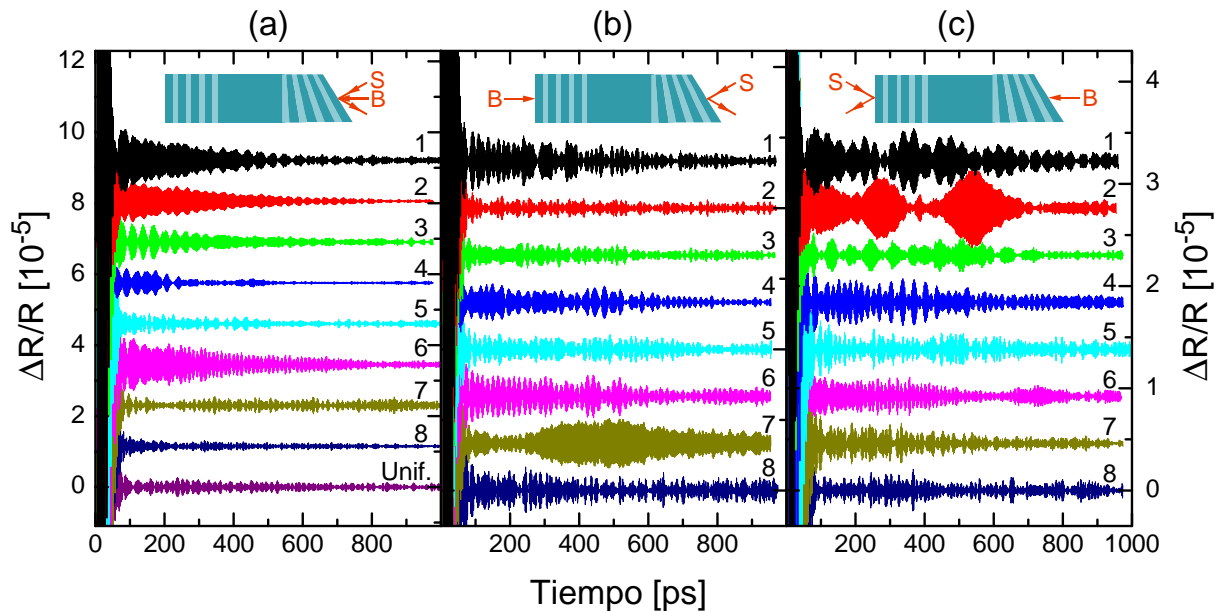


Figura 3.5: Variación normalizada de la reflectividad, $\Delta R/R$, en función del retardo entre pulsos de bombeo y de sondeo, para las configuraciones detalladas en cada panel. Los números a la derecha de cada curva identifican el trozo de la muestra. Las curvas de un mismo panel han sido desplazadas verticalmente para mayor claridad. (a) Haces de bombeo y de sondeo sobre el lado con gradiente de la muestra, excepto para la curva inferior obtenida sobre la cara uniforme. (b) Haz de bombeo sobre la superred uniforme, haz de sondeo sobre la superred con gradiente. La escala vertical coincide con la del panel (c). Notar el incremento en la señal en la traza 7. (c) Haz de bombeo sobre la superred con gradiente, haz de sondeo sobre la superred uniforme. Notar el incremento en la señal en las trazas 1 y 2.

Analicemos ahora los datos en el dominio espectral. Las transformadas de Fourier de las señales temporales se presentan en la Fig. 3.6(a), para la región de la primer banda prohibida del centro de zona. Al igual que en el dominio temporal, las curvas 1 - 8 corresponden a experimentos realizados sobre la superred con gradiente, mientras que el espectro restante corresponde al lado uniforme de la muestra. Se observan dos picos principales que se desplazan en energía a lo largo del gradiente (el pico identificado con un asterisco es un artificio introducido por el sistema de estabilización del oscilador Maitai).

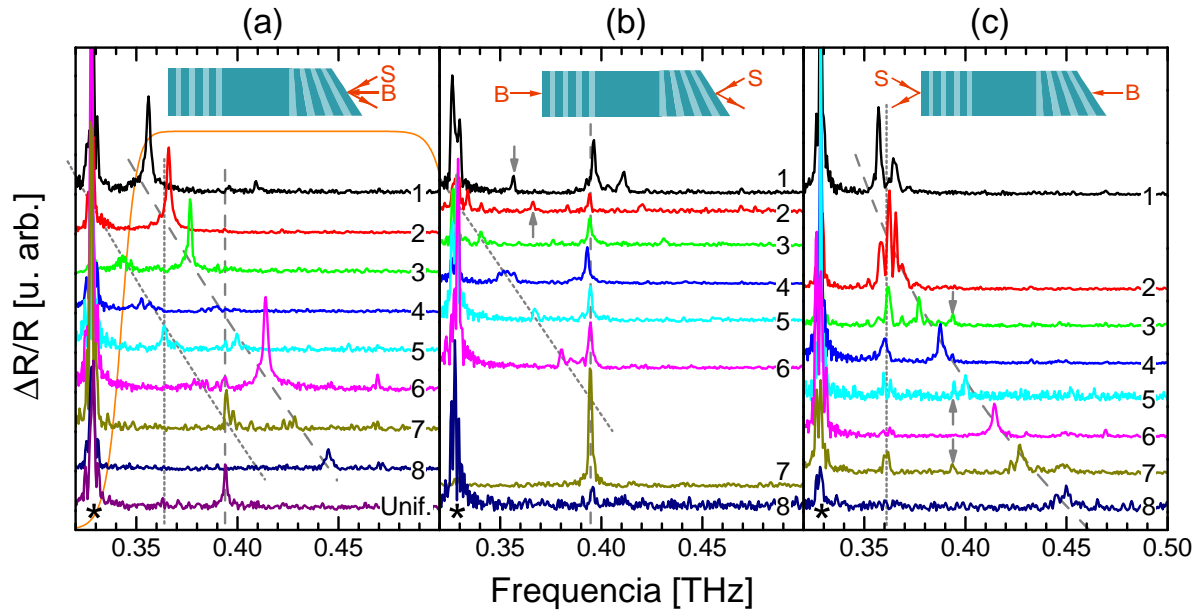


Figura 3.6: Transformadas de Fourier de $\Delta R/R$ para las configuraciones detalladas en cada panel. Los números a la derecha de cada espectro identifican el trozo de la muestra. Las curvas de un mismo panel han sido desplazadas verticalmente para mayor claridad. (a) Haces de bombeo y de sondeo sobre el lado con gradiente de la muestra, excepto para la curva inferior obtenida sobre la cara uniforme. Las líneas entrecortadas identifican las posiciones de los modos de $q = 0$ de la superred uniforme (línea vertical) y de la superred con gradiente (línea oblicua). Las líneas punteadas marcan las posiciones de la componente de menor energía del doblete $q = 2k_s$ de la superred uniforme (línea vertical) y de la superred con gradiente (línea oblicua). Para las muestras 2 y 7 se produce la coincidencia entre el modo generado en una superred y el detectado en la otra. La línea naranja indica el perfil del filtro aplicado a las trazas temporales. (b) Haz de bombeo sobre la superred uniforme, haz de sondeo sobre la superred con gradiente. La ventana temporal de las transformadas se limitó a $t > 200$ ps. La línea entrecortada corresponde al modo $q = 0$ de la superred uniforme. La línea punteada identifica el modo de menor energía del doblete $q = 2k_s$ de la superred con gradiente. Notar el incremento en la amplitud de la señal para la muestra 7 y la coincidencia espectral entre generación y detección. Las flechas indican el modo $q = 0$ de la superred con gradiente. (c) Haz de bombeo sobre la superred con gradiente, haz de sondeo sobre la superred uniforme. La ventana temporal de las transformadas se limitó a $t > 200$ ps. La línea entrecortada corresponde al modo $q = 0$ de la superred con gradiente. La línea punteada identifica el modo de menor energía del doblete $q = 2k_s$ de la superred uniforme. Notar el incremento en la amplitud de la señal para las muestras 1 y 2. Las flechas indican el modo $q = 0$ de la superred uniforme. En los tres paneles, el pico marcado con un asterisco corresponde a un artefacto introducido por el sistema de estabilización del láser Maitai.

Corresponden al modo $q = 0$ (línea entrecortada) y a la componente de menor energía del primer doblete de centro de zona, cuyo vector de onda es $q = 2k_s$ (línea punteada). Estos dos picos son los responsables del batido observado en la Fig. 3.5(a) (separación: ~ 33 GHz). La componente de mayor energía del doblete es de menor intensidad y es sólo apreciable en los espectros 1 (0,41 THz) y 6 (0,47 THz). Como ya se advirtió en el análisis temporal, la intensidad de los picos no sigue un comportamiento regular a lo largo del gradiente. Volveremos más adelante sobre este punto. En cuanto al espectro de la superred uniforme, sus picos de generación y de detección están indicados con las líneas verticales (línea entrecortada y línea punteada, respectivamente). Concluimos que existen dos escenarios en los que el modo de generación de una superred coincide con el de detección de la otra (intersección entre una línea entrecortada y otra punteada): (i) en el espectro 7 la generación en la superred uniforme coincide con la detección en la superred

con gradiente; **(ii)** en el espectro 2 la generación en la superred con gradiente coincide con la detección en la superred uniforme, aunque la coincidencia es menos precisa que en **(i)**. Este resultado nos permite afirmar que el gradiente de espesores obtenido durante la fabricación de la muestra resulta suficiente para permitir la optimización de la señal de bombeo-sondeo mediante la sintonización espectral de las respuestas de generación y de detección.

Pasemos ahora a las configuraciones no degeneradas. Los resultados en el dominio temporal se muestran en la Fig. 3.5(b) para la geometría en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme, y el de sondeo lo hace sobre la superred con gradiente, y en la Fig. 3.5(c) para la configuración opuesta. En ambos casos, el aspecto general de la mayor parte de las curvas consiste en una oscilación que comienza a $t = 0$ y que luego decae. Los tiempos de decaimiento resultan llamativamente más largos que los de la Fig. 3.5(a). Las principales excepciones al comportamiento de amplitud decreciente son las curvas 7 y 8 de la Fig. 3.5(b), y 1, 2 y 8 de la Fig. 3.5(c). De particular interés resulta la curva 7 de la Fig. 3.5(b). Para $t < 200$ ps, esta señal muestra un decaimiento de amplitud que no difiere del decaimiento que sufren las restantes curvas del panel (exceptuando la curva 8). Sin embargo, para $t > 200$ ps se observa un incremento de la señal en forma de pulso, es decir, un crecimiento de la amplitud hacia un máximo (ubicado a ~ 480 ps) seguido de una posterior disminución. A su vez, el tiempo en que comienza esta señal en forma de pulso (~ 200 ps) coincide con el tiempo de pasaje de fonones acústicos longitudinales a través de una capa de GaAs de $0,945 \mu\text{m}$ de espesor, lo cual se condice bastante bien con el espesor de $1 \mu\text{m}$ de la capa intermedia de la muestra medido por rayos X. Por último, vale remarcar que este fenómeno ocurre sólo en el trozo de la muestra en el que comprobamos previamente que las funciones de generación y de detección coinciden espectralmente (situación **(i)**). Estos tres hechos sugieren entonces que el incremento de la señal se debe al arribo a la superred de detección (superred con gradiente) de un pulso acústico proveniente de la superred de generación (superred uniforme), cuya distribución espectral coincide con una región de alta sensibilidad de la función de detección de la superred con gradiente. En la Fig. 3.5(c) también encontramos evidencia del mismo fenómeno: transcurridos los primeros 200 ps, las curvas que presentan mayor amplitud corresponden a las muestras 1 y 2. Esto se encuentra en acuerdo con la situación **(ii)**, en la que el otro punto de coincidencia espectral entre generación y detección se halla cercano a la muestra 2 (más precisamente, entre la muestra 2 y la 1).

Las curvas 8 de las Figs. 3.5(b) y 3.5(c) no parecen describir el comportamiento típico de oscilación de amplitud decreciente, ni presentan la ocurrencia de ningún evento particular. La muestra 8 quedará entonces excluida de cualquier análisis cuantitativo que efectuemos respecto de la amplitud de la señal. Más adelante justificaremos esta elección. Sin embargo, dado que las señales brindan de todas formas cierta información espectral (ver Fig. 3.6), no descartaremos los resultados obtenidos sobre esta muestra en el análisis

frecuencial.

Retornando a las restantes trazas temporales de las Figs. 3.5(b) y 3.5(c), vale señalar un hecho significativo: la presencia de señal a partir de $t = 0$. Si bien la señal podría ser más o menos intensa según fuera mayor o menor el acuerdo espectral entre la función de generación en una superred y la de detección en la otra, sólo esperaríamos registrar señal no nula a partir de 200 ps, es decir, una vez transcurrido el tiempo que lleva a los fonones generados en una superred llegar a la otra. El hecho de que la señal comience a $t = 0$ sólo puede explicarse si contemplamos la posibilidad de generación indirecta de fonones en la superred de detección, y/o de detección indirecta de fonones en la superred de generación. Lo que queremos significar por generación *indirecta* es la excitación de fonones en la superred opuesta a aquélla sobre la cual incide el pulso de bombeo, que se origina debido a una absorción incompleta de la luz en la superred de incidencia y en la capa intermedia de GaAs, y la consecuente penetración del haz de bombeo hasta la superred opuesta. Lo análogo ocurre con el haz de sondeo, el cual logra penetrar hasta la superred de generación, detectando las vibraciones presentes en la misma. A este fenómeno lo llamaremos detección *indirecta*. A los procesos de generación y detección previstos originalmente en el experimento, es decir, la generación en la superred de bombeo y la detección en la superred de sondeo, los denominaremos fenómenos *directos*. Al ocurrir cualquiera de los procesos indirectos, surge una coexistencia espacial no buscada de los procesos de generación y detección. Por ejemplo, en la generación indirecta se generan vibraciones en la superred de sondeo que son detectadas en la *misma* superred en la que son generadas, mediante el proceso de detección directa. No existe entonces un “tiempo de espera” entre la generación indirecta y la detección directa, o entre la generación directa y la detección indirecta, como sí existe en el caso de generación directa y detección directa (el tiempo de tránsito a través de la capa intermedia). Por tanto, los fenómenos indirectos constituyen una buena explicación a la observación de señal de bombeo-sondeo a partir de $t = 0$ ps. Evidentemente, la hipótesis de generación y/o detección indirecta debe agregarse a la de generación y detección directas, verificada en la curva 7 de la Fig. 3.5(b) y en la curva 2 de la Fig. 3.5(c). Cabe aclarar también que, dado el perfil de intensidad decreciente de los campos de bombeo y de sondeo, la generación y la detección de fonones se realizan principalmente de la manera directa, es decir, en las superredes de bombeo y de sondeo, respectivamente.

Hemos verificado la hipótesis de absorción incompleta de la luz llevando a cabo experimentos de transmisión. Los mismos revelaron una transmisividad promedio de las muestras del 4%. Dado que este valor comprende la absorción en ambas superredes, la porción de energía del haz de bombeo que llega a la superred de sondeo es aún superior al 4%. Evidentemente lo mismo ocurre con la porción de energía del haz de sondeo que llega a la superred de bombeo.

La señal observada en las Figs. 3.5(b) y 3.5(c) es entonces la conjunción de tres señales:

- (i) La señal resultante de la generación (directa) de fonones en la superred de bombeo,

y de la detección (directa) de dichos fonones una vez que arriban a la superred de sondeo. Esta señal comienza a $t \sim 200$ ps.

- (ii) La señal resultante del mismo fenómeno de generación que en el ítem anterior, pero en este caso los fonones son detectados en forma indirecta en la misma superred donde son generados, gracias a la penetración del campo de sondeo hasta la superred de bombeo. Esta señal comienza a $t = 0$.
- (iii) La señal resultante de la generación indirecta de fonones en la superred de sondeo por penetración del haz de bombeo y de la detección directa en la misma superred. Esta señal comienza a $t = 0$.

Estas tres señales se superponen para dar la señal registrada experimentalmente. En el caso de la traza 7 de la Fig. 3.5(b) y de las trazas 1 y 2 de la Fig. 3.5(c), el alto acuerdo espectral entre las funciones de generación y de detección otorgan a la señal (i) una intensidad mayor. En las restantes curvas, el bajo acuerdo espectral da a dicha señal una intensidad comparable a la de las señales (ii) y (iii). En ese caso, las tres señales se confunden, dando como resultado la traza temporal registrada experimentalmente.

Pasemos ahora al dominio espectral. Las transformadas de Fourier de las señales recién analizadas se detallan en las Figs. 3.6(b) y 3.6(c). La ventana temporal empleada para calcular las transformadas se limitó a tiempos superiores a 200 ps con el fin de minimizar el efecto de las señales (ii) y (iii), de modo de dar mayor peso a la señal (i) que es la que nos interesa. Observamos en la Fig. 3.6(b) que el único modo que se mantiene fijo respecto del gradiente es el que corresponde al modo de generación en la superred uniforme (comparar con la Fig. 3.6(a)), indicado con la línea entrecortada. Asimismo, los modos cuya posición varía respecto del gradiente corresponden al doblete de detección de la superred con gradiente; la componente de menor energía está identificada con la línea punteada. La situación inversa se presenta en la Fig. 3.6(c), donde el modo que queda fijo se asigna al modo de detección de la superred uniforme (sólo la componente de menor energía es apreciable), y el modo que varía de muestra a muestra corresponde al modo de generación de la superred con gradiente. Por lo tanto, la primera conclusión que podemos extraer de los resultados es que efectivamente la generación y la detección están *en gran medida* separadas espacialmente en cada una de las superredes. Es decir, a partir de $t = 200$ ps, el espectro está dominado por la señal (i), lo cual fue adelantado más arriba al hacer referencia al perfil de intensidad decreciente del campo eléctrico dentro de la muestra. La segunda conclusión consiste en que la frecuencia del pulso acústico observada en la traza temporal 7 de la Fig. 3.5(b) corresponde efectivamente a la energía en que el modo de detección de la superred con gradiente coincide con el de generación de la superred uniforme. Debido al acuerdo espectral entre ambos procesos, la señal aumenta en un factor 3,8 respecto de la intensidad del modo de generación promediada sobre los restantes espectros de la Fig. 3.6(b) (excluido el espectro 8). En la Fig. 3.6(c) también

observamos un incremento de la señal para las curvas 1 y 2, pero vemos a su vez que el acuerdo espectral es menos preciso.

El empleo del término “en gran medida” respecto de la separación espacial entre generación y detección se debe a que, al igual que en el dominio temporal, encontramos en las transformadas de Fourier evidencia experimental de generación indirecta, es decir de generación de fonones directamente en la superred de detección. En efecto, las flechas en las Figs. 3.6(b) y 3.6(c) indican el modo de $q = 0$ de la superred de detección, evidenciando que dicho modo ha sido excitado. Incluso habiendo limitado las ventanas de las transformadas a $t > 200$ ps no hemos logrado eliminar completamente la contribución de la señal de generación o detección indirecta. En otras palabras, la señal observada en las trazas de las Figs. 3.5(b) y 3.5(c) para $t > 200$ ps cuenta todavía con contribuciones de (ii) y (iii). No se observa en las Figs. 3.6(b) y 3.6(c) evidencia del proceso de detección indirecta. Esperaríamos ver picos de $q = 2k_s$ de la superred de generación, los cuales están ausentes en los espectros experimentales. Esto no significa que el fenómeno de detección indirecta en la superred de bombeo no tenga lugar. La ausencia de evidencia experimental se debe a que los modos de detección son en general considerablemente menos intensos que los de generación, según puede verificarse en la propia Fig. 3.6(a) o en la literatura[35, 38, 39]. Si la intensidad de los modos de generación indirecta señalados con las flechas ya es, según se aprecia de la figura, bastante baja, es de esperar entonces que los modos de detección indirecta no puedan distinguirse del ruido experimental.

Por último, antes de pasar a la sección siguiente, cabe profundizar sobre las irregularidades que presenta la muestra 8. Vemos en las Figs. 3.6(b) y 3.6(c) que sus espectros exhiben una pobre relación señal/ruido. Si bien las condiciones experimentales durante el ataque químico de remoción del substrato fueron idénticas a las del resto de las muestras, la superficie resultante mostró una calidad considerablemente inferior. Apuntamos entonces a una explicación basada en una mayor dispersión de la luz (luz que luego incide sobre el detector contribuyendo al ruido) para entender la pobre relación señal/ruido. La evolución temporal de la señal, cuya amplitud no parece decaer en el tiempo, es probablemente el resultado del alto nivel de ruido en la banda pasante del filtro numérico.

3.3.2. Cálculos y discusión

En esta sección nos proponemos encontrar la explicación a las diferentes observaciones enunciadas más arriba. La herramienta fundamental será la comparación con cálculos numéricos. Para organizar la discusión, atacaremos cada uno de los puntos según el siguiente orden:

- tiempos de decaimiento de la señal (vida media de fonones THz a temperatura ambiente),

- comportamiento irregular de la amplitud de la señal en función del gradiente en configuración degenerada (penetración de la luz: efecto Fabry-Pérot),
- generación y detección indirecta, y factor de amplificación (penetración de la luz: acoplamiento óptico entre superredes),

Los parámetros de los cálculos se detallan en el apéndice B, sección B.1.

Un punto importante del cálculo es el de las condiciones de contorno del campo de desplazamientos en las superficies de la muestra. Para una superficie libre, naturalmente debe tomarse condición de tensión nula. Esto es lo que se halla ampliamente en la literatura (ver por ejemplo [1, 53, 55]). Sin embargo, en el caso de nuestra muestra, según mencionamos más arriba, los pequeños trozos se encuentran adheridos a plaquetas de zafiro mediante un pegamento a base de polímeros. Evidentemente la condición de tensión nula no se aplicará al extremo de la muestra en contacto con la plaqueta. Desconocemos con exactitud la condición de borde que esta configuración impone a los modos normales. De todas formas, resulta más razonable fijar una condición de contorno de desplazamiento nulo en el extremo de la muestra pegada al zafiro. Los cálculos se efectuarán entonces bajo este supuesto. Para el otro extremo de la muestra se tomará la condición usual de tensión nula.

3.3.2.a. Vida media de fonones terahertz a temperatura ambiente

La pregunta que nos formularemos en primer lugar es: ¿a qué se debe el tiempo de decaimiento observado en las trazas temporales de la Fig. 3.5(a)? Según vimos en la sección 2.4.4 las posibles respuestas son: el tiempo de vida media de los fonones, o el tiempo de tránsito a lo largo de la superred sobre la que inciden los haces. En el primer caso, el ancho de línea espectral reflejaría la vida media de los fonones. En el segundo, la línea estaría ensanchada por efectos de tamaño finito de la superred sobre la que inciden los haces en la configuración degenerada. El hecho de que el tamaño finito de la superred se manifieste a través del tiempo de tránsito de los fonones a lo largo de la superred puede entenderse más claramente si notamos que dicho tiempo no es más que el tiempo que los fonones permanecen en la región sondeada por el haz de sondeo, y por tanto, es el tiempo en el que existe una señal detectada. En la presente sección nos proponemos analizar la importancia de cada uno de los dos factores mencionados, y evaluar si uno de ellos predomina sobre el otro, determinando el ancho espectral, es decir, si alguna de las ecs. (2.112a) o (2.112b) se corresponden con nuestro experimento.

Analicemos el tiempo de tránsito, o lo que es lo mismo según lo que acabamos de aclarar, el tiempo de permanencia en la región de detección. Existen varias evidencias que muestran que este factor no es crítico. Por ejemplo, basta notar en la Fig. 3.5(a) que el tiempo de decaimiento de la señal no varía apreciablemente en función del gradiente. El espesor total de la superred varía del orden del 20% de la muestra 1 a la 8, y sin embargo no se observa una diferencia consecuente en los tiempos de decaimiento de las trazas temporales. Para comprender las razones, consideremos una configuración degenerada en la

que los haces de bombeo y de sondeo inciden desde la izquierda, según se ilustra en la Fig. 3.7(a). La dirección perpendicular a las capas la llamaremos z , y el sentido positivo será de izquierda a derecha. Si descartamos la penetración de la luz en la segunda superred, es decir, si suponemos que sólo la superred de la izquierda es iluminada por los haces, el pulso de bombeo generará a $t = 0$ una deformación concentrada espacialmente a lo largo de la primer superred, y de extensión espacial igual al de esta última. Por simplicidad supongamos que no existe diferencia de impedancias acústicas entre los materiales que componen la muestra, de modo que las ondas vibracionales no sufren reflexiones en las superficies entre capas (sí existe modulación de las constantes de generación y de detección, permitiéndonos generar y detectar fonones acústicos replegados). El medio es entonces acústicamente homogéneo (más aún, bajo las hipótesis de ausencia de penetración de la luz y de contraste acústico, la segunda superred puede entenderse como una continuación de la capa intermedia). Luego de $t = 0$, la ecuación de ondas nos dice que dos paquetes de ondas se propagarán en sentidos opuestos (ambos según la dirección z). El paquete de vector de onda medio $q_0 > 0$ escapa hacia la capa intermedia de GaAs en un tiempo igual al cociente entre la extensión espacial L_{SR} del paquete y su velocidad de grupo \tilde{v} . El paquete de vector de onda medio $q_0 < 0$ intenta viajar hacia la izquierda pero se refleja progresivamente a medida que los diferentes puntos del perfil del paquete alcanzan la superficie muestra/aire. Esta situación se representa en la Fig. 3.7(b): la porción del paquete que ya ha sido reflejada interfiere con la que todavía viaja hacia la izquierda, dando un batido cuya amplitud, en el instante retratado en la figura, es máxima. Luego de un tiempo L_{SR}/\tilde{v} el paquete se ha reflejado completamente. Es decir, a $t = L_{SR}/\tilde{v}$ la distribución de deformaciones consiste en dos paquetes de ondas contiguos, uno completamente al exterior de la superred y otro completamente al interior, viajando ambos hacia la derecha, según se ve en la Fig. 3.7(c). A $t = 2L_{SR}/\tilde{v}$ el segundo paquete también ha escapado de la superred, quedando la región de detección desierta de vibraciones (Fig. 3.7(d)). El tiempo de permanencia es entonces igual a $2L_{SR}/\tilde{v}$.

Queremos ahora dar una estimación cuantitativa del tiempo de permanencia $2L_{SR}/\tilde{v}$. Para los cálculos de la Fig. 3.7 las velocidades del sonido (y las densidades) de todas las capas se han igualado a las de GaAs. La velocidad de grupo del paquete generado corresponde entonces a $\tilde{v} = v_{GaAs}$, obteniéndose un tiempo de permanencia de 312 ps. Sin embargo, cuando recuperamos el contraste de impedancias acústicas, \tilde{v} disminuye considerablemente debido a la curvatura de la relación de dispersión en la región del centro de zona (recordar que el modo de generación corresponde a $q = 0$). La velocidad de grupo puede deducirse a partir del cálculo de la función de generación y de la relación de dispersión según se indica en la Fig. 2.20. Se obtiene para nuestra muestra $\tilde{v} = 1,555$ nm/ps. Con este valor se deriva un tiempo de permanencia de 1000 ps. Vemos que este tiempo es superior al tiempo de decaimiento experimental observado en la Fig. 3.5(a). Más aún, dado que en la capa intermedia de GaAs el paquete tiene una velocidad superior ($v_{GaAs} = 4,726$

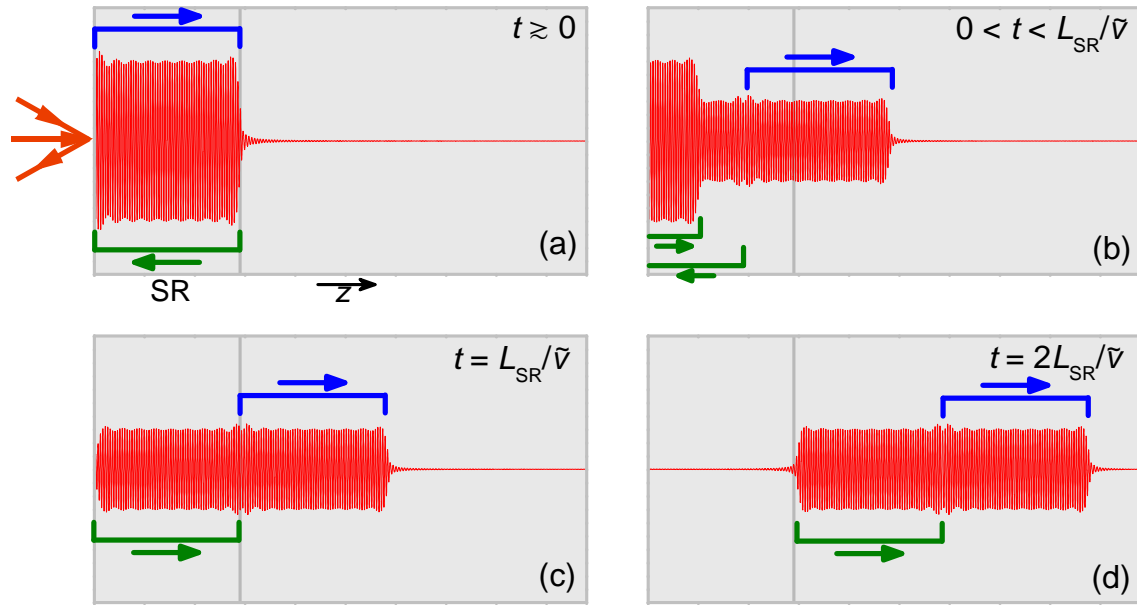


Figura 3.7: Cálculo de la evolución temporal del campo de desplazamientos generado por el pulso de bombeo para una muestra sin modulación acústica. (a) En $t = 0$ el haz de bombeo incide sobre la superred generando un campo de desplazamientos consistente en dos paquetes de ondas superpuestas (indicados con los corchetes) de vectores de onda medios opuestos. La extensión espacial de estos paquetes coincide con la extensión de la superred, cuyo límite se indica con una línea gris vertical. (b) En un tiempo menor a L_{SR}/\bar{v} , parte del paquete con vector de onda positivo ha escapado de la superred e ingresado en la capa intermedia. El paquete con vector de onda negativo tiende a viajar hacia la izquierda, pero se refleja progresivamente en la superficie muestra/aire. La parte que ya ha sido reflejada interfiere con la que todavía se desplaza hacia la izquierda originando batidos. En el instante retratado en la figura, la amplitud del batido es máxima. (c) A $t = L_{SR}/\bar{v}$ el primer paquete se encuentra completamente al exterior de la superred, mientras que el segundo se ha reflejado completamente y comienza a viajar hacia la derecha. (d) A $t = 2L_{SR}/\bar{v}$ ambos paquetes han escapado de la superred.

nm/ps), y en la superred de detección también (la energía del paquete se encuentra en la región recta de la relación de dispersión de dicha superred, excepto tal vez para alguno de los trozos del centro de la plaqueta), el extremo derecho del paquete de ondas hace el viaje de ida y vuelta a lo largo de la muestra y regresa a la superred de partida antes de que el extremo izquierdo la haya abandonado completamente. Esto lo hemos verificado con cálculos (aunque ahorraremos al lector el detalle de los mismos). El tiempo de permanencia es por ende infinito. En otras palabras, si no existiera decaimiento de los fonones, siempre existiría un campo de deformaciones no nulo en la superred sondeada por el haz de sondeo. Estamos en la situación de la ec. (2.112a). El tiempo de decaimiento experimental está dominado entonces por el tiempo de vida media.

Antes de adoptar la conclusión recién formulada, cabe preguntarse si existe la posibilidad de que el decaimiento se trate de un tiempo de coherencia debido a un ancho inhomogéneo del modo, en lugar de un tiempo de vida media. Un ensanchamiento inhomogéneo podría deberse por ejemplo a una distribución de espesores de las capas de la superred dentro del área transversal de la muestra iluminada por el spot del láser. Para discernir entre un ensanchamiento homogéneo y uno inhomogéneo recurrimos a la temperatura como herramienta de análisis. Realizamos mediciones a temperatura de nitrógeno

líquido. Para mantenernos por encima de la banda de energía prohibida, que aumenta en aproximadamente 100 meV desde la temperatura ambiente a 77 K, hemos trabajado a una longitud de onda óptica menor (738 nm). Los experimentos fueron efectuados en configuración no degenerada, con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme, y únicamente sobre la muestra 7. Los resultados se muestran en la Fig. 3.8, junto con los obtenidos a temperatura ambiente para la misma muestra y configuración (a 800 nm). Las líneas grises remarcan el decaimiento de la señal. Vemos que, tanto para la señal de generación y detección indirecta (que comienza a $t = 0$) como para la resultante del pulso de fonones que arriba desde la superred de bombeo (a partir de $t = 200$ ps) la tasa de disminución de la señal es apreciablemente inferior a temperaturas menores. A partir de los cálculos (de los que discutiremos más adelante) y su comparación con el experimento en configuración no degenerada es posible extraer un tiempo de decaimiento exponencial de (700 ± 180) ps a temperatura ambiente y de (1100 ± 250) ps a 77 K. De tratarse de un ensanchamiento inhomogéneo de la línea por una distribución de espesores de las capas en la región iluminada por el láser, el tiempo de decaimiento debería ser independiente de la temperatura. Concluimos entonces, que el tiempo de decaimiento experimental refleja la vida media de los fonones.

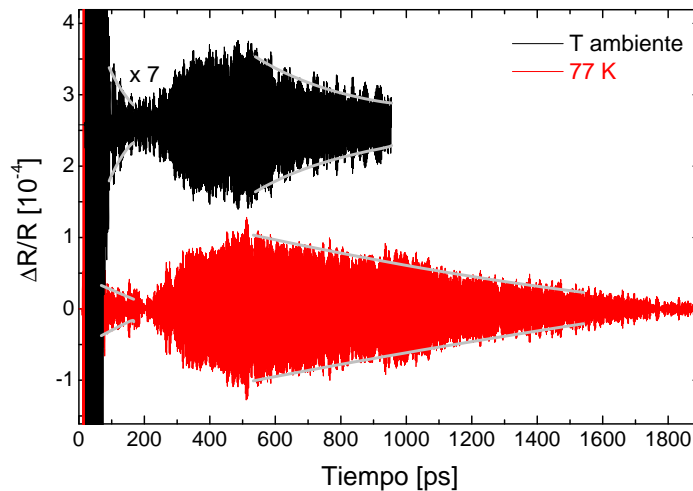


Figura 3.8: Señales de bombeo-sondeo obtenidas a dos temperaturas diferentes, ambiente y 77 K, sobre la muestra 7, en configuración no degenerada con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme. Las líneas grises siguen el decrecimiento de la señal, tanto para la contribución de generación y detección indirecta (a partir de $t = 0$) como para la del pulso de fonones provenientes de la superred de bombeo (a partir de $t = 200$ ps).

Nos dedicaremos ahora a obtener valores cuantitativos del tiempo de decaimiento experimental. Una forma de hacerlo consistiría en extraer el ancho de línea del modo de generación de los espectros de la Fig. 3.6. Sin embargo, debido a la resolución espectral experimental, fijada por el intervalo de tiempo durante el que se registró la señal (1000 ps), los tiempos de vida media así derivados serían sistemáticamente menores a los observados en las trazas temporales experimentales. Veremos en breve que los tiempos de vida media

son del orden de 400 ps en el caso de las configuraciones degeneradas. Este valor es tan sólo aproximadamente la mitad de la duración de la señal. Un tiempo de vida media de 400 ps correspondería a un ancho a altura mitad de 1,4 GHz según la relación (2.109) (la cual se aplica ya que se verifica la condición (2.112a), reemplazando L_{SR}/\tilde{v} por el tiempo de tránsito, que según vimos más arriba, es infinito en nuestra muestra). Sin embargo, los anchos a altura mitad experimentales resultan ser del orden de 2,1 GHz. La línea espectral se encuentra entonces ensanchada por la resolución experimental.

El procedimiento alternativo que seguiremos para hallar el tiempo de vida media τ consistirá en calcular la señal de bombeo-sondeo para diferentes valores de τ y comparar luego con las trazas temporales experimentales. La incorporación del tiempo de vida media en los cálculos se realiza de la forma descrita en la sección 2.4.4. Para efectuar la comparación tomaremos alguna de las muestras estudiadas; analizaremos en particular la muestra 3 (en la sección siguiente veremos los cálculos para todas las muestras). La Fig. 3.9(a) presenta los datos experimentales (curva negra) junto con trazas calculadas para diferentes valores del tiempo de vida media τ , indicados a la derecha de cada espectro en unidades de picosegundos, incluido $\tau = \infty$. Este último caso nos permite verificar la conclusión extraída anteriormente del análisis de la velocidad del paquete de ondas generado y del tiempo de tránsito de ida y vuelta a lo largo de la muestra, a saber, que el tiempo de permanencia de los fonones en la región de detección es muy superior al tiempo de medición. Vemos de la figura, que la curva que mejor compara con los datos experimentales es la correspondiente a $\tau = 400$ ps. La comparación con las curvas calculadas con $\tau = 300$ ps y $\tau = 500$ ps no resultan significativamente menos satisfactorias, por lo que asignaremos al valor de τ una barra de error de 100 ps, es decir, $\tau = (400 \pm 100)$ ps. Para las restantes muestras se obtienen valores de τ dentro del mismo rango. Generalizaremos entonces el valor de $\tau = (400 \pm 100)$ ps para las ocho muestras estudiadas.

En cuanto al cálculo para configuraciones no degeneradas, la única diferencia consiste en que se debe calcular la función de detección para un haz de sondeo que incide sobre la superred opuesta a la del haz de bombeo. Para el cálculo de $G(\omega)$ y la inclusión del factor $e^{-t/\tau}$, se procede de forma idéntica al caso degenerado. Los resultados obtenidos en la configuración en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme se presentan en la Fig. 3.9(b), para diferentes valores de τ . Observamos que el valor $\tau = (400 \pm 100)$ ps da en este caso un decaimiento demasiado rápido respecto del experimental. Las curvas correspondientes a τ entre 600 y 800 ps parecen comparar mejor con la traza experimental. Empleando el mismo error relativo que en el caso degenerado, asignaremos a la vida media en configuración no degenerada el valor $\tau = (700 \pm 180)$ ps. Cabe aclarar que para las demás muestras se encuentran valores de τ en el mismo rango, al igual que para la otra configuración no degenerada (con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred con gradiente). Generalizaremos, por lo tanto, el valor de $\tau = (700 \pm 180)$ ps para las ocho muestras y las dos configuraciones no degeneradas.

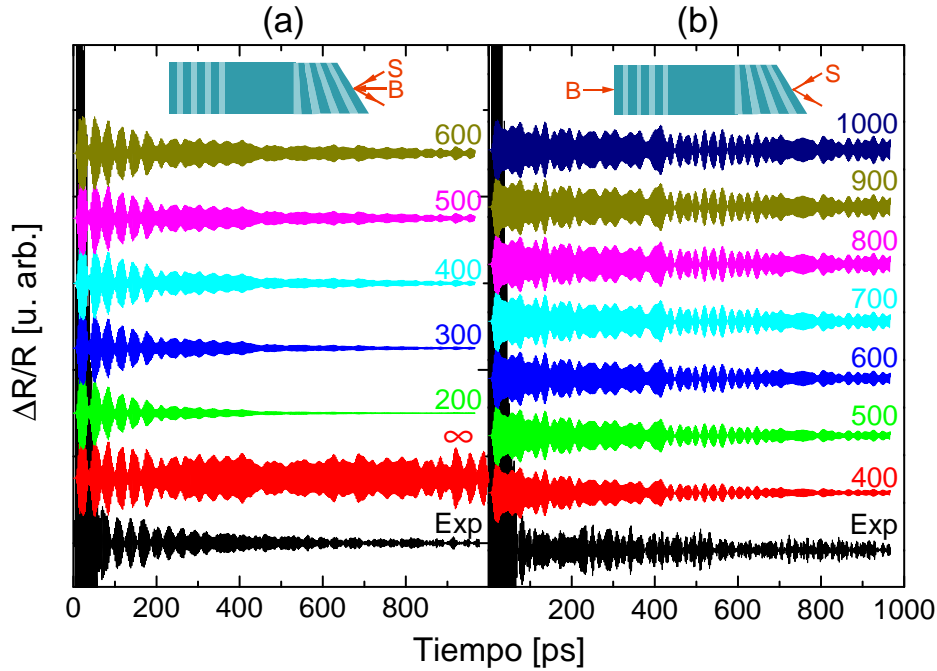


Figura 3.9: Comparación entre trazas temporales calculadas para diferentes tiempos de decaimiento (dados en unidades de picosegundos a la derecha de cada curva) y la curva experimental filtrada numéricamente (indicada “Exp”). Cálculos y experimentos refieren a la muestra 3. (a) Configuración en la que los haces de bombeo y de sondeo inciden sobre la superred con gradiente. (b) Configuración en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme y el haz de sondeo sobre la superred con gradiente.

Resulta llamativa la diferencia en la vida media entre las dos configuraciones, principalmente cuando notamos que para las muestras en las que no existe optimización del acuerdo espectral de las funciones de generación y de detección, es decir, en todas excepto en la muestra 7, la señal está dominada por la detección indirecta (veremos más adelante que ésta predomina sobre la generación indirecta ya que aporta una contribución de mayor amplitud). En ese caso, el experimento en configuración no degenerada parece ser equivalente al de la configuración degenerada, puesto que tanto la generación como la detección tienen lugar en una misma superred, la superred de bombeo. Sin embargo, al considerar posibles mecanismos de dispersión de los fonones que den cuenta de la vida media, surgen diferencias entre una y otra configuración. El haz de bombeo crea portadores fotoexcitados al ser absorbido por la muestra. La densidad de portadores es más elevada en la región de incidencia del pulso de bombeo (la densidad de portadores sigue aproximadamente el perfil decreciente del campo eléctrico en la muestra si se desprecia la difusión electrónica). Esto constituye una asimetría entre las configuraciones degenerada y no degenerada, puesto que la dispersión de los fonones con los electrones puede inducir diferencias en la vida media en uno y otro caso. En la configuración degenerada los fonones detectados se encuentran en una zona de elevada densidad de portadores, por lo que se observa un tiempo de vida media más corto. En la configuración no degenerada los fonones detectados se encuentran alejados de la región de alta densidad de portadores, por lo que su vida media resulta más larga.

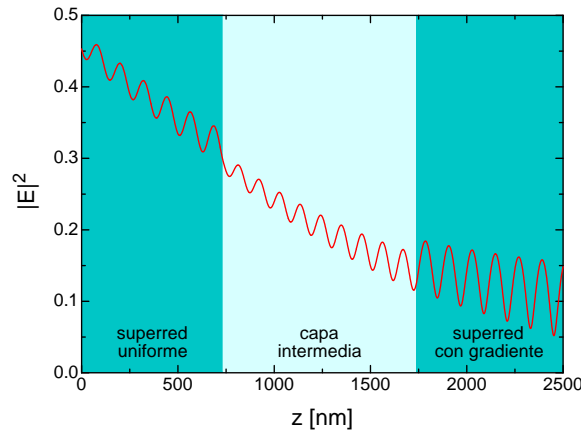


Figura 3.10: Perfil del cuadrado del módulo del campo eléctrico a lo largo de la muestra. La amplitud del campo incidente es igual a 1.

Para poner a prueba la hipótesis mencionada hemos efectuado el cálculo de la traza temporal para las dos configuraciones, asignando un tiempo de vida media $\tau(z)$ dependiente de la posición en la muestra. Hemos asumido una dependencia

$$\tau^{-1}(z) = \alpha |E_b(z)|^2 + \tau_0^{-1}, \quad (3.1)$$

donde α es una constante y τ_0 es la contribución a la vida media determinada por otro tipo de interacciones (fonón-fonón, fonón-defectos, etc.). El perfil del campo eléctrico a lo largo de la muestra se presenta en la Fig. 3.10. Ajustamos los parámetros α y τ_0 de modo de lograr que los cálculos para ambas configuraciones reproduzcan el decaimiento de la señal en ambas configuraciones. Hemos encontrado que los parámetros $\alpha = 0,008 \text{ ps}^{-1}$ (para un campo eléctrico incidente de amplitud igual a 1) y $\tau_0 = 2200 \text{ ps}$ logran un buen acuerdo con el experimento, según se observa en la Fig. 3.11 (los datos se refieren a la muestra 3). Evaluando la expresión (3.1) en el punto medio de cada una de las superredes, z_{SRU} para la superred uniforme y z_{SRG} para la superred con gradiente, se obtiene $\tau(z_{\text{SRU}}) = 302 \text{ ps}$ y $\tau(z_{\text{SRG}}) = 701 \text{ ps}$. Estos valores se encuentran en acuerdo con los hallados más arriba.

Si bien la hipótesis de un tiempo de vida media dependiente de la intensidad del campo eléctrico resulta razonable y es posible hallar parámetros que ajusten los cálculos a los datos experimentales, este es sólo un primer modelo sencillo para abordar el tema. No estamos en condiciones de afirmar, por ejemplo, que la contribución τ_0 al tiempo de vida media dada por decaimientos por vía no electrónica tenga un valor de 2200 ps, puesto que hemos ajustado dos curvas con dos parámetros. Corroboraciones experimentales adicionales serían necesarias. Creemos que resultaría de interés efectuar mediciones sistemáticas del tiempo de vida media en función de la potencia del haz de bombeo. Desde el punto de vista del cálculo, un tratamiento más profundo del tema debería incluir la difusión de los portadores. A su vez, la vida media debería estar contenida en constantes elásticas complejas, cuya parte imaginaria dependería de la densidad de portadores en

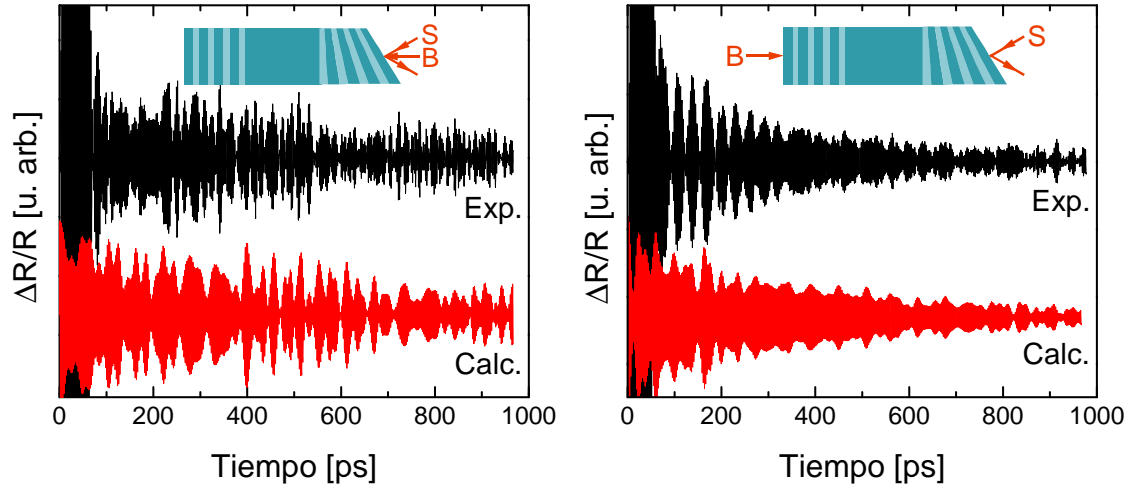


Figura 3.11: Comparación entre trazas temporales experimentales y las calculadas con una vida media dependiente de la posición según la relación $\tau^{-1}(z) = \alpha|E_b(z)|^2 + \tau_0^{-1}$. Los parámetros empleados son $\alpha = 0,008 \text{ ps}^{-1}$ (para un campo eléctrico incidente de amplitud igual a 1) y $\tau_0 = 2200 \text{ ps}$. Los datos se refieren a la muestra 3. Izquierda: configuración degenerada. Derecha: configuración no degenerada con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme.

cada capa.

Para los cálculos que siguen retomaremos el modelo de la sección 2.4.4 para la inclusión del tiempo de vida media. Es decir, adoptaremos el valor $\tau = 400 \text{ ps}$ para la configuración degenerada y $\tau = 700 \text{ ps}$ para la no degenerada, independientemente de la posición z a lo largo de la muestra. Esta elección se justifica en que el tiempo de cálculo se reduce de manera considerable¹, y los resultados obtenidos de esta forma o a partir de la ec. (3.1) no son significativamente diferentes.

3.3.2.b. Penetración de la luz: efecto Fabry-Pérot

Hemos observado que la amplitud tanto de las trazas temporales de la Fig. 3.5 como de los espectros de la Fig. 3.6 no son uniformes a lo largo del gradiente, ni parecen seguir un comportamiento predecible. Por ejemplo, en configuración degenerada se tiene señal máxima en los trozos 1 y 6, y señal mínima en los trozos 4, 5, y 7. Como veremos, este efecto tiene que ver con la transparencia de la muestra y con su tamaño total finito. La muestra actúa como una lámina delgada para los haces de bombeo y de sondeo. Las reflexiones en las caras anterior y posterior de la muestra dan condiciones de interferencia constructiva o destructiva según el espesor total de la muestra. Como éste varía con el gradiente, pasamos de una condición a otra a lo largo de la muestra.

Este efecto, que denominaremos *efecto Fabry-Pérot*, tiene implicancias distintas para

¹Al considerar una vida media dependiente de la posición, las integrales de las expresiones (2.59) y (2.85) no presentan resolución analítica. Debe recurrirse a la integración numérica, lo cual incrementa significativamente el tiempo de cálculo.

los mecanismos de generación y detección. El primero será más eficiente en el caso que la distribución del campo eléctrico dé un máximo de intensidad dentro de la muestra. Esto puede comprenderse de la ec. (2.59) (un análisis de este fenómeno puede encontrarse en la Ref. [67]). En cambio, dado que la detección se realiza a través de la variación en la reflectividad del haz de sondeo (inducida por la variación en el índice de refracción debido a la presencia de las vibraciones), el mecanismo será más eficiente en la condición en la que la derivada de la reflectividad respecto del índice de refracción sea máxima. Estas dos condiciones por lo general no coinciden. A su vez, como la señal experimental está dividida por R , los mínimos de R en función del gradiente darán máximos de $\Delta R/R$.

En lo que sigue nos proponemos analizar más formalmente lo que acabamos de enunciar, y sobre todo evaluar si el orden de magnitud del gradiente de espesores de la muestra es compatible con una explicación vía el efecto Fabry-Pérot de las irregularidades en la intensidad de la señal de bombeo-sondeo en función del gradiente.

Para ello vamos a simplificar el problema reduciendo la muestra a una tricapa, es decir, aproximaremos cada superred por una sola capa de espesor igual a su espesor total. Llamaremos n_1 , n_2 y n_3 los índices de refracción de cada una de las capas. Consideraremos una configuración degenerada en la que los haces inciden sobre la capa 1 que corresponderá a la superred con gradiente. El cambio en la reflectividad del haz de sondeo, independientemente de la estructura de la muestra, está dado por

$$\Delta R = 2\Re(r_0)\Re(\Delta r) + 2\Im(r_0)\Im(\Delta r), \quad (3.2)$$

siendo $r = r_0 + \Delta r$, r_0 el coeficiente de reflectividad de la muestra en ausencia de vibraciones, Δr la contribución de las vibraciones, y $R = |r|^2$. Asumiremos que el haz de sondeo sólo sondea la capa 1 sobre la cual incide, y que por lo tanto, el cambio en la reflectividad de la muestra, Δr , se debe a la variación de n_1 inducida por las vibraciones, es decir,

$$\Delta r = \left. \frac{\partial r}{\partial n_1} \right|_0 \Delta n_1, \quad (3.3)$$

donde el subíndice 0 en la evaluación de la derivada corresponde a la situación en ausencia de vibraciones. Δn_1 contiene la distribución de deformaciones $\eta = \partial u / \partial z$ presente en la muestra y la constante fotoelástica p_1 de la capa 1 a través de la relación

$$\Delta n_1 = \frac{p_1 \eta}{2n_{1,0}}, \quad (3.4)$$

donde $n_{1,0}$ indica el índice de refracción de la capa 1 en ausencia de vibraciones.

En el caso de la tricapa es posible hallar el coeficiente r de manera analítica en función de los índices de refracción n_1 , n_2 y n_3 , de los espesores d_1 , d_2 y d_3 de las capas, y de la longitud de onda λ . Despreciaremos en principio la absorción de la luz, de modo

que los índices de refracción son cantidades reales. Más adelante incluiremos los efectos de la absorción. Al exterior de la tricapa tomaremos $n = 1$. Ahorraremos al lector la forma funcional explícita de r_0 , ya que es extensa y no permite una lectura directa. Nos bastará con su representación gráfica. En la Fig. 3.12 presentamos los resultados para r_0 utilizando $\lambda = 800$ nm (como en el experimento) y valores de índices de refracción compatibles con los de la muestra real, empleando valores medios para las capas 1 y 3 que representan las superredes. Los espesores d_2 y d_3 también se corresponden con los de la muestra, siendo d_2 el espesor de la capa intermedia de GaAs, y d_3 el espesor total de la superred uniforme. El espesor d_1 se dejó como variable del cálculo, expresándolo como $d_1 = \tilde{d}_1 + \delta$, donde \tilde{d}_1 es el espesor total de la superred con gradiente en el centro de la plaqueta (743 nm). En la figura, r_0 se grafica en función de δ , para un rango que contiene los valores correspondientes a los de los 8 trozos estudiados. Éstos se indican en la figura mediante las líneas grises verticales. Vemos que la curva de reflectividad presenta máximos y mínimos, definiendo modos de tipo Fabry-Pérot. Esto no es más que lo esperable para una lámina delgada. El resultado relevante reside en que el gradiente de espesores es lo suficientemente importante como para que las variaciones en la reflectividad sean apreciables a lo largo de la muestra. Cada trozo de la muestra encuentra condiciones de r_0 , $\left. \frac{\partial r}{\partial n_1} \right|_0$ y amplitud del campo eléctrico diferentes. La primera se refleja en la normalización (es decir, en la división de ΔR por R), la segunda, en la eficiencia para la detección, y la tercera, en la eficiencia para la generación. Es entonces esperable que la amplitud de la señal de bombeo-sondeo varíe de trozo a trozo de la muestra. Sin embargo, es necesario tomar el recaudo de considerar los resultados de la Fig. 3.12 como una aproximación al problema real, dado que los valores empleados para los diferentes parámetros (espesores, índices de refracción de las capas, y el índice de refracción del medio en el que se encuentra la muestra, principalmente del lado de la muestra pegado a la placa de zafiro) posiblemente difieran de los reales. De todas formas, la conclusión respecto del orden de magnitud del gradiente de espesores sigue siendo válida.

Queremos ahora calcular $\Delta R/R$. Reemplazando (3.4) en (3.3) y (3.3) en (3.2), y suponiendo que $\Delta n_1 \in \mathbb{R}$ (las conclusiones no se verían sustancialmente afectadas si tomásemos $\Delta n_1 \in \mathbb{C}$) tenemos

$$\Delta R = \left[2\Re(r_0) \frac{\partial \Re(r)}{\partial n_1} \Big|_0 + 2\Im(r_0) \frac{\partial \Im(r)}{\partial n_1} \Big|_0 \right] p_1 \frac{\eta}{2n_{1,0}}. \quad (3.5a)$$

$$\Delta R = \gamma \eta. \quad (3.5b)$$

En la última igualdad hemos agrupado el corchete de (3.5a), la constante fotoelástica y $n_{1,0}$ en la cantidad γ . De esta forma separamos las contribuciones a ΔR provenientes de los procesos de generación y de detección. γ representa la función de detección para el caso de la tricapa, mientras que la eficiencia en la generación queda plasmada en la amplitud

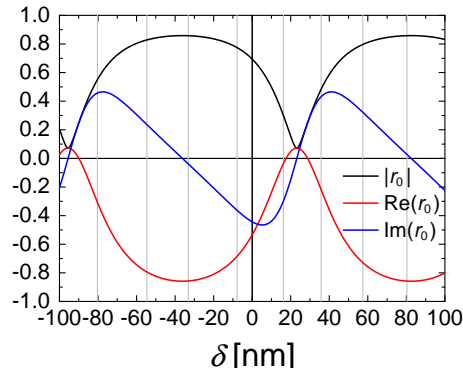


Figura 3.12: Coeficiente de reflexión de una tricapa inmersa en el vacío en función del espesor de la capa sobre la que incide la luz. Este espesor se expresa como la suma de un espesor medio y de una cantidad δ . El espesor para el cual $\delta = 0$ se asigna al centro de la plaqueta de la muestra estudiada (743 nm). Las líneas grises indican los valores de δ correspondientes a los 8 trozos analizados, con la numeración 1 a 8 de derecha a izquierda.

de η , el campo de deformaciones generado por el pulso de bombeo.

De la expresión que obtuvimos para $r(n_1, n_2, n_3, d_1, d_2, d_3, \lambda)$ (que no explicitamos), podemos hallar las derivadas de la ec. (3.5a) y graficar γ en función de δ (tomaremos p_1 independiente del espesor). El resultado se representa mediante la curva roja de la Fig. 3.13(a). Vemos que la detección tiene eficiencia máxima en los máximos y mínimos de dicha curva, mientras que es nula en los cruces por 0, los cuales algunos coinciden con los modos ópticos de la lámina delgada. En cuanto a la eficiencia del proceso de generación, podemos tener una medida de la amplitud de η a partir de la intensidad del campo eléctrico E_1 en la capa 1 (ver ec. (2.59)). Si expresamos el campo eléctrico en la capa j como dos ondas propagándose en sentidos opuestos $E_j = A_j e^{ik_j z} + B_j e^{-ik_j z}$, y exigimos que se satisfagan las condiciones de continuidad del campo electromagnético en las superficies entre capas, es sencillo calcular analíticamente las amplitudes A_1 y B_1 . Si bien no resulta exacto, la suma $|A_1|^2 + |B_1|^2$ nos dará una buena medida de la eficiencia de generación. El resultado se muestra en la Fig. 3.13(a) con la curva verde. Como es de esperar, la amplitud del campo eléctrico (en la capa 1 y en toda la muestra en general) es máximo en los modos ópticos de la lámina delgada, lo cual no coincide con las condiciones de máxima eficiencia de detección. Finalmente, la última contribución a $\Delta R/R$ que resta por analizar es la inversa de la reflectividad, la cual se grafica en la Fig. 3.13(a) mediante la curva azul. Vemos que la forma funcional del producto de las tres curvas estará dominada por $1/|r_0|^2$, lo cual se confirma en la Fig. 3.13(b) que presenta el producto, es decir $\Delta R/R$ (curva negra). Según la figura, el efecto Fabry-Pérot daría diferencias de varios órdenes de magnitud entre las señales provenientes de las distintas muestras (las muestras se identifican con las líneas grises de la figura). Esto no resulta así debido a la absorción de la luz en la muestra. La curva roja de la Fig. 3.13(b) exhibe el cálculo de $\Delta R/R$ teniendo en cuenta la absorción de la luz, utilizando coeficientes de absorción compatibles

con los de la muestra real ($\Im m(n_1) = \Im m(n_3) = 0,070$, $\Im m(n_2) = 0,094$). Observamos que la señal varía en un 115 % de su valor medio al recorrer los diferentes trozos de la muestra. Corresponde aclarar que esta variación del 115 % depende fuertemente de los valores empleados para los índices de refracción de las capas, tanto de la parte real como de la imaginaria, los cuales no conocemos con exactitud. Hemos encontrado, por ejemplo, variaciones del 45 % empleando otro conjunto de valores. De cualquier manera, la conclusión relevante consiste en que el orden de magnitud de la variación se encuentra en acuerdo con las variaciones observadas experimentalmente (ver Fig. 3.5).

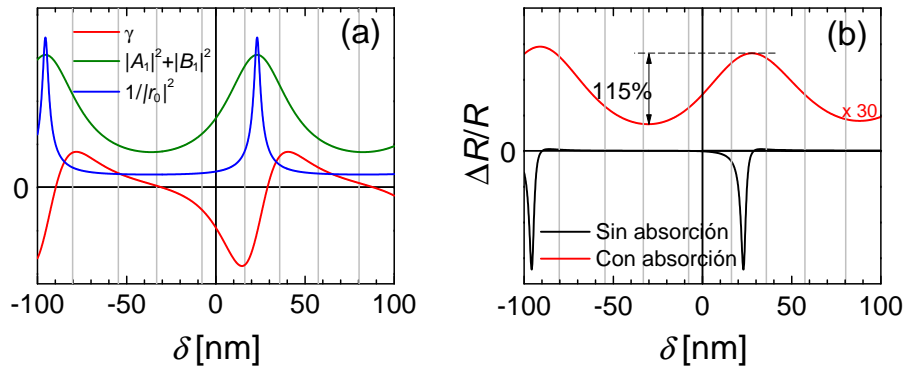


Figura 3.13: (a) Dependencia funcional respecto de δ de los tres factores cuyo producto da $\Delta R/R$. γ representa la eficiencia de detección, $|A_1|^2 + |B_1|^2$, la eficiencia de generación, y $1/|r_0|^2$, el factor de normalización. (b) Dependencia funcional de $\Delta R/R$ calculada sin y con absorción óptica. En (a) y (b) las líneas grises indican los valores de δ correspondientes a los 8 trozos analizados, con la numeración 1 a 8 de derecha a izquierda.

Habiendo discutido los conceptos involucrados en el efecto Fabry-Pérot, pasemos ahora al análisis de la muestra real. Nos centraremos en la configuración no degenerada con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme, ya que es en la que hemos encontrado un aumento considerable de la señal de bombeo-sondeo para algún punto del gradiente (el trozo 7). Hemos efectuado los cálculos de $\Delta R/R$ según el procedimiento general descrito en la sección 2.4. Las características distintivas del cálculo que han sido necesarias para simular el experimento de bombeo-sondeo sobre esta muestra en particular son:

- El cómputo de los modos normales de la estructura, considerando condiciones de contorno adecuadas a nuestra muestra: condición de desplazamiento nulo en la superficie muestra/zafiro y de tensión nula en la superficie muestra/aire.
- El cálculo de los campos electromagnéticos de bombeo y de sondeo en cada una de las capas de la nanoestructura, teniendo en cuenta particularmente la reflexión en el extremo opuesto al de incidencia (y en todas las interfaces).
- La inclusión de un decaimiento exponencial de la población de fonones empleando la vida media obtenida en la sección anterior (400 y 700 ps para las configuraciones degenerada y no degenerada, respectivamente).

Los parámetros utilizados se listan en las Tablas B.1 y B.2.

Los resultados se muestran en la Fig. 3.14(b). Comparando con los datos experimentales (panel (a)) observamos que el aspecto general de las trazas temporales es satisfactorio. En particular, el orden de magnitud de la variación de la amplitud de las trazas calculadas a lo largo del gradiente se corresponde con lo observado experimentalmente.

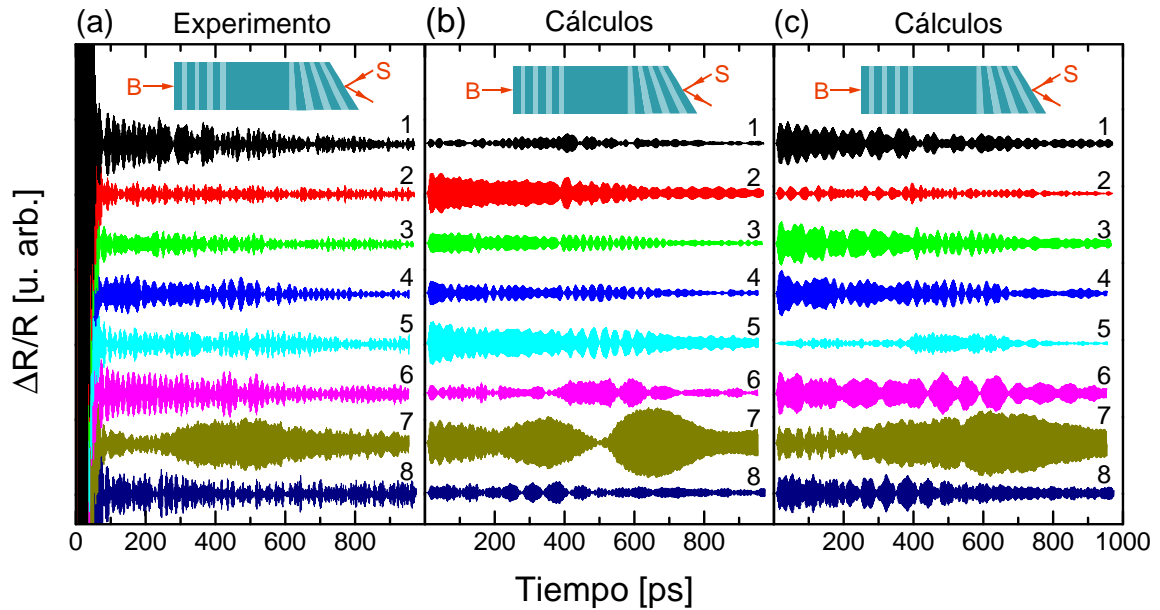


Figura 3.14: Comparación cálculo/experimento de las trazas temporales para la configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme. (a) Resultados experimentales (reproducción de la Fig. 3.5(a)). (b) Cálculos de $\Delta R/R$ obtenidos a partir de los parámetros de la Tabla B.2. (c) Cálculos de $\Delta R/R$ reduciendo en un 8,4% los índices de refracción de las capas de GaAs respecto de los valores de la tabla.

Vale enfatizar que hemos verificado la importancia del cálculo preciso del campo eléctrico para dar cuenta de la variación de la amplitud de la señal en función del gradiente. Si realizamos el cálculo fijando un campo eléctrico efectivo consistente en una onda plana propagándose a lo largo de la muestra (con amplitud exponencialmente decreciente para dar cuenta de la absorción), es decir, si descartamos las reflexiones ópticas en las superficies entre capas y sobre todo en las caras de la muestra, la amplitud de la señal obtenida no varía en función del gradiente, excepto evidentemente para la muestra 7, donde la variación se debe al acuerdo espectral generación/detección. Esto demuestra que las variaciones de amplitud de la señal bombeo-sondeo, más allá de la contribución que surge de un mayor o menor acuerdo espectral entre generación y detección, se debe a la penetración de la luz y al hecho de que la muestra se comporta como una lámina delgada.

Retornando a la comparación entre cálculo y experimento, si bien, como dijimos, el orden de magnitud de la variación en la amplitud de las trazas calculadas es satisfactorio, las posiciones de los máximos y mínimos de amplitud respecto del gradiente difieren sustancialmente de las experimentales. Otra discrepancia se destaca en la muestra 7 y la

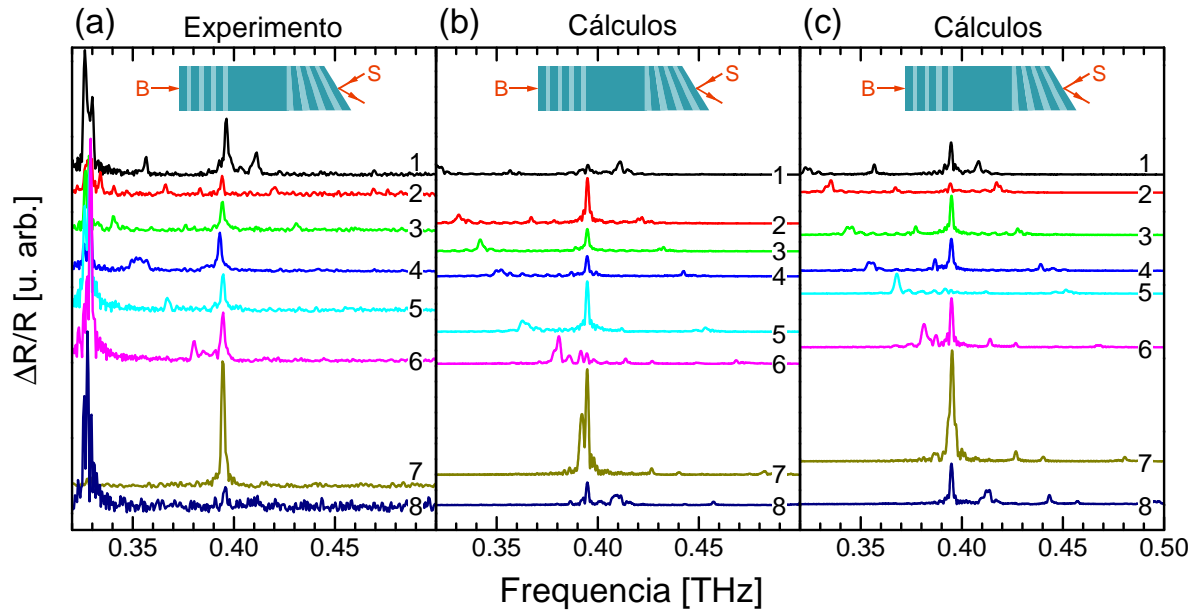


Figura 3.15: Comparación cálculo/experimento para la configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme. (a) Resultados experimentales (reproducción de la Fig. 3.5(a)). (b) Cálculos de $\Delta R/R$ obtenidos a partir de los parámetros de la Tabla B.2. (c) Cálculos de $\Delta R/R$ reduciendo en un 8,4% los índices de refracción de las capas de GaAs respecto de los valores de la tabla.

forma del pulso de fonones, la cual presenta dos “lóbulos” en lugar de uno. Para identificar el origen de tales diferencias calculamos el espectro de las trazas temporales de la Fig. 3.14(b). Al igual que se hizo con los datos experimentales, la ventana temporal de la transformada de Fourier se restringió a $t > 200$ ps. Los resultados se exhiben en la Fig. 3.15(b) (el panel (a) muestra los datos experimentales). Se observa que la línea espectral de la muestra 7 aparece desdoblada en dos picos, lo que da origen al doble lóbulo de la traza espectral. El desdoblamiento del pico en dos habla de un cierto desacuerdo entre el modo de generación de la superred uniforme y el de detección de la superred con gradiente, es decir, el grado de acuerdo obtenido en el cálculo es menor que el del experimento.

Existen dos posibles causas. La primera podría consistir en un error en el período de cualquiera de las dos superredes, ya que el período determina la energía de la banda acústica prohibida de centro de zona y, consecuentemente, la posición espectral tanto del modo de generación como de los de detección. La segunda podría asignarse a valores incorrectos de la parte real de los índices de refracción (en lo que sigue, obviaremos la aclaración *parte real* ya que únicamente nos referiremos a dicha cantidad). El índice de refracción medio n de una superred determina el vector de onda de los modos de detección ($q = 2k_s = 4\pi n/\lambda_s$), y conjuntamente, su posición espectral. Cabe aclarar que ni los espesores ni los índices de refracción son parámetros que conozcamos con exactitud. El período de las superredes fue deducido de las posiciones espectrales de los picos experimentales, bajo ciertas asunciones (ver pág. 173). En cuanto al índice de refracción de cada capa, los mismos fueron deducidos de valores correspondientes a materiales masivos. Sin embargo,

en las superredes, los índices de refracción de las capas delgadas pueden diferir sustancialmente de los valores masivos. Si bien para las capas de GaAs (pozos cuánticos) hemos tomado ciertos recaudos con el fin de tener en cuenta la energía de confinamiento a la hora de deducir el índice de refracción a partir de los valores masivos (ver pág. 175), los valores así obtenidos no son más que una estimación. Para discernir entre ambas hipótesis, basta con analizar los picos de $q = 0$, ya que sus posiciones espectrales son independientes del índice de refracción, y sólo dependen del período de cada una de las superredes (y de las velocidades del sonido, pero éstas son cantidades mejor conocidas). La posición del modo de generación de la superred uniforme en los espectros de la Fig. 3.15(b) coincide con la de los espectros experimentales, dentro de la pequeña dispersión que existe entre los mismos. Esto indica que el período de la superred uniforme utilizado en los cálculos es válido. Para evaluar si lo propio ocurre en el caso de la superred con gradiente, repetimos el cálculo pero en las configuraciones (degenerada y no degenerada) en las que el haz de bombeo incide sobre la superred con gradiente. Se encontró un buen acuerdo entre las posiciones espectrales del modo de generación calculado y experimental, en cada uno de los trozos de la muestra. Por lo tanto, descartamos un error en los períodos como posible causa del inexacto acuerdo espectral entre generación y detección en los espectros calculados para la muestra 7, y el consecuente lóbulo doble en la traza temporal.

Queda entonces el índice de refracción como única explicación del leve desacuerdo espectral. Entre los índices de las diferentes capas que componen la muestra (citados en la Tabla B.2), aquellos que pueden llegar a diferir en mayor medida de los valores reales que nos son desconocidos son los de las capas delgadas de GaAs, ya que el confinamiento cuántico modifica la estructura de bandas electrónicas y altera en consecuencia las propiedades ópticas del material. Por ende, hemos explorado un entorno de los valores de n_{GaAs} (parte real del índice de refracción de las capas delgadas de GaAs) tomados inicialmente para los cálculos. Hemos encontrado que una reducción del 8,4 % en todas las muestras mejora el acuerdo espectral y elimina el doble lóbulo. Los espectros así calculados se presentan en la Fig. 3.15(c). Vemos que la comparación con los datos experimentales (exhibidos en el panel (a)) resulta satisfactoria. Las trazas temporales calculadas con los nuevos valores de n_{GaAs} se exhiben en la Fig. 3.14(c). No solamente se observa un lóbulo único, sino también un acuerdo global más satisfactorio de la variación de la amplitud de las señales en función del gradiente debida al efecto Fabry-Pérot.

Empleando los nuevos valores de los índices de refracción, hemos calculado también las trazas temporales y espectros correspondientes a las restantes configuraciones. Las primeras se muestran en la Fig. 3.16: la configuración degenerada en el panel (a), la configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme en el panel (b) (este panel repite la Fig. 3.14(c)), y la configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred con gradiente en el panel (c). Las Figs. 3.17(a), 3.17(b) y 3.17(c) presentan las respectivas transformadas de Fourier. Tanto en las

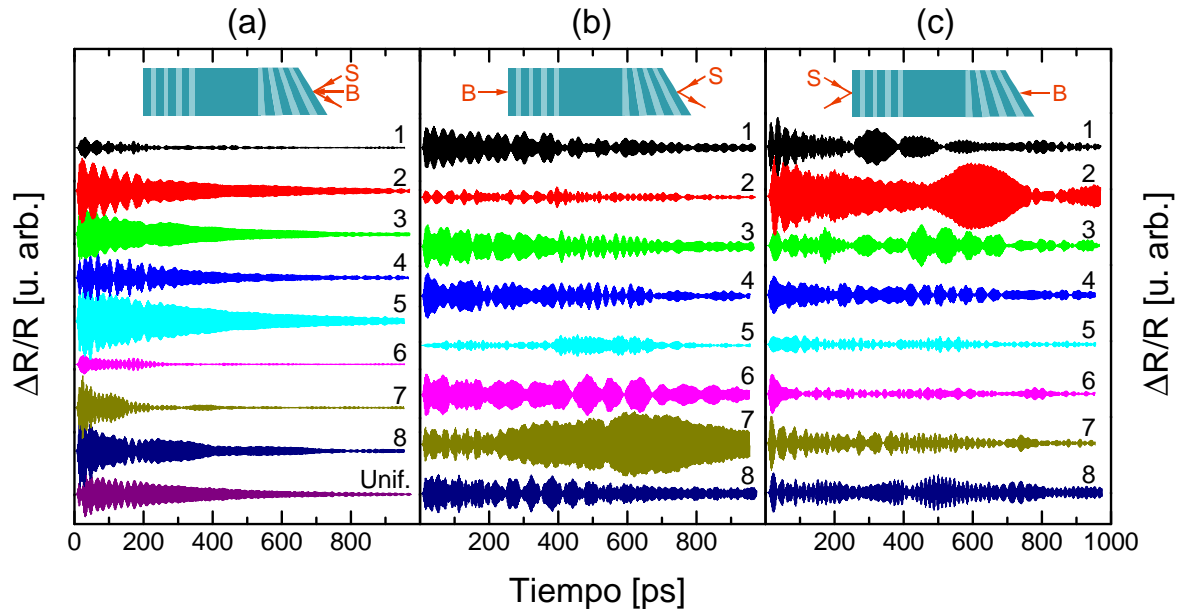


Figura 3.16: Cálculos de $\Delta R/R$ para las configuraciones esquematizadas en cada panel. Los parámetros empleados son los de la Tabla B.2, con los índices de refracción de las capas delgadas de GaAs disminuidos en un 8,4%. (a) Configuraciones degeneradas. (b) Configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme. (c) Configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred con gradiente.

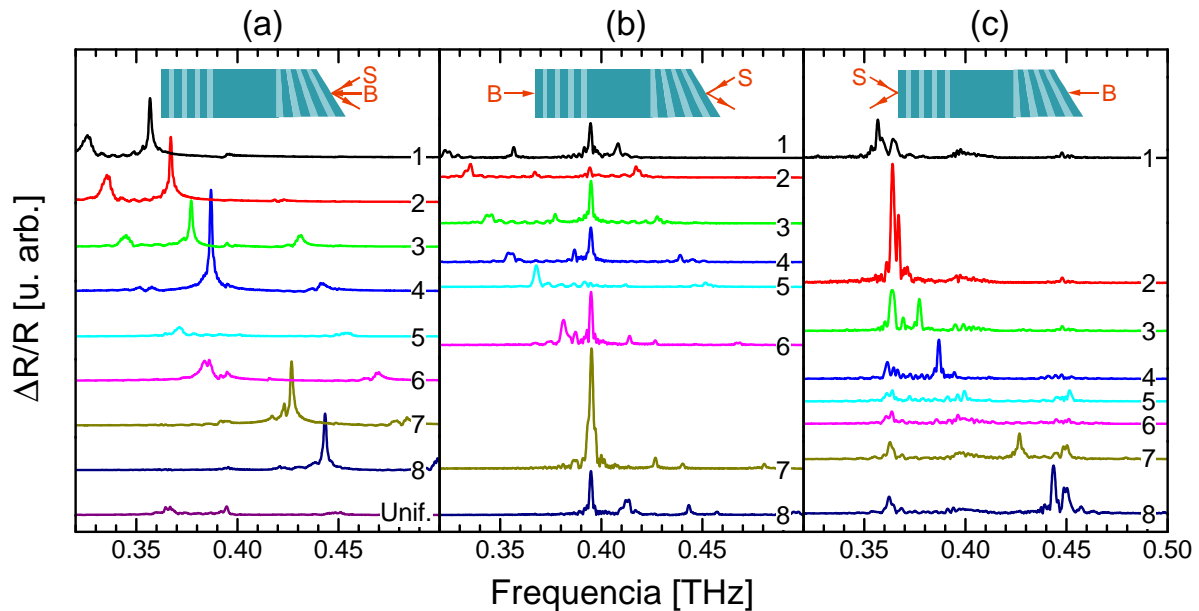


Figura 3.17: Transformadas de Fourier de las trazas temporales calculadas. Los parámetros empleados son los de la Tabla B.2, con los índices de refracción de las capas delgadas de GaAs disminuidos en un 8,4%. (a) Configuraciones degeneradas. (b) Configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred uniforme. (c) Configuración no degenerada en la que el haz de bombeo incide sobre la superred con gradiente.

trazas temporales como en las transformadas de Fourier, la comparación de los paneles (a) y (c) con los resultados experimentales (ver Figs. 3.5 y 3.6) también resulta favorable.

El acuerdo resulta tal vez menos preciso que en el caso del panel (b). En particular, la variación de la amplitud respecto del gradiente debida al efecto Fabry-Pérot resulta menos fiel a los datos experimentales en la configuración degenerada. En cuanto a la forma del pulso de fonones de las trazas 1 y 2 de la configuración no degenerada, si bien el cálculo reproduce las características principales de las trazas experimentales, lo cual se refleja en un buen acuerdo a nivel de las transformadas de Fourier, se distinguen diferencias cuando se consideran los detalles de las trazas. Hemos explorado más ampliamente el espacio de parámetros utilizados en los cálculos. En particular, hemos tenido en cuenta variaciones en las constantes de generación y fotoelásticas, que son los parámetros menos conocidos. También estudiamos un entorno de los valores de la parte imaginaria del índice de refracción, que si bien fueron deducidos de mediciones de reflectividad y transmisión de las muestras, dichas mediciones brindan una cota superior al coeficiente de absorción (toda luz dispersada por imperfecciones en las superficies de las muestras que no llega al detector pasa a incrementar el coeficiente de absorción deducido de las mediciones). No hemos encontrado un conjunto de parámetros que otorgue una comparación global cálculo/experimento para todas las configuraciones más satisfactoria de la que hemos presentado.

Vale mencionar la importancia de las condiciones de borde en los extremos de la muestra impuestas en el cálculo de los modos normales de la estructura. Recordamos que hemos tomado condición de tensión nula en el extremo de la muestra que se encuentra en contacto con el aire, y condición de desplazamiento nulo en el extremo en contacto con la plaqueta de zafiro. En efecto, de fijar condiciones de tensión nula en ambos extremos, no nos fue posible encontrar cálculos satisfactorios, principalmente desde el punto de vista de la forma del lóbulo del pulso de fonones en la traza temporal de la muestra 7. De todas formas, es posible que la condición de desplazamiento nulo tampoco sea exacta. A su vez, en los cálculos asumimos que el coeficiente de reflectividad de los fonones tiene módulo 1 en ambos lados de la muestra. Hsieh y colaboradores han demostrado que el coeficiente de reflectividad difiere de la unidad debido a irregularidades en las superficies de la muestra, aunque no existe forma sencilla de acceder a un valor más preciso de dicho coeficiente [119]. La condición de borde constituye entonces una posible hipótesis que explicaría la imposibilidad de encontrar un conjunto de parámetros que brinden entre cálculo y experimento comparaciones simultáneamente satisfactorias para todas las configuraciones.

En lo que sigue, nos concentraremos en la configuración no degenerada con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme, es decir, en aquella donde el acuerdo espectral entre la generación y la detección es máximo. Dado que los parámetros que empleamos para los cálculos exhibidos más arriba (Tabla B.2 con una reducción del 8,4% del valor de n_{GaAs}) reproducen razonablemente bien los resultados experimentales para esta configuración, nos manejaremos de aquí en más con dichos valores.

3.3.2.c. Penetración de la luz: acoplamiento óptico entre superredes

Las secciones anteriores nos han permitido encontrar valores numéricos o validar valores propuestos de los diferentes parámetros físicos que determinan la señal de bombeo-sondeo: la vida media de los fonones y las propiedades físicas de cada capa (espesor, velocidad del sonido, índice de refracción, etc.). Hemos demostrado además la relevancia de considerar adecuadamente las condiciones de contorno tanto acústicas como electromagnéticas para dar cuenta de los resultados experimentales. Contamos así con una reproducibilidad razonablemente confiable de la señal experimental a partir del cálculo, que nos permitirá llevar a cabo un análisis cuantitativo del fenómeno de optimización por solapamiento espectral generación/detección, e individualizar las diferentes contribuciones a la amplitud de la señal. Nos proponemos en la presente sección extraer una medida cuantitativa de la optimización de la señal y comprender el origen del valor que obtengamos. Al igual que en las secciones precedentes, esto se realizará en comparación detallada con el cálculo. Veremos que el factor de optimización, que definiremos en breve, se encuentra altamente afectado por una segunda consecuencia de la penetración de la luz, diferente del efecto Fabry-Pérot, de la que ya hemos hecho en parte mención: la detección indirecta en la superred de bombeo. Si bien esto ya ha sido comentado más arriba, analizaremos en esta sección el fenómeno desde el punto de vista cuantitativo y comprenderemos la particular importancia de la detección indirecta dada por *interferencia* del haz incidente y el haz reflejado.

Para definir el factor de optimización f nos situaremos en el dominio espectral. A partir de las transformadas de Fourier de la señal experimental que graficamos en la Fig. 3.6(b), definiremos el factor de optimización como el cociente entre la amplitud del pico de generación en el espectro 7 (espectro optimizado) y la amplitud del pico de generación promediada sobre los restantes espectros de la figura (espectros no optimizados), exceptuando la traza 8. Otra posible definición sería dividir la amplitud del pico de generación del espectro 7 sobre la amplitud mínima de dicho pico en los restantes espectros (el mínimo ocurre en el espectro 2), en lugar de tomar el valor medio. Optamos por la primera definición dado que resulta más adecuada al momento de comparar con los cálculos, pues hemos visto en la sección anterior que los mismos reproducen satisfactoriamente el aspecto global de los espectros experimentales, pero fallan en algunos detalles. Es por ello que el valor medio dará una medida más confiable que el valor del mínimo, a la hora de realizar comparaciones cuantitativas.

El factor de optimización experimental obtenido a partir de la definición que acabamos de dar es $f = 3,8$. Este valor coincide en los espectros calculados (Fig. 3.15(c)). Podemos decir que se trata de un factor un tanto modesto, por debajo de lo que justificaría el empleo de una estructura de doble superred como método de amplificación de la señal. Si bien el aspecto positivo es que la Fig. 3.6(b) demuestra el principio que nos propusimos estudiar (la optimización de la señal por acuerdo espectral generación/detección), desde

el punto de vista cuantitativo, la magnitud de la amplificación de la señal no resulta satisfactoria. Sin embargo, no debemos olvidar que en el transcurso del análisis hemos ido encontrando diferentes factores extrínsecos a la idea original -fenómenos de generación y de detección indirecta, efecto Fabry-Pérot- que han demostrado modificar la señal de manera no menor. Nos preguntamos entonces si estos factores externos resultan decisivos a la hora de determinar el factor de amplificación. En el cálculo contamos con la posibilidad de eliminar cada uno de estos factores y emular qué es lo que sucedería si estuvieran ausentes.

Comenzamos entonces anulando los fenómenos indirectos. Para eliminar la generación indirecta en la superred con gradiente tomaremos un valor nulo de la constante de generación en dicha superred ($K_{\text{SRG}} = 0$). Los resultados de los cálculos, para la configuración no degenerada con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme, se presentan en la Fig. 3.18(a). Observamos que los espectros prácticamente coinciden con los de la Fig. 3.17(b), que fueron calculados tomando la constante de generación de las capas de GaAs de la superred de detección igual a 1. La única diferencia reside en que en los nuevos espectros no se observa el débil modo de generación de la superred de sondeo que sí se distingue en la Fig. 3.17(b) (picos señalados con triángulos). Esto se debe, naturalmente, a que hemos anulado la posibilidad de generar fonones en la superred de sondeo. En cuanto al factor de amplificación, su valor sigue siendo el mismo de la Fig. 3.17(b), $f = 3,8$.

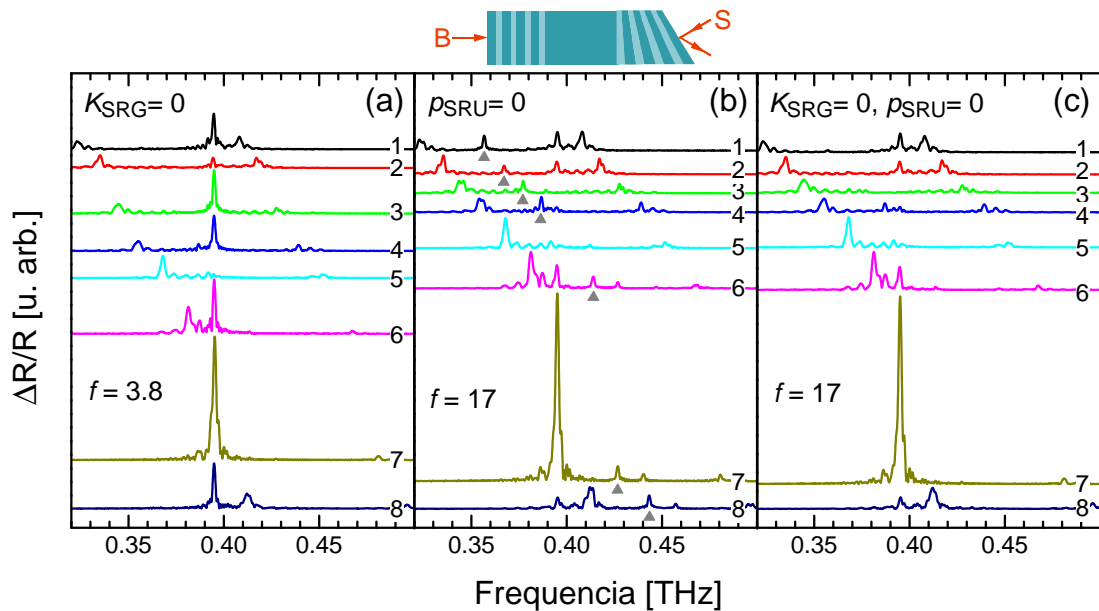


Figura 3.18: Cálculos de la señal de bombeo-sondeo eliminando los fenómenos de generación y/o detección indirecta. (a) La generación indirecta es anulada tomando una constante de generación nula en las capas de GaAs de la superred de sondeo (superred con gradiente), es decir, $K_{\text{SRG}} = 0$. (b) La detección indirecta se anula tomando una constante fotoelástica nula en las capas de GaAs de la superred de bombeo (superred uniforme), es decir, $p_{\text{SRU}} = 0$. Los triángulos indican el débil pico correspondiente al modo de generación de la superred de sondeo. (c) Ambos fenómenos indirectos se eliminan combinando los parámetros de (a) y (b). En (a), (b) y (c), f denota el factor de amplificación. En todos los cálculos las constantes de generación y fotoelástica de las capas de AlAs de ambas superredes se han supuesto nulas.

Para eliminar la detección indirecta, basta con tomar una constante fotoelástica en la superred uniforme, p_{SRU} , igual a 0 (retomando los valores usuales de la constante de generación en la superred con gradiente: 1 en las capas de GaAs y 0 en las de AlAs). Los resultados se muestran en al Fig. 3.18(b). El factor de amplificación ha aumentado drásticamente a 17. Esto indica que el mismo está altamente afectado por la detección indirecta de fonones en la superred de bombeo, originada por la penetración del haz de sondeo en la muestra. En la Fig. 3.18(c) los espectros han sido calculados anulando simultáneamente la generación indirecta y la detección indirecta, es decir, tomando $K_{\text{SRG}} = 0$ y $p_{\text{SRU}} = 0$. El resultado es difícilmente distinguible del panel (b), afirmando que efectivamente la generación indirecta en la superred de sondeo no aporta alteraciones sustanciales a los espectros.

¿A qué se debe esta asimetría entre generación indirecta y detección indirecta? ¿Por qué la generación indirecta no manifiesta consecuencias significativas en el factor de amplificación? En principio, cabe aclarar que no es posible imaginar una situación en la que uno de los fenómenos indirectos ocurra (la detección indirecta, por ejemplo) y el otro no (la generación indirecta). El origen de ambos fenómenos es la absorción incompleta de la luz en la superred sobre la cual cada haz incide y en la capa de GaAs intermedia. Ambos haces -de bombeo y de sondeo- tienen la misma longitud de onda, y los espesores de los pozos cuánticos de las superredes no difieren sustancialmente como para que sus propiedades de absorción óptica sean significativamente diferentes a la longitud de onda de medición (800 nm se encuentra en una región plana de la curva de absorción). Es por ello que si la detección indirecta tiene lugar, lo propio debe ocurrir con la generación indirecta, de la que por otro lado existe evidencia experimental dada por la observación de picos a las frecuencias correspondientes al modo de generación de la superred de sondeo, indicados con las flechas de la Fig. 3.6(b).

La respuesta, como veremos, reside en la selectividad espectral que cada uno de los fenómenos aporta. Para comprenderlo efectuaremos a continuación un análisis detallado de los procesos indirectos. Organizaremos la discusión en cuatro secciones: (i) Análisis de la detección indirecta, (ii) Análisis de la generación indirecta, (iii) Verificaciones en el dominio espectral, (iv) Verificaciones en el dominio temporal.

(i) Análisis de la detección indirecta

Al penetrar el haz de sondeo en la superred de bombeo (superred uniforme), la dependencia espectral de la función de detección se ve parcialmente modificada, pues la misma se hace sensible, no ya sólo a los modos de $q = 2k_s$ de la superred de sondeo, sino también a los modos de $q = 2k_s$ de la superred de bombeo. Sin embargo, esta no es la única modificación que sufre la función de detección. Remontémonos a la expresión (2.85) que determina su forma funcional. Rescribiéndola tenemos

$$D(\omega) \propto \int_0^L [E_s(z)]^2 \frac{du(z, \omega)}{dz} p(z) dz, \quad (3.6)$$

donde $E_s(z)$ es el campo eléctrico de sondeo dentro de la muestra, $u(z, \omega)$, el campo de desplazamientos asociado al modo normal de frecuencia ω , y $p(z)$, el perfil de constantes fotoelásticas a lo largo de la muestra de espesor total L . Partamos la integral en tres intervalos, correspondientes a z perteneciente a la superred de bombeo (uniforme), z perteneciente a la capa intermedia y, finalmente, z perteneciente a la superred de sondeo (con gradiente). El tercer término dará la contribución a $D(\omega)$ inicialmente prevista en el experimento, es decir, es la contribución que hace que $D(\omega)$ sea sensible a los modos $q = 2k_s$ de la superred de sondeo, lo que hemos dado en llamar la detección directa. La segunda contribución agregará una cierta sensibilidad al modo $q = 2k_s$ del GaAs masivo (la capa intermedia). Este es el modo Brillouin que se encuentra muy por debajo de la región de energía de interés de nuestro análisis, en el rango de los GHz, debido a la ausencia de bandas acústicas replegadas. En cuanto al primer término, es necesario analizar con cuidado el factor $[E_s(z)]^2$. Debido al contraste de índices de refracción en la interfaz muestra/aire, parte del haz de sondeo que ingresa a la superred de bombeo desde la capa intermedia de GaAs se ve reflejada en la superficie muestra/aire, retornando nuevamente hacia el interior de la superred de bombeo. Este fenómeno se esquematiza en la Fig. 3.19. Estimamos a partir de los índices de refracción empleados en los cálculos, que el 30 % de la energía que alcanza el extremo de la muestra se ve reflejada. Este campo eléctrico reflejado se suma al incidente. Para simplificar el análisis aproximaremos los campos eléctricos incidente y reflejado por ondas planas, y tomaremos un coeficiente de reflexión óptica r en la superficie muestra/aire. Tenemos entonces,

$$E_s(z) = E_s^0 e^{-ik_s z} + r E_s^0 e^{ik_s z}, \quad (3.7)$$

donde E_s^0 es la amplitud del campo eléctrico de sondeo que incide sobre la superred de bombeo. La expresión (3.6) requiere el cuadrado del campo eléctrico, es decir,

$$[E_s(z)]^2 = [E_s^0]^2 e^{-i2k_s z} + r^2 [E_s^0]^2 e^{i2k_s z} + 2r [E_s^0]^2. \quad (3.8)$$

Los dos primeros términos, al reemplazarlos en la expresión (3.6), dan los usuales picos en la función de detección correspondientes a modos de $q = 2k_s$, pero en este caso, y lo que es menos usual, se trata de modos de $q = 2k_s$ de la superred de bombeo. Las elipses verdes pequeñas de la Fig. 3.19 indican las porciones del haz de sondeo que dan origen a los términos primero y segundo de (3.8). El tercer término, al que podemos llamar término de interferencia entre los haces incidente y reflejado, es un término de vector de onda k nulo. En la Fig. 3.19, la elipse verde de mayor tamaño encierra los dos haces cuya interferencia da origen a este término. Al ingresarlo en la integral (3.6), selecciona entonces modos acústicos de vector de onda q también nulos. En otras palabras, este término hace que la

función de detección sea sensible al modo acústico de $q = 0$ de la superred de bombeo, ¡que es el mismo modo que es generado por el haz de bombeo! Gracias a la detección indirecta, la función de detección es sensible al *mismo* modo que es generado por el haz de bombeo. Se tiene entonces un cierto grado permanente de acuerdo generación/detección no previsto en el diseño inicial del experimento, originado en una detección espuria en la superred de bombeo, y que es por lo tanto totalmente independiente del gradiente de espesores en la superred de sondeo. Este es el responsable de la disminución del factor de amplificación a un valor de 3,8. Al eliminar la detección indirecta, como se hizo en los cálculos de la Fig. 3.18(b), el factor aumenta a 17, no gracias a los términos primero y segundo de la ec. (3.8), sino al tercero, de vector de onda nulo.



Figura 3.19: Esquema de la reflexión del haz de sondeo en la superficie muestra/aire. El grosor decreciente de la flecha que simboliza al haz emula cualitativamente la absorción de la luz en la muestra. La elipse azul indica la región de la muestra en la que la integral (3.6) devuelve picos en la función de detección correspondientes a los modos del doblete de $q = 2k_s$ de la superred con gradiente, denotados con las letras B y F en la Fig. 3.20. En la región de la superred uniforme las elipses verdes pequeñas destacan las componentes del campo eléctrico que dan los modos de $q = 2k_s$ de la superred de bombeo al incluir los dos primeros términos de la ec. (3.8) en la integral (3.6). Estos modos se indican con las letras C y G en la Fig. 3.20. La elipse verde de mayor tamaño encierra los haces cuya interferencia resulta en el tercer término de la expresión (3.8), el cual, al ser reemplazado en (3.6), hace que la función de detección resulte sensible al modo de $q = 0$ de la superred uniforme (pico E de la Fig. 3.20), el mismo modo que es generado por el haz de bombeo. Esta coincidencia entre las funciones de generación y de detección en la superred de bombeo es la responsable del débil factor de amplificación evidenciado experimentalmente.

Para entender aún mejor este fenómeno, analicemos alguno de los espectros en los que la intensidad del modo de $q = 0$ de la superred de bombeo varíe drásticamente entre las Figs. 3.17(b) y 3.18(b), es decir, entre el caso en que se tiene en cuenta la detección indirecta y el que no. Tomemos por ejemplo el espectro 4, para el cual el modo en cuestión tiene una amplitud apreciable en la Fig. 3.17(b) y se encuentra ausente en la Fig. 3.18(b). Hemos calculado por separado la función de generación y la función de detección, esta última para cada uno de los casos. Los resultados se presentan en la Fig. 3.20 (las curvas de generación y detección han sido desplazadas verticalmente para mayor claridad). La curva roja representa la función de generación. El pico denotado con la letra A constituye el modo de generación de la superred uniforme. En cuanto a las funciones de detección, la curva azul ha sido calculada con $p_{SRU} = 0$, mientras que la verde corresponde a $p_{SRU} = 1$. Las curvas son muy parecidas. Los picos denotados B y E constituyen el doblete de $q = 2k_s$ de la superred de sondeo, es decir, los modos *directos* de detección. En la Fig. 3.19 se destaca con la elipse azul la porción del haz de sondeo responsable de los picos B y E; naturalmente, esta región coincide con la superred con gradiente. Retornando a la Fig. 3.20, el pico D corresponde al modo de $q = 0$ de dicha superred. En principio no esperaríamos que tal pico apareciera en el espectro de detección; veremos en el párrafo

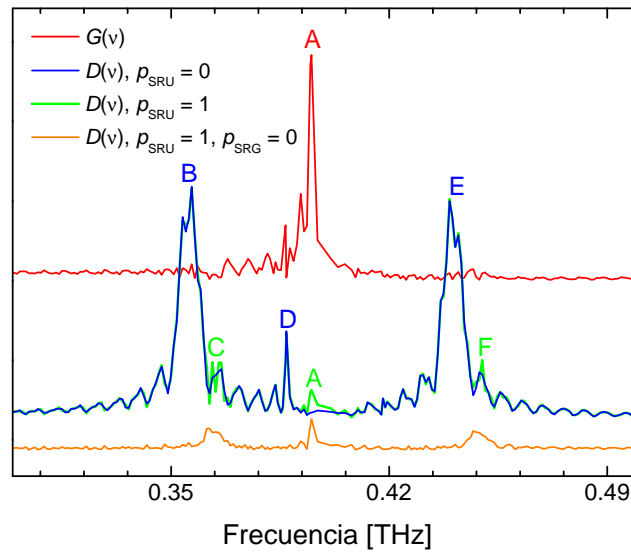


Figura 3.20: Cálculo de la función de generación $G(\nu)$ (curva roja) y de la función de detección $D(\nu)$ (curvas azul y verde). En la curva azul, la detección indirecta ha sido eliminada tomando una constante fotoelástica nula para las capas de GaAs de la superred uniforme ($p_{\text{SRU}} = 0$). La traza verde funciona como curva referencia, pues ha sido calculada con los parámetros usuales ($p_{\text{SRU}} = 1$). El resto de los parámetros empleados en todos los cálculos son los de las Tablas B.1 y B.2, con los índices de refracción (parte real) reducidos en un 8,4%. El pico indicado con la letra A corresponde al modo $q = 0$ de la superred de bombeo. Su presencia en la curva verde se debe a la interferencia en la región de la superred de bombeo de los haces incidente y reflejado de la luz de sondeo. Los picos B y E se asignan al doblete de $q = 2k_s$ de la superred de sondeo. Los picos C y F constituyen el mismo doblete, pero de la superred uniforme; su observación se debe a la penetración de la luz en la muestra. El pico D se identifica con el modo de $q = 0$ de la superred de sondeo; resulta observable gracias al fenómeno análogo al que permite la detección del modo A, pero que ocurre en la superred de sondeo. La curva naranja tiene la finalidad de identificar la contribución a la función de detección de la superred de bombeo, ha sido calculada anulando la constante fotoelástica en la superred con gradiente ($p_{\text{SRG}} = 0$). El origen de los picos B, C, E y F se esquematiza en la Fig. 3.19.

siguiente que su aparición se debe a razones similares a las que hacen surgir el pico A en el espectro de detección. La aparición del pico A constituye la principal diferencia entre las curvas azul y verde. Se encuentra presente cuando se toma $p_{\text{SRU}} = 1$ y ausente en el caso $p_{\text{SRU}} = 0$. Como adelantamos más arriba, la reflexión de la luz de sondeo en la superficie muestra/aire genera un término de interferencia entre los haces incidente y reflejado, el tercer término de la ec. (3.8), que, por tener vector de onda nulo, hace que la función de detección resulte sensible al modo de generación de la superred de bombeo. En la Fig. 3.19, el origen del pico A está indicado con la elipse verde de mayor tamaño. Retornando a la Fig. 3.20, las restantes diferencias entre las curvas azul y verde reside en los picos denotados C y F. Los mismos corresponden al doblete de $q = 2k_s$ de la superred uniforme, que tienen por origen a los términos primero y segundo de la ecuación (3.8). Tal vez, de la comparación de las curvas azul y verde no quede del todo claro que estos picos están efectivamente presentes en la curva verde, ya que la curva azul presenta oscilaciones en torno de los picos B y E (debidas al tamaño finito de la superred), y justamente, dos de estas oscilaciones coinciden con los picos C y F. Para disipar las dudas, hemos calculado

la función de detección únicamente para la superred de bombeo, es decir, tomando una constante fotoelástica nula en la superred con gradiente ($p_{\text{SRG}} = 0$). El resultado se grafica mediante la curva naranja. Efectivamente, vemos que los picos C y F están presentes en el espectro, al igual, como era de esperar, que el pico A.

Nos resta profundizar sobre el origen del pico D de la Fig. 3.20. Recordemos que se trata del modo de $q = 0$ de la superred de sondeo. Esto puede verificarse al notar que también está presente en la función de generación (curva roja) de la misma figura. Si bien dicho pico no tiene gran relevancia en los espectros, ni contribuye al factor de amplificación ya que se encuentra a una energía diferente de la del modo de generación de la superred de bombeo, es interesante comprender su origen. Cuando un modo de $q = 0$ aparece en una función de detección, la argumentación desarrollada más arriba nos hace pensar en luz reflejada, y en su interferencia con el haz incidente, dando un término de vector de onda nulo, como el tercero de la ec. (3.8). Este es efectivamente el origen del pico D: la interferencia en la región de la superred de detección entre el haz de sondeo incidente y el haz que se refleja en el extremo opuesto de la muestra y regresa hasta dicha superred.

Centremos ahora la discusión en el factor de amplificación. Si bien el pico A aparece con una intensidad débil en la función de detección, el hecho de que se encuentre presente basta para incrementar el acuerdo espectral entre la generación y la detección en todas las muestras, independientemente del gradiente de espesores y de la sintonización de los modos directos. De esa forma, al multiplicar las funciones de generación y de detección para obtener la señal de bombeo-sondeo, el factor de amplificación se ve disminuido. Por otra parte, el tiempo de vida media de los fonones también contribuye a decrecer aún más el factor de amplificación. No debe olvidarse que los fenómenos indirectos tienen lugar a partir de $t = 0$, mientras que los fenómenos directos comienzan a $t \sim 200$ ps. A lo largo de este intervalo temporal la población de fonones decae en un factor $e^{-200/\tau(\text{ps})}$. Este decaimiento se traduce en un peso superior para la contribución a la señal dada por fenómenos indirectos respecto del peso de aquella proveniente de fenómenos directos. Los efectos combinados de sensibilidad de la función de detección al modo de $q = 0$ de la superred de bombeo y de decaimiento de la población de fonones reducen el factor de amplificación de 17 -valor que se obtendría de sintonizar los modos directos, contemplando el decaimiento de los fonones- a 3,8. Cabe aclarar que el incremento del factor de amplificación al eliminar la detección indirecta no se debe a un aumento del pico en el espectro 7 sino a una disminución del modo de $q = 0$ de la superred de bombeo en los restantes espectros, dado que la función de detección deja de tener un pico en dicho modo, y la detección se hace únicamente en forma directa a través del modo $q = 2k_s$ de la superred de sondeo, según estaba previsto inicialmente en el diseño del experimento. Podemos afirmar entonces que el valor 17 corresponde al genuino factor de amplificación del experimento, dado por la optimización del acuerdo espectral entre la función de generación de la superred de bombeo y la función de detección de la superred de sondeo. Ocurre que la detección indirecta agrega una suerte de “señal de fondo” que enmascara el fenómeno de

sintonización que nos propusimos estudiar, reduciendo el factor de amplificación medido a 3,8. Resulta necesario entonces recurrir al cálculo para eliminar esta señal de fondo y aislar la componente proveniente de los fenómenos directos. Gracias al alto grado de acuerdo entre los resultados experimentales y el cálculo (cálculo que incluye tanto fenómenos directos como indirectos), estamos en condiciones de confiar en este último para asignar un factor de amplificación de 17 a la sintonización del modo de generación de la superred de bombeo y el de detección de la superred de sondeo.

(ii) Análisis de la generación indirecta

En principio, el mismo fenómeno de reflexión descrito más arriba para el haz de sondeo tiene lugar en la superficie muestra/zafiro para el haz de bombeo. Analicemos qué consecuencias inscribe esta reflexión en la función de generación. Retomemos la expresión (2.59) que determina su forma funcional

$$G(\omega) \propto \int_0^L |E_b(z)|^2 \frac{du(z, \omega)}{dz} K(z) dz, \quad (3.9)$$

Nuevamente podemos separar la integral en tres, una para z perteneciente a la superred de bombeo, otra para z perteneciente a la capa intermedia, y la tercera para z perteneciente a la superred de sondeo. La primer integral brinda el modo de generación directo, es decir, el modo de $q = 0$ de la superred de bombeo. La segunda integral dará una contribución a energía nula, debido a la ausencia de bandas acústicas replegadas en la relación de dispersión de un material masivo. La tercer integral es la que nos interesa. Al igual que ocurre con el haz de sondeo, el de bombeo también se refleja en el extremo de la muestra, en este caso se trata de la superficie muestra/zafiro (despreciando la capa delgada de pegamento). Este fenómeno se esquematiza en al Fig. 3.21. Al aproximar los haces incidente y reflejado por ondas planas, el módulo cuadrado del campo eléctrico de bombeo en la superred de sondeo toma la forma

$$|E_b(z)|^2 = |E_b^0 e^{ik_b z} + r E_b^0 e^{-ik_b z}|^2 \quad (3.10)$$

$$= |E_b^0|^2 (1 + |r|^2 + r e^{-i2k_b z} + r^* e^{i2k_b z}). \quad (3.11)$$

Los dos primeros términos de la ec. (3.11) brindan, al ser reemplazados en la integral (3.9), el pico en la función de generación a la energía del modo $q = 0$ de la superred de sondeo. La porción del haz de bombeo incidente y reflejado correspondientes a estos términos están indicados con las elipses celestes pequeñas de la Fig. 3.21. Los dos últimos términos de (3.11), que podemos asignar a la interferencia entre los haces incidente y reflejado, son responsables, al incluirlos en (3.9), de la generación de fonones de vector de onda $q = 2k_b$. Esto resulta en una función de generación sensible a los mismos modos que son detectados por el haz de sondeo (en caso que la longitud de onda de ambos haces sea



Figura 3.21: Esquema de la reflexión del haz de bombeo en la superficie muestra/aire. El grosor decreciente de la flecha que simboliza al haz emula cualitativamente la absorción de la luz en la muestra. La elipse roja indica la región de la muestra en la que la integral (3.9) devuelve el pico en la función de detección correspondientes al modo de $q = 0$ de la superred uniforme, denotado con la letra A en la Fig. 3.22. En la región de la superred con gradiente las elipses celestes pequeñas destacan las componentes del campo eléctrico que dan los modos de $q = 0$ de la superred de sondeo al incluir los dos primeros términos de la ec. (3.11) en la integral (3.9). Este modo se indica con la letra D en la Fig. 3.22. La elipse celeste de mayor tamaño encierra los haces cuya interferencia resulta en los términos tercero y cuarto de la expresión (3.11), los cuales, al ser reemplazados en (3.9), hacen que la función de generación resulte sensible al doblete de $q = 2k_b$ de la superred con gradiente.

la misma). La elipse celeste mayor de la Fig. 3.21 encierra los haces cuya interferencia da lugar a los términos tercero y cuarto de la expresión (3.11), y la consecuente sensibilidad de la función de generación a los modos de detección de la superred con gradiente.

Analicemos ahora cómo se refleja la discusión del párrafo anterior en los espectros de generación y de detección. Para ello, resulta útil calcular las funciones de generación y de detección eliminando la generación indirecta, es decir, asignando un valor nulo a la constante de generación en la superred de sondeo ($K_{\text{SRG}} = 0$)², y comparar con el caso que tiene en cuenta la generación indirecta ($K_{\text{SRG}} = 1$). Los resultados se presentan en la Fig. 3.22. La curva azul corresponde a la función de detección. Las funciones de generación (curva negra: sin generación indirecta; curva roja: con generación indirecta) no parecen mostrar mayores diferencias. El pico A corresponde al modo de $q = 0$ de la superred de bombeo (continuamos con la misma nomenclatura de picos de la Fig. 3.20). El pico D constituye el modo de $q = 0$ de la superred de sondeo, presente en el espectro gracias a los dos primeros términos de la expresión (3.11). Para verificar que efectivamente no existan diferencias entre las curvas, lo cual iría en contra a lo argumentado en el párrafo anterior, calculamos la contribución a la función de generación dada únicamente por la superred de sondeo. Para ello, anulamos el coeficiente de generación de la superred uniforme, dejando un valor de K distinto de 0 sólo en la superred con gradiente. La curva celeste representa el resultado del cálculo. Observamos, además del pico D, dos picos débiles, B y E, a las energías correspondientes al doblete $q = 2k_b (= 2k_s)$. Esta es la evidencia de que la generación indirecta efectivamente tiene lugar, aunque su intensidad, comparativamente con el intenso modo de $q = 0$ de la superred de bombeo, es prácticamente despreciable. Sin embargo, no hay que olvidar que todavía restaría incluir el peso de cada uno de los procesos de generación, directo e indirecto, dado por la vida media de los fonones. El primero tiene un factor $e^{-200/\tau(\text{ps})}$ de desventaja respecto del segundo debido al tiempo de tránsito de los fonones a través de la capa intermedia. De todas formas, incluso si la intensidad del

²El símbolo K_{SRG} se refiere a la constante de generación de las capas de GaAs en la superred con gradiente; para las capas de AlAs siempre se toma $K = 0$

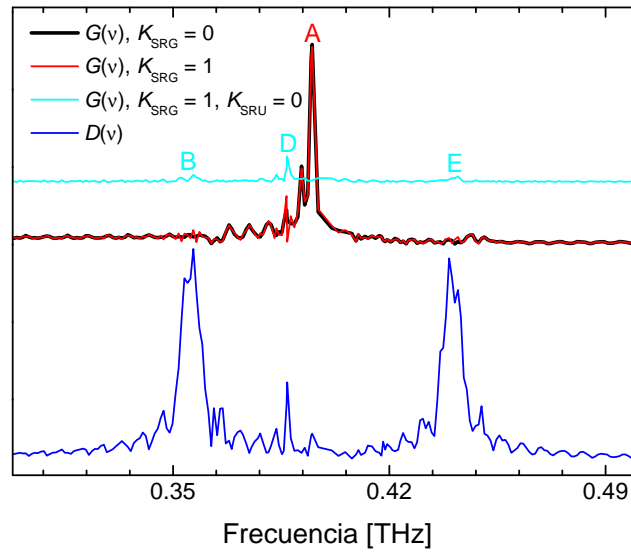


Figura 3.22: Cálculo de la función de generación $G(\nu)$ (curvas negra y roja, superpuestas una con otra) y de la función de detección $D(\nu)$ (curva azul). En la curva negra la generación indirecta ha sido eliminada tomando una constante de generación nula para las capas de GaAs de la superred con gradiente ($K_{\text{SRG}} = 0$). La traza roja funciona como curva referencia, pues ha sido calculada con los parámetros usuales ($K_{\text{SRG}} = 1$). El pico indicado con la letra A corresponde al modo $q = 0$ de la superred de bombeo. Los picos B y E se asignan al doblete de $q = 2k_b$ ($= 2k_s$) de la superred de sondeo; su presencia se debe a la interferencia de los haces incidente y reflejado de la luz de bombeo. El pico D se identifica con el modo de $q = 0$ de la superred de sondeo; resulta observable gracias a la penetración de la luz en la muestra. La curva celeste tiene la finalidad de identificar la contribución a la función de generación de la superred de sondeo, ha sido calculada anulando la constante de generación en la superred uniforme ($K_{\text{SRU}} = 0$). El origen de los picos A, B, D y E se encuentra esquematizado en la Fig. 3.21.

fenómeno indirecto fuese más importante, las modificaciones que introduce en la función de generación ocurren a una energía que no coincide con el modo de generación de la superred de bombeo, excepto en la muestra 7. Por lo tanto, la generación indirecta apunta en el sentido de incrementar el factor de amplificación, ya que refuerza la sensibilidad de la función de generación al modo de $q = 2k_b$ de la superred de sondeo, coincidiendo éste con el modo $q = 0$ de la superred de bombeo únicamente en la muestra 7. Sin embargo, las modificaciones introducidas por la generación indirecta en la función de generación son mínimas, según se observa en la Fig. 3.22, y el factor $e^{-200/\tau(\text{ps})}$ que reduce la generación directa respecto de la indirecta no logra contrarrestar la baja intensidad de esta última.

Concluimos entonces que el registro experimental de un factor de amplificación de 3,8 en lugar del valor de 17 se debe al fenómeno de detección indirecta. Si quisiese obtenerse experimentalmente el factor 17 sin tener que extraerlo sirviéndose del cálculo, debería pensarse en eliminar la penetración de la luz o su reflexión en las caras de la muestra. Ésto último podría lograrse depositando capas antireflectantes³. La dificultad en ese caso surge en que debe prestarse especial cuidado a las modificaciones que dichas capas introducen

³La capa antireflectante debe tener un espesor igual a un cuarto de la longitud de onda de la luz en el material y su índice de refracción debe ser igual a la raíz cuadrada del índice medio de la superred sobre cuya cara se deposita. Como en general no se cuenta con un material de índice adecuado, suelen utilizarse bicapas o tricapas, lo que también permite aumentar la banda de longitudes de onda ópticas reflejadas. En general suele emplearse materiales dieléctricos de elevado índice de refracción como el TiO_2 .

en los modos acústicos de las superredes. La penetración de la luz podría eliminarse ya sea utilizando una longitud de onda que sea más fuertemente absorbida, de modo que la luz no penetre hasta la segunda superred, o empleando una capa intermedia de GaAs de mayor espesor. Esta última es la estrategia que hemos elegido para la muestra B, y que trataremos más adelante.

(iii) Verificaciones en el dominio espectral

Hemos afirmado que la disminución del factor de amplificación se debe al acoplamiento óptico entre las superredes debido a la penetración de la luz, pero principalmente a interferencia entre los haces incidente y reflejado de sondeo al encontrarse con la superficie muestra/aire. Una forma de verificarlo consiste en eliminar dicha reflexión, lo cual puede emularse asignando un índice de refracción al aire igual al índice de refracción promedio de la superred de bombeo. De esta forma se elimina la reflexión del haz de sondeo que regresa hacia el interior de la muestra y que interfiere con el haz incidente. Las constantes de generación y de detección empleadas en el cálculo han sido las usuales, es decir, $K_{\text{SRG}} = 1$ y $p_{\text{SRU}} = 1$. Los resultados se presentan en la Fig. 3.23(b). Los espectros así obtenidos son prácticamente idénticos a los de la Fig. 3.18(b), la cual se reproduce en el panel (a) de la Fig. 3.23 para facilitar la comparación. Evidentemente, se obtiene un factor de amplificación también igual ($f = 17$). Esta coincidencia indica que la reducción a 3,8 del factor de amplificación se debe efectivamente a la sensibilidad al modo de $q = 0$ de la superred uniforme originada en dicha superred por la interferencia del haz de sondeo al reflejarse en la superficie muestra/aire. Como última verificación, hemos llevado a cabo el cálculo de los espectros eliminando el término de interferencia en el campo eléctrico de sondeo, es decir, ignorando el tercer término en la expresión (3.8) del cuadrado del campo eléctrico en el cómputo de la integral (3.6). El resultado se exhibe en la Fig. 3.23(c). La gran similitud con los paneles (a) y (b), es una confirmación más de lo argumentado respecto de la influencia de la interferencia en el factor de amplificación.

(iv) Verificaciones en el dominio temporal

Por último, resta analizar las implicancias de los fenómenos indirectos en la evolución temporal de la señal de bombeo-sondeo. En la sección 3.3.1, al analizar las trazas temporales experimentales (Fig. 3.5), argumentamos que la observación de señal a partir de $t = 0$ en las configuraciones no degeneradas se debía a los fenómenos indirectos. Nos proponemos ahora verificar dicha afirmación a partir de los cálculos. En la Fig. 3.24 se muestran las trazas temporales calculadas para la configuración no degenerada con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme. En el panel (a) se ha eliminado la generación indirecta fijando una constante de generación nula en la superred con gradiente. Observamos que las trazas no difieren notablemente de las calculadas con $K_{\text{SRG}} = 1$ (ver Fig. 3.16(b)), únicamente puede decirse que las trazas de la Fig. 3.24 presentan menos batidos, lo cual se debe a la ausencia de los modos que aporta la generación indirecta. La

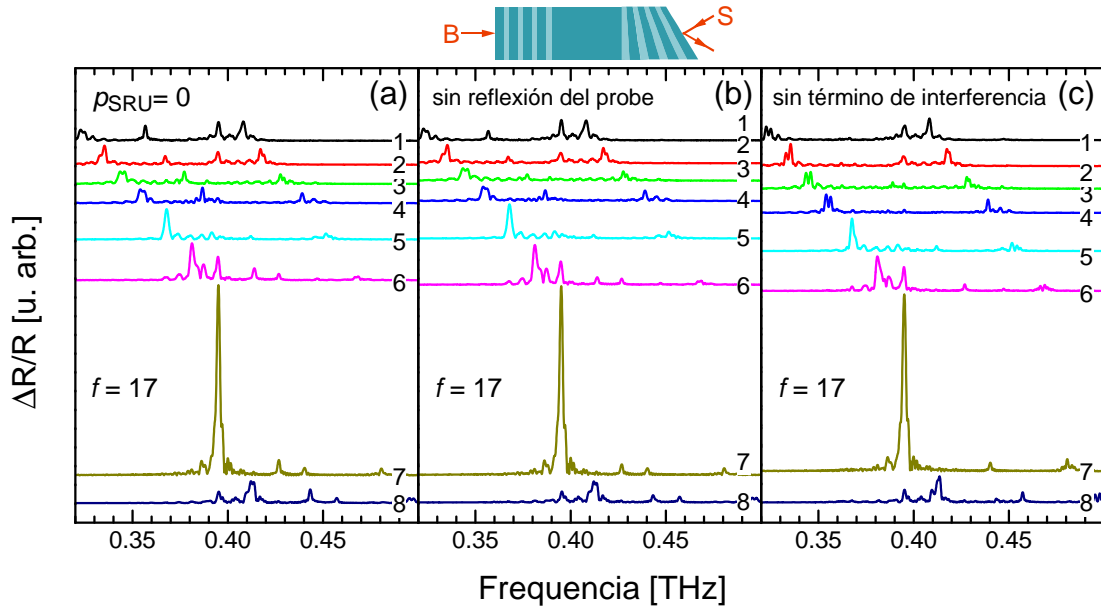


Figura 3.23: Espectros calculados eliminando la detección indirecta mediante diferentes artilugios. (a) Anulando la constante de detección de la superred uniforme (este panel reproduce la Fig. 3.18(b)). (b) Eliminando la reflexión del haz de sondeo. Para ello se asigna al aire el mismo índice de refracción que el índice medio de la superred de bombeo. (c) Despreciando el término de interferencia, es decir, el tercer término de la expresión (3.8) en la integral (3.6). En los tres casos se obtienen espectros muy similares y el mismo factor de amplificación.

señal calculada comienza a partir de $t = 0$ debido a la detección indirecta. La Fig. 3.24(b) presenta el cálculo que elimina en este caso la detección indirecta, asignando una constante fotoelástica nula a la superred uniforme. Dos puntos saltan a la vista. El primero consiste en que la única señal cuantitativamente importante es la correspondiente a la muestra 7, es decir, aquélla para la cual el acuerdo espectral entre la generación y la detección directas se encuentra optimizado. Esto demuestra que, anulada la detección indirecta, la señal está compuesta por la débil contribución de la generación indirecta -única contribución existente durante el intervalo $0 < t < 200$ ps- y luego de $t = 200$ ps, se agrega también la señal de generación y detección directas, que es de baja intensidad en las muestras 1 a 6 y 8 debido al desacuerdo espectral. La comparación de los paneles (a) y (b) es el correlato en el dominio temporal del incremento del factor de amplificación a 17 cuando se descarta la detección indirecta. En las curvas del panel (b) se elimina la “señal de fondo” que enmascara el real valor cuantitativo de la sintonización espectral entre generación y detección. Esto permite depurar el fenómeno que nos propusimos demostrar de factores extrínsecos a la idea original, ligados a la absorción incompleta de la luz. El segundo hecho consiste en que la traza temporal 7 comienza a un tiempo $t \simeq 200$ ps, es decir, luego de transcurrido el tiempo necesario para que los fonones atraviesen la capa intermedia de GaAs. Esto demuestra que la señal de detección indirecta es efectivamente la única responsable de la observación de señal a partir de $t = 0$ cuando dicho fenómeno indirecto es tenido en cuenta. Finalmente, la corroboración más fehaciente de la afirmación anterior

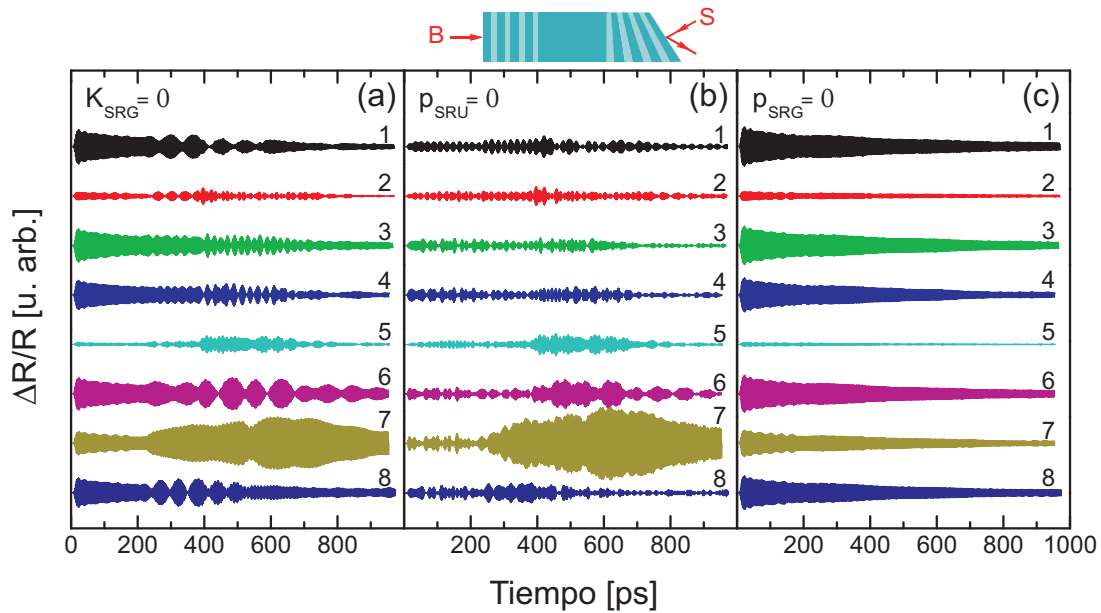


Figura 3.24: Señales temporales calculadas. (a) La generación indirecta se elimina anulando la constante de generación en la superred con gradiente ($K_{\text{SRG}} = 0$). (b) La detección indirecta se descarta fijando una constante fotoelástica nula en la superred de bombeo ($p_{\text{SRU}} = 0$). (c) La generación directa se elimina anulando la constante fotoelástica en la superred de sondeo. La señal obtenida aísla la contribución de la detección indirecta a la señal total.

se pone de manifiesto en la Fig. 3.24(c), donde se grafican las trazas temporales calculadas considerando la detección indirecta en la superred de bombeo como único mecanismo de detección, es decir, descartando la detección directa que tiene lugar en la superred de sondeo. Se observa que las trazas temporales comienzan todas a partir de $t = 0$, y no se distingue particularidad alguna o incremento alguno de la señal de la traza 7, indicando que la amplificación de la señal al considerar la detección directa se debe enteramente al acuerdo espectral entre la función de generación de la superred uniforme y la de detección de la superred con gradiente. El “experimento pensado” de la Fig. 3.24(c) es equivalente a un experimento en configuración degenerada, y las fluctuaciones en la amplitud de la señal son una manifestación del efecto Fabry-Pérot discutido en la sección anterior.

3.3.3. Conclusiones Muestra A

Hemos realizado experimentos de bombeo-sondeo sobre una muestra basada en dos superredes de GaAs/AlAs (separadas por una capa intermedia de GaAs), diseñada de modo tal de controlar independientemente la respuesta espectral de los fenómenos de generación y de detección, cada uno en una superred diferente. La energía del modo de detección de la superred sobre la que incide el haz de sondeo ha podido ser sintonizada a la del modo de generación de la otra superred sobre la que incide el haz de bombeo, gracias a un gradiente de espesores en la primera de las superredes.

El primer resultado a destacar, consiste en que el gradiente de espesores, para el cual no se dispone de un control preciso durante la fabricación de la muestra mediante epitaxia por

haces moleculares (MBE), ha sido suficiente como para brindar una diferencia de espesores entre ambos extremos de la plaqueta que permitiera el acuerdo espectral buscado. Esta ha sido la base de todo el trabajo posterior.

En segundo lugar, el análisis de la evolución temporal de la amplitud de la señal facilitó valores experimentales de tiempos de vida media de fonones longitudinales acústicos de 0,4 THz a temperatura ambiente. Si bien se trata de un resultado interesante, ya que la literatura brinda muy pocos datos en este respecto [111, 116, 117], nuestros resultados deben tomarse con cierto recaudo, pues contamos con indicios para pensar que los tiempos de vida media medidos se ven afectados por la interacción con portadores fotoexcitados por el pulso de bombeo. Es decir, la vida media obtenida no refleja el decaimiento por interacciones intrínsecas a la dinámica de los fonones en la muestra, sino que se ven afectadas por el experimento. De todas formas, creemos que el orden de magnitud de la vida media hallada, 300 – 800 ps, resulta válido.

En tercer lugar, como hemos mencionado, se logró verificar el principio de optimización de la señal por acuerdo espectral generación/detección. Esto se observó primeramente en la evolución temporal de la señal, mediante la identificación de un incremento de la misma en forma de pulso, ocurriendo luego de un intervalo temporal equivalente al tiempo de tránsito de los fonones a través de la capa intermedia de GaAs. Vale destacar que dicho pulso sólo se registró en aquella muestra donde el acuerdo espectral resultó óptimo. En otras muestras, donde los modos de generación y de detección se encontraron espectralmente cercanos aunque no coincidentes, también se verificó un aumento de la señal aunque presentando formas arbitrarias dadas por batidos entre ambos modos. El análisis de Fourier de las señales experimentales permitió evaluar el grado de acuerdo espectral generación/detección para diferentes puntos del gradiente, brindando también un método para cuantificar dicho acuerdo a partir de la intensidad del modo de generación. Se verificó así un factor de amplificación de $f = 3,8$ en la señal de bombeo-sondeo respecto del caso en que ambos fenómenos no son especialmente sintonizados.

Si bien el modesto factor de amplificación obtenido no ha logrado cubrir las expectativas, el haber hallado un valor por debajo al esperado nos ha permitido indagar en interesantes fenómenos inherentes a nuestra muestra en particular, y a cualquier muestra delgada en general. El método de trabajo se basó en una asidua comparación de los resultados experimentales con los cálculos, tanto de las trazas temporales como de los espectros. Por un lado, hemos encontrado que, gracias al débil espesor total de la muestra, sus modos ópticos de tipo Farby-Pérot tienen consecuencias no menores en la intensidad de la señal en función del gradiente de espesores. Por otra parte, nuevamente debido al bajo espesor total, hemos encontrado que las reflexiones de los haces de bombeo y de sondeo en los extremos de la muestra traían aparejadas alteraciones no menores en el factor de amplificación, lo que hemos dado en llamar fenómenos de generación y detección indirecta. Los cálculos nos han permitido notar que, en este sentido, la detección indirecta prima sobre la generación indirecta, la cual aporta modificaciones casi despreciables. A

su vez, en lo que a la detección indirecta concierne, hemos identificado que el fenómeno relevante no consiste en la reflexión en sí del haz de sondeo, sino en la interferencia del haz reflejado con el incidente. Dicha interferencia proporciona cierta sensibilización de la función de detección al modo de generación, siendo esto independiente del gradiente de espesores. Así hemos esclarecido la causa del débil factor de amplificación hallado. Asimismo, los cálculos nos han permitido estimar un valor 4,5 veces mayor al experimental, que sería alcanzable de ser posible eliminar la reflexión del haz de sondeo. Esto puede lograrse a través de una muestra con una capa intermedia más espesa, puesto que la luz sería absorbida antes de llegar al extremo donde ocurre la reflexión, u optando por una longitud de onda que sea más fuertemente absorbida en la muestra. La primera de estas dos estrategias es la que se empleó la muestra B, de la cual discutiremos en la sección siguiente.

3.4. Muestra B

Los experimentos realizados sobre la muestra A, estudiada en las secciones precedentes, cumplieron con el fin de demostrar la posibilidad de generar fonones en una superred y detectarlos en otra distante, luego del tránsito a través de una capa intermedia. Además, se evidenció la versatilidad que se gana al independizar los procesos de generación y de detección, permitiendo la optimización de la señal experimental mediante la sintonización de las respuestas espectrales de ambos procesos. Sin embargo, la extracción de una medida cuantitativa de la optimización se ha visto dificultada por la presencia de una suerte de optimización *por defecto*, debida al débil espesor de la capa intermedia y a la consecuente penetración de la luz de una superred a la otra. Ha sido necesario entonces recurrir al cálculo para eliminar la contribución de esta optimización por defecto y obtener así el valor del factor de amplificación representativo de la sintonización de las respuestas espectrales de los procesos de generación y de detección.

Con la muestra B nos proponemos sortear estas dificultades. Para ello cuenta con una capa intermedia de espesor mucho mayor. Un substrato pulido de ambos lados compone esta capa intermedia, sobre cuyas caras han sido crecidas cada una de las superredes. En este punto cabe recalcar que no resulta sencillo disponer de capas intermedias de espesores arbitrarios, básicamente porque no existen muchas opciones. Si se opta por que la capa intermedia sea fabricada como parte de la muestra mediante el mismo proceso de epitaxia por haces moleculares (MBE), el espesor de la capa se ve limitado a unos pocos micrones (1-3 μm), debido al extenso tiempo de fabricación. Así se obtienen capas intermedias como la de la muestra A, cuyo espesor según hemos visto, resulta insuficiente para desacoplar ópticamente lo que se encuentra a uno y otro lado de la misma. La otra opción consiste en emplear el substrato como capa intermedia. Aquí surgen dos inconvenientes, uno relacionado con el proceso de fabricación, ya que resulta necesario adaptarlo para lograr una muestra “doble-faz”, es decir, la epitaxia de la segunda cara del substrato debe ser lograda sin arruinar la epitaxia de la primera. La segunda dificultad

consiste en que no se dispone comercialmente de sustratos de espesores arbitrarios que estén a su vez pulidos de ambos lados. En general, se cuenta con sustratos del orden de $500 \mu\text{m}$ y de $350 \mu\text{m}$. En la muestra B hemos utilizado un sustrato de este último espesor. Más allá del grosor de la capa intermedia, la única diferencia respecto de la muestra A consiste en el número de períodos de cada superred, el cual fue elevado de 60 a 100 para lograr una sintonización más fina de los espectros de generación y de detección (se obtienen picos más estrechos incrementando el número de períodos). Vale aclarar que no es posible obtener una capa intermedia a partir de un sustrato cuyo espesor haya sido reducido por pulido mecánico, ya que la calidad de la superficie no alcanza los niveles necesarios para la técnica de fabricación de las superredes.

Debido a la importante distancia que los fonones deben atravesar de una superred a otra, los experimentos fueron realizados a una temperatura de 15 K en un crióstato de circulación de helio. Un experimento que prevé la generación de fonones de un lado de un sustrato y la detección del lado opuesto, supone la dificultad no menor de ubicar espacialmente el punto de la muestra al cual están arribando las vibraciones, donde debe focalizarse en haz de sondeo. Para ello, hemos recurrido a un protocolo de alineación de mayor exigencia, resultado de la experticia desarrollada en el laboratorio del Dr. Perrin [5, 80]. Este protocolo se encuentra mejor adaptado a la detección interferométrica. Es por ello que los resultados de la muestra B fueron obtenidos en dicha configuración. La longitud de onda óptica utilizada fue de 750 nm. El resto de las condiciones experimentales se detallan en la página 71.

3.4.1. Resultados experimentales

Se tomaron mediciones sobre un único trozo de la muestra de $\sim 15 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$, en 7 posiciones diferentes separadas en aproximadamente 2 mm, barriendo un pequeño entorno del punto en el que se da la superposición entre el modo de $q = 0$ de la superred uniforme y el modo inferior del doblete de $q = 2k_s$ de la superred con gradiente. Al igual que para la muestra A, se efectuaron en primer lugar mediciones en configuración degenerada con el fin de obtener un mapa espectral de la muestra. Las transformadas de Fourier de los datos experimentales se muestran en la Fig. 3.25. Los números a la derecha de cada espectro identifican los diferentes puntos de la muestra. Las mediciones 1 a 7 fueron obtenidas en la configuración esquematizada en la figura. El espectro identificado “Unif.” corresponde a la superred uniforme y fue adquirido en la configuración opuesta. En dicho espectro distinguimos el modo de $q = 0$ ubicado a una frecuencia de 0,392 THz, su posición está señalada con la línea entrecortada vertical. Resulta apreciable también la componente superior del doblete de $q = 2k_s$, situada a 0,450 THz. En los restantes espectros se observan tres picos cuyas posiciones varían en función del gradiente (el pico que aparece justo en el límite derecho de la figura es un artificio del dispositivo experimental). Se trata del modo de $q = 0$ y del doblete de $q = 2k_s$, ambos de la superred con gradiente. La posición variable del modo inferior del doblete se indica con la línea punteada. En los espectros 5 a

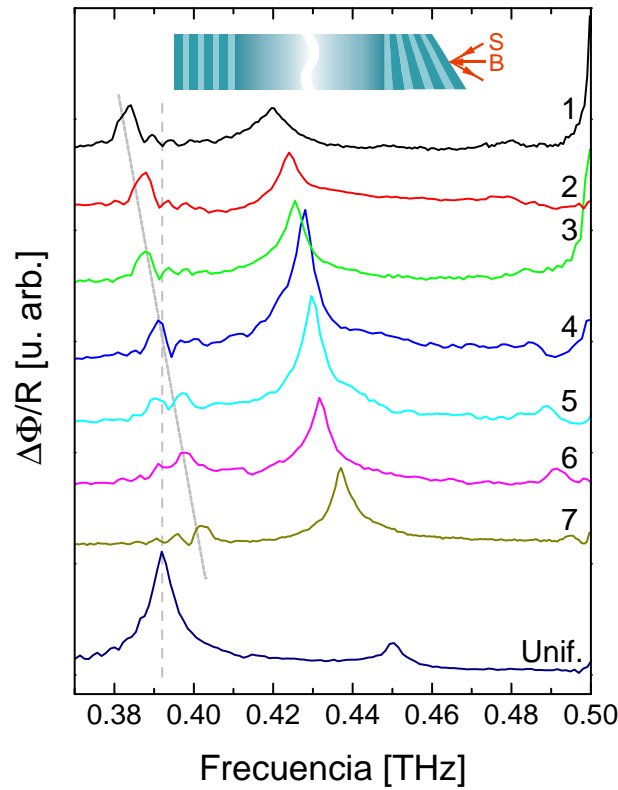


Figura 3.25: Transformadas de Fourier de la señal de bombeo-sondeo obtenida sobre la muestra B en configuración degenerada. Los espectros numerados 1-7 corresponden a la configuración en la que los haces inciden sobre la superred con gradiente, en diferentes posiciones de la muestra separadas entre sí en ~ 2 mm. El espectro identificado “Unif.” corresponde a la configuración en la que los haces de bombeo y sondeo inciden sobre la superred uniforme. La línea vertical entrecortada señala la posición del modo de $q = 0$ de la superred uniforme. La línea punteada oblicua indica la posición de la componente de menor energía del doblete de $q = 2k_s$ de la superred con gradiente.

7, dicho pico aparece desdoblado. Esto debe a oscilaciones típicas del tamaño finito de la muestra [100]. El resultado principal de esta figura consiste en la coincidencia espectral del modo de $q = 0$ de la superred uniforme y de la componente inferior del doblete de $q = 2k_s$ de la superred con gradiente que se da en la posición 4. En dicho punto esperaríamos obtener entonces un incremento en la señal de bombeo-sondeo para el experimento en configuración no degenerada. Vale comentar que la amplitud de la señal a lo largo del gradiente, si bien presenta algunas variaciones, resulta mucho más uniforme que en el caso de la muestra A (ver Fig. 3.6(a)). Esto indica que efectivamente el efecto Fabry-Pérot, ausente en la muestra B por su gran espesor, era el responsable de las importantes variaciones en la amplitud de la señal en función del gradiente en la muestra A. De todas formas, el origen de las leves variaciones observadas en la muestra B será analizado en la sección *Cálculos y discusión*.

Otro dato destacable de la Fig. 3.25 es el ancho de los picos obtenidos. Comparando con los resultados de la muestra A (Fig. 3.6(a)), observamos que los picos de la muestra B son considerablemente más anchos. El modo de $q = 0$ de la muestra B presenta un ancho a altura mitad que varía de 7 a 14 GHz en los espectros de la Fig. 3.25, mientras

que en el caso de la muestra A, el ancho a altura mitad de dicho modo no supera los 3 GHz. Según vimos en el análisis de la muestra A, sección 3.3.2.a, el ancho de los picos se encontraba determinado por la vida media de los fonones, es decir, no estaba limitado por el tamaño finito de las superredes. Las conclusiones de la sección 3.3.2.a pueden hacerse extensivas a la muestra B, ya que la única diferencia constitutiva entre las superredes de ambas muestras consiste en un mayor número de períodos en B, lo cual incluso viene a acentuar los argumentos esgrimidos en 3.3.2.a en favor de la vida media como responsable del ancho espectral. Por lo tanto, los mecanismos que originan el ensanchamiento de la línea en la muestra B en configuración degenerada, parecen ser más importantes que en la muestra A. Volveremos sobre este punto en la sección *Cálculos y discusión*.

Pasando a la configuración no degenerada, analizaremos en primer lugar el dominio temporal. La señal experimental se presenta en la Fig. 3.26, para un único punto sobre la muestra. Al efectuar el experimento de bombeo-sondeo generando y detectando en lados opuestos de un substrato, la traza temporal resulta bastante diferente de la señal típica de un experimento en el que los haces de bombeo y sondeo se focalizan sobre el mismo lado de la muestra (ver por ejemplo Fig. 2.12). En particular, la contribución electrónica, es decir, el salto que indica el tiempo cero (superposición temporal entre los pulsos de bombeo y de sondeo) seguido de la relajación térmica y electrónica lenta de la señal, se encuentra ausente. En el experimento en el que las vibraciones atraviesan el substrato, los fenómenos térmico y electrónico han ocurrido del otro lado del mismo, mucho tiempo antes que las vibraciones arriben al extremo donde son detectadas. La señal sólo presenta entonces la contribución vibracional. Esto es lo que observamos en la Fig. 3.26 (el tiempo $t = 0$ es arbitrario y no guarda correlato alguno con el instante de incidencia del pulso de bombeo sobre la superred de generación). Las curvas roja y azul corresponden a los dos canales de salida del amplificador lock-in. En general utilizaremos uno solo de estos canales, pero resulta interesante analizar al menos una vez ambas salidas. Observamos que las trazas temporales presentan variaciones suaves, interrumpidas por algunos saltos abruptos. Existen cinco saltos abruptos principales indicados en la figura con flechas. A su vez, cada uno de estos saltos viene acompañado de dos saltos menores, uno anterior y otro posterior. Estos pueden apreciarse claramente en la Fig. 3.27(a), la cual detalla el entorno del primer salto abrupto principal. Cada uno de estas estructuras, compuestas por un salto principal y dos saltos menores (indicados con flechas en la figura), corresponde a la detección de un pulso de fonones que arriba desde el substrato a la superred de detección. A lo largo del período temporal que cubre la Fig. 3.26, existen tres de estos pulsos, conocidos en la literatura como *ecos* (indicadas “eco 0”, “eco 1” y “eco 2”). Las dos últimas son detectadas dos veces, una vez por cada brazo del interferómetro (ver apéndice A); en el caso de la primera, la detección por el primer brazo (brazo antihorario) ocurre a tiempos más cortos que los de la figura. La frecuencia de repetición de los pulsos ópticos que entrega el láser (81,8 MHz) y el tiempo de tránsito a lo largo del substrato (74,5 ns), el cual se estima a partir de su espesor medido (356 μm) y de la velocidad

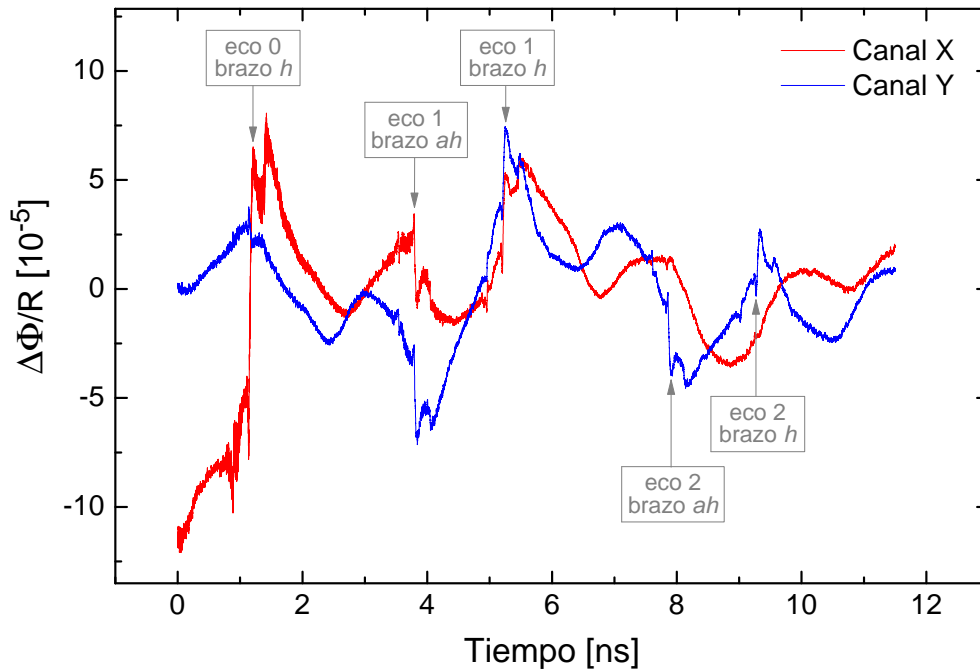


Figura 3.26: Señal temporal típica del experimento de bombeo-sondeo en configuración no degenerada (con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme). Las curvas roja y azul corresponden a las salidas de los canales X e Y del amplificador lock-in. Se distinguen tres ecos, siendo los dos últimos detectados por partida doble debido a la detección interferométrica (ambos brazos del interferómetro, antihorario (*ah*) y horario (*h*), sondean a su turno cada uno de los ecos). La detección del primer eco por parte del brazo *ah* se ubica a tiempos menores a los registrados en la figura.

de los fonones acústicos longitudinales en GaAs a baja temperatura (4,780 nm/ps [120]), permiten identificar cada uno de los ecos presentes en la señal. La numeración 0, 1, 2 que hemos utilizado en la figura indica el número de veces que el eco ha efectuado el viaje de ida y vuelta a lo largo del sustrato. El eco 0 es el que ha sido generado más recientemente. Ha sido creado por un pulso óptico que denotaremos N , y ha atravesado el sustrato únicamente en el sentido de “ida” desde la superred de generación hasta la de detección. El eco 1 ha sido creado por el pulso óptico $N - 12$, y ha realizado un viaje completo de ida y vuelta para regresar luego a la superred de detección. El eco 2 ha sido generado por el pulso óptico $N - 24$ y ha efectuado dos veces el viaje de ida y vuelta, regresando también a la superred de detección. Los ecos superiores no se distinguen en la señal experimental. Estimamos que el eco 3 sería generado por el pulso óptico $N - 37$ y sería detectado casi simultáneamente con el eco 0. De todas formas, advertimos en la figura que la intensidad de los ecos disminuye a medida que aumenta el número de viajes a lo largo del sustrato (debe considerarse aproximadamente la suma entre las contribuciones de ambos canales para estimar la intensidad de cada salto de la señal), por lo cual es esperable observar sólo los primeros ecos. El hecho de exhibir ambos canales del amplificador lock-in en la figura se debe a que en algunos casos (el eco 2, por ejemplo) la fase de la señal de referencia del amplificador es tal que el salto se vuelca principalmente a uno de los canales, pudiendo pasar inadvertido si se registra un solo canal.

Analicemos ahora en particular el eco 0. El mismo se detalla en la Fig. 3.27. La diferencia temporal entre el primero salto de la señal y el segundo es de 252 ± 26 ps, y entre el segundo y el tercero, de 251 ± 26 ps (la barra de error proviene de la incerteza en la determinación del mínimo de cada salto). Estos tiempos coinciden con el tiempo estimado de tránsito de los fonones acústicos longitudinales a lo largo de la superred de generación, de 248 ps. Este tipo de ecos es bien conocido en la literatura [1, 3, 13, 14, 53, 84, 112, 113, 121]. Se sabe que los saltos corresponden a la deformación inducida a tiempo $t = 0$ por la tensión térmica y electrónica creada por la absorción del pulso de bombeo en la muestra. El perfil espacial de dicha tensión copia el perfil de la penetración de la luz en la muestra (a menos de efectos de difusión que también pueden ser tenidos en cuenta). En las discontinuidades de dicho perfil la tensión induce fuertes deformaciones que luego se propagan a lo largo de la muestra, y que devuelven, al arribar a la región de detección, los saltos observados en la señal experimental. Esto resulta consistente con el tiempo medido entre saltos, ya que dichas discontinuidades, en el caso de nuestra muestra, se encuentran en las superficies aire/superred de generación y superred de generación/substrato (la superred es percibida por el campo eléctrico como un medio óptico efectivo, ya que la longitud de onda es mucho mayor que la escala de modulación del índice de refracción en la superred). Luego de $t = 0$ dos pulsos parten de cada discontinuidad, con vectores de onda opuestos (similarmente a lo descrito en la Fig. 3.7). El pulso que parte hacia el substrato desde la interfaz superred de generación/substrato es el responsable del primer salto detectado experimentalmente. El pulso que parte de la superficie aire/superred de generación es el que se observa como el salto principal (las componentes correspondientes a vectores de onda opuestos se continúan una detrás de la otra dada la reflexión en la superficie). Por último, el tercer salto proviene del pulso creado en la interfaz superred de generación/substrato, que se desplaza originalmente hacia la superficie libre de la muestra, se refleja en la misma, y regresa luego hacia el substrato. El estudio de la forma de los mismos constituye un tema de investigación en sí, brindando acceso a información relativa a variados fenómenos físicos, como transiciones electrónicas [3, 112–114, 121, 122], difusión térmica [1], difusión de portadores [13, 14] o perfiles espaciales e irregularidades de las interfaces [53].

De mayor interés para nuestro estudio resultan las oscilaciones que acompañan al eco. Observamos en la Fig. 3.27(b) la presencia de una oscilación de baja frecuencia correspondiente al modo Brillouin, y el arribo de una oscilación de alta frecuencia, detallada en la Fig. 3.27(c), consistente en fonones acústicos replegados. El modo Brillouin es observable desde tiempos anteriores gracias a que la penetración de la luz de sondeo en el substrato hace posible su detección (la superred no absorbe completamente la luz). Los fonones acústicos replegados, en cambio, no son detectados en su pasaje por el substrato debido a que se necesita de una modulación periódica de la constante fotoelástica para que la función de detección resulte sensible a tales modos (ver ec. (2.85)). Esto ocurre una vez

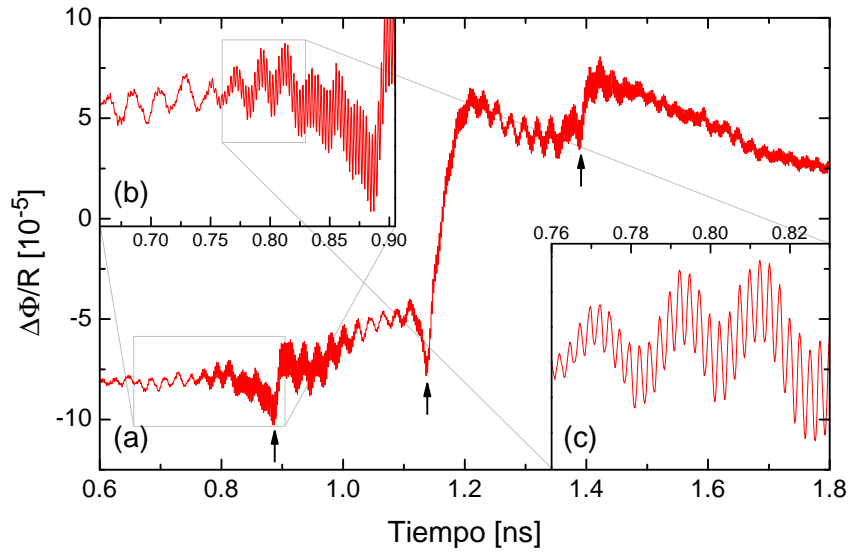


Figura 3.27: (a) Detalle del eco 0. (b) Detalle del arribo de las oscilaciones de alta frecuencia correspondientes a los fonones acústicos replegados. Se distinguen también oscilaciones Brillouin. (c) Detalle de las oscilaciones de alta frecuencia.

que el pulso de fonones acústicos replegados ha ingresado a la superred de detección. Según se distingue en la Fig. 3.27(a), la intensidad de la oscilación de alta frecuencia varía en el transcurso del eco, respondiendo a su composición espectral particular, la cual analizaremos en breve. Las altas frecuencias se extinguen luego de aproximadamente 3,5 ns, es decir, se extienden un poco más allá del arribo del brazo antihorario (*ah*) del eco 1. En cuanto al eco 1, el detalle del mismo se presenta en la Fig. 3.28. Observamos que viene acompañado de oscilaciones Brillouin. Podemos afirmar que la pequeña componente de alta frecuencia, casi indistinguible del ruido de la señal, no arriba junto con el eco, sino que es un resabio de las oscilaciones del eco 0. Esto resultará más explícito en la Fig. 3.29, al filtrar numéricamente la señal. Evidentemente, el tiempo de vida media de los fonones de alta frecuencia es inferior al tiempo de ida y vuelta de los fonones acústicos a lo largo del sustrato.

Cabe remarcar que para ningún retardo entre los pulsos de bombeo y sondeo (ninguna posición de la línea de retardo) se ha observado el salto abrupto de origen electrónico, típico de la superposición temporal de ambos pulsos. Esto indica que efectivamente la absorción de la luz en el sustrato es total.

La sistemática de medición que se llevó a cabo para evaluar la señal de bombeo-sondeo en función del gradiente de espesores, consistió en el registro del entorno del eco 0 (brazo horario), comenzando aproximadamente 130 ps antes del arribo de las oscilaciones de alta frecuencia y extendiéndonos 3500 ps en total. Para aislar las frecuencias correspondientes a fonones acústicos replegados, las trazas temporales fueron filtradas numéricamente con un filtro pasabanda, de la misma forma que se procedió con la muestra A. Los resultados se presentan en la Fig. 3.29. Las curvas corresponden a las mismas posiciones de la muestra

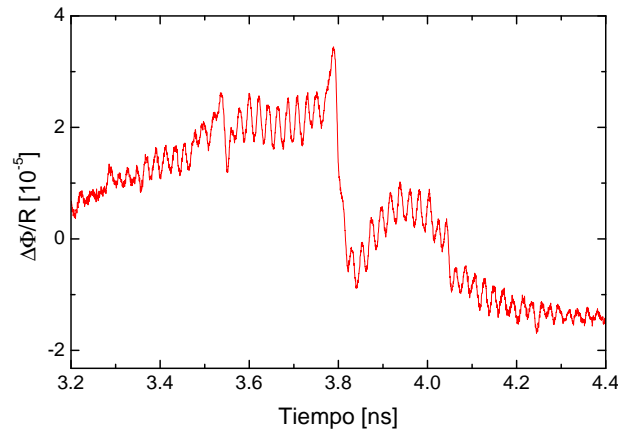


Figura 3.28: Detalle del eco 1 detectado por el brazo horario del interferómetro. Se distinguen principalmente oscilaciones Brillouin. Una posible componente de alta frecuencia se confunde con el ruido experimental. Esta componente no arriba con el eco 1 sino que es un resabio de las oscilaciones de alta frecuencia del eco 0.

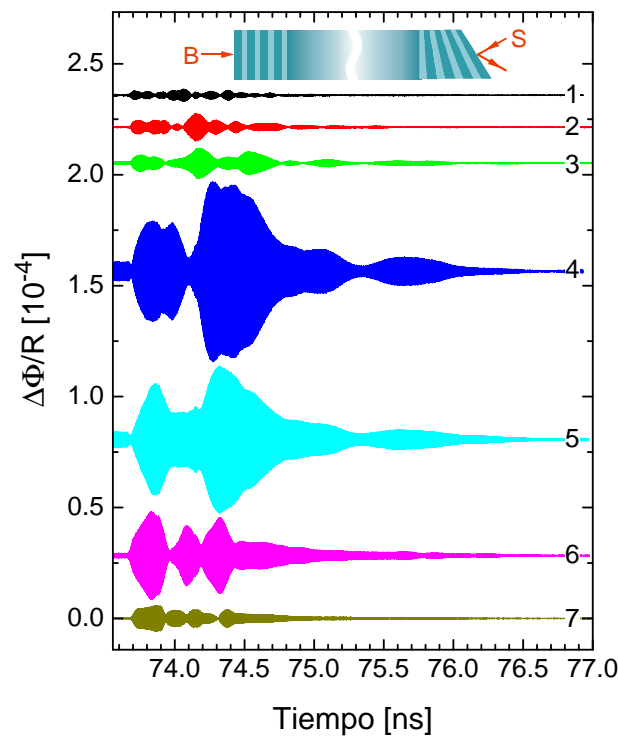


Figura 3.29: Trazas temporales filtradas numéricamente con un filtro pasabanda para rescatar las oscilaciones de alta frecuencia correspondientes a los fonones acústicos replagados. Las señales fueron registradas en configuración no degenerada, con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme. Las 7 posiciones de incidencia se corresponden con las del experimento efectuado en configuración degenerada (Fig. 3.25). El eje temporal ha sido desplazado de modo de hacer coincidir el instante $t = 0$ con la incidencia del haz de bombeo sobre la superred uniforme.

donde se adquirieron los espectros en configuración degenerada de la Fig. 3.25. La escala temporal ha sido trasladada para fijar el tiempo $t = 0$ en el instante de incidencia del pulso de bombeo, a partir de la estimación del tiempo de tránsito de los fonones a lo

largo de la superred de generación y del sustrato. Observamos que la señal es máxima para la posición 4, donde habíamos advertido la coincidencia espectral entre el modo de generación de la superred de bombeo y el modo de detección de la superred de sondeo. Es notable la diferencia de amplitud entre las señales máxima y mínima (curva 1), siendo esta relación muy superior a la observada en la muestra A (ver Fig. 3.5(b)). Otra clara diferencia respecto de la muestra A es la forma del pulso acústico. Ni siquiera la curva 4, donde la señal es máxima, presenta un lóbulo único, a diferencia de lo observado en el trozo 7 de la muestra A. Cabe comentar que hemos realizado numerosas mediciones adicionales en posiciones vecinas al punto 4, y en ninguna hemos obtenido un lóbulo único; siempre hemos hallado pulsos acústicos de forma intermedia a las presentadas en la figura. Esto señala la presencia de más de una componente espectral en la traza temporal.

Llamaremos ahora la atención sobre las oscilaciones observadas antes del arribo del pulso, a $t < 73,7$ ns. Estas oscilaciones corresponden al resabio de la señal detectada por el brazo antihorario del interferómetro. Vemos de la Fig. 3.26 que la diferencia temporal entre ambos brazos es de 1410 ps. Resulta evidente de la Fig. 3.29 que el pulso acústico no se extingue aún luego de tal intervalo temporal, que correspondería al instante $t = 75,11$ ns en la escala temporal de la figura. La señal registrada es entonces el resultado de la superposición de una contribución principal detectada por el brazo horario y otra contribución menor correspondiente a la “cola” del brazo antihorario. En cuanto al eco 1, también podría esperarse que el brazo horario del interferómetro contribuyese a la señal. Sin embargo, en el instante de arribo de este eco ($t = 76,3$ ns) no se distingue ningún incremento de la señal, indicando que, como mencionamos anteriormente, dicho eco no viene acompañado de altas frecuencias.

Por último, antes de concluir el análisis temporal, nos centraremos en el tiempo de decaimiento de las trazas temporales. Al igual que para la muestra A, descartaremos rápidamente en la sección *Cálculos y discusión* el tiempo de tránsito del pulso acústico a lo largo de la superred de detección (efectos de tamaño finito) como factor limitante de la extensión temporal de la señal. El decaimiento debe tratarse entonces de un tiempo de vida media o de un tiempo de coherencia del pulso acústico dado por un ensanchamiento inhomogéneo del espectro generado. Si del primer caso se tratase, siendo que la señal se extiende durante unos pocos nanosegundos, es evidente que el mecanismo de aniquilación de los fonones ha de ponerse en marcha en el momento en que estos ingresan a la superred de detección. Caso contrario, no sería factible que los fonones hubieran sobrevivido el tránsito de 73,7 ns de duración a través del sustrato. Esto hace pensar en un mecanismo de dispersión en las rugosidades de las interfaces de la superred y/o en la superficie libre de la muestra.

Pasemos ahora al dominio espectral. Las transformadas de Fourier de las trazas temporales de la figura anterior se exhiben en la Fig. 3.30. Se observa un pico principal a 0,3925 THz, acompañado de oscilaciones que se desplazan de un lado a otro del pico principal. Resulta claro que este último corresponde al modo de $q = 0$ de la superred de

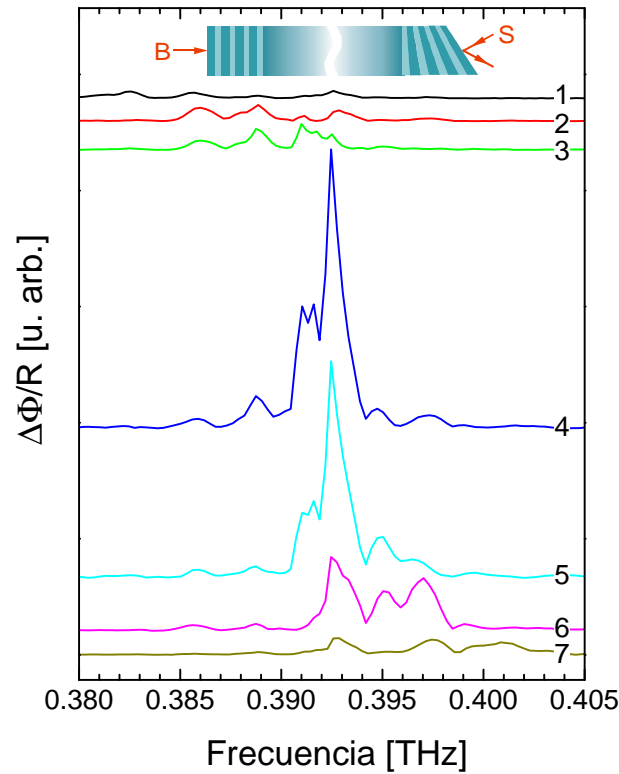


Figura 3.30: Transformadas de Fourier de la señal de bombeo-sondeo obtenida en la configuración no degenerada esquematizada en la figura. Los números a la derecha de cada espectro indican la posición sobre la muestra en la que fue adquirida la medición.

generación mientras que las oscilaciones están relacionadas con la función de detección, cuyo peso espectral se desplaza en función del gradiente de un lado al otro del pico de generación. El incremento de la intensidad del modo de generación para la posición 4 termina de confirmar que la importante amplitud observada en la traza temporal para dicha posición efectivamente corresponde a la sintonización espectral de las funciones de generación y de detección. Según adelantamos en el análisis de las trazas temporales, el espectro correspondiente a la posición 4 no presenta un único pico, sino una región de máxima amplitud que encierra dos (o tres) picos cuyos anchos no permiten resolver el detalle de los mismos. Sin embargo, al comparar con la Fig. 3.25, resulta llamativa la diferencia en el ancho de los picos en una y otra configuración experimental. El ancho del pico principal del espectro 4 en configuración no degenerada es de 1 GHz, mientras que el ancho del pico de $q = 0$ en configuración degenerada varía de 7 a 14 GHz según el espectro. Este fenómeno será analizado en la sección siguiente.

3.4.2. Cálculos y discusión

En esta sección intentaremos clarificar preguntas abiertas que surgieron en la observación de los resultados experimentales. En particular, abordaremos los temas referidos al tiempo de decaimiento de las trazas temporales y al factor de amplificación que se logra

sintonizando espectralmente las funciones de generación y de detección. Organizaremos la discusión según el siguiente orden:

- Tiempos de decaimiento
- Factor de amplificación
- Características del espectro en condición de sintonización

Los cálculos de $\Delta\Phi/R$ que mostraremos a continuación se llevaron a cabo según la metodología detallada en la sección 2.4. Los parámetros empleados se detallan en el apéndice B, sección B.2.

3.4.2.a. Tiempos de decaimiento

Comenzaremos extrayendo los tiempos de decaimiento de la señal para cada una de las configuraciones.

Configuración degenerada

En el caso de la configuración degenerada, los tiempos de decaimiento pueden determinarse del ancho de línea espectral, pues la ventana temporal experimental (500 ps) supera varias veces el tiempo de decaimiento (~ 70 ps) y no introduce entonces un ensanchamiento adicional. Los tiempos de vida media así obtenidos se listan en la Tabla 3.1. Se observa que el tiempo de decaimiento ronda los 70 ps y se reduce considerablemente al acercarnos a la posición 1.

Posición	τ [ps]
1	40 ± 5
2	66 ± 5
3	68 ± 5
4	74 ± 5
5	72 ± 5
6	74 ± 5
7	77 ± 5
Unif.	66 ± 5

Tabla 3.1: Tiempos de vida media para las siete posiciones de la superred con gradiente y para la superred uniforme, deducidos a partir del ancho de línea de los espectros obtenidos en configuración degenerada.

Hemos incluido los valores obtenidos en el cálculo de los espectros de $\Delta\Phi/R$ para la configuración degenerada. En la Fig. 3.31 presentamos los resultados. Comparando con los datos experimentales (Fig. 3.25), observamos que el acuerdo en las posiciones de los picos es satisfactorio, validando los valores de espesores, velocidades del sonido y parte

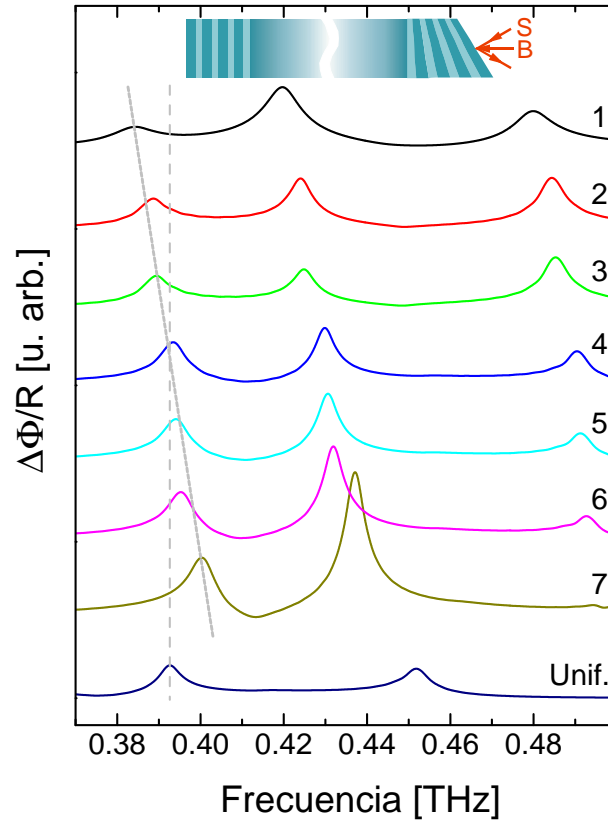


Figura 3.31: Cálculo de los espectros de la señal de bombeo-sondeo en configuración degenerada para la superred uniforme y para las siete posiciones sobre la superred con gradiente. Comparar con los datos experimentales (Fig. 3.25).

real de los índices de refracción empleados en el cálculo. Se observa además, según hemos adelantado, una variación de la intensidad de los picos en función del gradiente. Los máximos (y mínimos) de dicha variación corresponden sin embargo a posiciones distintas en el cálculo que en el experimento. A diferencia de la muestra A, estas variaciones no pueden deberse al efecto Fabry-Pérot inexistente en la muestra B gracias a su gran espesor total. Hemos profundizado en el análisis de las variaciones, encontrando que se deben al peso que tienen uno y otro término en la expresión que define $\Delta\Phi_n$ (ec. 2.98). Dicho peso está en parte determinado por los valores (complejos) que toman la constante de generación y la constante fotoelástica. Hemos verificado que modificando los valores de estas constantes se logra una mejor comparación con el experimento en cuanto a las posiciones de los máximos y mínimos de la intensidad del modo de $q = 0$. Sin embargo, no puede adoptarse la comparación con el experimento como criterio para extraer valores válidos de la constante fotoelástica y la de generación pues la variación de una, otra o ambas cantidades devuelve resultados muy semejantes.

Prosiguiendo con la comparación entre cálculo y experimento, una diferencia que salta a la vista es la ausencia de oscilaciones de tamaño finito en la Fig. 3.31. En los resultados experimentales las oscilaciones sí se encuentran presentes en torno a la componente inferior del doblete de $q = 2k_s$ (la componente superior es demasiado débil). Esto es un

hecho llamativo de por sí, puesto que el ensanchamiento por vida media que resulta ser importante para el modo de $q = 0$, no parece afectar significativamente las oscilaciones de tamaño finito del modo de $q = 2k_s$. Es decir, con un ensanchamiento lo suficientemente importante como para explicar un modo de $q = 0$ tan ancho, las oscilaciones de tamaño finito deberían verse desdibujadas. En efecto, esto es lo que ocurre en el cálculo: al efectuar la convolución de $\Delta\Phi_n$ con una lorentziana cuyo ancho corresponde a una vida media de 70 ps (ec. (2.104)) las oscilaciones de tamaño finito de *todo* el espectro quedan enmascaradas. Los mínimos de las oscilaciones de los datos experimentales están separados en aproximadamente 4,5 GHz, mientras que el ensanchamiento por una vida media de 70 ps es de 8 GHz. En el cálculo nunca podrían obtenerse entonces oscilaciones de tamaño finito compatibles con una vida media de 70 ps. En el experimento, aparentemente los diferentes modos del espectro muestran entonces tiempos de vida media diferentes.

Este es un tema abierto para el que no hemos encontrado una explicación acabada. Podemos sin embargo aventurar una idea al respecto. La principal diferencia entre un modo de $q = 0$ y un modo de $q = 2k_s$ (o cualquier modo ubicado sobre la parte recta de la banda replegada de la relación de dispersión) es la distribución del campo vibracional. En el caso del modo de $q = 0$ la densidad de energía elástica de la vibración es máxima en el centro de la superred, mientras que en los modos de la región recta de la relación de dispersión la densidad de energía elástica está igualmente distribuida entre la superred y el substrato. Esto puede apreciarse en la Fig. 3.32, en la que graficamos el perfil del campo de desplazamientos para el modo de $q = 0$ y el modo $q = 2k_s$. Desde el punto de vista corpuscular, esto se traduce en una mayor densidad de fonones en la región de la superred para el modo de $q = 0$ que para el modo de $q = 2k_s$. Si la densidad de portadores fotoexcitados por el pulso de bombeo es más elevada en la superred que en el substrato, lo cual sería válido si la difusión de los portadores es lenta, el perfil espacial de los modos podría explicar un tiempo de vida media inferior en el caso de $q = 0$. En cuanto a la muestra A, es de esperar que no se observe diferencia entre los anchos de línea de los modos de $q = 0$ y de $q = 2k_s$ por dos motivos. Por un lado, estimamos que la densidad de portadores fotoexcitados es menor. Por el otro, la muestra A presenta menos períodos, y puede demostrarse que la concentración de energía elástica en la superred para el modo de $q = 0$ disminuye al reducir el número de períodos. Si bien la explicación de los tiempos de vida media a partir del perfil espacial de los modos es plausible dada la considerable densidad de energía concentrada en la superred en el modo de $q = 0$, no resulta evidente identificar el experimento que debería realizarse para corroborarla. Una propuesta consiste en repetir las mediciones sobre varias superredes de iguales espesores pero con un número decreciente de períodos. A medida que se disminuye el número de períodos deberían hallarse anchos de línea más semejantes entre los modos de $q = 0$ y de $q = 2k_s$ (e incluso la relación de anchos debería invertirse, según lo visto en la sección 2.3.3).

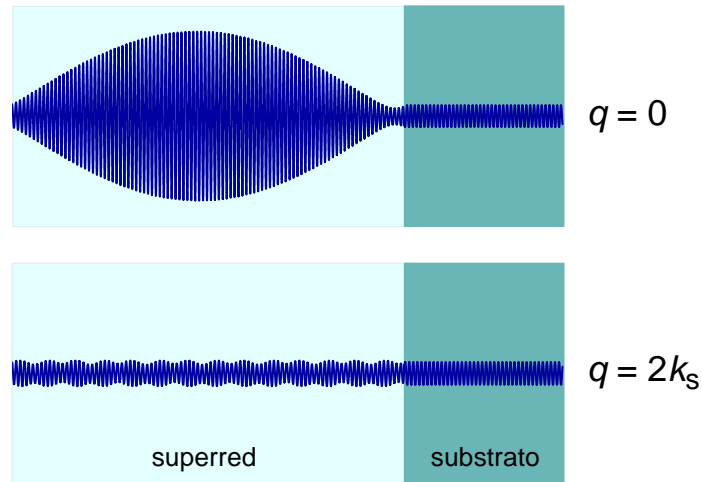


Figura 3.32: Distribución del campo de desplazamiento para los modos de $q = 0$ y de $q = 2k_s$ de una superred de GaAs/AlAs de 100 períodos, con capas de espesores similares a los de las superredes de la muestra B.

Configuración no degenerada

En cuanto a la configuración no degenerada, la ventana temporal empleada en las mediciones excede sólo en un factor 3-4 el tiempo de decaimiento de la señal, por lo que preferimos extraerlo de la comparación de la traza temporal con el cálculo (como hicimos en el caso de la muestra A), en lugar de inferirlo a partir del ancho de línea. Se calculó entonces la evolución temporal de $\Delta\Phi/R$ empleando diferentes valores del tiempo de decaimiento τ . En el cálculo el decaimiento se pone en marcha una vez transcurrido el tiempo de tránsito de los fonones a lo largo del substrato (en breve aclararemos por qué). La comparación para la posición 4 se muestra en la Fig. 3.33. Se observa que las trazas que brindan una comparación más satisfactoria con el resultado experimental son las correspondientes a $\tau = 700 - 900$ ps. Diremos entonces que el tiempo de decaimiento es de 800 ± 100 ps. Para las restantes posiciones se obtienen valores en el mismo rango.

Al igual que hicimos para la muestra A, debemos evaluar si el tiempo de decaimiento observado experimentalmente está limitado por el tiempo de tránsito del pulso acústico a lo largo de la región de detección. En otras palabras, debemos dilucidar si el tiempo de decaimiento se debe al tamaño finito de las superredes, o si está limitado por otros efectos. Para ello calculamos la traza temporal con $\tau = \infty$ y comparamos con la curva experimental, ambas para la configuración no degenerada. La comparación se presenta en la Fig. 3.34. Efectivamente, la traza temporal calculada con $\tau = \infty$ no sufre el decaimiento observado experimentalmente. Deducimos entonces que nos encontramos en la situación de la expresión (2.112a), en la que el tamaño finito de las superredes no limita el tiempo de decaimiento (ni el ancho de línea espectral) observado experimentalmente (ver comentario más abajo). Cabe señalar que lo mismo puede decirse de la configuración degenerada, puesto que el decaimiento observado experimentalmente es aún más rápido.

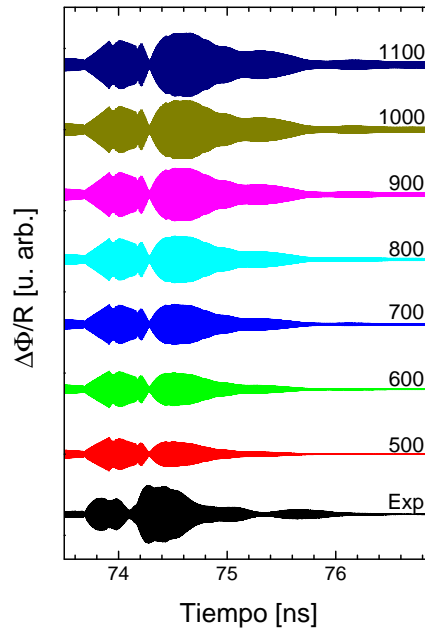


Figura 3.33: Comparación entre la traza temporal experimental y las trazas calculadas con diferentes valores del tiempo de decaimiento, dados en unidades de picosegundos a la derecha de cada curva.

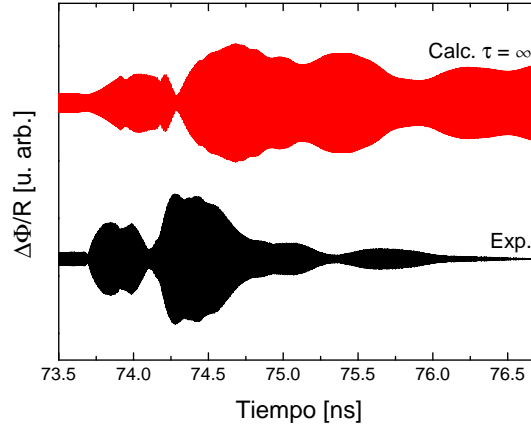


Figura 3.34: Comparación entre la traza temporal experimental y la traza calculada con un valor infinito del tiempo de decaimiento. En este último caso la amplitud de la traza no sufre una disminución en su amplitud, como sí ocurre con el experimento. Se descartan entonces efectos de tamaño finito de las superredes en la determinación del tiempo de decaimiento experimental.

COMENTARIO

La extensión temporal de la traza de $\tau = \infty$ está determinada por el tiempo total de ida y vuelta del pulso acústico a lo largo de la superred de detección. Este tiempo puede descomponerse en dos contribuciones: la extensión temporal del pulso acústico (t_1), y el doble del tiempo de tránsito del frente del pulso (o de cualquier punto arbitrario) a lo largo de la superred de detección (t_2). El tiempo t_2 es de 500 ps (dos veces el cociente entre el espesor total de la superred de detección y la velocidad efectiva de la misma). El tiempo t_1 es muy superior debido a la débil velocidad que

tiene la vibración generada para escapar de la superred de generación (el modo de centro de zona tiene una velocidad de grupo muy pequeña, ver sección 2.3.3). t_1 se estima en 18 ns. El tiempo total $t_1 + t_2$ está determinado entonces por el tamaño finito de las superredes, principalmente por el tamaño finito de la superred de generación (y eventualmente por la penetración de la luz). En la práctica, t_2 puede verse reducido por un ensanchamiento inhomogéneo del espectro generado.

Los motivos del corto tiempo de decaimiento en la configuración degenerada serán discutidos en la sección siguiente. En cuanto a la configuración no degenerada, existen dos factores que pueden ser responsables del decaimiento: (i) que el pulso generado sea más corto que lo dictado por el tamaño de la superred de generación (y la absorción óptica en la misma), o (ii) que algún mecanismo de decaimiento elimine la población de fonones.

La posibilidad (i) podría explicarse a partir de un ensanchamiento inhomogéneo del pulso acústico debido a variaciones laterales en los espesores de las capas que componen la superred de bombeo. En otras palabras, dentro del área transversal del haz de bombeo focalizado sobre la muestra existe una distribución de espesores para cada una de las capas, es decir que el pulso de bombeo “ve” muchas estructuras diferentes, todas contenidas en su área transversal. Esta es una hipótesis plausible ya que el orden de magnitud de la extensión lateral de las “terrazas” de las capas crecidas por epitaxia por haces moleculares (MBE) es de 30 nm, mientras que el láser focalizado presenta unos 50 μm de diámetro. Al incidir el pulso de bombeo sobre la superred de generación se crea entonces una distribución de fonones cuyo ancho está determinado por la distribución de los espesores de las capas dentro del área transversal iluminada por el haz.

En cuanto a posibilidad (ii), cabe notar que el tiempo de decaimiento que se extrae de las trazas temporales (Fig. 3.30), del orden de algunos cientos de picosegundos, es muy inferior a los ~ 70 ns que el fonón ha vivido para atravesar todo el sustrato y llegar a la superred de detección. Por lo tanto, de pensar en un mecanismo de eliminación de fonones, éste debe ponerse en marcha una vez que el fonón ha ingresado a la superred de detección. Esto apunta entonces a una explicación basada en la dispersión de los fonones en las rugosidades de las interfaces de la superred de detección.

Las dos opciones planteadas para explicar el tiempo de decaimiento refieren en última instancia a imperfecciones de la muestra. En el primer caso el decaimiento se debe a un tiempo de coherencia del pulso generado, mientras que en el segundo caso se trata efectivamente de una vida media. Mediciones de rayos X y de dispersión Raman resonante, ambas sensibles a las imperfecciones de la muestra, devolvieron resultados que revelan una calidad de las superredes inferior a la usual, e incluso menor en la superred con gradiente. No contamos sin embargo con información que permita distinguir entre una u otra de las explicaciones sugeridas. Los mismos experimentos realizados sobre la muestra A indicaron una calidad superior a la de la muestra B en ambas superredes. Esto explica que el tiempo de decaimiento de la muestra A en configuración no degenerada, casualmente del mismo orden de magnitud que el de la muestra B aunque efectuado a temperatura ambiente,

haya resultado sensible a la temperatura. La alta calidad de la muestra A no limita el tiempo de decaimiento observado, el cual se debe entonces al menos en gran medida a los efectos anarmónicos.

Comparación entre ambas configuraciones

Una vez hallados los tiempos de decaimiento en las dos configuraciones, resulta llamativa la gran diferencia que existe entre ambos valores, punto que ya habíamos hecho notar en la sección de resultados al analizar los anchos de línea espectrales. Ya para la muestra A también habíamos remarcado una diferencia en la vida media entre ambas configuraciones y la habíamos atribuido al decaimiento de los fonones vía la interacción con portadores fotoexcitados por el pulso de bombeo. En el caso de la muestra B, en la configuración no degenerada no existen portadores fotoexcitados, y ya hemos discutido más arriba las posibles explicaciones para el tiempo de decaimiento observado experimentalmente. Debemos ahora esclarecer los motivos del corto tiempo de decaimiento registrado en la configuración degenerada. Si trasladamos el argumento de electrones fotoexcitados a la muestra B, deberíamos pensar que existe entonces en dicha muestra una densidad muy superior de portadores fotoexcitados respecto de la muestra A, en la que se observó un tiempo de decaimiento aproximadamente 4 veces mayor. Esto podría explicarse a partir de una diferencia notable de la potencia del haz de bombeo en los experimentos con una y otra muestra. Sin embargo, para la muestra B se empleó (en los experimentos en configuración degenerada) aproximadamente la mitad de la potencia que se aplicó sobre la muestra A. De todas formas, las temperaturas y longitudes de onda óptica utilizadas fueron diferentes en los dos experimentos, por lo que es razonable esperar que difieran también las propiedades de absorción. Contamos con evidencia experimental para afirmar que la longitud de onda óptica se encuentra cercana a una resonancia electrónica de los pozos cuánticos en el caso de la muestra B. Esto puede explicar una alta densidad de pares electrón-hueco. El dato que provee dicha evidencia es el análisis de las contribuciones no vibracionales a la traza temporal, es decir, las contribuciones provenientes de los efectos térmicos y electrónicos. Se conoce que el salto brusco a $t = 0$ sufre cambios de signo cuando la energía óptica de la detección atraviesa una transición electrónica [92]. Esto se observa en efecto en nuestra muestra. Las trazas temporales para las siete posiciones de la superred con gradiente se exhiben en la Fig. 3.35.⁴ Efectivamente observamos que la forma de la contribución termo-electrónica evoluciona a medida que nos acercamos hacia la posición 1, en donde la curva cambia de signo. Justamente, hemos extraído para dicha posición un tiempo de decaimiento significativamente inferior a los de las demás posiciones (40 ps versus 70 ps). Estimamos a partir de cálculos de los estados electrónicos que la energía óptica se encuentra cercana a la transición entre el tercer estado confinado del hueco pesado y el primer estado confinado del electrón en las capas de GaAs. Los espe-

⁴Las oscilaciones correspondientes a fonones acústicos replegados no logran distinguirse del fondo termo-electrónico. Sólo la transformada de Fourier (Fig. 3.25) revela su existencia.

sores de las dichas capas son superiores en la posición 1 que en la posición 7, por lo que al recorrer el gradiente en el sentido 7-1, la energía de la transición electrónica disminuye acercándose a la energía óptica. Es probable incluso que para la posición 1 la energía de la transición se encuentre por debajo de la energía óptica, favoreciendo la fotoexcitación de portadores. Estos datos justifican la hipótesis de una reducción de la vida media de los fonones por interacción con los portadores fotoexcitados por el pulso de bombeo.

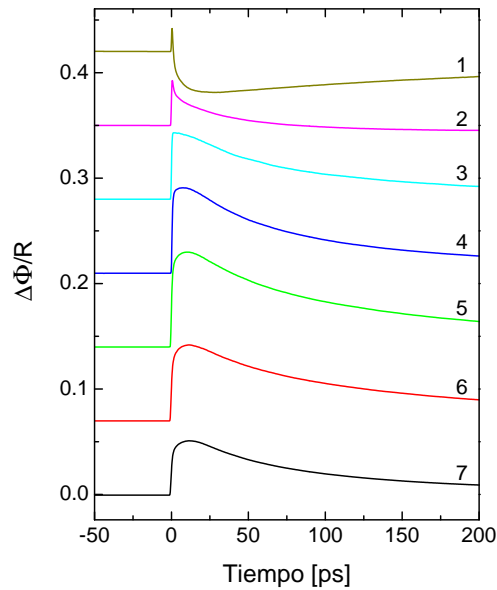


Figura 3.35: Trazas temporales experimentales en configuración degenerada sobre la superred con gradiente. El salto discontinuo a tiempo cero y el decaimiento lento posterior responden a fenómenos termo-electrónicos inducidos por la absorción del pulso de bombeo. El cambio de signo revela la cercanía a una transición electrónica interbanda. Las oscilaciones de alta frecuencia de fonones replegados no resultan distinguibles del fondo en la escala de la figura.

3.4.2.b. Factor de amplificación

La definición de un factor de amplificación para los experimentos sobre la muestra B resulta más difícil puesto que hemos estudiado un entorno reducido de la coincidencia espectral entre el modo de generación y de detección. No sería válido definir el cociente entre la intensidad del modo de generación en condición de sintonización y su intensidad en los restantes espectros (como se hizo para la muestra A) puesto que estos últimos no son muy representativos de una situación alejada de la sintonización. Diremos por el momento que el cociente de la intensidad del modo de generación en el espectro 4 y el 1 es de 35, y entre los espectros 4 y 7 es de 17. Estos valores resultan mucho más satisfactorios que el factor 3,8 obtenido experimentalmente para la muestra A, lo cual indica que el acoplamiento óptico entre las dos superredes de dicha muestra efectivamente enmascaraba la amplificación propia de la sintonización de las funciones de generación y de detección.

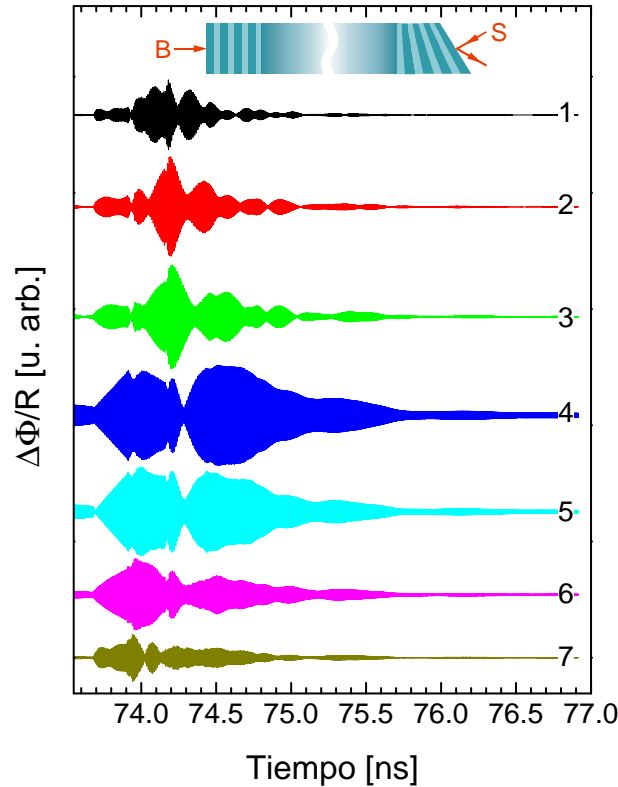


Figura 3.36: Trazas temporales calculadas en configuración no degenerada con el bombeo incidiendo sobre la superred uniforme para las siete posiciones estudiadas experimentalmente.

Efectuamos los cálculos de las trazas temporales y los espectros en configuración no degenerada para las 7 posiciones sobre la muestra. Empleamos el tiempo de decaimiento obtenido del experimento (800 ns). Los resultados se muestran en las Figs. 3.36 y 3.37. En ambos casos observamos señal máxima en la posición 4, donde se da la coincidencia espectral entre el modo de generación y el de detección. En dicha posición, tanto la forma de la curva espectral como la envolvente de la traza temporal se encuentran en buen acuerdo con los datos experimentales.

La diferencia más significativa entre cálculo y experimento consiste en la elevada señal de las curvas calculadas para las posiciones 1, 2 y 3. Efectuando variaciones de los parámetros no hemos hallado el mismo efecto en el cálculo. Suponemos entonces que la marcada disminución de la señal en las posiciones 1, 2 y 3 está relacionada con la transición electrónica identificada en la sección 3.4.2.a. Hacia la posición 1 de la muestra la transición parece pasar de un lado a otro de la energía óptica. Bartels y colaboradores [39] han reportado evidencia experimental que muestra que la señal obtenida en experimentos de bombeo-sondeo sobre superredes de GaAs/AlAs varía ampliamente en torno a una resonancia electrónica. Dicha variación ha sido asociada a la dependencia de la constante fotoelástica con la energía a lo largo de una transición. En la Fig. 3.38 reproducimos

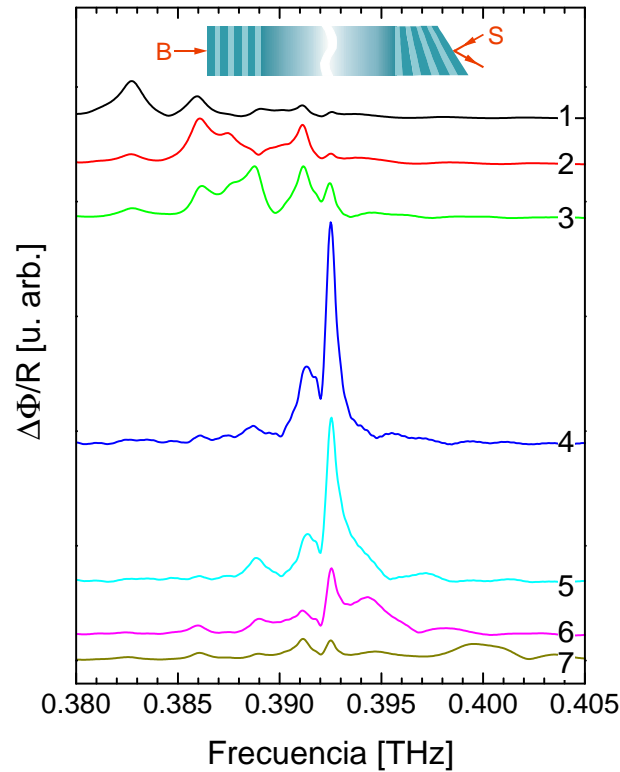


Figura 3.37: Espectros calculados en configuración no degenerada con el bombeo incidiendo sobre la superred uniforme para las siete posiciones estudiadas experimentalmente.

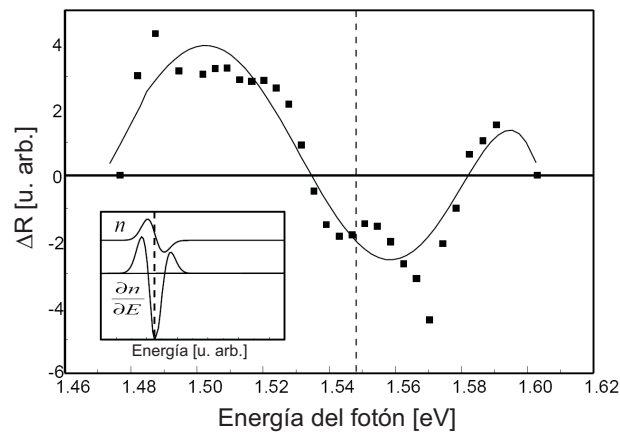


Figura 3.38: Amplitud de la variación de reflectividad en función de la energía de detección en el experimento de Bartels. El recuadro esquematiza el índice de refracción y su derivada en el entorno de una resonancia electrónica. La línea continua es una guía. Figura extraída de la Ref. [39].

los resultados de Bartels. Se observa que la señal de bombeo-sondeo varía de manera significativa e incluso puede llegar a anularse. Suponemos entonces que la disminución de la señal registrada experimentalmente para las posiciones 1, 2 y 3 tiene que ver con fenómenos de resonancia. Es por ello que el cociente entre las intensidades del modo de $q = 0$ del espectro 4 y del espectro 1 no resulta una buena medida de la amplificación. El cociente entre las intensidades de los espectros 4 y 7 es una mejor elección para cuantificar

la amplificación, puesto que la resonancia se encuentra más alejada de la energía óptica. Se obtiene en ese caso un valor teórico igual a 11, en acuerdo razonable con el valor experimental (17).

De todas formas, no sería correcto asignar el valor 11 al factor de amplificación teórico dado que la posición 7 no es representativa de una situación totalmente alejada de la sintonización entre generación y detección. Hemos realizado entonces el experimento de bombeo-sondeo en la configuración no degenerada opuesta, es decir con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred con gradiente y el de sondeo en la superred uniforme. En ese caso, los modos de generación y de detección se encuentran alejados de la condición de sintonización. El resultado se presenta en la Fig. 3.39(a). Se distinguen dos picos que con la ayuda del cálculo (panel (b)) se identifican con el doblete de $q = 2k_s$. El modo de $q = 0$ se encuentra ausente en el espectro experimental. Concluimos entonces que la amplificación lograda en la configuración opuesta es cuantitativamente muy satisfactoria. De los cálculos de la Fig. 3.39(b), donde mostramos el cálculo para las dos configuraciones no degeneradas sobre la posición 4, se desprende un factor de amplificación igual a 48, definido como el cociente entre los modos de generación de ambos espectros.

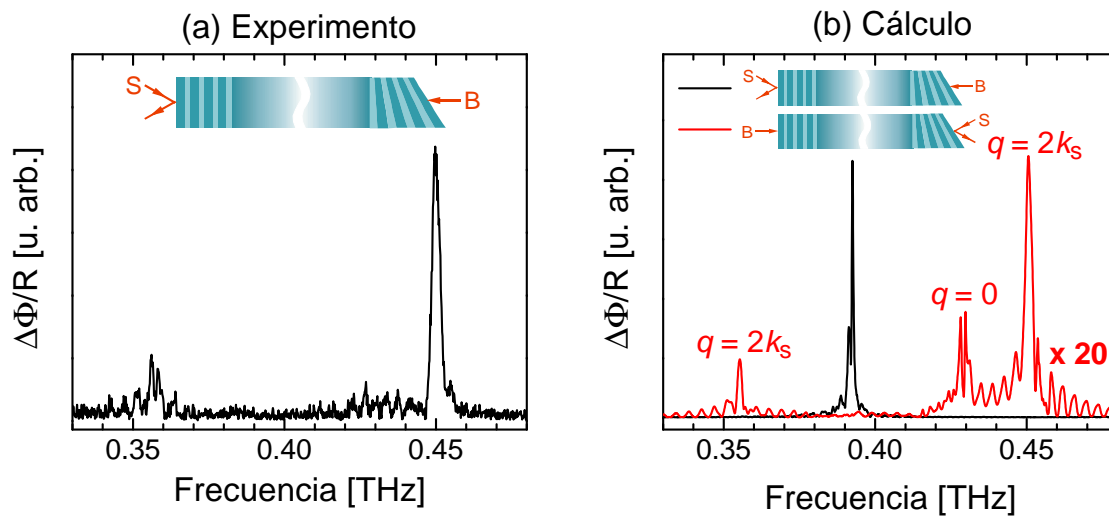


Figura 3.39: Señal de bombeo-sondeo en configuración no degenerada con el bombeo incidiendo sobre la superred con gradiente. (a) Resultado experimental. (b) Cálculo para la configuración mencionada (curva roja) y para la configuración opuesta (curva negra). En la primera se distinguen el modo de $q = 0$ y el doblete de $q = 2k_s$. La curva roja ha sido multiplicada por un factor 20.

Por último cabe señalar que la diferencia de los factores de amplificación teóricos de las muestras A (17) y B (48) se debe al mayor número de períodos en la muestra B (60 versus 100). Al aumentar el número de períodos el ancho del modo de generación disminuye y su intensidad aumenta. Esto permite una sintonización más fina y un factor de amplificación consecuentemente mayor.

3.4.2.c. Características del espectro en condición de sintonización

Hemos señalado el hecho de que el espectro de la posición 4, correspondiente a la condición de sintonización entre el modo de $q = 0$ de la superred de bombeo y el modo de $q = 2k_s$ de la superred de sondeo, no presenta un único pico y en consecuencia su traza temporal no muestra un único lóbulo. Hemos aclarado también que la medición fue repetida en varios puntos cercanos a la posición 4 y que en ningún caso se registró un pico único y un lóbulo único. Recordamos que en el caso de la muestra A el espectro en condición de sintonización y su traza temporal presentaban las mencionadas características. Veremos que la explicación reside en la resolución espectral de los experimentos sobre la muestra B, la cual permite distinguir las oscilaciones de tamaño finito de las superredes.

En la Fig. 3.40(a) se muestra el módulo de las funciones de generación y de detección calculadas para la posición 4 en configuración no degenerada con el haz de bombeo incidiendo sobre la superred uniforme. La función de generación muestra un pico principal muy fino y varios picos menores a su izquierda que consisten en oscilaciones de tamaño finito (no se observan oscilaciones a la derecha pues allí se ubica la brecha acústica de energía prohibida de la superred). Según vimos en la sección 2.3.3, la estrechez del pico principal se debe al elevado número de períodos (100) de la superred de generación. La función de detección muestra un pico mucho más ancho, lo cual resulta esperable a la luz de lo tratado en la sección 2.3.3. También se observan oscilaciones originadas en el tamaño finito de la superred de detección. Siendo que el pico de $|G(\nu)|$ es mucho más angosto que el de $|D(\nu)|$, el producto $|G(\nu)D(\nu)|$ copiará principalmente la forma de $|G(\nu)|$. Esto es en efecto lo que muestra el cálculo de $|G(\nu)D(\nu)|$, que se grafica con la curva negra. Al incluir el ensanchamiento por vida media y la convolución con la transformada de Fourier de la ventana temporal de medición, el resultado es un espectro ensanchado, representado por la curva verde de la figura. Si la vida media y la ventana temporal son lo suficientemente largas, las oscilaciones de tamaño finito son visibles en el espectro de $\Delta\Phi$. Este es el caso de la muestra B. Es por ello entonces que el espectro en condición de sintonización exhibe siempre picos menores contiguos al pico principal, y su traza temporal no muestra un lóbulo único.

La muestra A presenta tres diferencias respecto de la muestra B: el número de períodos en las superredes es menor (60 períodos), el espesor global es muy inferior debido a la delgada capa intermedia de GaAs, y la ventana temporal de medición empleada fue más corta (1000 ps versus 3000 para la muestra B). Los cálculos de $|G(\nu)|$, $|D(\nu)|$, $|G(\nu)D(\nu)|$ y $\Delta R(\nu)$ para el trozo 7 de la muestra A se presentan en la Fig. 3.40(b). Las tres primeras son curvas discretas pues el pequeño espesor global de la muestra no permite aproximar las energías de los modos normales por un continuo. Vemos que las oscilaciones a la izquierda del pico de $|G(\nu)|$ se encuentran más espaciadas, lo cual se debe al menor número de períodos de la superred de generación. El modo de detección también presenta oscilaciones, y resulta más ancho que en la muestra B, debido al menor número de períodos

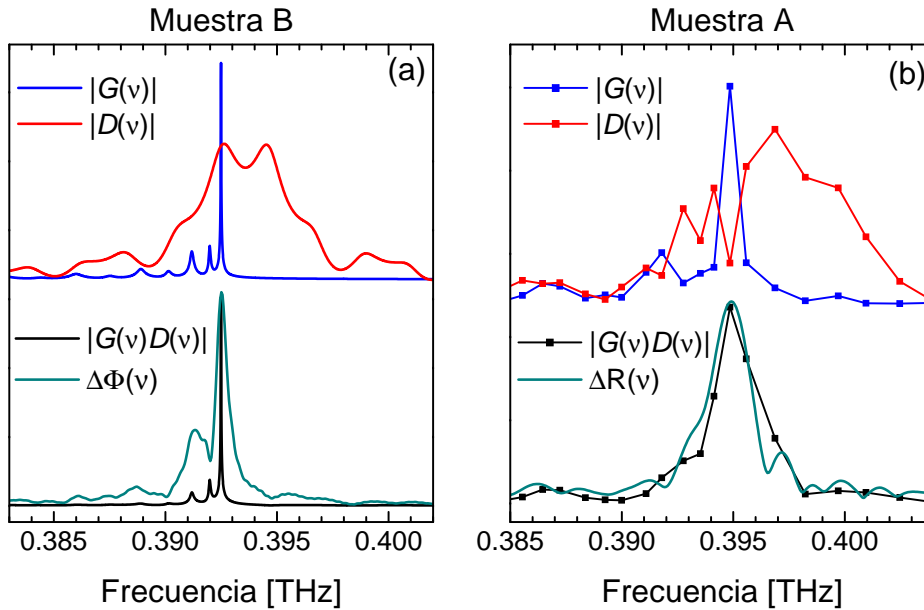


Figura 3.40: Cálculo de la función de generación, la función de detección, el producto entre ambas, y la variación $\Delta\Phi$ o ΔR , en el caso de (a) muestra B y (b) muestra A. En este caso, la discretización de la energía se debe al tamaño reducido de la muestra A.

de la superred de detección. El producto resulta en una curva más ancha que en el caso de la muestra B. La inclusión de la vida media y la convolución con la transformada de Fourier de la ventana temporal devuelven una curva con un solo pico. Las oscilaciones de tamaño finito han quedado desdibujadas (aunque aparecen otras debido a la ventana temporal). Debe notarse sin embargo que esto no se debe en este caso a la vida media ni a ventana temporal, sino a la discretización de las autoenergías, pues resulta claro de la curva negra que las oscilaciones se ven desdibujadas incluso en la función $|G(\nu)D(\nu)|$. Como resultado, el espectro y la traza temporal de ΔR presentan respectivamente un pico único y un lóbulo único.

3.4.3. Conclusiones muestra B

La demostración cuantitativa de la propuesta de sintonización espectral de las funciones de generación y de detección óptica de fonones en superredes ha sido logrado de manera satisfactoria incrementando el grosor de la capa que separa las superredes. La incorporación de un substrato de GaAs como capa intermedia ha asegurado la completa absorción de los haces de bombeo y sondeo. De esa forma hemos conseguido eliminar tanto el acoplamiento óptico entre las superredes, que impedía la evaluación cuantitativa directa de la amplificación en la condición de superposición espectral, como la variación de la señal según los modos de Fabry-Pérot de la muestra delgada. Hemos encontrado así un aumento notable de la señal experimental al comparar experimentos en configuraciones no degeneradas opuestas, una en máxima condición de sintonización y la otra en una situación de superposición espectral semejante a la del experimento estándar sobre

una única superred. Hemos estimado a partir de cálculos un factor de amplificación del orden de 48. Este incremento respecto del factor 17 obtenido en la muestra delgada se debe al incremento en el número de períodos de las superredes. Experimentalmente se verificó para la muestra gruesa un factor (casualmente) igual a 17, pero respecto de una condición no completamente alejada de la sintonización espectral entre generación y detección. Para una situación más alejada (muestra invertida) no se observó señal alguna a la energía del modo de generación.

Hemos encontrado a partir de la comparación con el cálculo que la resonancia de la energía óptica con una transición electrónica interbanda de los pozos cuánticos de GaAs que componen las superredes, modifica la intensidad esperada de la señal, lo que dificulta el análisis cuantitativo de la amplificación. Si bien el trabajo de Bartels ha iniciado la investigación de los efectos de resonancias electrónicas en la detección óptica de fonones en nanoestructuras semiconductoras, y algunas otras contribuciones interesantes han surgido posteriormente [92, 114, 121, 122], creemos que en este punto del avance de la investigación resulta necesario un análisis detallado y sistemático dirigido a la comprensión completa de la evolución de los fenómenos de generación y detección a través de las transiciones electrónicas.

Hemos observado experimentalmente una notable diferencia del ancho de línea del modo de generación en las configuraciones degenerada y no degenerada. Una discrepancia en el mismo sentido pero en menor magnitud ya había sido registrada en el caso de la muestra A. Como hipótesis para explicar este fenómeno hemos propuesto la interacción con portadores fotoexcitados como canal de decaimiento de los fonones. En este mismo sentido ha sido interpretada la diferencia observada en configuración degenerada entre el ancho de línea del modo de $q = 2k_s$, cuya densidad vibracional está igualmente distribuida en la superred y en el substrato, y el del modo de $q = 0$, que presenta una mayor densidad de energía vibracional en la región espacial donde se encuentran los portadores. Creemos que este tema resulta por demás interesante para suscitar una investigación posterior.

El tiempo de decaimiento de la señal medido en configuración no degenerada ha resultado muy inferior al tiempo esperado de tránsito del pulso de fonones a lo largo de la superred de detección. Esto puede deberse tanto a un ensanchamiento inhomogéneo del espectro del pulso generado por irregularidades en los espesores de las capas de la superred de generación, como a dispersión de los fonones en las rugosidades de la superred de detección. Experimentos de rayos X y dispersión Raman resonante dirigidos a evaluar la calidad de las superredes han apoyado estas explicaciones, revelando una calidad de las superredes inferior a la usual.

Por último, los experimentos en configuración degenerada, además de revelar los efectos antes mencionados referidos al ancho de línea, han demostrado reflejar curiosas variaciones debidas al peso relativo de los dos términos que determinan la señal experimental en el esquema interferométrico.

Después de todo lo dicho hasta aquí, podemos afirmar que, además de cumplir las

expectativas en el sentido de la sintonización generación/detección, los experimentos sobre la muestra B han revelado fenómenos de diversas naturalezas y gran interés, susceptibles de motivar investigaciones futuras.

Capítulo 4

Generación y detección selectiva de modos de nanocavidad

4.1. Motivación

El interés de lograr fuentes monocromáticas de fonones coherentes es múltiple. Por un lado, resultan esenciales para las técnicas de espectroscopía fonónica, las cuales brindan valiosa información acerca de la estructura electrónica de semiconductores de baja dimensionalidad. Algunos ejemplos incluyen mediciones de la brecha de energías prohibidas de magnetorotón en el efecto Hall cuántico confinado [22], estados electrónicos en hilos cuánticos [23] y transporte vertical asistido por fonones en superredes [123]. La interpretación de los resultados resulta dificultosa dado que la fuente de fonones es de amplio espectro. Por otro lado, la microscopía fonónica, que brindaría resolución espacial del orden de los nanómetros, también requiere de fuentes monocromáticas. A su vez, el control de las propiedades electrónicas y ópticas de los materiales a partir del dominio de las vibraciones de la red cristalina [16, 17, 20, 21] también resulta un desafío con intereses evidentes en el área de los dispositivos electrónicos y opto-electrónicos. Por último, experimentos de control coherente de las oscilaciones de la red cristalina [59, 64, 65], también resultan particularmente interesantes si se dispone de fuentes monocromáticas.

Los pulsos de calor han sido extensamente estudiados como fuentes de fonones desde el trabajo inicial de von Gutfeld [124], pero presentan la desventaja de presentar un amplio espectro de generación de fonones que además no guardan coherencia entre sí. Las junturas túnel también han sido exploradas como fuentes de fonones, brindando un espectro monocromático pero incoherente [125, 126]. Las superredes semiconductoras fueron propuestas luego [35] como fuentes de un espectro monocromático de fonones mediante excitación óptica, lo cual ha quedado ampliamente evidenciado en el capítulo anterior. Los pozos cuánticos también han demostrado actuar como generadores de pulsos de fonones [85], aunque el espectro es amplio y limitado por el espesor de los pozos. El candidato más adecuado resulta ser entonces la superred.

En este sentido, la nanocavidad acústica presenta propiedades aún más interesantes,

pues por un lado, el nivel de monocromaticidad del espectro generado es mayor. Por el otro, el acoplamiento de la fuente con el exterior (el sustrato) puede ser controlado por diseño. Por otra parte, la nanocavidad acústica abre la posibilidad de confinamiento y amplificación de fonones, y constituye el sistema de retroalimentación de lo que sería un “láser de sonido”. Recientemente, la comunidad de la nano-acústica ha centrado la atención y parte del esfuerzo en conseguir la emisión estimulada de fonones. Trabajos recientes han conseguido interesantes resultados en este sentido [70, 71], aunque el papel de la nanocavidad en el proceso de retroalimentación no ha sido aún incorporado.

El estudio de las nanocavidades acústicas comenzó con la demostración de la existencia de un modo de cavidad por espectroscopía Raman [58]. Años más tarde, el espectro de reflectividad de una nanocavidad fue evidenciado experimentalmente [78]. En el presente trabajo de tesis nos hemos propuesto emplear una nanocavidad como fuente de fonones coherentes. A su vez, nos planteamos el desafío de conseguir la excitación y detección única de los modos de cavidad. Es decir, la generación y detección selectiva de dichos modos, respecto de los modos extendidos (no confinados) que también suelen componer los espectros de generación y de detección.

La generación y la detección óptica de fonones en una nanocavidad deben ser analizadas en términos de las propiedades de transducción que la misma presenta. Las cantidades que determinan dichas propiedades son la constante de generación K y la constante fotoelástica p , las cuales dependen de la posición z a lo largo de la estructura pues toman valores diferentes en las sucesivas capas que la componen. A su vez, K y p varían con la longitud de onda de la radiación. En particular, es de esperar que ambas aumenten cerca de las transiciones electrónicas interbanda y que disminuyan a un valor nulo o cercano a cero cuando la energía óptica E_L se encuentra suficientemente por debajo de la transición fundamental. En el caso de una nanocavidad existen dos transiciones de relevancia. Recordamos que una nanocavidad consiste en una capa espaciadora rodeada a ambos lados de espejos acústicos constituidos por superredes. Una de las transiciones es entonces la correspondiente a los pozos cuánticos presentes en las superredes. La otra es la transición asociada al pozo cuántico formado por la capa espaciadora. Analicemos el caso de la generación para el mencionado esquema de transiciones. Si la energía E_L de la radiación de bombeo se encuentra cercana a la energía E_{SR} de transición de los pozos de las superredes, el perfil de $K(z)$ será aproximadamente periódico, según se muestra en la Fig. 4.1(a). El campo acústico generado por un transductor de tales características será una superposición de modos extendidos a lo largo de toda la estructura, como el que se exhibe en la Fig. 4.1(a). Llamaremos a tales modos *de superred* pues no difieren en gran medida de los modos que serían generados en una estructura perfectamente periódica. Un modo de cavidad, en cambio, presenta un campo de desplazamientos cuya amplitud resulta máxima en la capa espaciadora, como se muestra en la Fig. 4.1(b). Para generar selectivamente este modo, las propiedades de transducción de la heteroestructura deben ser preponderantes en la región del espaciador, como en el perfil de la curva inferior de la

Fig. 4.1(b). Proponemos entonces obtener un transductor de tales características a través de una capa espaciadora de espesor superior al de los pozos cuánticos de los espejos. Una representación esquemática de los estados electrónicos de tal nanoestructura se presenta en la Fig. 4.1(c). Las líneas grises indican el fondo de la banda de conducción y el tope de la banda de valencia en cada material. Las líneas rojas señalan el fondo y el tope de las bandas de electrones y de huecos confinados unidimensionalmente. La transición de menor energía corresponde a la capa espaciadora de la cavidad, que simbolizaremos con E_{CAV} . Sintonizando E_L a E_{SR} o a E_{CAV} es posible entonces pasar de un transductor como el de la Fig. 4.1(a) a otro con las características del de la Fig. 4.1(b). Veremos que de esa forma es posible generar selectivamente los modos de nanocavidad. En cuanto a la detección, si bien el detalle de la dependencia de p respecto a la energía óptica puede diferir de la que presenta K , sigue siendo válido que p mostrará máximos en torno a las transiciones fundamentales de la nanoestructura. Por lo tanto, un efecto análogo a lo descrito para la generación ocurre con el proceso de detección. Es por ello que también esperamos detectar selectivamente los modos de nanocavidad sintonizando E_L resonantemente con E_{CAV} .

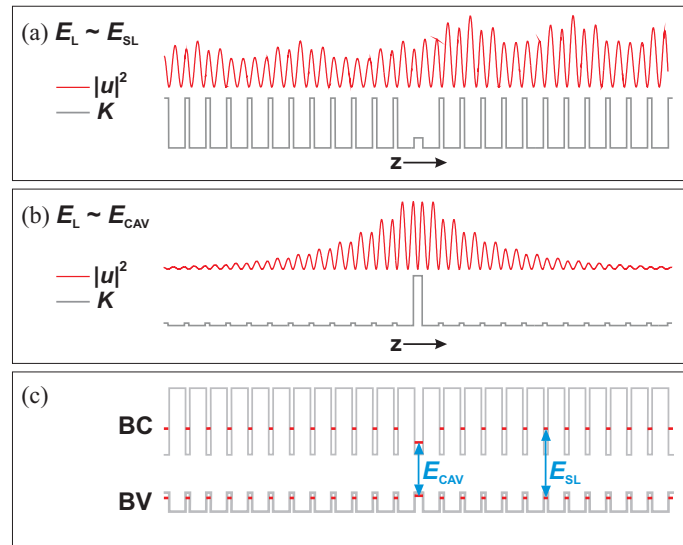


Figura 4.1: (a) Perfil de la constante de generación y del modo acústico generado en el caso en que $E_L \sim E_{SR}$. (b) Perfil de la constante de generación y del modo acústico generado en el caso en que $E_L \sim E_{CAV}$. (c) Representación esquemática de los estados electrónicos de una nanocavidad. Las líneas grises indican el fondo de la banda de conducción (BC) y el tope de la banda de valencia (BV) en cada material. Las líneas rojas señalan el fondo y el tope de las bandas de electrones y de huecos confinados unidimensionalmente. La transición de menor energía corresponde a E_{CAV} .

Cabe mencionar que la posibilidad de sintonizar la energía óptica respecto de diferentes transiciones electrónicas fue anteriormente explotada por Matsuda y colaboradores para generar pulsos acústicos selectivamente en diferentes pozos cuánticos, según se reporta en la Ref. [56].

4.2. Funciones de generación y de detección en una nanocavidad acústica

Las funciones de generación y de detección de una nanocavidad se ven modificadas respecto de las de una superred. Para analizar las diferencias presentamos en la Fig. 4.2 ambas funciones, calculadas tanto para una cavidad con espejos de GaAs/AlAs de 12 períodos y espaciador de espesor igual a una semilongitud de onda, como para una superred idéntica a uno de estos espejos. La energía óptica es tal que los perfiles de las propiedades de generación y de detección de la nanoestructura son como el de la Fig. 4.1(a). En el caso de la superred observamos, como es usual, el modo de $q = 0$ en la función de generación, y los modos de $q = 2k_s$ en la de detección (la banda gris en las figuras indica la primera brecha de energías prohibidas de centro de zona). En la generación, el modo de $q = 0$ aparece del lado derecho de la brecha (a diferencia de las muestras A y B) dado que hemos empleado el material de mayor impedancia acústica para la capa de menor espesor de la celda unidad [34]. En el caso de la nanocavidad, se observa en el espectro de generación la presencia del modo de cavidad en el centro de la brecha. A su vez, puede distinguirse que el modo de $q = 0$ aparece levemente desplazado hacia la derecha. Esto se debe a la simetría de la nanoestructura. Con la incorporación al esquema de una superred de una capa espaciadora de espesor $n\lambda_c/2$ para formar una cavidad (λ_c es la longitud de onda del modo de cavidad en dicha capa), puede demostrarse que el modo de $q = 0$, normalmente permitido por la simetría de una superred, pasa a ser un modo que también es prohibido.¹ Es decir, la integral de la ec. (2.59) devuelve un resultado nulo para *ambos* modos en los extremos de la brecha de energías prohibidas. Es por ello que $G(\nu)$ muestra ceros en las posiciones de dichos extremos. Como resultado de esta cancelación, el pico usualmente observable en el espectro de generación de una superred aparece, en el caso de una cavidad, desplazado hacia la derecha. Identificaremos este modo con el símbolo $q \sim 0$ para distinguirlo del modo de generación de una superred (infinita) que satisface $q = 0$.

En cuanto al espectro de detección, ambas nanoestructuras presentan espectros similares. Se observan algunos máximos más intensos en el caso de la nanocavidad y algunos ceros adicionales que provocan, por ejemplo, el desdoblamiento de las componentes del doblete. Estas cancelaciones se deben a efectos de interferencia destructiva entre la luz reflejada por una y otra superred que han sido estudiados anteriormente [127].

De la comparación de los espectros de generación y de detección de la nanocavidad se extrae que el modo de cavidad se encuentra únicamente presente en la generación. Esto se debe a que se trata esencialmente de un modo de centro de zona. Si bien en una estructura

¹En rigor, la cancelación de la generación para el modo de $q = 0$ ocurre para cavidades tales que n es impar en la relación $l_c = n\lambda_c/2$, donde l_c es el espesor de la capa espaciadora. Para cavidades con n par el modo de $q = 0$ continúa siendo permitido. Sucede que dichas cavidades carecen de interés para la generación por pulsos ópticos pues es en ese caso el modo de cavidad el que presenta la simetría prohibida para la función de generación.

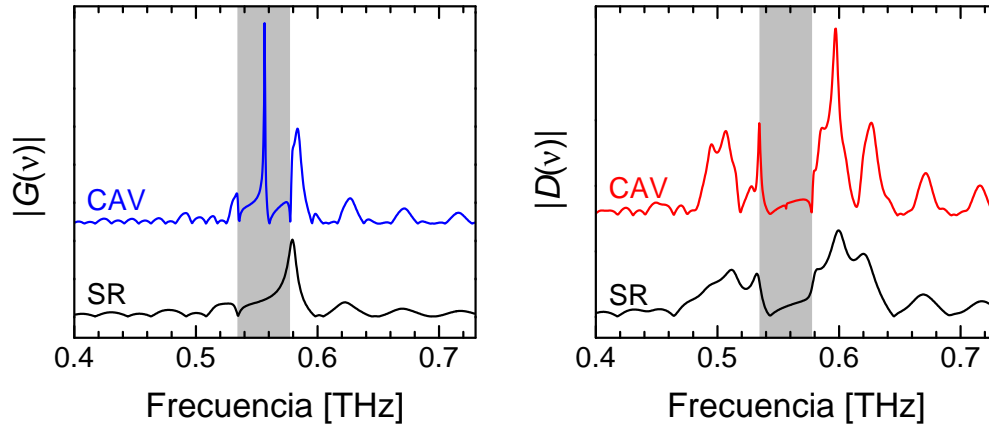


Figura 4.2: Comparación de las funciones de generación y de detección de una nanocavidad (CAV) y de una superred (SR), esta última con iguales características que las de los espejos que componen la primera. Dichos espejos contienen 12 períodos de GaAs/AlAs que satisfacen la relación de espesores $3d_{\text{GaAs}}/v_{\text{GaAs}} = d_{\text{AlAs}}/v_{\text{AlAs}}$. El período $D = d_{\text{GaAs}} + d_{\text{AlAs}}$ es tal que la primera brecha acústica de energías prohibidas de centro de zona (banda gris) se centre en 0,554 THz. La energía óptica satisface $E_L = E_{\text{SR}}$.

no periódica no puede en rigor definirse un vector de onda q ni una relación de dispersión, la cavidad puede entenderse como un defecto en una estructura periódica y conservar así los conceptos de vector de onda y de relación de dispersión, al igual que se hace para estudiar los estados electrónicos de impurezas en los sólidos cristalinos. La frecuencia ω_c del modo de cavidad satisface la relación $\omega_c = v2\pi/D$, donde v es la velocidad efectiva de la superred definida en la ec. (2.15), pues así fue definido por diseño. Por lo tanto, de asignársele un vector de onda q_c según la relación $\omega_c = vq_c$, se deduce que $q_c = 2\pi/D$, es decir, $q = 0$ en el esquema de zona reducida. Es por ello que el modo de cavidad predomina en la función de generación respecto de la función de detección. Este es un detalle no menor, ya que indica que el modo de cavidad es un modo susceptible de ser *generado* por métodos ópticos, y que su observación no se debe meramente a la respuesta espectral de la herramienta de detección con la que estamos estudiando la población excitada de fonones.

Lo dicho en el párrafo anterior resulta válido siempre y cuando las reglas de selección deducidas para los procesos de generación y de detección sean válidas. Recordamos que el origen de dichas reglas se basa en la periodicidad de $K(z)$ y de $p(z)$, es decir, en sus desarrollos de Fourier $K(z) = \sum_Q K_Q e^{iQz}$ y $p(z) = \sum_Q p_Q e^{iQz}$ ($Q \in \{2\pi n/D, n \in \mathbb{Z}\}$), y en la extensión infinita del espacio (ver secciones 2.3.1.b y 2.3.2.b). Para una energía óptica cercana a E_{SR} , las funciones $K(z)$ de $p(z)$ guardan un alto grado de periodicidad, por lo que las reglas de selección resultan válidas. En cambio, cuando la energía óptica es inferior a E_{SR} y se acerca a E_{CAV} , la periodicidad se pierde y las reglas de selección dejan de tener sentido. En ese caso, tanto la función de generación como la de detección muestran un máximo en el modo de cavidad. Esto puede observarse en la Fig. 4.3.

Dos conclusiones pueden extraerse de los espectros de generación y de detección de una

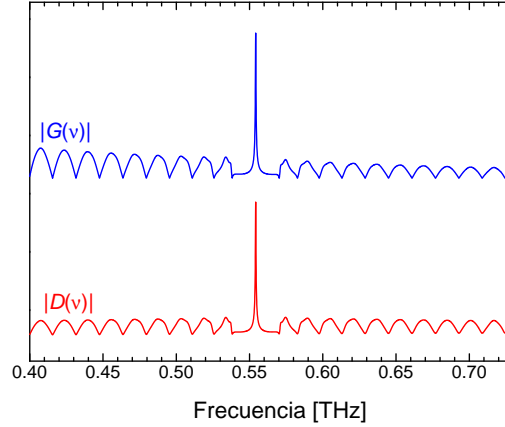


Figura 4.3: Comparación entre las funciones de generación y de detección de la nanocavidad de la Fig. 4.2 para $E_L = E_{CAV}$.

nanocavidad para una energía óptica tal que ambos procesos ocurren de manera extendida en toda la nanoestructura (Fig. 4.2). Por un lado, la generación no resulta perfectamente monocromática para la energía del modo de cavidad. Existe también una contribución significativa del modo de superred de $q \sim 0$ (este modo no satisface estrictamente la condición $q = 0$ por las razones de simetría que hemos descrito). Esto constituye una desventaja en cuanto a la finalidad que nos hemos planteado, de generar una oscilación monocromática a través de una nanocavidad. Por otro lado, la detección no resulta sensible al modo de cavidad. La señal proveniente de dicho modo que es detectada en un experimento de bombeo-sondeo será entonces de débil intensidad a causa del desacuerdo espectral entre generación y detección. Este es básicamente el mismo fenómeno que hemos estudiado en el capítulo anterior para los modos de generación y de detección en una superred. Resulta entonces de interés, tanto desde el punto de vista de la generación como de la detección, la posibilidad de generar y detectar selectivamente el modo de nanocavidad con las respuestas espectrales de la Fig. 4.3, haciendo uso de las resonancias electrónicas como herramienta para alterar las propiedades de generación y de detección de una misma nanoestructura.

4.3. Muestras, condiciones experimentales y experimentos de caracterización

Hemos estudiado dos muestras consistentes en una nanocavidad y en una superred. Para la nanocavidad se emplearon como espejos acústicos dos superredes de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ / AlAs de 12 períodos. El espesor de la celda unidad fue elegido de modo que la primera brecha prohibida de centro de zona se ubicase a una frecuencia $\nu_0 = 0,54$ THz. Para maximizar la extensión espectral de dicha brecha se utilizó la relación de espesores $3d_{\text{GaInAs}}/v_{\text{GaInAs}} = d_{\text{AlAs}}/v_{\text{AlAs}}$, lo que resulta en $d_{\text{GaInAs}} = v_{\text{GaInAs}}/(4\nu_0) = 21$ Å y $d_{\text{AlAs}} =$

4.3 Muestras, condiciones experimentales y experimentos de caracterización

$3v_{\text{AlAs}}/(4\nu_0) = 78 \text{ \AA}$. Como capa espaciadora de la nanocavidad se empleó una capa de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ de espesor $l_c = \lambda_{\text{GaInAs}}/2 = v_{\text{GaInAs}}/(2\nu_0) = 42 \text{ \AA}$, encerrada entre dos capas de AlAs pertenecientes a cada uno de los espejos. Esta muestra la identificaremos con la letra C (por “cavidad”). La otra muestra, que distinguiremos con la letra S (por “superred”), cuenta con 24 períodos de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}/\text{AlAs}$. Los espesores de las capas son idénticos a los de las superredes de la muestra C. Ambas muestras difieren entonces únicamente en la capa espaciadora de la cavidad. Fueron crecidas mediante el método de epitaxia por haces moleculares sobre sustratos de GaAs orientados según la dirección cristalina [001]. La fabricación de las muestras estuvo a cargo del Dr. Pablo O. Vaccaro en ATR Wave Engineering Laboratories de Japón. La elección de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ en lugar del estándar GaAs tiene su justificación en experimentos realizados sobre las muestras que no abarcaremos en el presente trabajo de tesis.

Los experimentos de bombeo-sondeo fueron realizados con el esquema reflectométrico de detección. Se empleó un oscilador Maitai de titanio-zafiro que entrega pulsos de aproximadamente 80 fs de duración con una frecuencia de repetición de 79 MHz. La potencia media empleada fue de 24 mW para el haz de bombeo (0,30 nJ por pulso) y de 6,3 mW para el haz de sondeo (0,080 nJ por pulso). Se barrió un rango de energías ópticas de 1,734 eV (715 nm) a 1,409 eV (880 nm). Los experimentos fueron efectuados a temperatura ambiente.

Según describimos en la sección *Motivación*, para lograr la excitación y detección selectiva de los modos de nanocavidad es necesario en primer lugar conocer las energías de las transiciones electrónicas. Se llevaron a cabo entonces experimentos de fotoluminiscencia sobre la muestra S. El experimento consiste en incidir sobre la muestra con el haz de un láser continuo, cuya energía se encuentre por encima de las transiciones que se quieren estudiar (se empleó radiación de 2,410 eV, 514,5 nm, de un láser de argón). La luz emitida por la muestra es colectada con una lente y enviada a un monocromador. El espectro de intensidad refractada por la red de difracción del monocromador se colecta mediante una CCD (*charged coupled device*). El espectro obtenido refleja la emisión de la muestra. El experimento de fotoluminiscencia brinda por tanto acceso a las energías de las transiciones fundamentales de los diferentes pozos cuánticos presentes en la muestra.

Como la energía de la transición fundamental de la capa espaciadora de la cavidad se estimaba muy cercana a la del sustrato, y además las emisiones son anchas a temperatura ambiente, fue necesario removerlo en un pequeño trozo de la muestra para efectuar los experimentos de fotoluminiscencia. De esta manera nos aseguramos que la energía del pico observado efectivamente corresponde a la emisión del espaciador. Con este fin, se incluyó en el diseño de la muestra una capa de $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ entre la nanoestructura y el sustrato para permitir el ataque químico. El proceso de remoción del sustrato fue idéntico al de la muestra A, descrito en la pág. 70. Es necesario aclarar que los experimentos de bombeo-sondeo fueron llevados a cabo sobre un trozo de la muestra en el que el sustrato no había sido removido, de modo de evitar efectos de tipo Fabry-Pérot

observados en la muestra A.

Los resultados, obtenidos a temperatura ambiente, se presentan en la Fig. 4.4. El pico más intenso se identifica con la emisión de los pozos cuánticos de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ de las superredes, mientras que el pico de menor energía, bastante menos intenso, corresponde a la emisión de la cavidad. Identificamos así las energías $E_{\text{SR}} = 1,729$ eV y $E_{\text{CAV}} = 1,442$ eV. Existe un tercer pico situado a 1,640 eV cuyo origen podría asignarse a impurezas en los espejos o a una emisión de la cavidad a través de transiciones superiores (lo que se conoce como luminiscencia “caliente”).

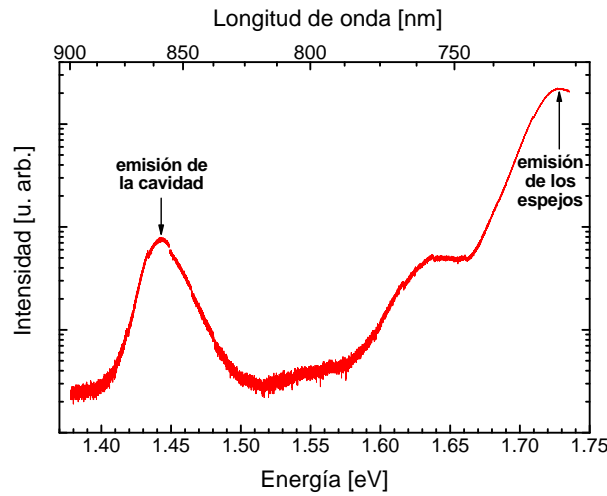


Figura 4.4: Resultados de fotoluminiscencia a temperatura ambiente de la muestra C (en escala vertical logarítmica).

4.4. Resultados Experimentales

En la Fig. 4.5 presentamos las trazas temporales. Para la muestra C se exhiben dos trazas obtenidas con energías ópticas diferentes, una de ellas (1,710 eV) cercana a E_{SR} y la otra (1,442 eV) coincidente con E_{CAV} . Para la muestra S solo la traza con $E_{\text{L}} = 1,710$ eV resulta de interés (a $E_{\text{L}} = 1,442$ eV la señal es nula). Las trazas fueron filtradas con un filtro pasa-altos (frecuencia de corte 0,15 THz) con el fin de aislar la componente vibracional de alta frecuencia del fondo termo-electrónico de la señal y de las oscilaciones del modo Brillouin (0,05 THz). En cuanto a la muestra C, en la traza correspondiente a $E_{\text{L}} = 1,710$ eV de la Fig. 4.5(a) pueden distinguirse dos regímenes de decaimiento. Durante los primeros 100 ps el decaimiento es rápido. Para tiempos posteriores sobrevive una oscilación de descenso más suave. El detalle de estos regímenes puede apreciarse en el panel (b) de la figura. Para tiempos $t \lesssim 100$ ps se observa un batido formado por varias frecuencias, mientras que para $t \gtrsim 100$ sobrevive una oscilación compuesta únicamente por dos frecuencias ν_1 y ν_2 , con $\nu_2 \simeq 2\nu_1$. Esta última oscilación domina la traza temporal obtenida para $E_{\text{L}} = 1,422$ eV durante toda la escala temporal. Su decaimiento resulta

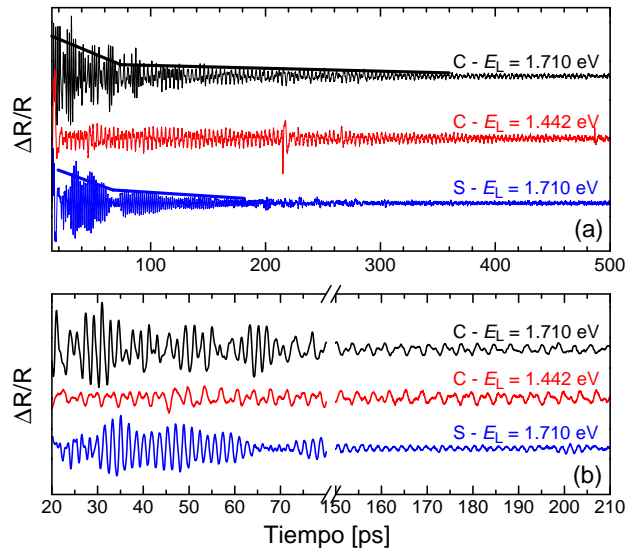


Figura 4.5: (a) Trazas temporales experimentales obtenidas sobre la muestra C a dos energías ópticas diferentes, una cercana a E_{SR} (curva negra) y otra coincidente con E_{CAV} (curva roja), y sobre la muestra S a una energía cercana a E_{SR} (curva azul). Las líneas rectas sobre las curvas negra y azul señalan dos regímenes de decaimiento presentes. (b) Detalle de las regiones temporales correspondientes a cada uno de los regímenes.

muy similar al que presenta la curva de $E_L = 1,710$ eV para $t \gtrsim 100$ ps. En cuanto a la muestra S, también se observan dos regímenes de decaimiento. Para $t \lesssim 80$ ps el régimen es similar al de la muestra C para la misma energía de excitación. Luego se distingue un régimen de decaimiento más lento, pero que no sobrevive tanto tiempo como en el caso de la muestra C. En la Fig. 4.5(b) puede apreciarse el detalle de los dos regímenes. El de decaimiento rápido muestra batidos, mientras que el decaimiento suave presenta una oscilación aproximadamente monocromática.

Pasemos a las transformadas de Fourier. Las mismas se exhiben en la Fig. 4.6. Para la muestra C hemos barrido una gama de longitudes de onda que abarca desde E_{CAV} hasta E_{SR} . Para la muestra S sólo hemos abarcado un entorno de E_{SR} . El valor de la energía óptica se encuentra indicado en cada espectro en unidades de electrón-volt. En ambas muestras identificamos los modos de $q = 2k_s$, modulados por oscilaciones de tamaño finito (y de interferencia entre la luz reflejada en una y otra superred en el caso de la muestra C [127]). También se distingue el modo de $q \sim 0$ de la muestra C y el de $q = 0$ de la muestra S (recordamos que el modo de $q = 0$ de la nanocavidad es prohibido en la generación, por lo que denotamos “ $q \sim 0$ ” al modo observado justo a la derecha de la brecha de energías prohibidas en la función de generación). En el espectro de la muestra C se observa un pico delgado ubicado a una energía de 0,55 THz. Este valor se encuentra en buen acuerdo con la energía del modo de cavidad, estimada a partir de los espesores nominales de la nanoestructura en 0,54 THz. Identificamos entonces el pico delgado con el modo de cavidad.

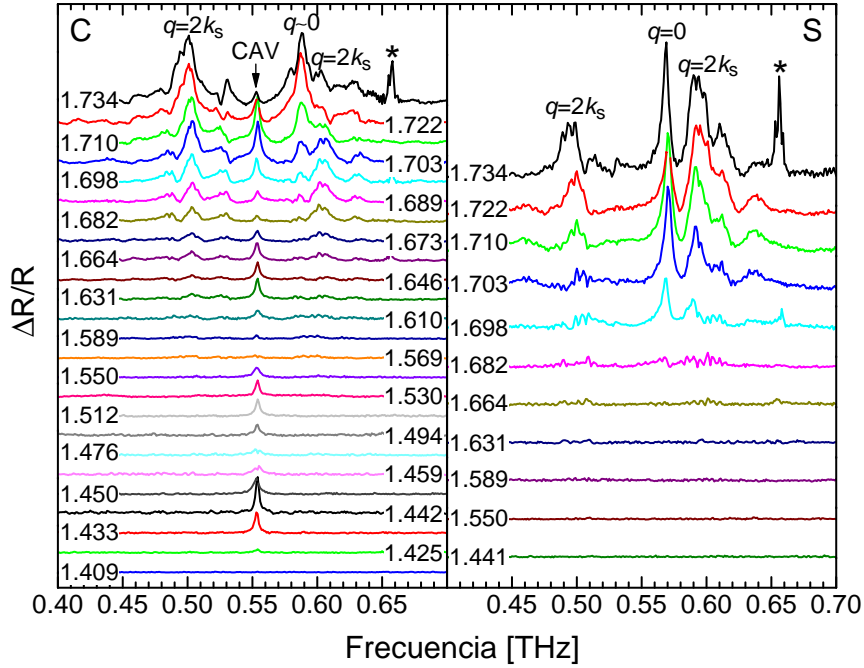


Figura 4.6: Transformada de Fourier de las trazas experimentales para las muestras C y S obtenidas a diferentes energías ópticas, indicadas para cada curva en unidades de electrón-volt. En el caso de la muestra C se distingue el modo de cavidad (indicado CAV), el de $q \sim 0$ y el doblete de $q = 2k_s$. En los espectros de la muestra S se identifica el modo de $q = 0$ y el doblete. El pico señalado con un asterisco es un artefacto introducido por el sistema de estabilización del láser.

En cuanto a la dependencia del espectro con la energía óptica, observamos en ambas muestras que la intensidad de los modos de superred (con “modos de superred” queremos significar el modo de $q = 0$ o de $q \sim 0$ y el doblete de $q = 2k_s$) disminuyen en intensidad a medida que la energía óptica se aleja de E_{SR} , extinguiéndose completamente para $E_L = 1,589$ eV. En la muestra C, sin embargo, el modo de cavidad sobrevive en el rango inferior de energías ópticas y se extingue una vez que E_L se encuentra por debajo de E_{CAV} . Esto demuestra que la elección de la energía óptica respecto de las transiciones electrónicas interbanda permite generar y detectar selectivamente modos de nanocavidad extinguiendo los modos de superred. Se observa además cierta dependencia de la intensidad del modo de cavidad con la energía óptica. Se distinguen en particular cuatro máximos ubicados en 1,442, 1,512, 1,631 y 1,710 eV.

4.5. Discusión, experimentos adicionales y cálculos

En la presente sección profundizaremos en el análisis de los resultados experimentales. Organizaremos la discusión en el orden siguiente:

- Variación de la intensidad del modo de cavidad en función de la energía óptica.
- Cálculo de los espectros.

- Regímenes de decaimiento y tiempos de vida media.

En los cálculos del presente capítulo hemos efectuado algunas simplificaciones respecto del protocolo de cálculo descrito en la sección 2.4. A saber:

- Aproximación del campo eléctrico por una onda plana, despreciando reflexiones en las interfaces. Esto no resulta una aproximación muy fuerte en el caso de muestras gruesas (con sustrato) por dos motivos. Por un lado, las nanoestructuras acústicas resultan un medio efectivo para la luz dado que la modulación del índice de refracción ocurre a una escala mucho menor que la longitud de onda óptica. Por el otro, la absorción en el sustrato elimina el efecto Fabry-Pérot, que sólo puede reproducirse si se calcula adecuadamente el campo eléctrico en el interior de la muestra.
- Exclusión del primer término de la ec. (2.59) en la función de generación. Esta tampoco es una aproximación muy importante dado que en la región espectral a la que nos dedicamos el término dominante es el segundo.

4.5.1. Variación de la intensidad del modo de cavidad en función de la energía óptica.

En la descripción de los resultados experimentales señalamos la observación de cuatro máximos en la intensidad del modo de cavidad en función de la energía óptica, ubicados en las energías 1,442, 1,512, 1,631 y 1,710 eV. La dependencia de la intensidad del modo con E_L se detalla en la Fig. 4.7. Los cuatro máximos se distinguen claramente, mientras que las intensidades de los modos del doblete decrecen monótonamente a medida que E_L se aleja de E_{SR} . El espectro de fotoluminiscencia también se muestra en la figura (escala vertical derecha). Resulta evidente que el máximo del modo de cavidad situado a 1,442 eV se debe a la resonancia de E_L con la transición fundamental de la capa espaciadora. Surge entonces la hipótesis de relacionar los restantes tres picos con transiciones superiores. El tercer máximo coincide con un pico de emisión de la muestra, aunque el origen de este pico no fue identificado.

Para conocer las energías de las transiciones superiores efectuamos experimentos de fotoluminiscencia de excitación (PLE, del inglés *photoluminescence excitation*). El experimento consiste en incidir sobre la muestra con radiación láser continua de energía variable, coleccionar la luz emitida por la muestra con una lente y enviarla a un monocromador. A diferencia de la fotoluminiscencia, en este caso se selecciona una pequeña ventana espectral de la salida del monocromador de aproximadamente 0,03 meV de ancho, centrada en la energía de emisión de la muestra (la transición fundamental). La luz que colecta esta ventana se detecta con un fotomultiplicador. La energía de la ventana de detección se mantiene fija, mientras que la de la radiación incidente se varía en forma continua desde un valor apenas superior al de la detección hasta energías que excedan las transiciones que se quieran estudiar. La intensidad de la luz emitida por la muestra aumenta cuando

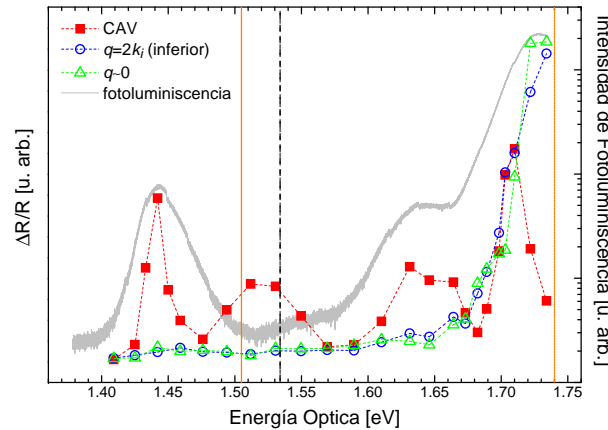


Figura 4.7: Dependencia de la intensidad del modo de cavidad, del modo de $q \sim 0$ y de la componente inferior del doblete de $q = 2k_s$ en los espectros de bombeo-sondeo de la muestra C en función de la energía óptica. La curva gris (eje vertical derecho) representa el espectro de fotoluminiscencia de la muestra C (sin sustrato). La línea negra entrecortada indica la energía de la transición electrónica $e1 \rightarrow lh1$ inferida a partir de experimentos de fotoluminiscencia de excitación. Las líneas naranjas de puntos señalan las energías de las transiciones $e1 \rightarrow lh1$ y $e1 \rightarrow hh3$ obtenidas de cálculos de los estados electrónicos mediante el método de masa efectiva.

la energía incidente atraviesa una transición electrónica. Se obtiene entonces el espectro de absorción de la muestra, el cual brinda información sobre las transiciones superiores. Los experimentos de PLE deben realizarse a baja temperatura (~ 15 K) pues para que el resultado obtenido refleje el espectro de absorción de la muestra debe satisfacerse la siguiente hipótesis: todos los pares electrón-hueco creados por la absorción de fotones incidentes se recombinan radiativamente a través de la transición fundamental. A temperatura ambiente la probabilidad de recombinación mediante otros canales es elevada, y por tanto los resultados obtenidos no reflejan fielmente la absorción de la muestra. El experimento de PLE no brindará entonces de forma directa las energías de las transiciones a temperatura ambiente en las que estamos interesados. Éstas serán estimadas a partir de los valores obtenidos a baja temperatura.

El resultado se presenta en la Fig. 4.8 (curva roja). Como referencia también se presentan los espectros de luminiscencia de las muestras C y S a baja temperatura. En estas curvas se distingue la emisión del sustrato y la emisión a través de sus impurezas.² Sólo para la muestra C se distingue un pico adicional que corresponde a la emisión de la cavidad. Para el experimento de PLE la ventana espectral de detección se centró en dicha emisión. La curva roja presenta un pico muy cercano a la emisión de la cavidad y un pico superior. El primero corresponde al máximo de absorción, que difiere del máximo de emisión debido al corrimiento Stokes [128, 129]. El segundo se identifica con la primera transición superior, es decir, la transición entre el primer estado confinado del electrón ($e1$) y el primer estado confinado del hueco liviano ($lh1$): $e1 \rightarrow lh1$. Se ubica a una energía de 1,634 eV. Para extrapolar la posición espectral de esta transición a temperatura ambiente

²Los experimentos de fotoluminiscencia sobre la muestra C a baja temperatura pueden realizarse sin remover el sustrato pues los anchos de los picos permiten resolver la emisión de éste y la de la cavidad.

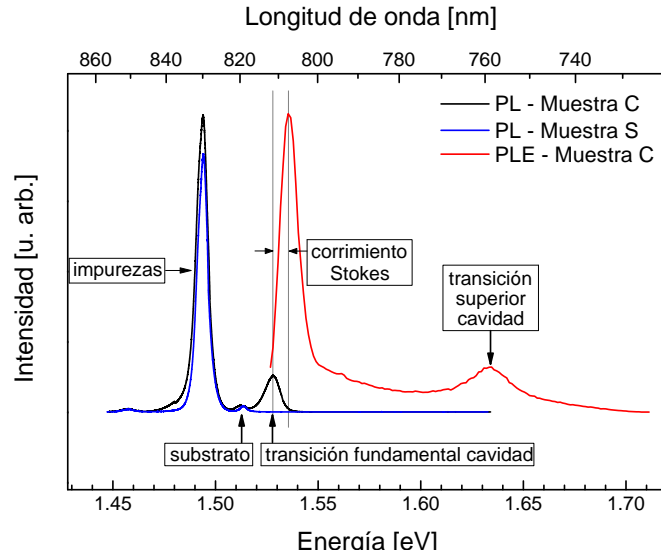


Figura 4.8: Espectro de fotoluminiscencia de excitación (PLE) sobre la muestra C (curva roja) a baja temperatura. Las curvas negra y azul representan los espectros de fotoluminiscencia (PL) de las muestras C y S a baja temperatura. Se observan las emisiones del sustrato, de las impurezas y de la cavidad, ésta última únicamente presente en la curva de la muestra C. Entre los espectros de emisión y de absorción de la muestra C se distingue el corrimiento Stokes.

le restaremos 100 meV, que es la diferencia que se conoce para la transición fundamental de GaAs entre temperatura ambiente y temperatura de helio líquido. Obtenemos el valor de 1,534 eV.

Para corroborar el valor hallado hemos recurrido a cálculos de los estados electrónicos por el método de la masa efectiva. Los mismos fueron realizados por el Mgter. Guillermo Rozas, estudiante de doctorado del Laboratorio de Propiedades Ópticas del Centro Atómico Bariloche e Instituto Balseiro. El valor obtenido ha sido de 1,505 eV, en acuerdo razonable con la energía estimada a partir del experimento de PLE. Ambos valores se indican en la Fig. 4.7, con una línea negra entrecortada para el valor estimado a partir del resultado experimental y con una línea naranja de puntos para el resultado teórico. Observamos que los valores resultan cercanos a la energía del segundo máximo de la intensidad del modo de cavidad en el experimento de bombeo-sondeo. Podemos asociar entonces dicho máximo a la transición $e1 \rightarrow lh1$. En la Fig. 4.7 se muestra además el valor teórico de la transición $e1 \rightarrow hh3$, donde $hh3$ indica el tercer nivel confinado del hueco pesado.

No ha sido posible identificar claramente los máximos tercero y cuarto con una transición electrónica. Existen tres hipótesis. La primera consiste en que, según se muestra en la Fig. 3.38, a una dada transición electrónica no corresponde un único máximo de intensidad en el experimento de bombeo-sondeo sino tres, pues así lo determinaría la forma funcional de la constante fotoelástica respecto de la energía óptica [39]. A su vez, la extensión espectral en la que se ubican estos tres picos es de aproximadamente 100 meV. Al combinar varias de estas transiciones, la constante fotoelástica podría presentar una variación algo más compleja. Siendo así, los cuatro picos observados podían ser el resul-

tado de las variaciones que la constante fotoelástica sigue a lo largo de las transiciones $e1 \rightarrow hh1$, $e1 \rightarrow lh1$ y $e1 \rightarrow hh3$. La segunda hipótesis surge de la coincidencia entre el tercer máximo y el máximo no identificado en el espectro de luminiscencia. Podría ocurrir que ambos máximos estuviesen relacionados, pero no podemos aventurar más en este sentido pues no conocemos el origen de esta emisión del espectro de luminiscencia. La tercer hipótesis refiere únicamente al cuarto máximo de la intensidad del modo de cavidad. Veremos al analizar los cálculos del espectro de bombeo-sondeo que es posible reproducir dicho máximo sin variar el parámetro de la constante fotoelástica de la capa espaciadora. El máximo aparece como resultado de la variación de la constante fotoelástica de las capas de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ de los espejos. Volveremos sobre este punto más adelante.

4.5.2. Cálculo de los espectros

Los parámetros empleados en los cálculos se listan en la sección B.3 del apéndice B. Remarcamos que la parte compleja del índice de refracción, la constantes de generación y las constantes fotoelásticas han sido dejadas como parámetros de ajuste. A estas dos últimas les hemos asignado en todos los casos valores idénticos (es decir, $K = p$) con el fin de reducir el número de parámetros libres. El ajuste se realizó para cada una de las energías ópticas empleadas en el experimento. A las capas de AlAs, cuya transición electrónica fundamental se encuentra muy por encima de la gama de energías ópticas empleada, le hemos asignado un valor igual a 1 para la constante de generación y la constante fotoelástica, a todas las energías estudiadas.

Los resultados del cálculo para la muestra C junto con los datos experimentales se exhiben en la Fig. 4.9. Observamos que las características principales de los espectros se encuentran satisfactoriamente reproducidas en el cálculo, en particular, la observación del modo de cavidad en 0,55 THz y de los modos de superred (picos principales en 0,50 THz y 0,59 THz). Para que las mencionadas frecuencias resulten coincidentes con las del experimento fue necesario reducir el espesor de las capas de las superredes en un 2,3% e incrementar el de la capa espaciadora en un 3,0%. La variación de la intensidad de los picos ha sido lograda ajustando los valores de la parte imaginaria del índice de refracción y de las constantes fotoelásticas (conjuntamente con la constante de generación). Para la primera se empleó un valor único en toda la nanoestructura (pues el cálculo del campo eléctrico considera un medio efectivo), que se fue disminuyendo desde 0,13 hasta un valor nulo a medida que la energía óptica disminuye respecto de E_{SR} . Para las constantes fotoelásticas, los valores en la capa espaciadora y en las capas de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ de los espejos se variaron independientemente. El detalle de los valores empleados puede consultarse en la Tabla B.7. Un dato a mencionar es que la constante fotoelástica de la capa espaciadora se mantuvo invariante entre las energías ópticas 1,734 y 1,682 eV. Es decir que el cuarto máximo observado en la intensidad del modo de cavidad, que ocurre a 1,710 eV, puede reproducirse en el cálculo a partir de la variación de la constante fotoelástica de las capas

de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ de las superredes. Esto muestra que no necesariamente debe asociarse este máximo a la cercanía de una transición electrónica interbanda del espaciador. La sensibilidad de la intensidad del modo de cavidad al valor de la constante fotoelástica en los espejos se debe a la penetración del campo de desplazamiento en los mismos, según puede apreciarse en la Fig. 4.1. Para el resto de los máximos, la constante fotoelástica de la capa espaciadora fue elegida de modo de reproducir la intensidad del modo de cavidad. Si bien los cálculos guardan un buen acuerdo con el experimento, no deben adoptarse los valores relativos entre la parte real e la parte imaginaria de las constantes fotoelásticas y de generación extraídos del ajuste como válidos para los pozos cuánticos estudiados. Ambas se han variado conjuntamente pues los resultados experimentales obtenidos a partir de una única energía óptica para los haces de bombeo y de sondeo no permiten establecer un criterio para individualizar el peso de una y otra constante. Por lo tanto, los valores relativos reales entre parte real y parte imaginaria de las constantes fotoelásticas y de generación pueden diferir considerablemente de los resultantes del ajuste.

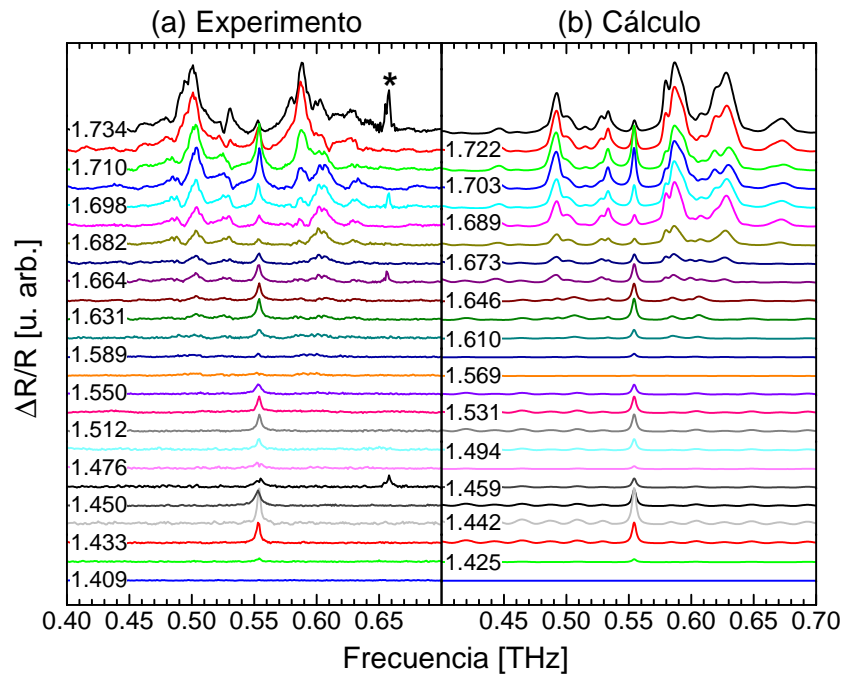


Figura 4.9: Comparación entre los resultados experimentales (a) y el cálculo (b) de los espectros de la señal de bombeo-sondeo de la muestra C. El pico señalado con un asterisco en los resultados experimentales es un artefacto introducido por el sistema de estabilización del láser.

Se distinguen algunas características en los espectros en las que el acuerdo entre cálculo y experimento resulta menos satisfactorio. Principalmente, la relación de intensidades entre las dos componentes del doblete de $q = 2k_s$ no es totalmente satisfactoria, y la intensidad del pico de 0,635 THz resulta superior en el cálculo que en el experimento. Cada uno de los picos del espectro resulta del producto de las funciones de generación y de detección. Para un pico de detección, su intensidad es muy dependiente de las oscilaciones de tamaño finito que presenta la función de generación a esa energía (y recíprocamente

para un pico proveniente de la generación). Esto puede apreciarse en la Fig. 4.10, donde mostramos las funciones de generación y de detección (para una energía óptica de 1,734 eV) junto con el cálculo de $\Delta R/R$. La posición particular de las oscilaciones de tamaño finito dependen fuertemente de los valores empleados para las constantes de generación y de detección. Al efectuar el ajuste con los datos experimentales hemos priorizado la reproducción de la intensidad relativa del modo de cavidad respecto de los modos de superred. Si bien esto ha sido logrado con éxito, ocurre entonces que los valores elegidos no necesariamente logran reproducir otras relaciones de intensidades.

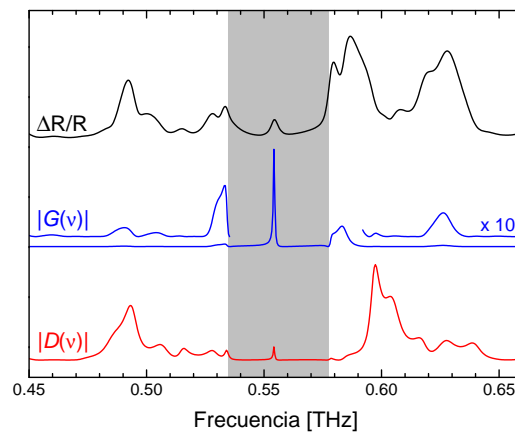


Figura 4.10: Comparación entre las funciones de generación y de detección, junto con el cálculo de $\Delta R/R$. Este último incluye una convolución lorentziana de ancho compatible con la ventana temporal de detección.

En conclusión, las características principales de los espectros han sido satisfactoriamente reproducidas por el protocolo de cálculo utilizado, que también ha permitido identificar el origen de cada pico. La dependencia de la intensidad del modo de cavidad ha sido reproducida variando las constantes fotoelásticas y de generación.

4.5.3. Regímenes de decaimiento y tiempos de vida media

Para analizar los regímenes de decaimiento identificados en la Fig. 4.5 hemos calculado la transformada de Fourier de las trazas experimentales para ventanas temporales de 100 ps de extensión. El centro de la ventana se desplaza de manera continua a lo largo de los 500 ps del rango temporal total de medición. De esa manera podemos identificar las frecuencias presentes en la señal a diferentes intervalos temporales. Los resultados se presentan en la Fig. 4.11. Para la muestra C y excitación óptica en $E_L = 1,710 \text{ eV} \simeq E_{SR}$ (Fig. 4.11(a)) se distinguen entre 0,46 y 0,64 THz el modo de cavidad y los modos de superred. Puede observarse que el modo de cavidad perdura hasta tiempos más largos que los modos de superred (para remarcar este fenómeno hemos trazado una línea roja y otra amarilla siguiendo respectivamente el decaimiento del modo de cavidad y del modo de superred de 0,588 THz). Esto demuestra el efecto de confinamiento provisto por la cavidad:

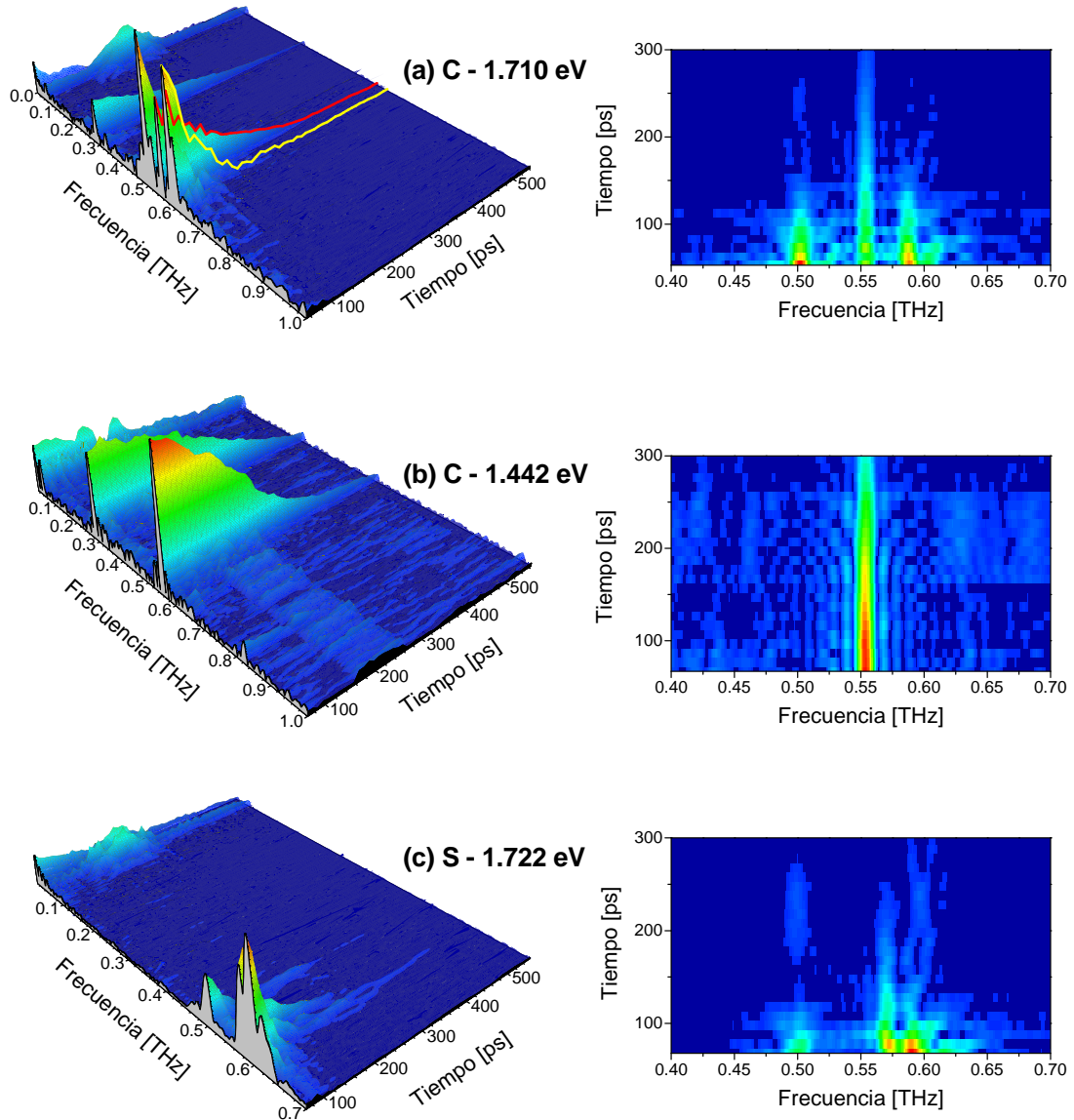


Figura 4.11: Transformada de Fourier de las trazas temporales efectuadas por ventanas temporales sucesivas. La extensión de la ventana es de 100 ps. El valor central de la misma se desplaza a lo largo de todo el rango temporal estudiado y define la coordenada del eje indicado “Tiempo”. (a) Para la muestra C y una energía óptica de 1,710 eV cercana a E_{SR} . (b) Para la muestra C y una energía óptica de 1,442 eV coincidente con E_{CAV} . (c) Para la muestra S y una energía óptica cercana a E_{SR} .

el modo de cavidad, confinado en la región de la capa espaciadora, escapa más lentamente hacia el sustrato que los modos extendidos de superred. De esta forma se entienden los dos regímenes de decaimiento distinguidos en la Fig. 4.5. Durante los primeros 80 – 100 ps la señal es la resultante del batido de todos los modos presentes, los de superred y el de cavidad. Luego del intervalo mencionado sólo el modo de cavidad sobrevive en la región de detección, los modos de superred han escapado hacia el sustrato. La señal muestra entonces el decaimiento del modo de cavidad. En el caso de la muestra S (Fig. 4.11(c)), en la cual naturalmente únicamente existen modos de superred, observamos que

el decaimiento es más rápido que el modo de cavidad de la muestra C. De todas formas, se distingue un modo de perdura más tiempo que los demás. Se trata del modo de $q = 0$ cuya velocidad de grupo es menor que la de los modos de $q = 2k_s$ debido a la curvatura de la relación de dispersión. Esto explica los dos regímenes de decaimiento observados en la Fig. 4.5 para la muestra S. La oscilación monocromática que se aprecia en dicha figura para $t \gtrsim 80$ ps corresponde al modo de $q = 0$ que se mantiene en la región de detección durante más tiempo que los modos de $q = 2k_s$ dada su inferior velocidad de grupo (ver sección 2.3.3 o la Ref. [41]). Sin embargo, no alcanza a perdurar tanto tiempo como el modo de cavidad de la muestra C, su acoplamiento con el substrato es mayor y por lo tanto escapa antes.

Retornando al análisis de la muestra C, en la Fig. 4.11(a) también se observa un pico ubicado en 0,285 THz, aproximadamente la mitad de la frecuencia del modo de cavidad (0,554 THz). Este modo corresponde a otro modo de la cavidad ubicado en la primer banda de rechazo de los espejos, es decir, la brecha de energía prohibida de índice $\gamma = 1$ (γ fue definido en la ec. (2.16)). Para asegurarnos de ello, hemos calculado la reflectividad acústica de la muestra. El resultado se presenta en la Fig 4.12. La brecha de $\gamma = 1$ se observa entre 0,26 y 0,30 THz, y el modo de cavidad correspondiente se ubica en 0,285 THz, en coincidencia con el valor hallado experimentalmente. El hecho de que la energía de este modo no sea exactamente la mitad de la energía del modo de la brecha de $\gamma = 2$ se debe a las fases que aporta la reflexión en cada uno de los espejos (ver nota al pie de la página 18). El efecto de confinamiento sobre este modo también queda evidenciado experimentalmente en el extenso tiempo de decaimiento observado en la Fig. 4.11(a). La superposición de ambos modos explica la oscilación compuesta por dos frecuencias, una el doble de la otra, observado en la traza temporal de la Fig. 4.5.

En cuanto a la dependencia con la energía óptica, se observa en la Fig. 4.11(b) que cuando $E_L = 1,442$ eV = E_{CAV} los únicos modos excitados son los modos de cavidad.

Resulta llamativo que el decaimiento del modo de cavidad de menor energía es más lento que el del modo de mayor energía. Aunque sus intensidades no siguen una forma perfectamente exponencial, estimaremos el tiempo de decaimiento a partir del intervalo temporal transcurrido desde $t = 0$ hasta que la intensidad del modo decrece en un factor $1/e$ respecto de su valor inicial. Obtenemos así valores de (350 ± 10) ps y de (210 ± 6) ps para los modos de cavidad de $\gamma = 1$ y $\gamma = 2$ respectivamente. En cuanto a los modos de superred, el tiempo de decaimiento para el modo, por ejemplo, de 0,588 THz es de (37 ± 3) ps, en concordancia con el tiempo de escape hacia el substrato, calculado en (45 ± 2) ps.

Resulta de utilidad calcular el tiempo de decaimiento esperado a partir de las propiedades de confinamiento de la cavidad. Dicho tiempo está dado por la inversa del ancho a altura mitad de los modos en la curva de reflectividad de la Fig. 4.12. Los valores obtenidos son 290 ± 40 ps para el modo de $\gamma = 1$ y 710 ± 10 ps para el de $\gamma = 2$ (la mayor barra de error en el primer caso es debida a la incerteza respecto de la altura mitad de la línea en el

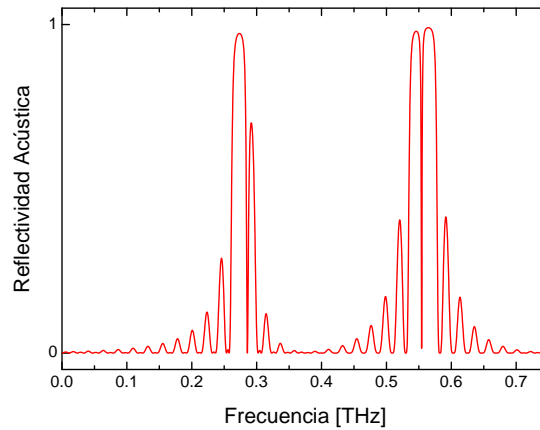


Figura 4.12: Espectro de reflectividad de la muestra C calculado a partir de los espesores deducidos del ajuste de los espectros con los datos experimentales (reducción del 2,3% de las capas de los espejos y aumento del 3% de la capa de la cavidad).

espectro de reflectividad). La diferencia entre ambos valores se origina en que la cavidad ha sido diseñada de forma tal de optimizar el confinamiento del modo de $\gamma = 2$. Esto es, la relación de espesores de las capas de los espejos ha sido elegida para maximizar el ancho de la brecha de $\gamma = 2$. Para tal elección de espesores, el modo de cavidad de $\gamma = 1$ no se ubica en el centro de la brecha prohibida de las superredes, por lo que reflectividad de los espejos es inferior. Como consecuencia, el efecto de confinamiento resulta menor.

El valor calculado para el decaimiento del modo de menor energía se encuentra razonablemente cercano al tiempo hallado experimentalmente, siendo este último incluso un tanto mayor. En el caso del modo de mayor energía, en cambio, el valor experimental resulta considerablemente inferior al teórico. Esta diferencia sugiere que la vida media de los modos está afectada por efectos anarmónicos. La explicación es plausible ya que los efectos anarmónicos aumentan con la energía del fonón. También podría considerarse dispersión en las interfaces o el decaimiento vía la interacción con los electrones fotoexcitados, aunque estimamos que esta última contribución será de menor importancia pues la potencia del pulso de pump empleada es débil (menos de un tercio de la potencia utilizada para las muestras A y B) y la única capa absorbente es el espaciador. Asumiendo una relación $\tau_{\text{exp}}^{-1} = \tau_{\text{conf}}^{-1} + \tau_{\text{vm}}^{-1}$, donde τ_{exp}^{-1} es el tiempo de decaimiento hallado experimentalmente, τ_{conf}^{-1} el valor calculado correspondiente al efecto de confinamiento, y τ_{vm}^{-1} la vida media del fonón debida a anarmonicidades o a dispersión en las rugosidades de las interfaces, esta última se estima en $\tau_{\text{vm}}^{-1} = (300 \pm 10)$ ps. El hecho de haber hallado un valor experimental superior al teórico en el caso del modo de cavidad de menor energía suscita una hipótesis interesante pero de difícil verificación: el decaimiento del modo de mayor energía estimulado por la elevada población del modo de menor energía. Si bien esta idea resulta atractiva, no es posible corroborarla con los datos experimentales con los que disponemos. Existen no obstante datos experimentales adicionales que apuntan también en esta dirección. Dedicaremos la sección siguiente a profundizar sobre este tema.

Por último, llamaremos la atención sobre el modo Brillouin, presente en los tres gráficos de la Fig. 4.11 a una frecuencia de 0,05 THz. En las Figs. 4.11(a) y 4.11(c) puede distinguirse un incremento del modo Brillouin en torno a $t = 230$ ps, seguido de una disminución. Esta dinámica de incremento-disminución hace pensar en un pulso de fonones que arriba a la región de detección (la nanoestructura) desde la interfaz con sustrato, se refleja en la superficie libre y parte nuevamente. El tiempo de tránsito a lo largo de la capa de $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ (de $1 \mu\text{m}$ de espesor ubicada entre la nanocavidad y el sustrato) es de 190 ps, y el tiempo de tránsito a lo largo de la nanoestructura es de 45 ps. La suma da entonces un tiempo total compatible con la observación experimental. A su vez, el tiempo de tránsito de “ida y vuelta” a lo largo de la nanoestructura (90 ps) se encuentra en acuerdo con la extensión temporal del evento observado experimentalmente. El mismo se debe entonces al arribo de un pulso generado en la interfaz $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ /sustrato. Este pulso tiene asociado un espectro de bajas frecuencias, entre las cuales el proceso de detección es especialmente sensible a la correspondiente al modo Brillouin (ver Fig. 2.16 o la Ref. [27]). El origen de la generación del pulso es la discontinuidad de la absorción óptica en la interfaz (el $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ resulta transparente a la radiación de 1,710 eV). En efecto, puede distinguirse en la Fig. 4.11(b) que el evento incremento-disminución del modo Brillouin es menos distintiva. Eso se debe a que el GaAs es débilmente absorbente a una energía óptica de 1,442 eV, por lo que la discontinuidad en la absorción resulta menor.

4.6. ¿Emisión estimulada de fonones de cavidad?

En el análisis de los resultados experimentales señalamos que el tiempo de decaimiento estimado para el modo de cavidad de menor energía ($\gamma = 1$) resulta superior al esperado por efectos de confinamiento, mientras que el del modo de mayor energía ($\gamma = 2$) resulta inferior, evidenciando efectos anarmónicos o de decaimiento adicional. Aventuramos como posible explicación el decaimiento estimulado de los fonones del modo superior al modo inferior. Si bien los resultados experimentales no permiten corroborar ni descartar la hipótesis, nos proponemos en esta sección profundizar en otros indicios experimentales que apuntan en la misma dirección.

Uno de ellos es un dato del que ya hemos hecho mención sin enfatizar particularmente este aspecto. Se trata de la observación del modo de $\gamma = 1$ para E_L cercana E_{SR} . En ese caso, la constante de generación y la constante fotoelástica resultan casi-periódicas. Por lo tanto, las reglas de selección indican que para los fonones generados debe satisfacerse $q = 0$ y para los detectados $q = 2k_s$. El modo de cavidad de $\gamma = 1$ es un modo de borde de zona, es decir, de $q = \pi/D$. Por lo tanto, no debería ser generado ni detectado según las reglas de selección. En cambio, cuando E_L se aleja de E_{SR} , la constante de generación y la constante fotoelástica dejan de ser periódicas. Las reglas de selección pierden validez y ambos modos de cavidad pueden ser generados y detectados. En efecto, en el cálculo el

modo de $\gamma = 1$ no resulta observable para $E_L \simeq E_{SR}$, mientras que sí lo es para $E_L \simeq E_{CAV}$. Esto puede apreciarse en la Fig. 4.13, donde comparamos cálculo y experimento para una región más extendida del espectro. El modo de cavidad de $\gamma = 1$, visible en el experimento en 0,285 THz para todas las energías ópticas en las que aparece el modo de cavidad de $\gamma = 2$, sólo resulta apreciable en el cálculo para aquellos valores de E_L que se encuentran alejados de E_{SR} . La regla de selección queda evidenciada en el cálculo (lo hemos verificado con la versión más completa del protocolo de cálculo), mientras que no parece cumplirse en el experimento. Esto sugiere que existe algún mecanismo adicional de generación del modo de cavidad de $\gamma = 1$.

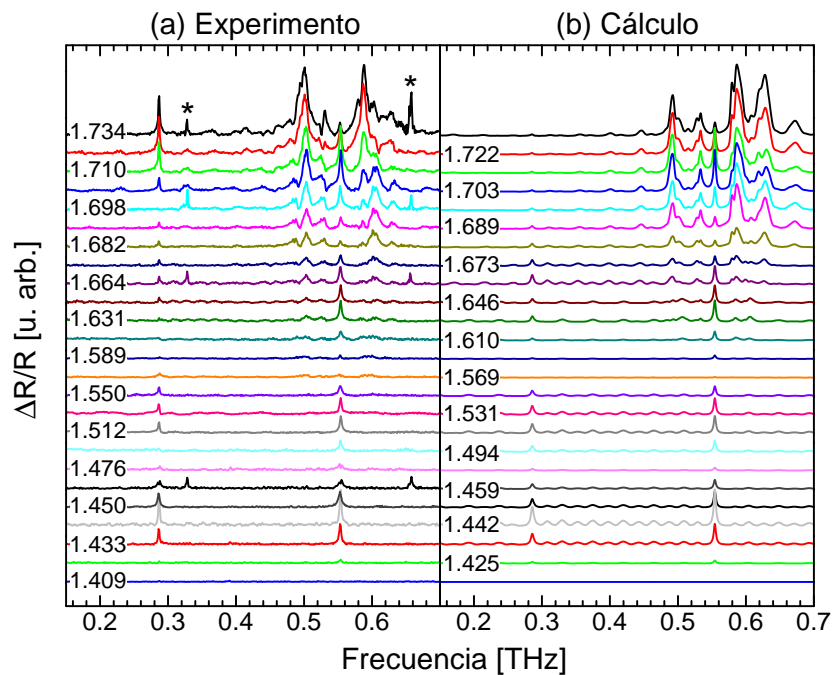


Figura 4.13: Comparación entre los resultados experimentales (a) y el cálculo (b) de los espectros de la señal de bombeo-sondeo de la muestra C. El pico señalado con un asterisco en los resultados experimentales es un artefacto introducido por el sistema de estabilización del láser. Notar especialmente el modo de cavidad de $\gamma = 1$ en 0,285 THz.

Hemos efectuado experimentos de dispersión Raman en geometría BS para comparar con los resultados de acústica de picosegundos. La radiación óptica empleada barrió el mismo rango de energías ópticas analizado en los experimentos de bombeo-sondeo. Se estudió una muestra a la que previamente se le removió el substrato. De esta forma, la radiación que ingresa a la muestra se refleja en la superficie posterior y permite acceder a los modos de $q = 0$, incluso en el esquema de BS (ver sección 2.5). Esto resulta especialmente útil ya que nos proponemos estudiar el modo de cavidad. El espectro obtenido para una radiación de 1,682 eV se muestra en la Fig. 4.14. Se distingue el modo de cavidad junto con el doblete de $q = 2k_s$. Puede apreciarse en la Fig. que la resolución del espectro Raman es inferior al de acústica de picosegundos. En condiciones estándar de medición eso es lo que suele suceder (debe recurrirse a configuraciones del monocromador con tres

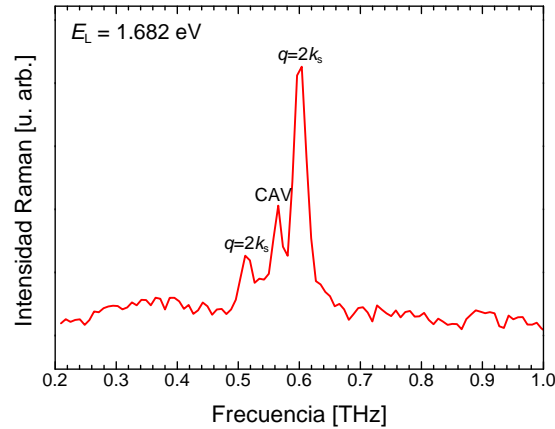


Figura 4.14: Espectro Raman de la muestra C obtenido a una energía óptica de 1,682 eV (temperatura ambiente). Se distingue el doblete de $q = 2k_s$ y el modo de cavidad (indicado CAV). El modo de $q \sim 0$ no puede resolverse de la componente superior del doblete. Para facilitar la comparación con el experimento de acústica de picosegundos, el eje de abscisas ha sido expresado en unidades de terahertz, a diferencia del “corrimiento Raman” usual en los experimentos de dispersión Raman, que se da en unidades de inversa de centímetro.

redes de difracción en serie para lograr más resolución, o acoplar el espectrómetro a un interferómetro Fabry-Pérot). Ya de esta figura puede notarse que el modo de cavidad de $\gamma = 1$ se encuentra ausente, mientras que en el correspondiente espectro de acústica de picosegundos dicho modo presentaba aproximadamente la misma intensidad que el modo de cavidad de $\gamma = 2$.

Pasemos ahora a la dependencia con la energía óptica. Los resultados se presentan en la Fig. 4.15(b), para los mismos valores de E_L empleados en acústica de picosegundos. Observamos que los espectros correspondientes a $E_L \simeq E_{SR}$ resultan bastante diferentes al exhibido en la Fig. 4.14. Si bien el modo de cavidad (señalado con la línea continua) y el doblete resultan observables, los picos se encuentran superpuestos a un fondo decreciente hacia altas frecuencias (las curvas han sido desplazadas verticalmente para mayor claridad). A su vez, se distingue una serie de mínimos indicados con las líneas punteadas y la línea entrecortada. Tanto el fondo como los mínimos son anomalías conocidas, características de los espectros obtenidos sobre superredes en condición de resonancia [130]. El origen de dichas anomalías consiste en la distribución de espesores que suele existir en una superred, la cual se traduce en una distribución de energías de transición interbanda para los diferentes pozos cuánticos que la componen. En condición de resonancia, la energía óptica se encuentra muy cercana a la transición de algún pozo en particular, siendo allí la constante fotoelástica superior que en el resto de los pozos. Esto quiebra la periodicidad, y las reglas de selección se relajan. En consecuencia, toda la banda de fonones acústicos replegados contribuye a la señal Raman, lo cual explica el fondo observado experimentalmente. Cierta grado de periodicidad continúa vigente en la superred, lo cual explica el hecho de que los modos que satisfacen las reglas de selección se distinguen por encima del fondo. Por otra parte, dado que éste refleja las banda replegadas, se encontrarán mínimos

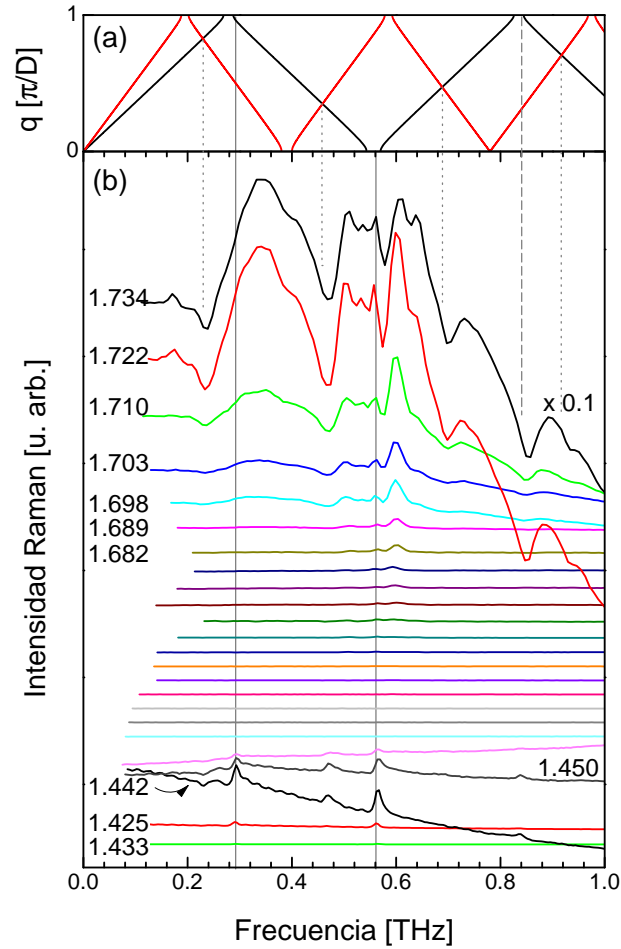


Figura 4.15: (a) Relaciones de dispersión de fonones acústicos longitudinales (curva negra) y transversales (curva roja) para una superred infinita cuya celda unidad es idéntica a la de los espejos de la muestra C. (b) Resultados de dispersión Raman en configuración BS para diferentes valores de la energía óptica, indicados para algunos espectros en unidades de electrón-volt. Aquellas curvas en los que la energía óptica no está especificada los valores corresponden a los mismos que fueron utilizados en los experimentos de bombeo-sondeo (ver Fig. 4.6). Las curvas han sido desplazadas verticalmente para mayor claridad. Las líneas verticales continuas indican las posiciones de los modos de cavidad. Las líneas punteadas relacionan anomalías de los espectros con intersecciones entre las relaciones de dispersión. La línea entrecortada señala una anomalía ligada a la segunda brecha de energía prohibida de borde de zona de la relación de dispersión de fonones acústicos. Para facilitar la comparación con el experimento de acústica de picosegundos, el eje de abscisas ha sido expresado en unidades de terahertz, a diferencia del “corrimiento Raman” usual en los experimentos de dispersión Raman, que se da en unidades de inversa de centímetro.

en las regiones donde la densidad de estados es nula, es decir, en las brechas de energías prohibidas. Así se entiende, por ejemplo, el mínimo indicado con la línea entrecortada, el cual corresponde a la brecha de energías prohibidas de $\gamma = 3$, según puede apreciarse en la Fig. 4.15(a), en la que la curva negra representa la relación de dispersión de fonones acústicos longitudinales. Los mínimos restantes, indicados con líneas punteadas, coinciden con intersecciones entre la relación de dispersión de fonones longitudinales y la de fonones transversales (curva roja de la Fig. 4.15(a)). La comprensión de dichos mínimos requiere un análisis del proceso Raman a un orden superior de perturbaciones que no pretendemos desarrollar aquí, el mismo puede consultarse en la Ref. [130]. En definitiva, lo que debe re-

calcare es que las curvas para $E_L \simeq E_{SR}$ muestran las características típicas de un espectro en resonancia. Observamos que a medida que E_L se aleja de E_{SR} se recupera el espectro de la Fig. 4.14. Lo que resulta de mayor interés para nuestro propósito, es que el modo de cavidad de $\gamma = 1$ se encuentra ausente para esta región de energías ópticas, a diferencia de lo observado en acústica de picosegundos. En la región cercana a E_{CAV} , en cambio, ambos modos de cavidad resultan observables en los espectros. En ese caso, los resultados de dispersión Raman y de acústica de picosegundos se encuentran en concordancia.

La ausencia del modo de cavidad de $\gamma = 1$ en los espectros Raman correspondientes a $E_L \simeq E_{SR}$ es consistente con la hipótesis de emisión estimulada de fonones de cavidad en el experimento de bombeo-sondeo. En el caso de la dispersión Raman, los fonones observados se encuentran en equilibrio térmico. El proceso Raman no puebla especialmente los modos permitidos por las reglas de selección, como ocurre gracias a la absorción del pulso óptico en acústica de picosegundos. En el experimento Raman por tanto, no existe una población de fonones en el modo de cavidad de $\gamma = 2$ susceptible de decaer al modo de $\gamma = 1$, ni una población en este último superior a la dictada por el equilibrio térmico.

Si bien hemos encontrado evidencia concordante en ambos experimentos, el concepto de emisión de fonones de nanocavidad continúa siendo una hipótesis que requiere de mayor análisis y contundencia experimental.

Por último resta mencionar dos detalles de interés que surgen de los resultados de dispersión Raman. El primero es el hecho que el modo de cavidad no resulta observable para las energías ópticas intermedias entre E_{SR} y E_{CAV} . Esto indica un comportamiento diferente de los mecanismos involucrados en dispersión Raman y en acústica de picosegundos al atravesar las transiciones superiores. El segundo detalle a resaltar es la presencia de un pico adicional en los espectros correspondientes a $E_L \simeq E_{CAV}$, ubicado entre los dos modos de cavidad. Comparando con las relaciones de dispersión, se asocia este pico a la intersección entre ambas curvas. Cuando se considera la dispersión Raman a un orden superior de perturbaciones, surge la posibilidad de lo que se denomina la reflexión de Bragg inter-modos, es decir que la condición de reflexión de Bragg se satisface para las energías en las que las bandas longitudinales y transversales coinciden [130]. Surgen entonces brechas de energías prohibidas en las intersecciones entre ambas relaciones de dispersión. El pico observado experimentalmente se entienden como un “modo de cavidad” para tales brechas de energías prohibidas. Este modo no resulta observable para $E_L \sim E_{SR}$ por las mismas razones por las que tampoco es observable el modo de cavidad de $\gamma = 1$.

Más allá de la búsqueda de datos experimentos adicionales que brinden pistas a propósito del modo de cavidad de $\gamma = 1$ y de la posibilidad de la emisión estimulada de fonones de cavidad, la comparación entre los resultados de dispersión Raman y de acústica de picosegundos reviste de por sí un gran interés. Existen escasos trabajos que comparen ambos tipos de experimentos [131]. A nuestro entender, no se han reportado aún comparaciones de ambas técnicas aplicadas sobre superredes o nanocavidades en

condición de resonancia. Consideramos que es un tema abierto e interesante que merita una investigación futura.

4.7. Conclusiones

Hemos demostrado la posibilidad de generar y detectar en forma selectiva los modos de nanocavidad acústica. Por un lado, queda evidenciada la posibilidad de manipular las propiedades de transducción luz-vibraciones de una misma estructura, a partir de la elección de la energía óptica y su relación con las transiciones electrónicas de la muestra. Por el otro, sintonizando la energía óptica con la transición fundamental de la capa espaciadora de la cavidad, es posible generar un espectro dicromático cuyas componentes frecuenciales corresponden a dos modos de cavidad. Dado que los intereses de lograr un espectro monocromático son múltiples, bastaría filtrar uno de los modos excitados agregando un espejo acústico con su banda de rechazo adaptada a la energía del modo que se quiere filtrar. Una muestra para tal fin podría consistir entonces en una sucesión nanocavidad - capa intermedia gruesa (algunos μm) - superred de filtrado - substrato. La oscilación que escaparía hacia el substrato sería en ese caso monocromática.

Hemos encontrado que la intensidad de los modos de cavidad observada experimentalmente varía en función de la energía óptica. Dichas variaciones han sido asociadas con transiciones electrónicas superiores gracias a la comparación con experimentos de fotoluminiscencia, fotoluminiscencia de excitación, y cálculos de los estados electrónicos.

Hemos analizado los tiempos de decaimiento de los diferentes modos detectados. Los modos de superred escapan rápidamente hacia el substrato, en intervalos temporales coincidentes con los estimados a partir del tamaño finito de la estructura. Para los modos de cavidad, en cambio, los elevados tiempos de decaimiento manifiestan el efecto de confinamiento. A su vez, hemos encontrado que el tiempo observado experimentalmente es, en el caso del modo de cavidad de menor energía, algo superior al esperado por el confinamiento. Para el modo de mayor energía, en cambio, el valor experimental es notablemente inferior. Esto sugiere una explicación basada en decaimientos anarmónicos o en dispersión en las rugosidades de las interfaces. Hemos estimado la vida media (para un fonón de 0,55 THz) en (300 ± 10) ps.

El hecho de haber observado experimentalmente un tiempo de decaimiento superior al valor dado por el confinamiento en el caso del modo de cavidad de menor energía suscitó la hipótesis de la emisión estimulada de fonones de dicho modo desde el modo de cavidad superior. Esta constituye una hipótesis atractiva, de la que no estamos en condiciones de brindar una demostración contundente. Hemos encontrado, sin embargo, dos datos experimentales adicionales que apuntan en la misma dirección: la observación del modo de cavidad de menor energía en condiciones en las que la simetría no permite su generación ni su detección, y la ausencia de dicho modo en experimentos de dispersión Raman. En estos últimos, la emisión estimulada no podría tener lugar dado que no existe

una elevada población de fonones en el estado de partida, la población de fonones responde a la distribución térmica.

Capítulo 5

Conclusiones

En el presente trabajo de tesis hemos abordado problemas de interés en el área de la nanofonónica. Nos hemos enfocado en cuestiones relacionadas con la generación y la detección de fonones acústicos longitudinales por pulsos ópticos ultra-breves en nanoestructuras planares. Particularmente, hemos centrado el interés en la manipulación de las respuestas espectrales de generación y de detección, tanto desde el punto de vista del solapamiento entre ambas funciones a partir del diseño, como de su alteración en una dada nanoestructura a partir de parámetros experimentales. Estos dos aspectos han definido dos líneas de trabajo.

En cuanto a la primera, hemos demostrado que es posible recurrir a la separación espacial de los procesos de generación y de detección en dos superredes distintas para incrementar considerablemente la sensibilidad experimental. Los fonones generados según una cierta respuesta espectral en un extremo de la muestra pueden ser detectados de manera distante en el otro extremo a través de una nanoestructura cuya respuesta está especialmente adaptada al espectro de los fonones que se quiere detectar. La adaptación se ha logrado a partir de la elección del espesor de la celda unidad de la superred de detección. De esta manera, hemos logrado sintonizar espectralmente uno de los picos de alta sensibilidad de detección con el pico de máxima eficiencia de generación de la otra superred. A su vez, el grado de solapamiento entre ambos picos ha sido variado de manera sucesiva gracias a un gradiente de espesores en la superred de detección, de modo de identificar claramente el efecto de una mayor o menor coincidencia.

Se han estudiado dos muestras que difieren principalmente en el espesor de la capa intermedia a lo largo de la cual el pulso de fonones se propaga de una superred a otra. En una de las muestras dicha capa contaba con $1\ \mu\text{m}$ de espesor mientras que en la otra todo un sustrato ($350\ \mu\text{m}$) fue empleado como capa intermedia. El delgado espesor de la primer muestra indujo la observación de numerosos efectos adicionales que en cierta forma enmascararon el aspecto cuantitativo de la amplificación debida al solapamiento espectral entre generación y detección. El origen de dichos efectos puede identificarse con la penetración de la luz en la muestra, lo que por un lado generó oscilaciones de tipo Fabry-Pérot en la respuesta óptica, y por otro impidió un desacoplamiento total entre las

funciones de generación y de detección. El efecto principal en este sentido fue originado por la penetración de la radiación de detección hasta la superred en la que los fonones son generados, y la reflexión de dicho haz en la superficie de la muestra. La interferencia entre el campo de detección incidente y el reflejado introdujo alteraciones en la función de detección que resultaron en una particular sensibilidad de esta última a la frecuencia del modo generado, independientemente del espesor de la celda unidad de la superred de detección. Estos efectos extrínsecos a la idea original han podido ser identificados y comprendidos gracias a la complementariedad de los resultados experimentales con cálculos numéricos de la evolución temporal y las componentes espectrales de la señal detectada. Cabe remarcar el alto grado de reproducibilidad de los datos experimentales a partir del cálculo. El apoyo en el cálculo permitió a su vez extraer un valor cuantitativo del incremento de la señal debido a la optimización espectral de los procesos de generación y de detección.

La segunda muestra fue concebida de forma de evitar los efectos adicionales observados en la muestra delgada. Para ello se recurrió a una capa intermedia de mayor espesor, que permitió desacoplar completamente los procesos de generación y de detección gracias a la absorción total de la luz. De esa forma se logró hallar directamente una medida cuantitativa del efecto de sintonización espectral entre generación y detección. Experimentalmente se verificó un incremento considerable de la señal en condición de sintonización respecto de una situación alejada del solapamiento espectral. Estimamos que el incremento es de aproximadamente un factor 50.

En el estudio de ambas muestras se han observado interesantes fenómenos adicionales. Uno de ellos refiere a la vida media de los fonones. En la evolución temporal de las vibraciones detectadas experimentalmente hemos observado en todos los casos un tiempo de decaimiento en la amplitud del orden de 300 – 800 ps, valor inferior al esperado por el tamaño finito de las superredes. Hemos verificado que parte de dicho decaimiento se debe a procesos anarmónicos, puesto que el decaimiento ha resultado sensible a la temperatura. A su vez, una apreciable disminución del tiempo de decaimiento se ha registrado en configuraciones experimentales en las que la generación y la detección se efectúan del mismo lado de la muestra. Esto sugiere una vía de decaimiento adicional: la interacción de los fonones con portadores fotoexcitados por el pulso de pump. En el caso de la muestra más delgada, la disminución del tiempo de decaimiento de la configuración en la que la generación y la detección tiene lugar sobre la misma superred respecto de aquella en la que los procesos ocurren en superredes distintas es aproximadamente del 40 %. Para la muestra gruesa la discrepancia alcanza el 95 %. Asignamos este elevado valor a la resonancia de la excitación óptica con una transición interbanda, lo cual incrementaría la densidad de portadores fotoexcitados. Otro dato que apoya la hipótesis de la dispersión de los fonones por los portadores es la observación de un tiempo de vida media inferior en el caso de un modo acústico cuya distribución espacial concentra una fracción significativa de la energía elástica en la región de mayor densidad de portadores (el modo de centro de zona). Creemos que el estudio de la vida media de los fonones acústicos de frecuencias en el rango

de los terahertz es una temática de gran interés capaz de motivar investigaciones futuras. El primer paso consistiría en efectuar un estudio sistemático del tiempo de decaimiento en función de la potencia del haz de generación.

Otro de los fenómenos adicionales que ha surgido del análisis de los datos experimentales, del que ya hemos hecho breve mención, es la dependencia de la señal detectada con la cercanía de la energía óptica a resonancias electrónicas. En particular, hemos registrado señales de magnitud inferior a la esperada cuando la energía óptica se encuentra en una región de resonancia. Este es otro tema de interés que amerita una investigación sistemática futura. En particular, uno de los desafíos consistiría en individualizar la dependencia de la generación respecto de la energía óptica y la dependencia de la detección.

Como último comentario respecto de esta línea de trabajo puede mencionarse que el esquema propuesto de generación y detección separadas espacialmente y optimizadas espectralmente resultaría de particular utilidad para el análisis de las propiedades de propagación y atenuación de fonones de frecuencias de (sub-)terahertz a lo largo de largas distancias. El estudio y comprensión de dichas propiedades en función de la frecuencia acústica y la temperatura es aún incipiente. Resulta sin embargo esencial para prever la implementación de las vibraciones acústicas en aplicaciones futuras.

La segunda línea de trabajo se centró en el estudio de las propiedades de transducción luz-sonido y sonido-luz de una nanocavidad acústica. Hemos encontrado que dichas propiedades pueden variarse a partir de la elección de la energía óptica. Una misma nanoestructura puede actuar ya sea como generador de una distribución extendida de vibraciones (en forma similar a lo que ocurriría con un transductor de tipo superred), o como generador de modos confinados de nanocavidad en los que la energía elástica está concentrada en la región del espaciador. Naturalmente, además de la distribución espacial, la respuesta espectral de uno u otro tipo de transductor varía significativamente. En el segundo caso, la nanocavidad acústica actúa como una fuente cuasi-monocromática de fonones. Un fenómeno análogo ocurre con la detección. Su respuesta espectral puede variarse para detectar preferentemente uno u otro tipo de vibraciones. La versatilidad de las propiedades de transducción se basa en el esquema de transiciones electrónicas de la muestra. Hemos hecho uso del confinamiento cuántico de los niveles electrónicos de los pozos cuánticos que componen la muestra para determinar la respuesta ópto-elástica de la muestra. Dado que la capa espaciadora de la cavidad presenta la menor energía de transición entre estados electrónicos confinados, es posible sintonizar la energía óptica a dicha transición, lo que permite generar con el pulso de bombeo una tensión particularmente concentrada en la capa espaciadora. Esta tensión excita selectivamente los modos de nanocavidad acústica. Hemos hallado que dos de dichos modos son excitados (los dos modos de menor energía), obteniéndose entonces un espectro dicromático de generación. Para obtener un espectro monocromático bastaría con incluir en la nanoestructura una etapa de filtrado de una de las dos componentes frecuenciales.

Un hecho significativo ha sido la observación del modo de cavidad de menor energía

en una situación en la que las propiedades de transducción de la nanocavidad no lo permitirían (excitación y detección resonante con la transición de los pozos cuánticos de las superredes). El cálculo numérico no predice la generación ni la detección de dicho modo en las condiciones mencionadas. La solidez del cálculo ha quedado demostrada a partir del alto grado de reproducibilidad de los resultados experimentales alcanzado para otras muestras, e incluso para esta misma muestra en diferentes regiones del espectro o condiciones de medición. La discrepancia entre cálculo y experimento sugiere entonces la consideración de un mecanismo adicional de generación coherente del modo de cavidad de menor energía. Hemos planteado como hipótesis el decaimiento estimulado del modo de cavidad de mayor energía hacia el modo de menor energía. La estimulación estaría dada por el efecto de confinamiento de la cavidad.

Además de la presencia del modo de cavidad de menor energía en el espectro de la señal experimental, hemos verificado un tiempo de decaimiento algo superior al esperado por el efecto de confinamiento. Por el contrario, para el modo de cavidad de mayor energía hemos verificado un tiempo considerablemente inferior al dictado por el confinamiento. Este último dato podría explicarse a partir de decaimientos anarmónicos o de dispersión en las rugosidades interfaciales de la nanoestructura. Sin embargo, la observación de un decaimiento más lento al esperado en el caso del modo de menor energía sustenta la hipótesis sugerida de emisión estimulada.

Como evaluación de dicha hipótesis hemos efectuado experimentos complementarios de dispersión Raman. El proceso Raman no permite generar fonones coherentes, por lo cual no resulta esperable contar con una población de fonones de nanocavidad en ninguno de los dos modos estudiados. No existe entonces una población del modo superior susceptible de decaer al estado inferior, ni una elevada población del estado inferior que permitiría estimular el decaimiento. Es por ello que la dispersión Raman constituye una herramienta adecuada para evaluar la hipótesis planteada. En efecto, los resultados experimentales han revelado la ausencia del modo de cavidad de menor energía en condiciones en las que dicho modo ha sido registrado en acústica de picosegundos (resonancia de la energía óptica con la transición de los pozos cuánticos de las superredes). En cambio, en las condiciones en las que el cálculo predice la observación del modo de menor energía (resonancia de la energía óptica con la transición de la capa espaciadora), el mismo ha sido observado en el experimento de dispersión Raman. Estos resultados apoyan por lo tanto la hipótesis de emisión estimulada.

Cabe remarcar que los motivos que inhiben en el cálculo la generación y detección del modo de cavidad de menor energía están directamente relacionados con cuestiones de simetría. La simetría del modo no permite el acoplamiento con la luz ni en el proceso de generación ni en el de detección. Es cierto que el tamaño finito de la muestra relaja parcialmente las reglas de selección, por lo que tal vez podría pensarse en justificar la observación experimental a partir de la ruptura de simetría. No obstante, si ese fuera el caso, se esperaría que el modo hubiese resultado también observable en dispersión Raman,

puesto que las mismas reglas de selección se aplican en el mencionado experimento. Resta entonces pensar en un eficiente mecanismo de generación que facilitaría su observación incluso en condiciones desfavorables desde el punto de vista de la simetría.

Si bien la emisión estimulada de fonones de cavidad resulta una hipótesis atractiva y novedosa, sólo hemos presentado en el presente trabajo algunos indicios que apuntan en esa dirección. Es necesario efectuar experimentos que permitan corroborarla o descartarla. Un posible comienzo consistiría en estudiar la evolución de los fenómenos observados en función de la temperatura y de la potencia óptica.

Apéndice A

Interferómetro de Sagnac

La Fig. A.1 muestra el esquema de detección con un interferómetro de Sagnac. El haz de probe, luego de recorrer la línea de retardo, incide con amplitud E_0 y polarización s sobre un cubo separatriz sensible a la polarización (CSP) que refleja la polarización s y transmite la polarización p . El haz se refleja en el cubo y se dirige hacia un segundo cubo separatriz estándar (CS). A partir de este punto se dividen los dos brazos del interferómetro. El 50 % de la energía se refleja en el cubo, atraviesa una lámina de media onda que rota su polarización a p , e incide sobre la muestra. Luego de la reflexión en ésta, el haz recorre una celda de Pockels y vuelve a encontrar el cubo separatriz estándar, el cual envía parte del haz al detector B y parte al cubo separatriz sensible a la polarización. Como el haz trae ahora polarización p , es capaz de atravesar el cubo e incidir luego sobre el detector A. El otro brazo del interferómetro parte del cubo separatriz estándar transmitiéndose a través del mismo. Recorre la celda de Pockels y luego incide sobre la muestra (con polarización s). Posteriormente a la reflexión, atraviesa la lámina de media onda cambiando su polarización a p . Al llegar al cubo separatriz estándar sigue el mismo trazado que describimos para el primer brazo del interferómetro, incidiendo el 50 % de la energía sobre el detector A y el otro 50 % sobre el B.

El interferómetro de Sagnac tiene la propiedad que los dos brazos atraviesan el mismo camino óptico, a menos de tres diferencias. La primera, el cubo separatriz estándar, si bien refleja y transmite el 50 % de la energía, puede en principio introducir fases diferentes al campo reflejado y al transmitido. La segunda diferencia, la reflectividad de la muestra afecta en rigor de manera diferente a uno y otro brazo, ya que el primero incide con polarización p , mientras que el segundo lo hace con polarización s . La tercera diferencia consiste en que la celda de Pockels es un dispositivo que permite introducir un desfase entre el campo electromagnético que la atraviesa con polarización s y el que la atraviesa con polarización p . A esta fase adicional la llamaremos φ . Puede variarse y controlarse a través de la tensión que se fija sobre la celda.

El campo eléctrico que reciben los detectores es

$$E_A(t) = [t_s e^{i\varphi} r_s(t) r_p + r_s r_p(t - \tau) t_p] E_0, \quad (\text{A.1a})$$

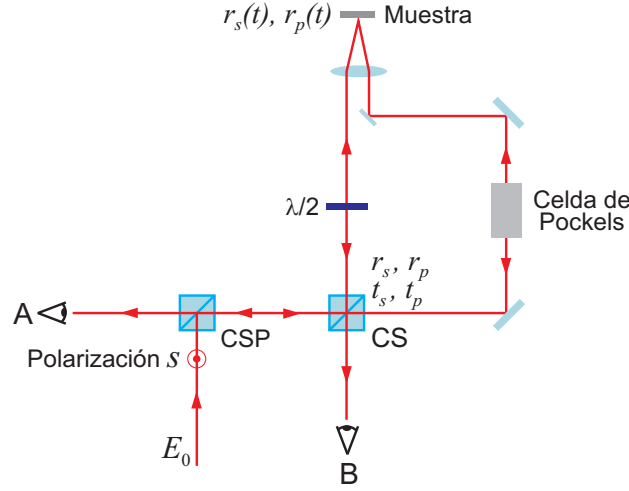


Figura A.1: Esquema de la detección interferométrica con un interferómetro de Sagnac. Las siglas CS y CSP indican respectivamente *cubo separatriz* y *cubo separatriz sensible a la polarización*.

$$E_B(t) = [t_s e^{i\varphi} r_s(t) t_p + r_s r_p(t - \tau) r_p] E_0, \quad (\text{A.1b})$$

donde r_s , r_p , t_s y t_p corresponden a los coeficientes de reflectividad y de transmisión del cubo separatriz estándar para las polarizaciones s y p , y $r_s(t)$ y $r_p(t)$ indican los coeficientes de reflexión de la muestra para las polarizaciones s y p .¹ El tiempo t que figura en las expresiones (A.1) refiere a una cierta posición de la línea de retardo (t aumenta al desplazar la línea en el sentido en el que se extiende el camino que recorre el haz de probe). En la detección interferométrica ocurre que, como la muestra no se ubica en el “punto medio” del interferómetro, una dada posición de la línea corresponde a un retardo diferente (respecto de la incidencia del haz de pump sobre la muestra) para el pulso que recorre el interferómetro en sentido antihorario que para el que lo recorre en sentido horario. Los pulsos antihorario y horario dan el primer y segundo término de las ecs. (A.1), respectivamente. Si bien los dos pulsos de probe llegan al detector simultáneamente (pues recorren la misma distancia), cada uno viene modificado por la reflectividad que presenta la muestra a diferentes retardos. Si la muestra se ubica como se exhibe en la Fig. A.1, el retardo para una posición dada de la línea de retardo es menor en el pulso horario que en el antihorario. El instante $t = 0$ en las ecs. (A.1) se ha fijado en la coincidencia del pulso antihorario con la incidencia del pump sobre la muestra. Por tanto, la reflectividad que sensa el pulso horario debe evaluarse a un al tiempo $t - \tau$, siendo τ la diferencia entre los retardos de los pulsos antihorario y horario.

La intensidad $I_A(t)$ del campo electromagnético en el detector A es

¹En las expresiones (A.1) no hemos tenido en cuenta el coeficiente de reflectividad del cubo separatriz sensible a la polarización (que podría introducir una fase respecto de E_0) ya que el mismo afecta a ambos brazos del interferómetro de la misma forma.

$$\begin{aligned}
I_A(t) &= \frac{1}{2} E_A(t) E_A(t)^* \\
&= [|t_s|^2 |r_s(t)|^2 |r_p|^2 + |r_s|^2 |r_p(t-\tau)|^2 |t_p|^2 + \\
&\quad + 2\Re(t_s e^{i\varphi} r_s(t) r_p r_s^* r_p^*(t-\tau) t_p^*)] I_0,
\end{aligned} \tag{A.2}$$

donde $I_0 = E_0 E_0^*/2$. La intensidad en el detector B se obtiene de (A.1a) intercambiando r_p y t_p . Los coeficientes de reflexión y transmisión en el cubo separatriz estándar pueden expresarse como $r_s = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{i\varphi_{rs}}$, $r_p = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{i\varphi_{rp}}$, $t_s = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{i\varphi_{ts}}$ y $t_p = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{i\varphi_{tp}}$. Las intensidades en los dos fotodiodos quedan entonces

$$I_A(t) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{2} |r_s(t)|^2 + \frac{1}{2} |r_p(t-\tau)|^2 + \Re[e^{i(\varphi_{ts} + \varphi_{rp} - \varphi_{rs} - \varphi_{tp} + \varphi)} r_s(t) r_p^*(t-\tau)] \right\} I_0, \tag{A.3a}$$

$$I_B(t) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{2} |r_s(t)|^2 + \frac{1}{2} |r_p(t-\tau)|^2 + \Re[e^{i(\varphi_{ts} + \varphi_{tp} - \varphi_{rs} - \varphi_{rp} + \varphi)} r_s(t) r_p^*(t-\tau)] \right\} I_0. \tag{A.3b}$$

O en forma más compacta

$$I_A(t) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{2} |r_s(t)|^2 + \frac{1}{2} |r_p(t-\tau)|^2 + \Re[e^{i(\alpha + \beta)} r_s(t) r_p^*(t-\tau)] \right\} I_0, \tag{A.4a}$$

$$I_B(t) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{2} |r_s(t)|^2 + \frac{1}{2} |r_p(t-\tau)|^2 + \Re[e^{i(\alpha - \beta)} r_s(t) r_p^*(t-\tau)] \right\} I_0, \tag{A.4b}$$

donde $\alpha = \varphi + \varphi_{ts} - \varphi_{rs}$ y $\beta = \varphi_{rp} - \varphi_{tp}$. Expresando los coeficientes de reflectividad de la muestra en función de los valores en ausencia de vibraciones, r_{s0} y r_{p0} , y de las contribuciones de la vibración, $\Delta r_s(t)$ y $\Delta r_t(t)$, de la siguiente forma

$$r_s(t) = r_{s0} + \Delta r_s(t) \quad , \quad r_p(t) = r_{p0} + \Delta r_p(t), \tag{A.5}$$

el producto $r_s(t) r_p^*(t-\tau)$ que figura en las ecs. (A.4) puede escribirse

$$\begin{aligned}
r_s(t) r_p^*(t-\tau) &= r_{s0} r_{p0}^* \left[1 + \left(\frac{\Delta r_p(t-\tau)}{r_{p0}} \right)^* + \frac{\Delta r_s(t)}{r_{s0}} + \left(\frac{\Delta r_p(t-\tau)}{r_{p0}} \right)^* \frac{\Delta r_s(t)}{r_{s0}} \right], \\
&\simeq r_{s0} r_{p0}^* \left[1 + \left(\frac{\Delta r_p(t-\tau)}{r_{p0}} \right)^* + \frac{\Delta r_s(t)}{r_{s0}} \right],
\end{aligned} \tag{A.6}$$

habiendo despreciado en (A.6) el segundo orden en $\Delta r(t)$. Definimos

$$\frac{\Delta r_s(t)}{r_{s0}} = a_s(t) + ib_s(t) \quad , \quad \frac{\Delta r_p(t)}{r_{p0}} = a_p(t) + ib_p(t) \quad (\text{A.7})$$

donde $a_s(t)$, $b_s(t)$, $a_p(t)$, $b_p(t) \in \mathbb{R}$. La expresión (A.6) queda entonces

$$r_s(t)r_p^*(t - \tau) = r_{s0}r_{p0}^*[1 + a_p(t - \tau) - ib_p(t - \tau) + a_s(t) + ib_s(t)] \quad (\text{A.8})$$

Reemplazando en (A.4) se tiene

$$\begin{aligned} I_A(t) = & \frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} |r_s(t)|^2 + \frac{1}{2} |r_p(t - \tau)|^2 + r_{s0}r_{p0}^* \{ \cos(\alpha + \beta)[1 + a_p(t - \tau) + a_s(t)] + \right. \\ & \left. + \sin(\alpha + \beta)[b_p(t - \tau) - b_s(t)] \right) I_0, \end{aligned} \quad (\text{A.9a})$$

$$\begin{aligned} I_B(t) = & \frac{1}{2} \left(\frac{1}{2} |r_s(t)|^2 + \frac{1}{2} |r_p(t - \tau)|^2 + r_{s0}r_{p0}^* \{ \cos(\alpha - \beta)[1 + a_p(t - \tau) + a_s(t)] + \right. \\ & \left. + \sin(\alpha - \beta)[b_p(t - \tau) - b_s(t)] \right) I_0. \end{aligned} \quad (\text{A.9b})$$

Las señales de los detectores se tratan electrónicamente para obtener la señal diferencia:

$$\begin{aligned} I_A(t) - I_B(t) = & r_{s0}r_{p0}^* \left(\sin \beta \{ -\sin \alpha [1 + a_p(t - \tau) + a_s(t)] + \right. \\ & \left. + \cos \alpha [b_p(t - \tau) - b_s(t)] \right) I_0. \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Se ve entonces que al fijar la tensión en la celda de Pockels de forma tal que $\alpha = 0$, la señal diferencia resulta proporcional a la parte imaginaria de $\Delta r(t)/r_0$. Si en cambio la tensión se elige tal que $\alpha = \pi/2$, la señal brinda información sobre la parte real, superpuesta a un nivel de continua que se elimina con el amplificador lock-in. Veamos qué información relativa a $\Delta r(t)$ obtenemos en cada caso. En el primero, la expresión (A.10) se escribe

$$\begin{aligned} \frac{[I_A(t) - I_B(t)]_{\alpha=0}}{I_0} &= r_{s0}r_{p0}^*[b_p(t - \tau) - b_s(t)] \\ &= \pm \left\{ \frac{r_{s0}}{r_{p0}} \Im[r_{p0}^* \Delta r_p(t - \tau)] - \frac{r_{p0}^*}{r_{s0}} \Im[r_{s0}^* \Delta r_s(t)] \right\}. \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

El factor $\sin \beta$ ha sido omitido puesto que puede demostrarse que para un subo separatriz se satisface $\beta = \pm \pi/2$ (esto podría agregar un signo “−” en la expresión (A.11) que carece de importancia). En el caso de fijar $\alpha = \pi/2$, la señal diferencia resulta (descartando el nivel de continua)

$$\begin{aligned}
\frac{[I_A(t) - I_B(t)]_{\alpha=\pi/2}}{I_0} &= r_{s0}r_{p0}^*[a_p(t-\tau) + a_s(t)] \\
&= \left\{ \frac{r_{s0}}{r_{p0}} \Re[r_{p0}^* \Delta r_p(t-\tau)] + \frac{r_{p0}^*}{r_{s0}} \Re[r_{s0}^* \Delta r_s(t)] \right\}. \quad (\text{A.12})
\end{aligned}$$

Si asumimos que la reflectividad de la muestra no varía significativamente entre las polarizaciones s y p , es decir, si $r_{s0} = r_{p0} = r_0$ y $\Delta r_s(t) = \Delta r_p(t) = \Delta r(t)$, las ecs. (A.11) y (A.12) quedan

$$\begin{aligned}
\frac{[I_A(t) - I_B(t)]_{\alpha=0}}{I_0} &= [\Re(r_0)\Im(\Delta r(t-\tau)) - \Im(r_0)\Re(\Delta r(t-\tau)) + \\
&\quad - \Re(r_0)\Im(\Delta r(t)) + \Im(r_0)\Re(\Delta r(t))] \quad (\text{A.13})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{[I_A(t) - I_B(t)]_{\alpha=\pi/2}}{I_0} &= [\Re(r_0)\Re(\Delta r(t-\tau)) + \Im(r_0)\Im(\Delta r(t-\tau)) + \\
&\quad + \Re(r_0)\Re(\Delta r(t)) + \Im(r_0)\Im(\Delta r(t))] \quad (\text{A.14})
\end{aligned}$$

Al graficar las señales $[I_A(t) - I_B(t)]_{\alpha=0}$ y $[I_A(t) + I_B(t)]_{\alpha=\pi/2}$ en función de t , se obtiene “por duplicado” un cierto patrón correspondiente a las perturbaciones inducidas por el pump en las propiedades ópticas de la muestra. Cada repetición corresponde a uno de los brazos del interferómetro. Esto se representa en la Fig. A.2, donde mostramos esquemáticamente la evolución temporal de $[I_A(t) - I_B(t)]_{\alpha=0}$. La primera repetición corresponde al pulso de probe antihorario, mientras que la segunda, al pulso horario (que cambia de signo según dicta la ec. (A.13)). Dado que la información se encuentra duplicada (excepto en el caso que la diferencia entre los coeficientes de reflectividad para las polarizaciones s y p sea significativa), basta con barrer la línea de retardo en torno a una sola de las repeticiones, siempre y cuando la señal del brazo antihorario haya decaído antes del arribo del brazo horario. En ese caso, si se barre únicamente la señal del brazo antihorario, las expresiones (A.13) y (A.14) pueden escribirse

$$\Delta\Phi(t) = -\Re(r_0)\Im(\Delta r(t)) + \Im(r_0)\Re(\Delta r(t)), \quad (\text{A.15})$$

$$\Delta R(t) = \Re(r_0)\Re(\Delta r(t)) + \Im(r_0)\Im(\Delta r(t)). \quad (\text{A.16})$$

(Si se elige el brazo horario la única diferencia consiste en que la expresión (A.15) cambia de signo.) Vemos entonces que la ec. (A.16), proveniente de la señal suma, repite la información que brinda el experimento realizado en el esquema de detección reflectométrico,

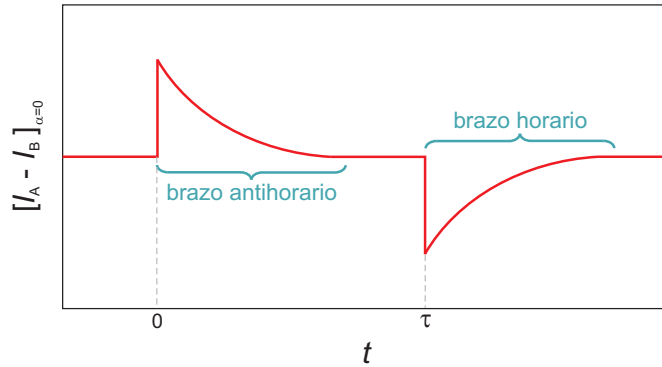


Figura A.2: Esquema de la evolución temporal de señal diferencia para $\alpha = 0$. El tiempo $t = 0$ está fijado en la coincidencia entre el haz de pump y el pulso antihorario de probe. La señal con $\alpha = \pi/2$ no presentaría cambio de signo del patrón horario respecto del antihorario.

a menos de un factor 2 (comparar con la ec. (2.26)). De ahí, la nomenclatura $\Delta R(t)$ en el miembro de la izquierda de (A.16). En cambio, la cantidad expresada en (A.15), que hemos dado en llamar $\Delta\Phi(t)$, brinda información adicional. Conocido r_0 , la combinación de ambas expresiones permite individualizar la parte real y la parte imaginaria de $\Delta r(t)$, independientemente de si la muestra es absorbente o no. Es decir, efectuando el experimento dos veces con diferentes tensiones sobre la celda de Pockels, y registrando en un caso la señal suma y en otro la señal diferencia, se accede a la cantidad compleja $\Delta r(t)$.

En los experimentos efectuados en configuración interferométrica que describiremos en el presente trabajo, no explotaremos todas las potencialidades del esquema interferométrico. Como nos interesaremos principalmente en el contenido frecuencial de las vibraciones, el cual está plasmado tanto en la parte real de Δr como en la parte imaginaria, al realizar experimentos en el esquema interferométrico registraremos únicamente la señal $\Delta\Phi(t)$. En ese caso, dado que las muestras que estudiaremos son débilmente absorbentes, $\Delta\Phi(t)$ estará dominada principalmente por la parte imaginaria de $\Delta r(t)$. Si bien de esta manera no accederemos a la cantidad compleja $\Delta r(t)$, la sola medición de $\Delta\Phi(t)$ nos permitirá reducir el tiempo de medición a la mitad.

Apéndice B

Parámetros de los cálculos

B.1. Muestra A

B.1.1. Espesores

Los espesores d_{GaAs} y d_{AlAs} de cada uno de los trozos de la muestra se presentan en la Tabla B.1.

Muestra	d_{GaAs} [Å]	d_{AlAs} [Å]	D [Å]
1	94,5	41,1	135,6
2	91,8	40,0	131,8
3	89,4	38,9	128,3
4	87,1	37,9	125,0
5	84,4	36,7	121,1
6	81,4	35,5	116,9
7	79,0	34,4	113,4
Uniforme	85,4	37,2	122,6

Tabla B.1: Parámetros empleados para los cálculos de la muestra A: espesores de las capas de GaAs y AlAs de la superred con gradiente de cada una de las muestras, y de la superred uniforme. La última columna indica el período $D = d_{\text{GaAs}} + d_{\text{AlAs}}$.

Los espesores se dedujeron de las posiciones espectrales de los modos $q = 0$ y $q = 2k_{\text{probe}}$ de la Fig. 3.6, empleando los valores de velocidades del sonido de los materiales masivos recabadas de la literatura (ver Tabla B.2). El procedimiento consistió en determinar primero la posición ν_0 del centro de la primer banda prohibida del centro de zona a partir de los picos experimentales, y luego deducir el período D de cada superred y de cada muestra a través de la relación

$$\nu_0 = \frac{v}{D} = \left(\frac{d_{\text{GaAs}}}{v_{\text{GaAs}}} + \frac{d_{\text{AlAs}}}{v_{\text{AlAs}}} \right)^{-1} = \left[\left(\frac{x_{\text{GaAs}}}{v_{\text{GaAs}}} + \frac{x_{\text{AlAs}}}{v_{\text{AlAs}}} \right) D \right]^{-1}, \quad (\text{B.1})$$

asumiendo que las proporciones

$$x_{\text{GaAs}} = \frac{d_{\text{GaAs}}}{D}, \quad x_{\text{AlAs}} = \frac{d_{\text{AlAs}}}{D}, \quad (\text{B.2})$$

se mantienen en toda la muestra iguales a las obtenidas por rayos X en el centro de la plaqueta ($x_{\text{GaAs}} = 0,7$, $x_{\text{AlAs}} = 0,3$). Para corroborar el valor del período así obtenido comparamos con el valor hallado por dispersión de rayos X. Como el experimento de rayos X se realizó únicamente en el centro de la plaqueta, la comparación debe llevarse a cabo con el trozo 4, el cual se ubicaba aproximadamente en el centro de la plaqueta. Ambos valores coinciden, quedando validado el procedimiento que emplea las posiciones espectrales de los picos para deducir el período de la superred. Una vez hallado el valor de D para cada trozo de la muestra, se derivaron d_{GaAs} y d_{AlAs} de las igualdades (B.2). Los espesores así deducidos se listan en la Tabla B.1.

B.1.2. Propiedades físicas

Los parámetros empleados en los cálculos se resumen en la Tabla B.2.

Parámetro	GaAs	AlAs	GaAs masivo	Ref.	Modificaciones
Velocidad del sonido [nm/ps]	4,726	5,665	4,726	[120]	
Densidad [g cm ⁻³]	5,31	3,74	5,31	[120]	
Indice de refracción Parte real ^a	1	3,726	3,038	3,750	Reducción del 8,4 % para un mejor ajuste con los datos experimentales
	2	3,725			
	3	3,725			
	4	3,722			
	5	3,721			
	6	3,720			
	7	3,717			
	Unif.	3,721			
Indice de refracción Parte imaginaria ^b	1	0,0896	0	0,0942	
	2	0,0909			
	3	0,0922			
	4	0,0934			
	5	0,0950			
	6	0,0966			
	7	0,0981			
	Unif.	0,0981			
Constante de generación ^c	1	0	1		
Constante fotoelástica ^c	1	0	1		

Tabla B.2: Parámetros empleados para los cálculos de la muestra A.

(a) La parte real del índice de refracción del AlAs y de la capa intermedia de GaAs a la energía del experimento de pump-probe (1,550 meV, 800 nm) se obtuvieron de una base de datos de mediciones elipsométricas para GaAs y AlAs masivos. En el caso de las capas de GaAs que conforman las superredes (pozos cuánticos), se utilizó el índice de refracción del material masivo pero a una energía que supera la banda prohibida de éste último en igual cantidad que 1,550 meV (la energía de medición) excede la banda prohibida calculada para los pozos cuánticos.

(b) En cuanto a la parte imaginaria del índice de refracción κ , hemos señalado más arriba que la penetración de la luz en la muestra tiene consecuencias no menores en los resultados experimentales. Es por tanto un parámetro crítico a tener en cuenta. Más adelante esto quedará una vez más evidenciado en el análisis de los cálculos. Es por ello que realizamos mediciones de reflectividad y transmisividad de las muestras, tanto a la energía del experimento de pump-probe, como a una energía comprendida entre la banda prohibida del GaAs masivo ($\sim 1,424$ eV) y el umbral de absorción de los pozos cuánticos ($\sim 1,467$ eV). Esta segunda medición nos permitió acceder a $\kappa_{\text{GaAs-masivo}}$, aunque a una energía diferente a la de medición. No obstante, asumiremos este valor como válido a 1,550 meV. Conociendo así $\kappa_{\text{GaAs-masivo}}$ y la absorción total de la muestra obtenida de la primer medición, pudimos deducir la parte imaginaria del índice de refracción de los pozos cuánticos, bajo el supuesto que todos los pozos de una misma muestra (es decir, de dos superredes diferentes) presentan el mismo valor. Para las capas de AlAs se tomó $\kappa = 0$, puesto que la energía del experimento se encuentra ampliamente por debajo del umbral de absorción (2,17 meV).

(c) Las constantes fotoelástica y de generación no son conocidas. Si bien existen algunas mediciones de las constantes fotoelásticas de GaAs y AlAs, las mismas fueron realizadas sobre materiales masivos y a energías diferentes de las de nuestro experimento. Debimos entonces tomar valores arbitrarios que respondan a un criterio lógico dictado por una mayor o menor cercanía de la energía del experimento a las bandas prohibidas de cada una de las capas. Asumimos entonces constantes fotoelástica y de generación igual a 1 en todas las capas de GaAs (energía experimental superior a los umbrales de absorción) y a 0 en las capas de AlAs (energía experimental 618 meV inferior al umbral de absorción).

B.2. Muestra B

B.2.1. Espesores

Los espesores de las capas de la muestra empleados para los cálculos se listan en la Tabla B.3.

Posición	d_{GaAs} [Å]	d_{AlAs} [Å]	D [Å]
1	83,2	33,2	116,4
2	82,4	32,8	115,2
3	82,2	32,8	113,7
5	81,1	32,3	113,4
6	80,9	32,2	113,1
7	79,9	31,9	111,8
Uniforme	89,0	35,5	122,6

Tabla B.3: Parámetros empleados para los cálculos de la muestra B: espesores de las capas de GaAs y AlAs de la superred con gradiente de cada una de las muestras, y de la superred uniforme. La última columna indica el período $D = d_{\text{GaAs}} + d_{\text{AlAs}}$.

El período D_{unif} de la superred uniforme y los espesores d_{GaAs} y d_{AlAs} fueron obtenidos de mediciones de rayos X. En cuanto a la superred con gradiente, el período D_{grad} en cada una de las 7 posiciones medidas se dedujo a partir de D_{unif} y de la posición experimental del modo de $q = 0$ tanto de la superred con gradiente (ν_{grad}) como de la superred uniforme (ν_{unif}), extraídos de la Fig. 3.25(a). La expresión que relaciona estas cantidades es: $D_{\text{grad}} = (\nu_{\text{unif}}/\nu_{\text{grad}})D_{\text{unif}}$. Los espesores d_{GaAs} y d_{AlAs} para los 7 puntos medidos de la superred con gradiente se estimaron a partir de D_{grad} y de la fracción $x_{\text{GaAs}} = d_{\text{GaAs}}/D_{\text{grad}}$ de GaAs en la muestra, obtenida de rayos X.

B.2.2. Propiedades físicas

Los parámetros empleados en los cálculos correspondientes a las propiedades físicas se resumen en la Tabla B.4.

Parámetro	GaAs	AlAs	GaAs masivo	Ref.	Modificaciones
Velocidad del sonido ^a [nm/ps]	4,780	5,730 ^a	4,780	[120]	Incremento de 0,12 % de los valores de GaAs y AlAs para un mejor acuerdo con el experimento. ^b
Densidad [g cm ⁻³]	5,31	3,74	5,31	[120]	
Índice de refracción Parte real ^c	1	3,6793	2,9901	3,7145	
	2	3,6794			
	3	3,6794			
	4	3,6795			
	5	3,6795			
	6	3,6795			
	7	3,6797			
	Unif.	3,6816			
Índice de refracción Parte imaginaria ^c	1	0,0760	0	0,1155	
	2	0,0758			
	3	0,0758			
	4	0,0755			
	5	0,0776			
	6	0,0754			
	7	0,0752			
	Unif.	0,0776			
Constante de generación ^d	1	0	1		
Constante fotoelástica ^d	1	0	1		

Tabla B.4: Parámetros empleados para los cálculos de la muestra B.

(a) No se encontraron valores de la velocidad del sonido de AlAs a baja temperatura, por lo que se adoptó el valor resultante de multiplicar el dato a temperatura ambiente por el cociente entre la velocidad en GaAs a baja temperatura y su velocidad a temperatura ambiente.

(b) Una vez efectuados los cálculos, fue necesario incrementar las velocidades de GaAs y AlAs en un 0,12 % para que las posiciones espectrales de los picos de $q = 0$ calculadas para las nanoestructuras descritas por los espesores de la Tabla B.3 coincidiesen con las experimentales.

(c) Los índices de refracción para las capas de superred uniforme, las de las 7 posiciones de la superred con gradiente y el sustrato fueron deducidos de valores tomados de una base de datos de mediciones elipsométricas sobre materiales masivos, de la misma forma que se procedió para la muestra A. Tanto la parte real del índice de refracción como la parte imaginaria fueron estimados de esta manera. En el caso de la muestra B, la obtención experimental de la parte imaginaria a partir de mediciones de reflectividad y

transmisividad, como se efectuó para la muestra A, no resulta posible debido a la absorción completa de la luz en el sustrato.

(d) Para las constantes de generación y fotoelástica adoptamos los valores 1 en GaAs y 0 en AlAs.

B.3. Muestra C

B.3.1. Espesores

Los espesores de las capas fueron ligeramente modificados respecto de los valores nominales, en función de un mejor ajuste de las posiciones de los modos en los espectros calculados respecto de los resultados experimentales. Los espesores de las capas que componen las superredes fueron reducidas en un 2,3%, mientras que el espaciador fue aumentado en un 3%. Los valores resultantes se listan en la Tabla B.5.

l_c [Å]	d_{GaInAs} [Å]	d_{AlAs} [Å]
43,5	76,3	20,6

Tabla B.5: Parámetros empleados para los cálculos de la muestra C: espesores de las capas de $\text{Ga}_{0,85}\text{In}_{0,15}\text{As}$ (d_{GaInAs}) y AlAs (d_{AlAs}) que componen las superredes, y de la capa de la cavidad (l_c).

B.3.2. Propiedades físicas

Los parámetros empleados en los cálculos correspondientes a las propiedades físicas independientes de la energía óptica se resumen en la Tabla B.6. Las propiedades dependientes de la energía óptica se listan en la Tabla B.7. Los valores fueron extraídos del ajuste con los resultados experimentales.

Parámetro	GaInAs CAV	GaInAs SR	AlAs SR	Ref.
Velocidad del sonido ^a [nm/ps]	4,597 ^a	4,597 ^a	5,665	[120]
Densidad [g cm ⁻³]	5,37 ^a	5,37 ^a	3,74	[120]
Índice de refracción Parte real	3,5 ^b			

Tabla B.6: Parámetros independientes de la energía óptica empleados para los cálculos de la muestra C.

(a) Los valores fueron obtenidos a partir del promedio de los valores individuales de GaAs e InAs.

(b) La variación de la parte real del índice de refracción no introdujo modificaciones significativas en los resultados de los cálculos. Se fijó por tanto su valor en 3,5.

Energía óptica [eV]	Índice de refracción Parte imaginaria	Constante de generación y Constante fotoelástica		
	(todas las capas)	GaInAs CAV	GaInAs SR	AlAs SR
1,734	0,13	1,4 + i 7,1	7,1 + i 10	1
1,722			6,1 + i 10	
1,710			4,3 + i 9,3	
1,703			4,3 + i 9,3	
1,698			4,6 + i 8,2	
1,689			4,6 + i 7,1	
1,682			3,6 + i 4,3	
1,673	0,08	1,4 + i 8,6	2,9 + i 2,9	
1,664		1,4 + i 11	2,5 + i 2,5	
1,646		5,0 + i 11	1,8 + i 1,8	
1,631		5,0 + i 11	1,8 + i 1,8	
1,610		3,4 + i 3,4	1,4 + i 1,4	
1,589		2,1 + i 2,1	1,4	
1,569		0,7 + i 0,7	1,4	
1,550	0	3,8 + i 3,8	1	
1,530		4,7 + i 4,7		
1,512		4,8 + i 4,8		
1,494		3,9 + i 3,9		
1,476		2,1 + i 2,1		
1,459		3,6 + i 3,6		
1,450		4,6 + i 4,6		
1,442		6,9 + i 6,9		
1,433		5,3 + i 5,2		
1,425		2,1 + i 2,1		
1,409	1			

Tabla B.7: Parámetros dependientes de la energía óptica empleados para los cálculos de la muestra C. Los valores resultan del ajuste con los datos experimentales.

Publicaciones asociadas a la tesis

Optimized optical generation and detection of superlattice acoustic phonons

M. F. Pascual Winter,^{1,2,a)} A. Fainstein,¹ B. Jusserand,² B. Perrin,² and A. Lemaître³

¹Centro Atómico Bariloche and Instituto Balseiro, C. N. E. A., R8402AGP S. C. de Bariloche, Río Negro, Argentina

²Institut des Nanosciences de Paris, CNRS, Université Paris 6, Campus Boucicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France

³Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France

(Received 27 January 2009; accepted 18 February 2009; published online 10 March 2009)

We present a device for the optimization of the folded acoustic phonon signal in femtosecond pump-probe experiments through the spatial decoupling of the generation and detection processes in two different GaAs/AlAs superlattices separated by a thick GaAs layer. A thickness gradient in one of them allows a fine tuning of the generation and detection spectral responses. In the optimal overlap condition, a clear enhancement of the signal is observed at a time delay that matches the travel time of acoustic phonons through the intermediate layer. This nanostructure provides a sensitive tool for studying terahertz phonon propagation over long distances. © 2009 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.3097244]

Efficient and compact coherent transducers for acoustic phonons in the terahertz range are potentially important for phonon spectroscopy, for acoustic microscopy, and for driving the optical and electronic properties of devices at the picosecond timescale. Light-to-terahertz-sound transduction recently became possible based on the epitaxial growth of semiconductor multilayers. Since the pioneer work of Yamamoto *et al.*¹ a great deal of effort has been devoted to the understanding of the generation and detection processes,^{2–6} the increase of the attainable acoustic frequencies,^{7,8} and the monochromaticity of the acoustic beam.⁹ The increase of the typically weak detected signal or the frequency and temperature dependence of the propagation properties of high frequency acoustic phonons have been less explored.^{10,11} In the present letter, we present a device that enhances the sensitivity of phonon detection via the spectral tuning of the generation and detection processes. As both mechanisms are spatially decoupled in two superlattices (SLs), this tool can be applied to the study of phonon propagation over long distances.

The weakness of a SL scheme for a generation/detection experiment lies in the fact that the spectral responses of both mechanisms differ. The generation is most efficient at modes of vanishing wave vector ($q=0$, zone-center modes) while the detection is maximum at modes whose wave vector doubles the probe photon wave vector k_{probe} ($q=2k_{\text{probe}}$).¹¹ Figure 1(a) sketches this discrepancy in the dispersion relation of an infinite SL. The circles show the generated modes (for each zone-center doublet only one of the modes is generated¹²), and the squares mark the detected ones. We see that there is a spectral mismatch between the generation and detection functions. The pump-probe experimental signal, which is the product between the generation and detection efficiencies,¹¹ should thus be identically zero. However, in real finite samples some signal is always assured by finite-size effects and eventually light absorption. This means that the generation, although peaked at $q=0$, has some small non-

vanishing value at $q=2k_{\text{probe}}$ and conversely for the detection [see the left panel of Fig. 1(a)]. Pump-probe experiments reveal the observation of both $q=0$ and $q=2k_{\text{probe}}$ modes.^{2,4,8,13} The amplitude of the signal is nevertheless rather weak ($\Delta R/R \approx 10^{-5} - 10^{-6}$), and therefore the availability of a way of tuning the generation and detection spectral responses is most desirable.

In order to achieve this purpose, we have made use of a scheme based on Ref. 8, where the generation and the detection processes are spatially decoupled in two identical SLs separated by a thick intermediate layer that phonons need to travel through. To this scheme we add the possibility of tuning the generation and detection spectral responses introducing a thickness gradient in one of the SLs.¹⁴ For fixed probe wavelength, the SL period D determines the spectral positions of the generated and detected modes [see Fig. 1(a)].¹² The thickness gradient allows us to continuously tune one of the detection peaks in one SL with respect to the generation peak in the other one, as displayed in Fig. 1(b).

The studied sample consisted of two 60 period GaAs/AlAs SLs separated by a 0.98- μm -thick GaAs layer [see the inset of Fig. 2(a) for a scheme of the sample]. It was grown on a [100] GaAs substrate by molecular beam epitaxy. A

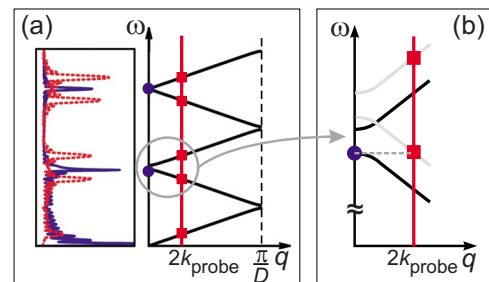


FIG. 1. (Color online) (a) Dispersion relation for an infinite SL. The circles (squares) indicate the modes that are generated (detected) in a pump-probe experiment. The left panel shows the calculated generation (full line) and detection (dotted line) responses for a finite 20 period SL. (b) Scheme of the matching between generation and detection by means of two SLs of different periods.

^{a)}Electronic mail: pascualm@ib.cnea.gov.ar.

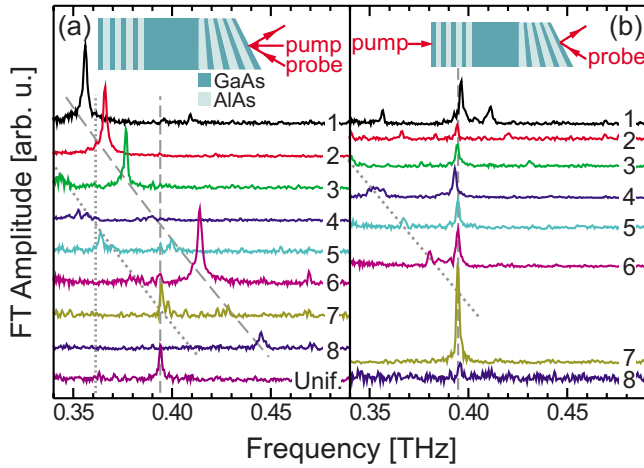


FIG. 2. (Color online) FT of the experimental signals for the configurations depicted in the inset of each panel. The spectrum labeled “Unif.” was taken on the uniform SL. The dashed (dotted) lines follow the modes of maximum generation (detection) efficiency. In (b) the FTs were calculated for $t > 205$ ps.

22% thickness gradient was achieved by interrupting the rotation of the wafer during the growth of one of the SLs. The SL unit cell was chosen to maximize the first zone-center minigap around a central frequency of ~ 0.4 THz.¹² X-ray diffraction experiments performed at the center of the wafer revealed thicknesses of 85 and 37 Å for the GaAs and AlAs layers, respectively, for both SLs. A strip was cleaved out of the wafer and cut into smaller pieces where the substrate was removed. Reflection-type pump-probe experiments were performed at room temperature at a laser wavelength of 800 nm. Femtosecond pulses (~ 80 fs) from a mode-locked Ti:sapphire laser, with a repetition rate of 79 MHz, were split into the pump (energy 0.75 nJ) and probe (0.30 nJ) pulses. The pump was modulated at 1.8 MHz by an acousto-optic device in order to allow for synchronous detection. Both pulses were focused onto ~ 50 - μm -diameter spots. Opposite configurations were used, with the pump and the probe shining either the same or different SLs.

The experimental results are presented in Fig. 2. Panel (a) shows the Fourier transform (FT) of the time traces for configurations where the pump and the probe beams are focused on the same side of the sample. The spectra numbered 1–8 were obtained shining the tapered side of different pieces of the cleaved strip (separated by ~ 6 mm). The bottom spectrum was measured on the uniform side of the sample. These two configurations are useful to provide a spectral “map” of the sample. We observe that most spectra display two main peaks that shift in energy as we move along the strip. They correspond to the zone-center mode (dashed guide to the eye) and lower component of the $q = 2k_{\text{probe}}$ doublet (dotted guide to the eye). The higher component of the doublet is generally less intense and it is weakly seen in spectra 1 (0.41 THz) and 6 (0.47 THz). The intensities of the peaks do not follow a regular behavior along the sample. A discussion on the possible explanations for this behavior exceeds the scope of the present letter, particularly because the conclusions that we will draw below will prove to be independent of the irregularities of Fig. 2(a). The vertical lines show for the uniform SL the position of the generation peak (dashed line) and an estimated position of the detection peak (too weak to be observed) based on cal-

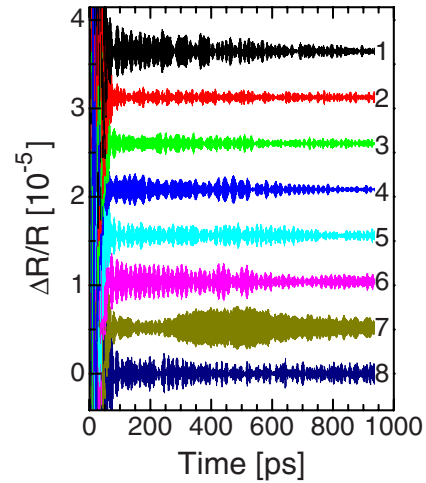


FIG. 3. (Color online) Time traces corresponding to the configuration shown in Fig. 2(b).

culations (dotted line). We see that there are two points of spectral overlap between the generation peak in one SL and the detection peak in the other one. On sample piece 7 the generation on the uniform SL coincides with the detection on the tapered one, and on sample pieces 1 and 2 the generation on the tapered SL almost matches the detection on the uniform one.

We will now analyze the configuration where the pump beam is on the uniform SL and the probe beam is on the tapered one. Figure 3 exhibits the time traces of the pump-probe signal for the eight sample pieces. The data have been numerically filtered with a Butterworth bandpass filter (passing band 0.34–0.55 THz) in order to discard electronic decay contributions and Brillouin oscillations (the filter introduces strong artifacts for time $t < 80$ ps that should not be taken into account). We observe that the general behavior is a slowly decaying oscillation that starts up at $t=0$. Its intensity varies rather irregularly along the sample strip. This variation is likely of the same origin as the one observed in the intensities of the modes in Fig. 2(a). In any case, the feature that stands out in Fig. 3 is the strong pulselike increase of the signal for piece 7 that starts at $t=205$ ps, exactly the time it takes the phonons generated in the pump SL to reach the probe SL. The arrival time together with the fact that this feature is only observed in the sample piece where the generation/detection spectral matching has been verified, evidence that the enhanced signal feature is, as proposed, the result of the tuning of the generation and detection responses.

The decaying oscillation observed in all the spectra is also of interest. The fact that this oscillation starts up at $t=0$ suggests that there is generation of phonons in the probe SL and/or detection of phonons in the pump SL, i.e., the SLs are not fully decoupled. Optical transmission experiments revealed a sample transmittance of 4%, meaning that there is a portion of the pump (probe) light that reaches the probe (pump) SL. Therefore, four secondary effects arise: (i) [(ii)] direct generation (detection) of phonons in the probe (pump) SL and (iii) [(iv)] generation (detection) of phonons in the probe (pump) SL via the portion of the pump (probe) energy that is reflected back into the probe (pump) SL at the nanostructure/air interface. These effects are able to modulate the reflectivity of the sample as early as $t=0$, being the

decaying behavior a consequence of anharmonic interactions.

Let us analyze the data in the spectral domain. In Fig. 2(b), the FT time window has been limited to times longer than 205 ps in order to reduce the undesired effect of the decaying oscillation. The dashed and dotted guides to the eye indicate the modes that are generated and detected, respectively. In the case of piece 7, the phonon pulse previously seen in Fig. 3 is now translated into a considerable increase of the FT peak intensity. We observed a similar effect for the converse configuration: a raise of the signal on sample pieces 1 and 2. In order to quantify the signal enhancement due to the generation/detection tuning, let us define the enhancement factor as the ratio of the peak intensity in spectrum 7 over the averaged peak intensity of the remaining spectra of Fig. 2(b). We obtain a value of 3.8. However, a factor 20 should be expected according to calculations considering full optical decoupling.¹⁵ The small remaining detuning between the generated and detected modes in the calculated spectrum of sample piece 7 equals the experimental detuning within the spectral resolution given by the widths of the peaks. Therefore, the reason for the discrepancy between the experimental and calculated enhancement factors must be found elsewhere. In fact, the answer lies in the decaying oscillation seen in Fig. 3, which could not be fully eliminated in the FTs since it is also present for $t > 205$ ps. The effects listed [(i)–(iv)] above are able to modify spectrally the generation and detection functions. Particularly important is the contribution of (iv) since it increases the sensitivity of the detection function to the $q=0$ mode of the pump SL,¹¹ the same mode that is primarily generated by the pump beam. Hence, the intensities of the $q=0$ mode of the spectra of Fig. 2(b) are not only reflecting the generation/detection tuning through the thickness gradient but also this additional $q=0$ contribution to the detection function which is independent of the probe SL period. If we include the effects of (i)–(iii) into the calculations, the enhancement factor is somewhat reduced to 19.¹⁶ A value of 5.7 is recovered when considering (iv) as well, in closer agreement with the experimental value. The optical coupling between the SLs can be easily eliminated in future experiments by means of a thicker intermediate layer or an optical wavelength of stronger absorption. An enhancement ratio of 20 should then be recovered.

In conclusion, we have proposed a sample for the optimization of the signal in a pump-probe experiment. We have made use of spatial delocalization of the generation and detection processes by means of two different SLs, in order to achieve an enhanced spectral overlap between both mechanisms. A thickness gradient in one of the SLs allowed us to finely tune this overlap. An increase of a factor 20 is to be

expected in the optimized signal. Due to remaining optical coupling between the SLs, easily avoidable in future samples, a factor 3.8 has been verified. The analysis of the time evolution of the signal drew the conclusion that the observed enhancement factor is undoubtedly due to the arrival at the detection region of spectrally tuned phonons generated in opposite end of the sample. This device could make a sensitive tool for the study of the propagation properties of high frequency phonons through thick layers as a function of phonon frequency or temperature.

M.F.P.W. acknowledges the program AlBan, the European Union Programme of High Level Scholarships for Latin America, Grant No. E05D051993AR.

¹A. Yamamoto, T. Mishina, Y. Masumoto, and M. Nakayama, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 740 (1994).

²A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, and K. Köhler, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1044 (1999).

³C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc, *Phys. Rev. B* **34**, 4129 (1986).

⁴K. Mizoguchi, M. Hase, and S. Nakashima, *Phys. Rev. B* **60**, 8262 (1999).

⁵O. Matsuda and O. B. Wright, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 3028 (2002).

⁶N.-W. Pu, *Phys. Rev. B* **72**, 115428 (2005); A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, A. Fainstein, and A. Lemaître, *ibid.* **78**, 233302 (2008).

⁷C. E. Martinez, N. M. Stanton, P. M. Walker, A. J. Kent, S. V. Novikov, and C. T. Foxon, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 221915 (2005).

⁸M. Trigo, T. A. Eckhause, J. K. Wahlstrand, R. Merlin, M. Reason, and R. S. Goldman, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 023115 (2007).

⁹A. J. Kent, N. M. Stanton, L. J. Challis, and M. Henini, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 3497 (2002); M. F. Pascual Winter, G. Rozas, A. Fainstein, B. Jusserand, B. Perrin, A. Huynh, P. O. Vaccaro, and S. Saravanan, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 265501 (2007).

¹⁰C.-K. Sun, J.-C. Liang, and X.-Y. Yu, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 179 (2000); G. Rozas, M. F. Pascual Winter, B. Jusserand, A. Fainstein, B. Perrin, E. Semenova, and A. Lemaître, *ibid.* **102**, 015502 (2009).

¹¹N. D. Lanzillotti Kimura, A. Fainstein, A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, A. Miard, and A. Lemaître, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 217405 (2007).

¹²B. Jusserand and M. Cardona, in *Light Scattering in Solids V*, edited by M. Cardona and G. Güntherodt (Springer, Heidelberg, 1989), p. 49.

¹³T. Mishina, Y. Iwazaki, Y. Masumoto, and M. Nakayama, *Solid State Commun.* **107**, 281 (1998).

¹⁴N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, and B. Jusserand, *Phys. Rev. B* **71**, 041305(R) (2005).

¹⁵The calculated spectra were obtained using Eqs. (1) and (2) of Ref. 11 together with the continuum model for the eigenmodes of the sample. The enhancement factor is defined as in the experiment, i.e. the ratio between the maximum peak intensity and the average of the generation peak intensity over the other seven detuning conditions. In the case of full optical decoupling, the generation (photoelastic) constant in the probe (pump) SL was taken as 0.

¹⁶As the pump and probe electric fields enter Eqs. (1) and (2) of Ref. 11 in a quadratic form, the effects (i)–(iv) appear as independent terms in the computed spectra, that can be considered or not for computing theoretical enhancement factors.

Selective Optical Generation of Coherent Acoustic Nanocavity Modes

M. F. Pascual Winter,^{1,2} G. Rozas,¹ A. Fainstein,^{1,*} B. Jusserand,² B. Perrin,² A. Huynh,²
P. O. Vaccaro,^{3,†} and S. Saravanan³

¹Centro Atómico Bariloche and Instituto Balseiro, C.N.E.A., 8400 S. C. de Bariloche, R.N., Argentina

²Institut des Nanosciences de Paris, CNRS, Universités Paris 6 et 7, Campus Boucicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France

³ATR Wave Engineering Laboratories, 2-2-2 Hikaridai, Keihanna Science City, Kyoto 619-0288, Japan

(Received 30 January 2007; published 28 June 2007)

Femtosecond pump-probe experiments on a $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ nanocavity enclosed by two $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ phonon Bragg mirrors reveal selective generation of terahertz confined acoustic modes and regular folded phonons. Selective generation of the confined modes alone is achievable for laser excitation at certain energies below the mirror absorption edges, corresponding to electronic transitions within the cavity layer only. Calculations based on the photoelastic effect explain the experimental results. Decay times of cavity and regular modes evidence longer decay times and anharmonic effects for the cavity mode.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.265501

PACS numbers: 63.22.+m, 43.38.+n, 78.47.+p, 78.67.Pt

Acoustic nanocavities opened the possibility of confinement and amplification of acoustic phonons in the megahertz-terahertz range [1]. They are interesting in the development of coherent monochromatic acoustic sources and as feedback systems for sound amplification by stimulated emission of radiation. Experiments on the coherent control of acoustic phonons have shown attractive potentialities [2], particularly if performed on monochromatic oscillations. Important progress has been recently achieved in the search for monochromatic sources. Emission of terahertz phonons in superlattice nanostructures under vertical electron transport has been reported [3]. Furthermore, phonon propagation through a nanocavity has been studied by means of transmission experiments by picosecond acoustics where broadband phonon generation is attained by strong light absorption in an aluminum cap layer [4]. In the present work, we provide a method for *selective* optical excitation of coherent nanocavity modes by direct generation in the heterostructure. Direct generation presents two main advantages. First, resonance to electronic transitions provides selectivity in the generation of the cavity modes, allowing all other modes to be silenced by appropriate selection of laser energies. The generation process is thus selective with respect to both the laser and the phonon energies. Second, it avoids terahertz energy limitations intrinsic to metallic layer light-to-sound transducers. The reported experiments give access to the dynamics of the vibrations, enabling studies of the decay times and anharmonicity affecting the cavity modes.

A nanocavity consists of an intermediate layer enclosed by two acoustic Bragg mirrors or superlattices (SLs). Direct generation of sound by femtosecond light pulses in a nanocavity is to be understood in terms of the kind of transducer it provides. Three different mechanisms can lead to the transduction of light pulses into sound: the deformation potential [5], thermal stress [5,6], and photoelastic processes [7]. In the point that follows, we will only consider the third (equivalent conclusions can be surmised

if the other mechanisms are regarded). The quantity that determines the transducing properties of the heterostructure is the photoelastic constant p of the different layers. It is strongly dependent on the light energy, being negligible far below the electronic band gap and varying strongly near the gap. If the pump pulse central energy E_L is around the fundamental electronic transition E_{SL} of the SL quantum wells, p will thus result in the profile depicted in Fig. 1(a). Such a quasiperiodic transducer will generate phonon modes with displacement fields u extended throughout the whole heterostructure, as the one shown in the figure. This type of acoustic mode will be referred to as a SL mode, since it does not vary much from the kind of mode into which a perfect SL would transduce a light pulse. On the contrary, a cavity mode presents a displacement field that is maximum in the intermediate cavity layer [1], as shown in Fig. 1(b). To selectively produce such a mode, the transducing properties of the heterostructure need to be enhanced in the cavity layer, as in the photoelastic profile proposed in the lower curve of Fig. 1(b). Such a transducer

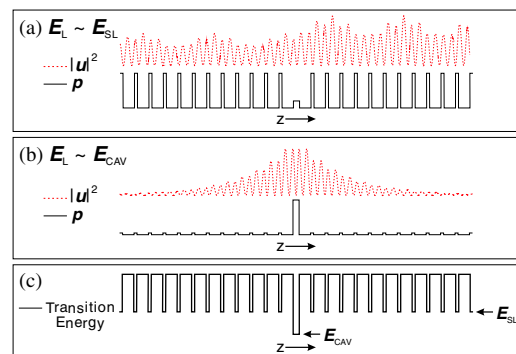


FIG. 1 (color online). (a) Photoelastic constant (p) profile of the sample along an axis z perpendicular to the layers, and typical displacement field u generated when $E_L \sim E_{SL}$. (b) Same as (a) for $E_L \sim E_{CAV}$. (c) Scheme of the fundamental transition energies as a function of the position.

is attained in the present work through a cavity layer that is thicker than the mirror quantum wells. The fundamental transition energy profile of the sample is sketched in Fig. 1(c), where the lowest transition energy corresponds to the cavity layer E_{CAV} . By tuning the laser energy, we are able to turn the transducer from the one in Fig. 1(a), which, as we will show, leads to SL modes, to the one in Fig. 1(b), which generates nanocavity modes. Resonance to electronic transitions has been previously used to excite broadband acoustic pulses selectively in separate quantum wells of different widths [8].

The studied nanocavity consists of two $21 \text{ \AA}/78 \text{ \AA}$ 12-period $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ acoustic Bragg mirrors (reflectivity $\sim 99.7\%$) enclosing a half-wavelength $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ spacer (42 \AA). The SL unit cell was chosen to maximize the first zone-center minigap around a central frequency of $\sim 0.54 \text{ THz}$ [1]. The sample has been previously studied by Raman scattering showing excellent quality [9]. Room temperature photoluminescence (PL) experiments revealed the electronic transitions $E_{\text{CAV}} \sim 1.442 \text{ eV}$ and $E_{\text{SL}} \sim 1.729 \text{ eV}$. Reflection-type pump-probe experiments have been performed at room temperature for several laser energies between 1.409 and 1.734 eV. Femtosecond pulses ($\sim 80 \text{ fs}$) from a mode-locked Ti:sapphire laser, with a repetition rate of 79 MHz, were split into the pump (energy 0.3 nJ) and probe (0.08 nJ) pulses. The pump was modulated at 1.8 MHz by an acousto-optic device in order to allow for synchronous detection. Both pulses were focused onto superimposed $\sim 50 \text{ }\mu\text{m}$ -diameter spots.

Figure 2 shows the time evolution of the normalized change of the reflected probe intensity $\Delta R/R$. The signal has been numerically filtered in order to discard electronic decay contributions and Brillouin oscillations. Two laser energies are presented in the figure. For $E_L = 1.722 \text{ eV} \sim E_{\text{SL}}$, two different phenomena are present and at two different time scales. For $t \lesssim 100 \text{ ps}$, a rapidly vanishing beat is observed [see the detailed region in Fig. 2(b)]. Instead, for $t \gtrsim 100 \text{ ps}$, a long-living beat remains, constituted only of two main Fourier components ν_1 and ν_2 ,

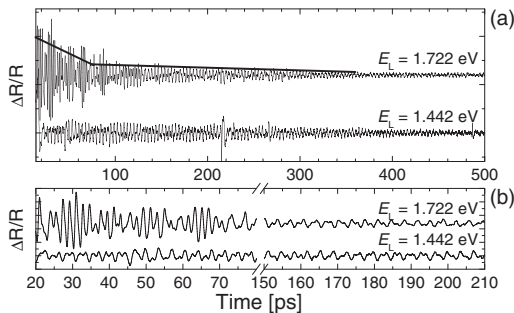


FIG. 2. Normalized reflectivity change of the probe beam as a function of the delay between the pump and the probe for two values of E_L . The data have been numerically filtered with a 0.1-THz-cutoff high-pass Butterworth filter. (a) Full temporal range. The two lines of different slopes indicate two different decay regimes. (b) Expanded regions.

with $\nu_2 \sim 2\nu_1$. On the other hand, for $E_L = 1.442 \text{ eV} \sim E_{\text{CAV}}$, just the long-living oscillation is present and can be clearly observed in both regions of Fig. 2(b).

Figure 3(a) shows the Fourier transforms (FT), in the region around the first zone-center minigap, of the time signal for different laser energies. The main feature is the sharp peak at 0.554 THz corresponding to the cavity mode, calculated to appear at 0.54 THz. In addition to it, for high laser energies broad features are also observed. Their amplitude drops off as E_L shifts down from the mirror fundamental transition at 1.729 eV, and they become undetectable at $E_L \sim 1.589 \text{ eV}$. This dependence on E_L signals that they correspond to SL modes. As a matter of fact, the displacement field in Fig. 1(a) corresponds to the SL peak at 0.588 THz in the top spectrum of Fig. 3(a). It is seen in the experimental data that these SL modes can be *switched off* by detuning E_L from the mirror fundamental transition, allowing for selective generation of the cavity mode.

Let us now focus on the behavior of the cavity mode as E_L varies. Its amplitude oscillates, displaying four local maxima at 1.442, 1.512, 1.631, and 1.710 eV. As follows from PL and photoluminescence excitation (PLE) experiments and envelope function calculations of the electronic levels in the cavity layer quantum well, the first two maxima can be assigned to resonances with the $e1 \rightarrow hh1$ and $e1 \rightarrow lh1$ transitions of the $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ cavity layer ($e1$, $hh1$, and $lh1$ are the first confined states of the electron, heavy hole, and light hole, respectively). For the maximum at 1.631 eV, no conclusive evidence of its relation to a specific transition has been found. As regards the maximum at 1.710 eV, it lies in the energy region where the mirrors also absorb, and therefore their contribution should

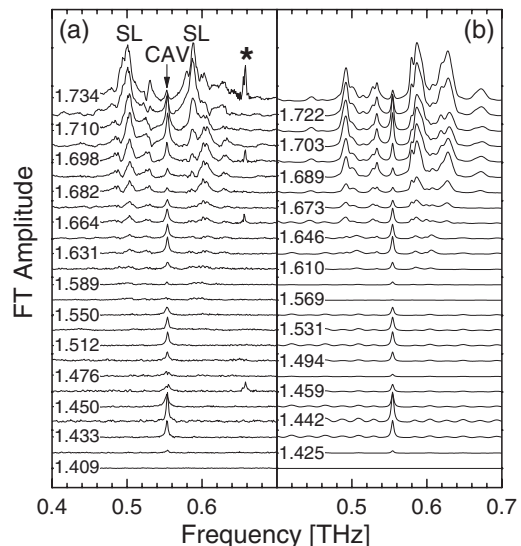


FIG. 3. (a) Fourier transform amplitude of the normalized reflected probe intensity. For each spectrum E_L is expressed in units of eV. CAV and SL indicate the cavity and superlattice modes, respectively. The starred peak is an artifact induced by the laser power stability system. (b) Calculations based on the photoelastic mechanism.

also be taken into account. We will come back to this matter later in the text.

To understand the origin of the features observed in the FT spectra in Fig. 3(a), we need to take into account the generation efficiency as well as the detection response. Previous works have shown that the mechanism which governs the detection in pump-probe experiments is the photoelastic effect [5,6]. It can be proven that the detection response is thus proportional to the Raman backscattering (BS) cross section (see, e.g., [10,11]). Concerning the generation mechanism, we will consider only the photoelastic effect, following the same assumptions made in Ref. [11]. The generation efficiency then turns out to be proportional to the forward scattering (FS) Raman cross section [11]. Non-negligible overlap between FS and BS is assured by finite size effects and light absorption.

In Fig. 4, we show the calculated Raman cross section ranging from the FS spectrum (labeled $k = 0$) to BS typical spectra for the values of E_L used in the pump-probe experiment. The wave vector \mathbf{k} transferred in the Raman process fulfills $\mathbf{k} = \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_S$, where \mathbf{k}_L (\mathbf{k}_S) is the incident (scattered) photon's wave vector. The FS geometry satisfies $k = 0$, whereas for BS, $k = 2k_L$. The spectra have been calculated according to the photoelastic model [12]. In this figure, we are interested only in the qualitative overall aspect of the Raman spectra, so we have set $p = 1$ within any $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ layer and $p = 0$ elsewhere. In the $k = 0$ spectrum, three features are observed. The sharpest peak at 0.554 THz corresponds to the cavity mode. The other two peaks just outside the stop band of the mirrors (gray area) and on either side of it resemble stop-band-edge modes, but they are not exactly such since, due to parity reasons, both stop-band-edge modes are Raman-inactive in the present nanocavity [13]. For small nonvanishing values of k ($kD/\pi = 0.04\text{--}0.08$; D is the phonon mirror period), the A_1 -type edge mode (0.576 THz) becomes observable,

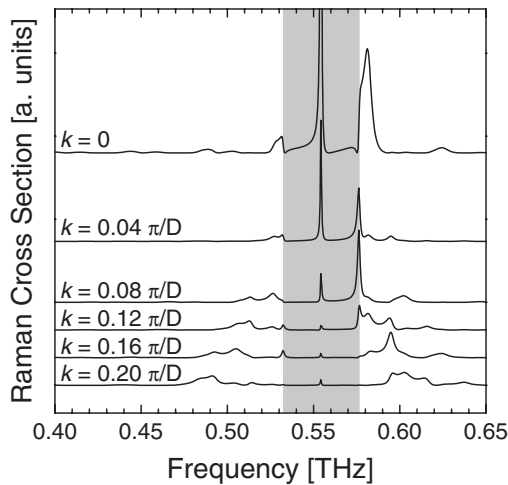


FIG. 4. Calculated Raman spectra for the nanocavity with different values of the transferred wave vector k (D is the acoustic mirror period). $k = 0$ fulfills the FS condition. The gray area covers the mirror stop band.

while the cavity mode intensity falls off, evidencing its zone-center character. For higher values of k , the folded acoustic phonon doublet, modulated by finite size oscillations and interference between the contributions of both mirrors, disperses according to the dispersion relation.

For calculating $\Delta R/R$, the generation is considered proportional to the $k = 0$ Raman spectrum in Fig. 4, whereas for the detection the spectral response is similar to the two lowest curves in the figure, since in the pump-probe experiment E_L covered the interval $0.16 \leq kD/\pi \leq 0.19$. Some physical constants necessary for the calculations are unknown. For the refractive index, as the optic wavelength is much larger than the SL period, we have considered a continuous optic medium with an effective refractive index $n_{\text{eff}} + i\kappa_{\text{eff}}$, which has been taken as a fitting parameter. The photoelastic properties have been approximated constant within each layer. For AIAs, an arbitrary real value $p_{\text{AIAs}} = 1$ has been fixed. The photoelastic constants of the $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ layers in the mirrors (p_{GaInAs}) and of the cavity layer (p_{CAV}) have also been left as fitting parameters. A Lorentzian convolution with a width compatible to the longest delay between the pump and the probe has been included.

The results are plotted in Fig. 3(b). It can be seen that the main features are clearly reproduced: the presence of a cavity mode as well as SL modes on either side of it. By comparison with Fig. 4, it can be seen that the cavity mode and the features at ~ 0.53 and ~ 0.59 THz are mainly contributions from the generation efficiency, while the remaining features result from the detection response. The decrease of the SL mode amplitude has been achieved by reducing p_{GaInAs} and κ_{eff} as E_L goes down through E_{SL} . The variation of these parameters has also reproduced the maximum of the cavity mode amplitude at 1.710 eV. In fact, p_{CAV} has been kept at a constant value for $E_L \geq 1.682$ eV. The sensitivity of the cavity mode to the variations of p_{GaInAs} is due to the non-negligible penetration of the mode into the mirrors [see Fig. 1(b)]. For lower laser energies, p_{CAV} has been varied in order to reproduce the cavity mode intensity. The largest value reached was $|p_{\text{CAV}}| = 9.7$, in agreement with the range of values reported in Ref. [14] for various GaAs/AIAs samples. n_{eff} has not shown to introduce significant changes, so it has been fixed to a value of 3.5. The values obtained for the fitting parameters are reasonable. Nevertheless, their interpretation is not straightforward, because they may differ from the real values due to other mechanisms involved in the generation [15]. To account for further details in the spectra, a full calculation of the generated pulse taking into account the different mechanisms should be carried out, but an analysis of the weight of each generation mechanism escapes the scope of this Letter. The simple photoelastic approach has proven able to reproduce the main features in the spectra.

Finally, let us analyze the lifetime of the different acoustic modes. For that, we have computed the FT of the time traces by intervals of 100 ps whose central value scans the

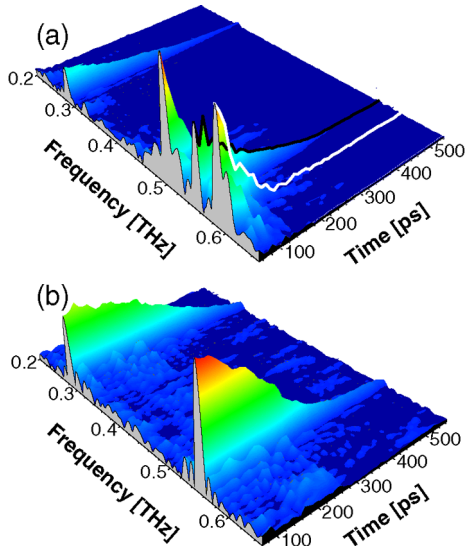


FIG. 5 (color online). Fourier transforms of the time trace by 100-ps intervals. The time axis indicates the center of the intervals. (a) $E_L = 1.710$ eV. The black (white) line follows the decay of the cavity mode (a SL mode). (b) $E_L = 1.442$ eV.

whole time range. The results are presented for $E_L = 1.710$ eV in Fig. 5(a) and 1.442 eV in Fig. 5(b). In Fig. 5(a), the cavity and SL modes are clearly recognized between 0.46 and 0.64 THz. Another mode is also observed at 0.285 THz. It is a lower energy cavity mode corresponding to the first zone-edge minigap, having approximately half the frequency of the other cavity mode. The combination of both cavity modes results in the two-frequency beat observed in Fig. 2. In Fig. 5(b), it is seen that, when E_L is resonant to the cavity layer fundamental transition, only the cavity modes are selectively generated. It is clear in the figure that the lower mode lives longer than the higher. Although the decaying shape is not perfectly exponential, we estimate a decay time τ_{exp} as the time it takes each mode to reduce its amplitude by a factor $1/e$. The obtained values are (350 ± 10) and (210 ± 6) ps for the lower and higher modes, respectively. In the case of the lower mode, τ_{exp} matches rather well the decay time τ_{conf} due to confinement $\tau_{\text{conf}} = (290 \pm 40)$ ps, calculated as the inverse of the full width at half maximum of the lower cavity mode in the theoretical acoustic transmissivity spectrum. On the contrary, whereas the cavity is optimized for the higher mode, this one presents a shorter τ_{exp} than the lower mode, and it is also much shorter than the expected value $\tau_{\text{conf}} = (710 \pm 10)$ ps. We therefore conclude that at high energies the decay time is strongly affected by anharmonic processes. If a relation $\tau_{\text{exp}}^{-1} = \tau_{\text{conf}}^{-1} + \tau_{\text{anh}}^{-1}$ is assumed, where τ_{anh} is the decay time due to anharmonicity, the returned value is $\tau_{\text{anh}} = (300 \pm 10)$ ps. Energy interconversion between the two cavity modes makes a plausible explanation for the differences between τ_{exp} and τ_{conf} seen in both modes, but further verification would be needed. To fully test the confinement properties of the cavity, a systematic

study of the cavity mode lifetime as a function of temperature would be of great interest. As regards the SL modes, it is observed in Fig. 5(a) that none of them lives longer than the higher cavity mode. The value of τ_{exp} for the SL mode at 0.603 THz, for example, is (37 ± 3) ps. The SL modes escape rapidly towards the substrate with a velocity determined by the dispersion relation. A calculated escape time of (44 ± 2) ps matches rather well τ_{exp} , which is too short to render anharmonic effects evident. While the SL modes escape to the substrate, the longer decay time of the cavity modes manifests the confinement properties [4]. The phonon oscillates back and forth in the cavity, and it slowly tunnels through to the substrate. For the higher mode, the number of oscillations is, however, limited by anharmonic decay, and we estimate it to (8.5 ± 0.4) [16].

In summary, we have demonstrated selective generation of coherent acoustic nanocavity modes. The selectivity is attained by tuning the incident pulse energy to the cavity spacer electronic transitions. The photoelastic model has been able to explain the main features in the experimental spectra, although other generation mechanisms cannot be discarded. The decay time of the modes has been analyzed as well. We have found significantly longer decay times for the cavity modes, evidencing the confinement effect. Anharmonic effects have also proven to be involved in the decay of the higher energy cavity mode.

We thank K. Meunier for the PLE experiments. M.F.P.W. acknowledges the program $\text{Al}\beta\text{an}$, the European Union Programme of High Level Scholarships for Latin America, Grant No. E05D051993AR. Support from SECYT-ECOS and the ONR (A. F.) is also acknowledged.

*afains@cab.cnea.gov.ar

†Present address: ATR Laboratories, Sharp Corporation, 2613-1, Ichinomoto, Tenri, Nara 632-8567, Japan.

- [1] M. Trigo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 227402 (2002).
- [2] A. Bartels *et al.*, Appl. Phys. Lett. **72**, 2844 (1998); C.-K. Sun *et al.*, Appl. Phys. Lett. **78**, 1201 (2001).
- [3] A. J. Kent *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 215504 (2006).
- [4] A. Huynh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 115502 (2006).
- [5] C. Thomsen *et al.*, Phys. Rev. B **34**, 4129 (1986).
- [6] O. Matsuda *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **19**, 3028 (2002).
- [7] R. Merlin, Solid State Commun. **102**, 207 (1997).
- [8] O. Matsuda *et al.*, Physica (Amsterdam) **316B–317B**, 205 (2002).
- [9] G. Rozas *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 035331 (2005).
- [10] K. Mizoguchi *et al.*, Phys. Rev. B **60**, 8262 (1999).
- [11] N.D. Lanzillotti Kimura *et al.*, Phys. Rev. B **71**, 041305(R) (2005).
- [12] B. Jusserand and M. Cardona, in *Light Scattering in Solids V*, edited by M. Cardona and G. Güntherodt (Springer, Heidelberg, 1989), p. 49.
- [13] M. F. Pascual Winter *et al.* (to be published).
- [14] J. Sapriel *et al.*, Phys. Rev. B **37**, 4099 (1988).
- [15] T. E. Stevens *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 144304 (2002).
- [16] P. Lacharmoise *et al.*, Appl. Phys. Lett. **84**, 3274 (2004).

Decoupling of optical generation and detection of acoustic phonons in semiconductor superlattices

M F Pascual Winter^{1,2}, A Fainstein¹, B Jusserand², B Perrin² and A Lemaître³

¹ Instituto Balseiro & Centro Atómico Bariloche, Av. E. Bustillo 9500, 8400 San Carlos de Bariloche, Río Negro, Argentina.

² Institut des Nanosciences de Paris, CNRS, Universités Paris 6 et 7, Campus Boucicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France

³ Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France

E-mail: pascualm@ib.cnea.gov.ar

Abstract. We present a study of the generation and detection of terahertz acoustic phonons in GaAs/AlAs superlattices through femtosecond pump and probe optical pulses, where the spectral contributions of the generation and detection processes are decoupled and identified. The processes are spatially separated in different superlattices grown with an intermediate 1- μm -thick GaAs layer. Pumping and probing occur on opposite superlattices. A thickness gradient present on one of the superlattices allows us to identify the features in the spectra resulting either from the generation or from the detection. A Raman scattering characterization of the sample is also presented.

1. Introduction

Femtosecond pump-probe experiments have been largely used to study acoustic properties of metals and semiconductors. The generation of acoustic pulses in thin films [1, 2] has been observed via these techniques, and more recently soliton generation and propagation have caught special attention [3]. Ultrafast techniques are excellently suited for analyzing the acoustic vibrations of artificially nanostructured materials, such as superlattices (SLs) [4, 5, 6, 7] -which we will study in this report-, nanocavities [7, 8], quantum dots [9, 10] and quantum wells [11]. The vibrations are generated through the absorption of a pump pulse, and they are optically detected via the changes they introduce in the optical properties of the sample. A probe pulse, whose reflected intensity is measured, reveals the state of the optical properties at a later time. The delay between the pump and the probe pulses is varied in order to obtain the time evolution of the acoustic vibrations.

The spectral analysis of pump-probe experiments performed on superlattices reveal three peaks corresponding to folded acoustic phonons in the region of the first zone-center minigap [4, 12], enclosed by the dashed circle in Fig. 1(a). Among these three peaks, the ones with the lowest and highest energies (empty symbols) can be assigned to modes with $q = 2k_{pr}$, where k_{pr} is the probe photon wave vector. The remaining mode (full symbol), not centered with respect to the other two, is identified as the zone-center mode ($q = 0$) of Raman-active symmetry. Standard pump-probe experiments do not allow us to separate the contributions of the generation and

detection in the observation of these peaks. Two-color pump-probe experiments have verified that the zone-center mode results from the generation process, while the $q = 2k_{pr}$ doublet is related to the detection mechanism [6]. From the theoretical point of view, the spectral distribution of acoustic modes excited by the pump pulse can be calculated [13]. A spectrum with a maximum amplitude at the zone center Raman-active mode is obtained. As regards the detection, the calculation of the spectral response of the change in the probe reflectivity yields maxima at the $q = 2k_{pr}$ modes [2, 14]. Therefore the generation and detection efficiency maxima do not coincide in energy. Nevertheless, due to finite size effects and light absorption some overlap is always assured, and the three peaks are thus observed in the spectral analysis of the pump-probe results.

In the present work we propose a different method for decoupling the generation from the detection. We make use of two SLs separated by a thick intermediate layer along which phonons can propagate from one SL to the other. The vibrations generated by the pump impinging on one SL travel along the intermediate layer until they reach the second SL where the detection takes place. This scheme has already been proposed in Ref. [13]. The advantage of our scheme is that one of the SLs presents a thickness gradient, allowing us to identify the contributions from the generation from those of the detections. Furthermore, the bandwidths for the generation and the detection of phonons can be tailored independently, as required, for instance, in the observation of acoustic Bloch oscillations in the terahertz range [15]. The energies of the doublet components depend on the SL period D as well as on the probe wavelength. In the two-color pump-probe experiment the laser wavelength is varied in order to separate both contributions. We propose to explore the possibility of varying the SL period.

2. Results and discussion

The sample is schemed in Fig. 2. It consists of two 60-period GaAs/AlAs SLs separated by a 1- μm -thick GaAs layer. It was grown by molecular beam epitaxy on a [001]-oriented GaAs substrate. For the uniform SL the layer thicknesses are 85 Å/37 Å, according to x-ray diffraction experiments. The other SL was grown with a global thickness gradient around the mentioned values. A central stripe was cut out of the 5-cm-diameter wafer and afterwards cleaved into 17 smaller $\sim 9 \text{ mm}^2$ pieces that will be hereafter identified with the numbers 0,..., 16. Only results for odd number pieces will be presented in this report.

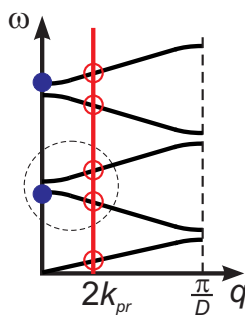


Figure 1. (a) Dispersion relation (acoustic folded branches) for a SL of period D . The full (empty) circles show the generation (detection) maxima.

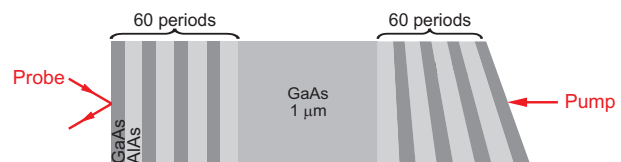


Figure 2. Scheme of the sample and experimental configuration for the pump-probe experiment.

For characterizing the sample we used Raman scattering, since it is the standard technique for studying folded phonons in SLs and nanostructures in general. We performed room temperature

Raman scattering experiments in a backscattering geometry, with incident radiation from a Ti:sapphire laser. We used a laser power of 5 mW, focused on a $\sim 50 \mu\text{m}$ spot. The scattered light was dispersed using a Jobin-Yvon T64000 spectrometer, and detected with a liquid N₂-cooled charge coupled device. In order to have enough Raman signal the laser wavelength was tuned to the transition from the second confined electron state to the second confined heavy hole state, in each piece of the sample. The range spanned was thus from 768 nm (piece 01) to 732 nm (piece 15).

Figure 3 shows the Raman spectra for the different pieces (the piece number is indicated to the left of each curve) as well as for the uniform SL. A luminescence background has been subtracted. We observe the lower component of the first doublet (dashed line) and both components of the second doublet (dotted lines). As expected, the phonon modes shift in energy along the wafer. We deduce a thickness gradient of 22%. The uniform SL has a period similar to the one the wedged SL presents in the middle of the wafer. Its lower $q = 2k_{pr}$ mode of the first zone-center minigap is observed at 0.362 THz. It is worth noting that the higher component of that minigap is absent in all the Raman spectra. We relate this fact to resonant character of the spectra. In Raman experiments performed in non-resonant conditions at a wavelength of 514 nm, both components of the doublet were observed.

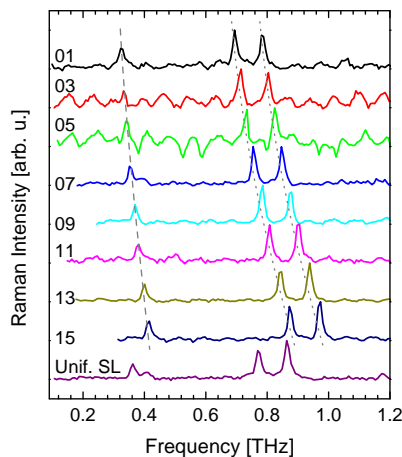


Figure 3. Raman spectra on both sides of the sample. For the wedged SL the piece number is indicated to the left of each curve. The dashed line follows the lower mode of the first zone-center minigap doublet. The dotted lines follow the second zone-center doublet.

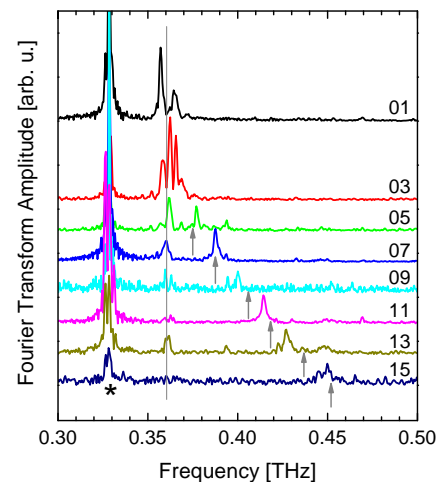


Figure 4. Fourier transforms of the time dependence of $\Delta R/R$. The spectra are labeled with the sample piece number. The starred peak is an artifact due to the laser power stability system. The arrows indicate the expected position of the generation peak and the vertical line shows the position of the detection one.

We performed room temperature reflection-type pump-probe experiments at a central optical pulse wavelength of 800 nm, both for the pump and the probe. Femtosecond pulses (~ 80 fs) from a mode-locked Ti:sapphire laser, with a repetition rate of 79 MHz, were split into the pump (energy 1.5 nJ) and probe (0.22 nJ) pulses. The pump was modulated at 1.8 MHz by an acousto-optic device in order to allow for synchronous detection. Both pulses were focused onto $\sim 50 \mu\text{m}$ -diameter spots, the pump on the wedged SL and the probe on the uniform SL.

The Fourier transforms of the time dependent change in the probe reflectivity ($\Delta R/R$) are

plotted in Fig. 4. Each spectrum is labeled with the sample piece number as in Fig. 3. In the original data, that is $\Delta R/R$ as a function of time, at short times the signal displays oscillations due to phonons generated in the probe SL by the portion of the pump pulse that is not absorbed in the pump SL, or alternatively, due to phonons detected in the pump SL because of some penetration of the probe pulse. To reduce these contributions, the Fourier transforms have been integrated over times longer than 210 ps, that is the travel time for the phonons to go through the intermediate GaAs layer. We observe a peak fixed along the wafer at an energy of 0.360 THz (vertical line). By comparison to the Raman spectra this peak can be identified with the detection maximum, i.e. the $q = 2k_{pr}$ mode of the uniform SL. The zone-center modes are not accessible via Raman experiments in a backscattering geometry. Nevertheless, their energies can be deduced from those of the $q = 2k_{pr}$ mode and the elastic properties and refractive indexes of GaAs and AlAs. We have marked the expected positions for the Raman-active $q = 0$ mode with the arrows in Fig. 4. We see that the arrows fall very close to a peak that shifts along the wafer. This peak is thus the generation maximum. The difference between the expected energies and the actual position of the peaks might be due to the fact that the estimation made from the $q = 2k_{pr}$ modes is valid for an infinite SL. For sample pieces 01 and 03, the generation and detection peaks are close to each other and some enhancement of the signal is observed.

3. Conclusion

In conclusion, we have decoupled the generation and detection of acoustic phonons in a pump-probe experiment. For that, we have spatially separated both mechanisms in two different SLs grown with an intermediate GaAs layer. Thanks to a thickness gradient present in one of the SLs, we have been able to identify the contributions of the generation and detection processes in the spectral analysis of the pump-probe results, with the help of a Raman scattering characterization.

Acknowledgments

M. F. P. W. acknowledges the IUPAP and the ANR for support for attending the Conference, and the Programme Al β an, the European Union Programme of High Level Scholarships for Latin America, scholarship No.E05D051993AR.

References

- [1] Thomsen C, Strait J, Vardeny Z, Maris H J and Tauc J 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 989; Wright O B and Kawashima K 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 1668
- [2] Thomsen C, Grahn H T, Maris H J and Tauc J 1986 *Phys. Rev. B* **34** 4129
- [3] Péronne E and Perrin B 2006 *Ultrasonics* **44** e1203
- [4] Yamamoto A, Mishina T, Masumoto Y and Nakayama M 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 740; Mishina T, Iwazaki Y, Masumoto Y and Nakayama M 1998 *Solid State Commun.* **107** 281; Bartels A, Dekorsy T and Kurz H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 1044
- [5] Perrin B, Bonello B, Jeannet J C and Romatet E 1996 *Physica B* **219&220** 681; Pu N W 2005 *Phys. Rev. B* **72** 115428
- [6] Mizoguchi K, Hase M, Nakashima S and Nakayama M 1999 *Phys. Rev. B* **60** 8262
- [7] Huynh A, Lanzillotti-Kimura N D, Jusserand B, Perrin B, Fainstein A, Pascual Winter M F, Péronne E and Lemaître A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 115502
- [8] Pascual Winter M F, Rozas G, Fainstein A, Jusserand B, Perrin B, Huynh A, Vaccaro P O and Saravanan S 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 265501
- [9] Bogaart E W, van Lippen T, Haverkort J E M, Nötzel R and Wolter J H 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 143120
- [10] Devos A, Poinssotte F, Groenen J, Dehaese O, Bertru N and Ponchet A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 207402
- [11] Matsuda O, Tachizaki T, Fukui T, Baumberg J J and Wright O B 2005 *Phys. Rev. B* **71** 115330
- [12] Trigo M, Eckhause T A, Reason M, Goldman R S and Merlin R 2006 *Phys. Phys. Lett.* **97** 124301
- [13] Trigo M, Eckhause T A, Wahlstrand J K, Merlin R, Reason M and Goldman R S 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 023115
- [14] Matsuda O and Wright O B 2002 *J. Opt. Soc. Am. B* **19** 3028
- [15] Lanzillotti-Kimura N D, Fainstein A and Jusserand B 2005 *Phys. Rev. B* **71** 041305(R)

Selective optical generation of a coherent acoustic nanocavity mode

M. F. Pascual Winter^{*,†}, G. Rozas^{*}, B. Jusserand[†], B. Perrin[†], A. Fainstein^{*},
P. O. Vaccaro^{**} and S. Saravanan^{**}

^{*}Centro Atómico Bariloche & Instituto Balseiro, C.N.E.A., 8400 S. C. de Bariloche, Río Negro, Argentina

[†]Institut des Nanosciences de Paris, UMR CNRS 7588, Université Pierre et Marie Curie, Campus Boucicaud,
140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France

^{**}ATR Wave Engineering Laboratories, 2-2-2 Hikaridai, Keihanna Science City, Kyoto 619-0288, Japan

Abstract. We report the first experimental evidence of selective generation of a confined acoustic mode in a $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ nanocavity enclosed by two $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ phonon Bragg mirrors. Femtosecond pump-probe experiments reveal the generation of a cavity mode within the acoustic mini-gap of the mirrors, in addition to their folded acoustic modes. Selective generation of the confined mode alone is achievable for certain energies below the absorption of the quantum wells in the phonon mirrors. These energies are experimentally identified with the cavity spacer electronic transitions. The amplitude of the acoustic nanocavity mode can be controlled by detuning the excitation from the spacer transitions. The present work finds a direct interest in the seek of monochromatic MHz-THz acoustic sources.

Keywords: acoustic, cavity, phonon, semiconductor, pump&probe

PACS: 63.22.+m, 78.47.+p, 42.60.Da, 78.66.Fd

Acoustic nanocavities, which strongly confine MHz-THz sound waves in a spacer enclosed by two phonon Bragg mirrors (superlattices), have proved their interest in the study and manipulation of the electron-phonon and photon-phonon interactions[1]. They are also envisaged as an amplification system for monochromatic acoustic sources in the MHz-THz range[2]. Incoherent confined cavity modes have been experimentally observed through Raman scattering experiments on nanocavities embedded in optical microcavities[1]. Moreover, nanocavities' acoustic transmission and effective confinement properties have been recently evidenced by means of femtosecond pump-probe (p-p) techniques[3]. The aim of the present work is to study the possibility of selectively generating a coherent cavity mode via optical femtosecond impulsions.

We have comparatively studied an acoustic nanocavity and a superlattice (SL). The latter consisted of 24 periods of a $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ unit cell grown on a [001]-oriented GaAs substrate. The SL period was chosen to have the first zone-center mini-gap at ~ 0.54 THz. In order to maximize this mini-gap, the widths of the $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ layers followed the $\frac{\lambda}{4}/\frac{3\lambda}{4}$ relation, where λ is the wavelength (in each material) corresponding to the center of the mentioned mini-gap. This results in layer widths of $21\text{\AA}/78\text{\AA}$ respectively. On the other hand, the acoustic cavity differed from the SL in its central $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ layer width which made a $\lambda/2$ spacer. An intermediate $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ stop-layer was included between the substrate and the heterostructure in order to

allow for the chemical etching of the substrate.

Laser energy dependent p-p experiments have been performed on both samples at room temperature. Femtosecond pump and probe pulses from a mode-locked Ti:sapphire laser were focused on the same side of the sample (the heterostructure side). Fig. 1 shows the Fourier transform (FT) amplitude of the detected temporal signal, normalized to the non-modulated photodiode voltage; this ratio is proportional to the reflectivity modulation $\Delta R/R$ of the probe beam[4]. Frames (a) and (b) in the figure display the results obtained on the SL and cavity samples, respectively. The number to the left of each spectrum indicates the incident energy in eV. In the 1.734 eV SL spectrum we observe three main peaks. Two of them correspond to folded longitudinal acoustic phonon modes whose wavevector q doubles the incident photon wavevector k_i , and have been labeled $q = 2k_i$. A third peak at an intermediate energy correspond to a folded acoustic phonon with $q = 0$, i.e. at the first Brillouin mini-zone center. Just one mode of the zone center doublet is present due to a parity selection rule. A sharp peak at 0.656 THz (labeled with an asterisk in Fig. 1) is an artifact due to the laser power stability system. For lower laser energies the whole spectrum amplitude decreases until complete extinction at 1.589 eV. This is the expected behavior since we are exploring the SL fundamental transition energy region. We have verified through room temperature photoluminescence (PL) experiments that the SL emission is centered at 1.72 eV.

As for what the cavity concerns, we can see in Fig.

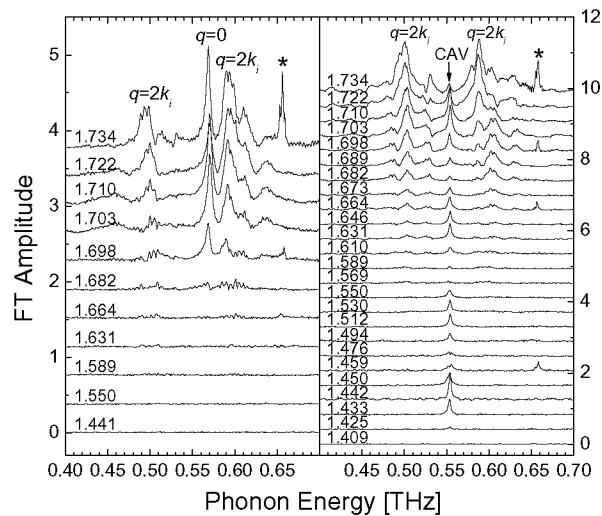


FIGURE 1. Fourier transform amplitude of the normalized reflected probe intensity from the SL (a) and cavity (b) samples. For each spectrum the incident laser energy is expressed in eV.

1 (b) that the spectra are qualitatively different. Aside from the $q = 2k_i$ modes of the two SL's that make the cavity mirrors, there is an additional peak approximately centered with respect to the $q = 2k_i$ doublet. It can be identified as the cavity confined mode. The $q = 0$ mode is not observed and not expected either, since its even parity with respect to the cavity spacer midpoint makes it Raman inactive. The incident energy dependence of the FT amplitude of the $q = 2k_i$ modes has been plotted in Fig. 2 with empty symbols [a circle (triangle) for the mode of lower (higher) energy]. The $q = 2k_i$ modes display the same behavior seen for the SL in Fig. 1 (a): a steep fall at high energies and rather constant negligible values for decreasing energies. On the other hand, the cavity mode displays a different incident energy dependence, depicted in Fig. 2 with filled squares. Its amplitude does not monotonically decrease with decreasing laser energy; it presents several local maxima instead. The first maximum is reached at 1.442 eV, and other local maxima are found at 1.521, 1.631 and 1.710 eV. The former is easily identified with the fundamental transition of the $\lambda/2$ spacer quantum well. Since the emission of such a quantum well is expected in the same energy region as the substrate's emission, room temperature PL experiments have been performed on samples where the substrate had been chemically removed. The results are presented as the gray line in Fig. 2 (right axis). We recognize the spacer fundamental transition at 1.443 eV, in agreement with the FT amplitude maximum. The $\lambda/4$ quantum wells in the acoustic mirrors give the PL peak at 1.728 eV. In order to locate higher transitions of the spacer, photoluminescence excitation (PLE) experiments have been carried out at liquid He temperatures.

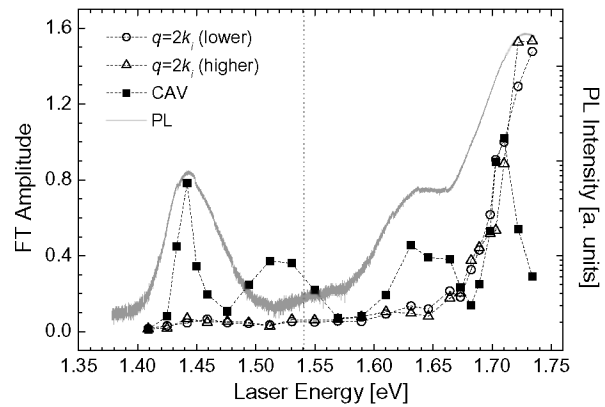


FIGURE 2. FT amplitude of different phonon modes: lower energy $q = 2k_i$ (open circles), higher energy $q = 2k_i$ (open triangles) and cavity mode (filled squares), compared to the PL spectra (gray line).

We have measured an energy difference of 98 meV between the fundamental and first excited transition. Neglecting temperature effects in the relative energy positions of the transitions, the first excited transition for the spacer quantum well is expected at 1.541 eV at room temperature (dotted vertical line in Fig. 2). This is compatible with our observation of a FT amplitude maximum of the cavity mode in the p-p experiment at laser excitation of 1.521 eV. The higher maxima can be attributed to even higher quantum well transitions.

Summarizing, we have presented the first experimental evidence of selective generation of an acoustic nanocavity mode. This mode has been optically excited through femtosecond laser pulses, ensuring the coherence of the resulting acoustic vibration. The selectivity is attained by tuning the incident energy to the cavity spacer electronic transitions, which should fall below any other transition in the heterostructure. The detuning provides as well a way of controlling the intensity of the generated confined mode.

MFPW acknowledges support from the Programme A1 β an, the European Union Programme of High Level Scholarships for Latin America, scholarship No.(E05D051993AR).

REFERENCES

1. M. Trigo, A. Bruchhausen, A. Fainstein, B. Jusserand and V. Thierry-Mieg, Phys. Rev. Lett. **89**, 227402 (2002).
2. P. A. Fokker, J. I. Dijkhuis and H. W. de Wijn, Phys. Rev. B **55**, 2925 (1997).
3. A. Huynh, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M. F. Pascual Winter, E. Peronne and A. Lemaître, this conference proceedings.
4. A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz and K. Köhler, App. Phys. Lett. **72**, 2844 (1998).

Subterahertz Phonon Dynamics in Acoustic Nanocavities

A. Huynh,¹ N. D. Lanzillotti-Kimura,^{1,2} B. Jusserand,¹ B. Perrin,¹ A. Fainstein,²
M. F. Pascual-Winter,^{1,2} E. Peronne,¹ and A. Lemaître³

¹*Institut des Nanosciences de Paris, CNRS, Universités Paris 6 et 7, Campus Boucicaut, 140 rue de Lourmel, 75015 Paris, France*

²*Centro Atómico Bariloche and Instituto Balseiro, C.N.E.A., 8400 San Carlos de Bariloche, R.N., Argentina*

³*Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France*

(Received 26 April 2006; published 13 September 2006)

We report a direct determination of the dynamic behavior of confined acoustic phonons in nanocavities by picosecond acoustics. We provide the broadband, high resolution transmission amplitude curve in the subterahertz range, and we give evidence of resonant transmission peaks in three successive stop bands, in quantitative agreement with acoustic simulations. We furthermore demonstrate transit times in the nanosecond range at the cavity peaks reflecting the strong confinement of resonant phonons within the cavity layer. On the other hand, picosecond transit times are measured in the stop band, shorter than in any of the constituting materials, a tunneling effect well known both in photonic crystals and in macroscopic phononic systems.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.97.115502](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.115502)

PACS numbers: 63.22.+m, 78.47.+p, 78.67.Pt, 43.38.+n

Acoustic phonons manifest themselves practically in all electronic, thermal, and optical phenomena in semiconductor nanostructures. Following several proposals that the modification of the acoustic phonon spectrum due to spatial confinement in standard nanostructures should strongly influence the electron-phonon interaction in these devices, it has been finally demonstrated [1] that the phonon scattering rate cannot be significantly modified by these means. Based on the concept of photon microcavity, it has been recently suggested that confining gigahertz-terahertz acoustic phonons in specifically designed resonant multilayers could significantly modify the electron-phonon interaction in nanostructures. GaAs/AlAs acoustic nanocavities have been proposed and phonon confinement demonstrated by Raman scattering [2]. The formal equivalence between the equations describing light and sound propagation has been the basis for the conception of 1D [3,4], 2D [5], and 3D [6] phononic crystals in which the acoustic impedance is artificially modulated as the refractive index is in photonic crystals. Practical demonstrations of this concept have been obtained in macroscopic crystals with spectral modifications of ultrasound in the kilohertz [4] and the megahertz range [5,6]. Such model systems, in which coherent wave experiments can be much more easily performed than in photonic devices, have been successfully used to explore basic properties of wave propagation in highly dispersive media, such as tunneling times in single [6] or multiple [4,7] phonon barriers. Macroscopic phononic crystals have potential applications in soundproof devices, but modified interactions between ultrasound and light or electrons can hardly be foreseen in such materials.

The epitaxial growth of semiconductor multilayers allows the conception of monolithic 1D phononic crystals based on the contrasting acoustic impedances of standard semiconductors such as GaAs and AlAs [3,8]. Superlattices are well known for their novel optical and elec-

tronic properties and much less as high reflectance phonon Bragg mirrors in the gigahertz-terahertz range, i.e., in the energy range which is important for the performance of several electronic and optoelectronic devices. We recently reported [2] the spectroscopic demonstration that monochromatic acoustic phonons around 0.5 THz are strongly confined in a nanometer thick GaAs layer embedded at the center of a phonon nanocavity, as photons are in optical microcavities. We present in this Letter the direct measurement of phonon spectral transmission through a similar phonon nanocavity, based on the picosecond acoustics technique [9,10]. The state of the art control of individual epitaxial layers should allow the observation of coherent phonon transmission in nanodevices working in the terahertz range. However, we demonstrate here the validity of the concept in the 100 GHz range, which well fits the performance of the presently available broadband directional transducers made of metallic layers. We demonstrate that inserting a phonon cavity between two identical phonon mirrors induces a narrow transmission peak within the lowest stop bands and that a narrow phonon wave packet centered at this peak is significantly delayed when transmitted through the device. When centered within the stop bands, the pulse becomes “supersonic”; i.e., its velocity becomes higher than the sound velocity in any of the constituting materials of the structure. This is equivalent to “superluminal transit” used in the context of photon tunneling [11].

We show in Fig. 1 the structure of the GaAs/AlAs phonon devices, grown by molecular beam epitaxy on (001) oriented two-side polished GaAs substrates. The structures contain two high reflectance phonon Bragg mirrors made of 10 periods of $(3\lambda_1/4, \lambda_2/4)$ building blocks, where $\lambda_i = 47.26$ and 56.48 nm for GaAs and AlAs, respectively. The high reflectance of these mirrors is based on the acoustic impedance contrast

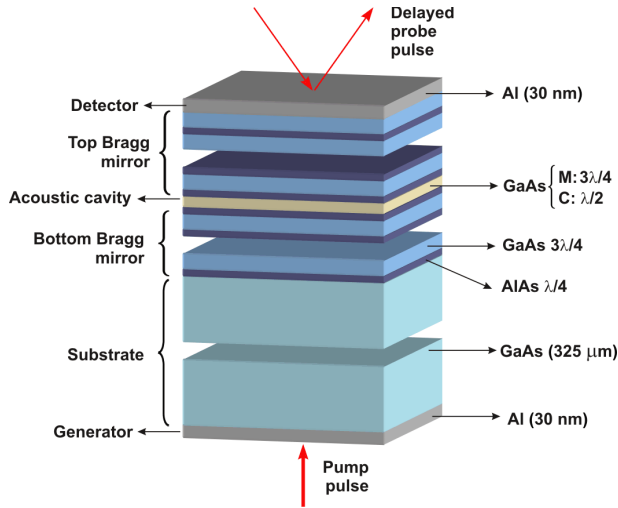


FIG. 1 (color online). Scheme of the acoustic nanodevice and configuration of the picosecond acoustic measurement.

$\varepsilon = (\rho_2 v_2 - \rho_1 v_1) / (\rho_1 v_1 \rho_2 v_2)^{1/2} \cong 0.18$, where ρ_1 , v_1 , ρ_2 , and v_2 are the mass density and the sound velocity of GaAs and AlAs, respectively. Acoustic gaps are expected to open at integer multiples of 50 GHz. A GaAs single layer was inserted between these two mirrors, and we compare in this Letter the results on two different samples, differing only in the thickness of this layer: $3\lambda/4$ in sample *M* and $\lambda/2$ in sample *C*. Sample *M* (for mirror) is a standard superlattice with 20 periods, while sample *C* is a phonon cavity. Note that terahertz phonon nanocavities are much more compact than photonic microcavities due to the shorter wavelength of acoustic waves. Broadband acoustic transmission spectroscopy [9,10,12] has been performed using thin aluminum layers deposited on both sides of the samples for generation (substrate side) and detection (surface side) of the acoustic pulse (see Fig. 1). Two hundred femtosecond optical pulses centered at 800 nm are sent at a 79 MHz repetition rate on the substrate side with a typical energy of 8 nJ/pulse focused over a $60 \mu\text{m}$ wide spot. The short absorption length in Al leads to the generation of an acoustic pulse containing frequencies up to 0.25 THz. The width of the aluminum layers has been optimized at 30 nm so that the direct interaction between light and the semiconductor is negligible in both the generation and detection processes. The sample is cooled down to 15 K so that the acoustic pulse propagates with negligible attenuation over the $325 \mu\text{m}$ thick GaAs substrate. We finally used a Sagnac interferometer [12] and a lock-in detection to measure the time variation of the imaginary part $B(t)$ of the complex optical reflectivity of the device surface, $\Delta R/R = A(t) + iB(t)$. The quantity $B(t)$ mainly reflects the displacement of the sample surface.

The interaction of the acoustic pulse with the phonon mirror and cavity is illustrated in Fig. 2. This figure shows calculations based on the transfer matrix method, in which

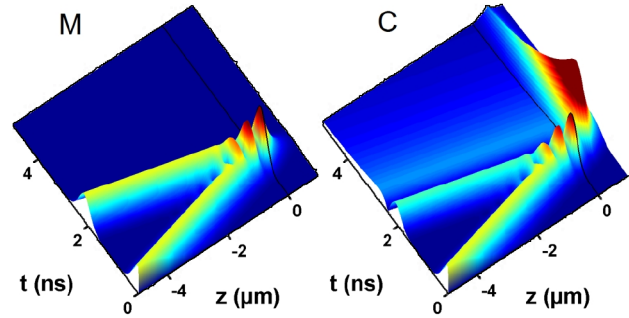


FIG. 2 (color online). Time dependence of the acoustic displacement across the device shown for sample *M* on the left and *C* on the right after a Gaussian pulse centered at 100 GHz with a full width of 0.2 GHz is sent from the substrate into the device. The thick black line at position $z = 0$ indicates the substrate-device interface.

a Gaussian pulse centered at 100 GHz with a full width of 0.2 GHz is sent towards the back interface. The energy distribution of the pulse is centered at the stop band of the mirror and at the cavity mode in the cavity device. For the mirror, all of the acoustic intensity is rapidly reflected towards the substrate, while, for the cavity, a significant part of the energy is transferred to the cavity mode, setting on a confined displacement that then decays slowly with time. We present in Fig. 3(a) the time evolution of the measured signal $B(t)$ in sample *C*. It is completely free of nonvibrational contributions, in contrast to similar experiments with pump and probe focused on the same side of the

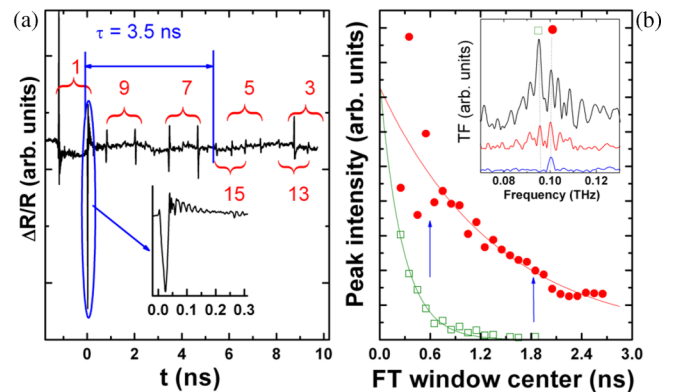


FIG. 3 (color online). (a) Imaginary part of the time resolved reflectivity on sample *C*. The brackets indicate successive pairs of echoes and the labels give the associated number of substrate traversals ($2n + 1$). The vertical lines define the time window used for the data analysis and the inset magnifies the short time variation inside the ellipse. (b) Variation of the peak intensity at the cavity mode (solid circles) and the stop-band low energy edge (open squares) in partial FT windows with a constant length 500 ps and varying central time delays given in the abscissa. The arrows indicate the arrival of new echoes. The solid lines are exponential fits of the decays, and the inset shows the partial FT traces at three typical delays, when the center of the window is at 0.45, 0.85, and 1.85 ns, respectively.

sample. This signal contains a superposition of several echoes with a similar shape and different intensities. Because of the free surfaces at both sides of the structures, all of the acoustic energy is reflected towards the substrate and propagates back and forth several times in the whole sample. The pulse arrival at the detector surface takes place at regular times $(2n + 1)T$, where $T \cong 68$ ns is the propagation time through the whole GaAs substrate thickness. These echoes are folded back into a 12 ns time window, which is the repetition time of the femtosecond laser. Moreover, each echo appears twice due to the nonequivalence of the two arms of the Sagnac interferometer. We show in the inset in Fig. 3(a) the time variation of the displacement during the first echo ($n = 0$). To ensure a frequency resolution compatible with the expected cavity modes broadening, we performed the Fourier transform (FT) of $B(t)$ over a time window $\tau = 3.5$ ns, as indicated in Fig. 3(a). Figure 3(b) illustrates that the arrival of additional echoes does not affect the decay curve of the cavity mode, as will be explained later.

Let us first compare the Fourier transform amplitude $F(\omega)$ of the time derivative of the experimental signals measured in samples M (Fig. 4, ME) and C (Fig. 4, CE) with the simulated Fourier transform of the deformation of the sample surface normalized with the relevant incoming acoustic spectrum (MT or CT). Thin layer effects in the phonon generation spectrum in the aluminum layer and nonlinear propagation in the 325 μm thick GaAs substrate, cooled down at 15 K, have been taken into account to simulate the spectral shape of the actual spectrum impinging on the phonon device. Changing the excitation power density [13] modifies the slowly varying envelope in $F(\omega)$ but does not affect the rapid variations due to the device transmission. The overall correspondence in the transmis-

sion structures is remarkable, including the observation of three gaps around 0.05, 0.1, and 0.15 THz in the mirror M . The same gaps are observed in cavity C together with additional narrow cavity modes. Because the building blocks of the mirrors are $(3\lambda_1/4, \lambda_2/4)$, the cavity mode appears at the center of the second gap while the modes in the first and third stop bands are down-shifted (respectively, up-shifted) with respect to the stop-band center. In the theoretical traces in Fig. 4, we have used the layer thicknesses independently determined by x-Ray diffraction, standard values for the acoustic parameters, and a -0.5% correction to all thicknesses to reproduce the cavity mode frequency around 100 GHz. We left apart the small remaining differences in the detail of the transmission oscillations outside the gaps, not visible at the scale in Fig. 4, as they do not affect the conclusions of the present Letter. The spectral width Δf (FWHM) of the cavity peaks, which reflects the lifetime of phonons in the cavity, amounts to 0.43 GHz, in close agreement with the 0.32 GHz value expected from the model. We also performed partial Fourier transforms over 500 ps wide time windows centered at regularly spaced delays. We show in Fig. 3(b) the variation as a function of the delay of the heights of the cavity peak and the peak at the low energy edge of the stop band in the partial Fourier transform amplitudes. We illustrate in the inset partial FT curves at a few significant delays. Besides oscillations due to the numerical sampling, regular decays are observed and no accident is visible at the arrival of new echoes. The cavity peak displays a decay time of 1.38 ns, in excellent agreement with the value deduced from Δf ($\tau = \sqrt{3}/\pi\Delta f = 1.28$ ns) while the edge mode decays within 0.26 ns.

A definitive advantage of picosecond acoustics with respect to light transmission spectroscopy is that the transmission curve is actually obtained from a signal that contains intrinsically more information, i.e., the coherent time evolution of the wave packet. In other words, the phase ϕ of the transmission is also available and gives access to important quantities such as the group transit time $t_G = L/v_G$ associated to the transit of the sound pulse through the acoustic device, where L is the total length of the device and v_G is the group velocity. The correct definition of this basic quantity in highly dispersive media has been much debated following the initial work by Brillouin [14]. Experiments in the megahertz range have clearly demonstrated that this quantity remains meaningful in such a situation [15] and can be alternatively determined either from the basic definition $t_G(\omega) = L/(d\omega/dk) = d\phi(\omega)/d\omega$ or from numerically filtering the data. Because the latter method is less affected by experimental noise, we used it to quantify the time evolution in the studied nanocavity. We compare in Fig. 5 the experimental and the theoretical transit times through the acoustic device deduced with the same filtering procedure as introduced in Ref. [15], using a 0.01 GHz Gaussian filter. We also show as a dotted line the

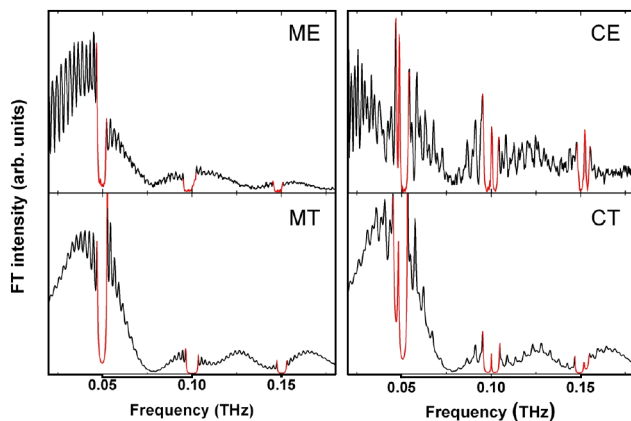


FIG. 4 (color online). Fourier transform amplitudes of the time derivative of the transient reflectivity signal (E) for both samples M (left side) and C (right side) compared to the respective calculated Fourier transform of the deformations at the surface (T), including the simulated incident phonon pulse spectrum. The energy range of the phonon stop bands are emphasized in red.

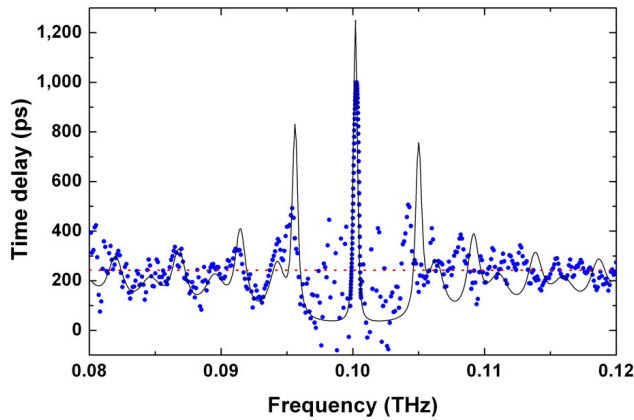


FIG. 5 (color online). Group transit time deduced from numerical filtering of the signal on sample *C* with Gaussian filters centered at various energies and with widths of 0.01 GHz (blue points). A constant time offset has been adjusted to fit the theoretical group transit time through the cavity device obtained with the same method (black line). The red dotted line shows the transit time calculated using an effective velocity as described in the text.

reference transit time $\sum d_i/v_i$. The agreement is excellent apart from some dephasing in the transmission oscillations on the high energy side of the stop band. As we already explained for Fig. 4, we have not performed a full adjustment of the sample parameters to improve the agreement in a frequency range which is not essential for the cavity behavior studied in this Letter. In the stop band, picosecond transit times, shorter than in any of the constituting materials, are observed, though with a large noise due to the very low transmission rate in the stop bands. On the other hand, transit times up to 1 ns are measured at the cavity peaks, reflecting the strong confinement of resonant phonons within the cavity layer. The very short transit times in the stop bands are an acoustic equivalent of what is known as the “Hartman” effect of electron tunneling through potential barriers [16]. When analyzed in the context of light propagation, this same phenomenon leads to much debated consequences, in view of the fact that light velocities above c have been deduced from indirect measurements [11]. Here, in the framework of subterahertz acoustics, we have the advantage that direct observations in the time domain become accessible. On the other hand, the long lifetime of the cavity mode is clearly demonstrated in this figure. This result is similar to what is observed in photonic microcavities, an effect that is at the basis of modifications of the angular distribution of the emitted light and of the emission rate, for optical emitters such as excitons embedded in the cavities.

The results presented in this Letter fully validate the concept of the phonon nanocavity and open new ways to manipulate acoustic phonons in the technologically challenging subterahertz energy range going from high resolution filtering to generating directional monochromatic coherent or incoherent phonon beams. Phonon nanocavities also provide novel potentialities in the long-studied phonon “laser” problem [17], with the realization of longitudinally monomode cavities and the easy control, based on the number of Bragg pairs in the mirror, of the rate of tunneling of cavity phonons, and, hence, of radiated energy, to the outside world. Drawing a parallel with optical microcavities, one can furthermore foresee the possibility of using such cavities to modify the way in which sound interacts with electrons or with other phonons with a significant impact on electronic and optoelectronic devices.

We thank J. Page, S. Longhi, and F. Perez for useful scientific discussions and ECOSud for financial support.

-
- [1] H. Rucker, E. Molinari, and P. Lugli, *Phys. Rev. B* **45**, 6747 (1992).
 - [2] M. Trigo, A. Bruchhausen, A. Fainstein, B. Jusserand, and V. Thierry-Mieg, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 227402 (2002).
 - [3] V. Narayanamurti, H.L. Störmer, M.A. Chin, A.C. Gossard, and W. Wiegmann, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 2012 (1979).
 - [4] W.M. Robertson, C. Baker, and C. Brad Bennett, *Am. J. Phys.* **72**, 255 (2004).
 - [5] F.R. Montero de Espinosa, E. Jiménez, and M. Torres, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1208 (1998).
 - [6] Yang Suxia, J.H. Page, Liu Zhengyou, M.L. Cowan, C.T. Chan, and Ping Sheng, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 104301 (2002).
 - [7] F. Van Der Biest, A. Sukhovich, A. Tourin, J.H. Page, B.A. van Tiggelen, Z. Liu, and M. Fink, *Europhys. Lett.* **71**, 63 (2005).
 - [8] N.M. Stanton, R.N. Kini, A.J. Kent, M. Henini, and D. Lehmann, *Phys. Rev. B* **68**, 113302 (2003).
 - [9] H. Maris, *Sci. Am.* **278**, No. 1, 64 (1998).
 - [10] B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, and E. Romatet, *Physica (Amsterdam)* **219B–220B**, 681 (1996).
 - [11] S. Longhi, P. Laporta, M. Belmonte, and E. Recami, *Phys. Rev. E* **65**, 046610 (2002).
 - [12] J.-Y. Duquesne and B. Perrin, *Phys. Rev. B* **68**, 134205 (2003).
 - [13] E. Peronne and B. Perrin, *Ultrasonics* (to be published).
 - [14] L. Brillouin, *Wave Propagation and Group Velocity* (Academic, New York, 1960).
 - [15] J.H. Page, Ping Sheng, H.P. Schriemer, I. Jones, Xiaodun Jing, and D.A. Weitz, *Science* **271**, 634 (1996).
 - [16] T.E. Hartman, *J. Appl. Phys.* **33**, 3427 (1962).
 - [17] P.A. Fokker, J.I. Dijkhuis, and H.W. de Wijn, *Phys. Rev. B* **55**, 2925 (1997).

Publicaciones anexas, realizadas durante el período de tesis

Lifetime of THz Acoustic Nanocavity Modes

G. Rozas,¹ M. F. Pascual Winter,^{1,2} B. Jusserand,² A. Fainstein,^{1,*} B. Perrin,² E. Semenova,³ and A. Lemaître³

¹*Centro Atómico Bariloche & Instituto Balseiro, CNEA, Bustillo 9500, R8402AGP S. C. de Bariloche, Río Negro, Argentina*

²*Institut des Nanosciences de Paris, Université Pierre et Marie Curie, CNRS UMR 7588, Campus Bouicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France*

³*Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, CNRS, Route de Nozay, 91460 Marcoussis, France*

(Received 7 August 2008; published 5 January 2009)

We present an ultrahigh resolution Raman study of the lifetime of 1 THz acoustic phonons confined in nanocavities. We demonstrate that the cavity Q factor can be controlled by design. Anharmonicity contributes only marginally to limit the cavity phonon lifetime, even at room temperature, while thickness fluctuations in the scale of 1/10 of a unit cell are the main limitation for the performance of THz phonon cavities.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.015502

PACS numbers: 63.22.Np, 62.80.+f, 78.30.Fs

Phonons in the THz range have great importance both in basic research and in applications, for example, in optoelectronics or nanoscopy [1–3]. One important device in this area is the phonon cavity [4]. Being a monochromatic source for large strains, its potential applications include studies of crystal dynamics above the elastic regime [5] and sources for coherent phonon generation [2,6] and control [7]. However, several fundamental limitations to the performance of these THz cavities that are intrinsic to acoustic phonons, and become critical at the interesting room-temperature, high-frequency, and nanometer-wavelength regime, have not been tested so far. By means of a newly developed ultrahigh resolution Raman scattering technique, we show that we can control by design the intrinsic lifetime of 1 THz phonon cavities. The effects of anharmonicity and thickness fluctuations are addressed through temperature-dependent measurements and Raman scattering simulations.

The phonon cavity is the acoustic equivalent of the photon cavity [8]. It consists of a spacer of width $n\frac{\lambda}{2}$ enclosed between two superlattices (SL). Because of the acoustic impedance mismatch between the materials, the latter act as interference acoustic mirrors [9,10] for the wavelength λ . Like its photonic counterpart, phonon cavities are characterized by a highly monochromatic and amplified acoustic mode, with sound wavelengths of the order of a few nanometers [4]. The quality of the cavity is given by its Q factor $Q = \lambda/\Delta\lambda$, where $\Delta\lambda$ is the full-width at half-maximum (FWHM) of the cavity mode. The theoretical Q factor can be controlled through the reflectivity of the acoustic mirrors, being larger for higher reflectivities. It is also closely related to the lifetime of the cavity phonons, which live longer in the cavity region as the reflectivity of the mirrors increases. For example, for a 1 THz phonon ($\lambda \sim 5$ nm in GaAs), a Q factor of 10^4 implies a lifetime of ~ 3 ns, which should be compared to the ~ 2 ps it takes a nonconfined vibration to go through the cavity spacer. Such lifetime can be achieved in principle with mirrors of only 20 GaAs/AlAs bilayers.

However, in spite of their many similarities, there are two crucial differences between photonic and acoustic cavities. First, photons are intrinsically harmonic: they do not decay unless they interact with a nonlinear material. Phonons, in contrast, are intrinsically anharmonic [11,12]. A phonon will always decay into two or more phonons or will collide with a phonon present in the thermal bath, their lifetime being a direct consequence of the nonparabolicity of the lattice atomic potential [12,13]. Second, while mirrors with surface qualities of $\lambda_{\text{light}}/200$ for light in the visible and near-infrared can be obtained, the equivalent quality for phonons of $\lambda \sim 5$ nm would be challenging even for the best state-of-the-art MBE, leading to a possible strong interaction of phonons with surface imperfections in most of the structures. Several experimental and theoretical reports in the area of thermal conductivity of nanostructures show that both the bulk phonon lifetime and the scattering at interfaces and defects should be taken into account to properly approach the problem [14,15]. The practical limitations to the lifetime and consequently to the minimum linewidth and maximum amplification that can be achieved in these cavities are important matters for device applications. In addition, the anharmonic phonon decay is in itself a challenging fundamental issue, both experimentally and theoretically [16–18]. The lifetime of propagating THz acoustic phonons both in bulk and in nanostructures, which are at the heart of the current developments in picosecond acoustics, remains an open problem that can be addressed by the method reported here.

Four acoustic cavities [4] with a mode frequency of 1 THz were grown by MBE on top of an optical mirror [Fig. 1(a)], so that the full sample acts as an optical microcavity [19]. Each acoustic cavity is formed by a top 20-period GaAs/AlAs (3.5/1.5 nm) SL, a $\frac{3\lambda}{2}$ GaAs spacer (7 nm), and a bottom SL mirror with $N = 4, 8, 12,$ or 16 similar periods depending on the sample. This introduces a variation in the reflectivity of the bottom mirror (from 36% to 98.5%) that, in turn, modifies the Q factor of the acoustic cavity (from 63 to 2400). The optical mirror is an

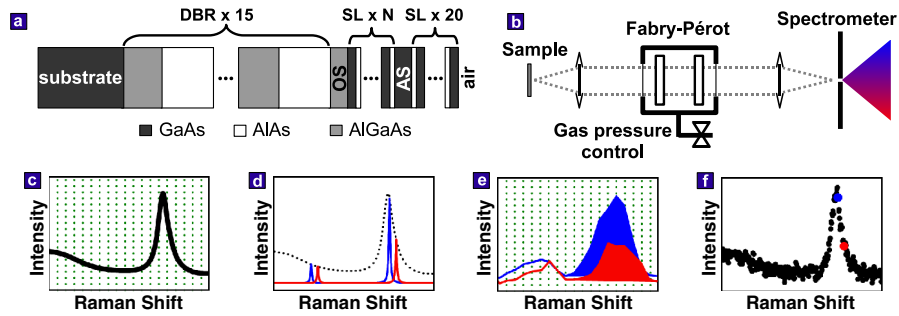


FIG. 1 (color online). Scheme of the samples (a) and experimental setup (b). AS and SL (OS and DBR) stand for acoustic (optic) spacer and mirror. Panel (c) shows how the Raman spectrum (full line) compares to the CCD pixel size (delimited by vertical dotted lines in c and e) in a typical experimental condition. Panels (d)–(f) represent the different stages in the reconstruction of the Raman spectrum (see the text for details). The two full-line spectra correspond to two different gas pressures, and each shaded area correspond to one point in the final spectrum. The four panels have the same full bottom scale of 1.7 cm^{-1} .

$\text{AlAs}/\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ DBR centered at 750 nm. A sample dependent $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ layer was grown between this mirror and the bottom of the acoustic SL to produce a λ_{laser} optical spacer between the air and the DBR, and to assure that the acoustic cavity spacer is at a maximum of the amplified electric field independently of N . The presence of the optical microcavity has a twofold purpose: increasing the Raman signal, and enabling the detection in a back-scattering geometry of the cavity peak, otherwise accessible only in a forward-scattering configuration [4,20]. Both the AlGaAs layer and the DBR (but not the acoustic nanocavity) were grown with a $\sim 15\%$ wedge to allow for the tuning of the optical cavity to the electronic resonance of the SL, further increasing the Raman signal. Room-temperature photoluminescence shows that all the samples have their SL fundamental emission between 751 and 754 nm, and that the DBRs do not absorb at wavelengths larger than 670 nm.

The mentioned Q factors mean that the cavity mode tunnels through the bottom SL to the substrate at lifetimes that vary from 20 to 790 ps for the 4- and 16-period samples, respectively. To test these nominal values, we use the close relationship between the lifetime of the cavity mode and the linewidth of the Raman scattering peak. If the former is τ , then the latter will be $\text{FWHM} = 2\hbar/\tau$. The expected Raman linewidths for the cavity mode vary then from 0.52 to 0.014 cm^{-1} . This sets the resolution needed for Raman experiments on these samples well below the capabilities of a high resolution triple Raman spectrometer in the additive configuration ($\sim 0.2 \text{ cm}^{-1}$ in the near-infrared, NIR). On the other hand, a Fabry-Pérot (FP)–spectrometer tandem with monochannel acquisition [21] could provide the required resolution but with acquisition times that would be prohibitive in the present samples. In order to overcome these difficulties, we have developed a novel Fabry-Pérot–triple additive spectrometer tandem with multichannel acquisition [Fig. 1(b)]. In this setup, the light coming from the experiment [1(c)] goes through a single-pass FP interferometer (97% NIR dielectric mirrors) and gets multiplied by its transmission function

[1(d)]. This function consists of a series of narrow transmission peaks equally spaced (being this distance the free spectral range, FSR) that can be tuned by changing the pressure and, consequently, the index of refraction of the gas in the interior of the FP. This filtered light is collected later into a Dilor XY800 triple spectrometer in additive configuration and acquired with a liquid nitrogen-cooled CCD. As the resolution of the spectrometer is better than the FSR of the FP but not enough to resolve the width of the transmission peaks, the acquired spectrum consists of several broad resolution-limited peaks of which the relevant information is their integrated intensity [1(e)]. Repeating this procedure as a function of the gas pressure, we reconstruct the Raman profile [1(f)]. This configuration allows to acquire a full 10 cm^{-1} Raman spectrum with the ultrahigh resolution characteristic of a FP interferometer (0.01 cm^{-1}) in only one simultaneous parallel measurement.

The experiments were performed in backscattering, with 1 mW power focused in an $80 \mu\text{m}$ spot and with the laser energy 10 meV below the SL gap. The optical microcavity mode was tuned by displacing the sample to obtain maximum Raman signal. The laser was a tunable Ti:Saph with a measured linewidth of 0.013 cm^{-1} (390 MHz, Fig. 2). Typical acquisition time for one spectrum was 1–3 hours.

Room-temperature Raman measurements are presented in Fig. 2. Vertical arrows identify the acoustic cavity peak. The $q = 0$ (“forward”-scattering, FS) and $q = 2k$ (“back”-scattering, BS) modes of the SLs, where q (k) is the phonon (photon) wave vector, are also identified. As expected from the design, all samples have the cavity mode around 33 cm^{-1} ($\sim 1 \text{ THz}$), and it is in all cases less than 0.1 cm^{-1} away from the predicted position based on x-ray data for the layers widths. Calculations of Raman scattering spectra [22] were performed to compare the experimental linewidths with those expected for samples without any additional broadening [Fig. 2(b)]. While the theoretical linewidth (full line) decreases exponentially with the number of periods of the bottom SL, the experimental linewidth (full circles) saturates towards a value of $\sim 0.1 \text{ cm}^{-1}$

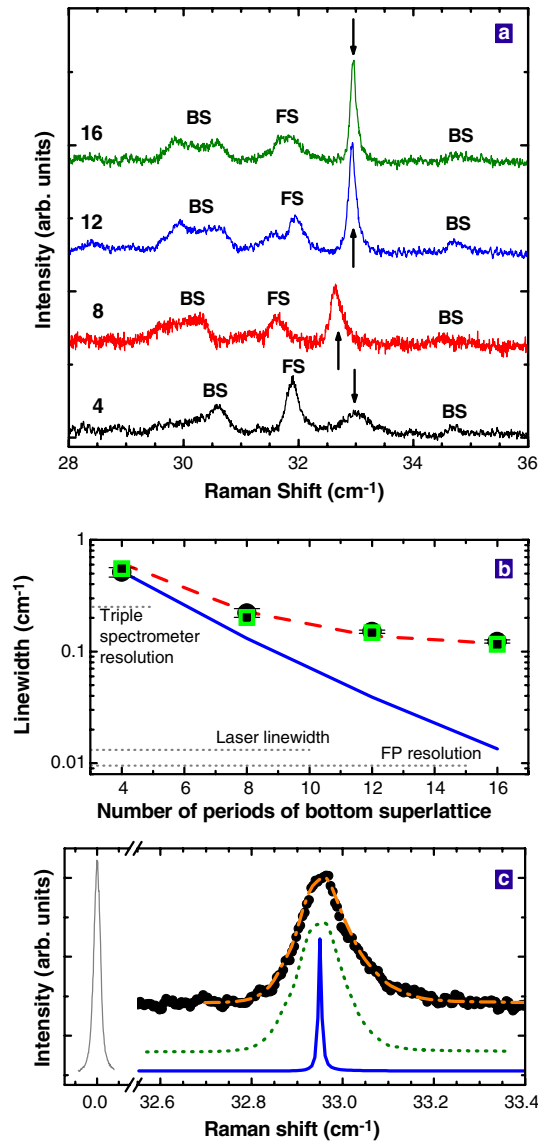


FIG. 2 (color online). (a) Room-temperature ultrahigh resolution Raman spectra of the four samples, identified by the number of periods of the bottom SL. Vertical arrows mark the acoustic cavity mode. Panels (b), (c) show a comparison of experimental (full circles) and calculated nominal (full line), Lorentzian convoluted (dashed line), thickness fluctuations (empty squares and dotted line), and thickness fluctuations with wave vector relaxation (dash-dotted line) linewidths and profiles of the acoustic cavity mode Raman peak. Both Lorentzian convolution and thickness fluctuations are also convoluted with the experimental resolution. In panel (c), the three theoretical spectra are shifted $+0.07 \text{ cm}^{-1}$ to match the experimental position of the peak. Laser profile (thin full line) is also shown.

(which would correspond, if it were homogeneous, to a 110 ps lifetime). Several resolution limits are also plotted for reference. For the 16-period sample, we compare in Fig. 2(c) the room-temperature experimental (full circles) and theoretical (full line) Raman spectra, the former being 8 times broader. The measured laser line (thin full line) is presented as well as a reference of the resolution of the

tandem. A Lorentzian convolution of $\text{FWHM} = 0.1 \text{ cm}^{-1}$ of the theoretical spectra matches very well the general behavior seen in Fig. 2(b) (dashed line). The dependence of the FWHM with the size of the bottom SL shows that, through a proper design of the sample, it is possible to modify the Q factor and lifetime of the acoustic cavity.

For the lowest Q 4-period acoustic cavity, the experimental linewidth is consistent with that expected from theory. However, it is clear from the other samples that an additional broadening mechanism is present. As we mentioned earlier, phonons are subject to anharmonic decay. This mechanism strongly depends on temperature and energy because high-energy phonons have more chances to decay into lower-energy phonons, and thermally-excited populations can stimulate this decay [12,13]. To identify the relative contribution of this mechanism, we have performed temperature-dependent Raman scattering experiments, shown in Fig. 3 for the 16-period sample. The experimental linewidth of the cavity peak does not change significantly when we reduce the temperature from 293 to 135 K. The anharmonic decay rate is proportional to the phonon population at the final states [11,12]. At relatively high temperatures, i.e., when $\hbar\omega < kT \lesssim kT_{\text{Debye}}$, phonon population is proportional to the temperature T , and anharmonic lifetime can be approximated as $\tau_{\text{anh}}^{-1} = \Gamma\omega^2T$, $\hbar\omega$ being the energy of the initial phonon and Γ a constant that depends on the anharmonicity of the interatomic forces, if only three-phonon Herring processes are taken into account [12,13]. For reference, phonon frequencies around 1 THz are equivalent to $\sim 50 \text{ K}$, and $T_{\text{Debye}} = 344 \text{ K}$ for GaAs. If anharmonic decay were the main contribution to the broadening, this should lead to a two-fold reduction of the linewidth, which is clearly not the case. The experimental reduction in this temperature range

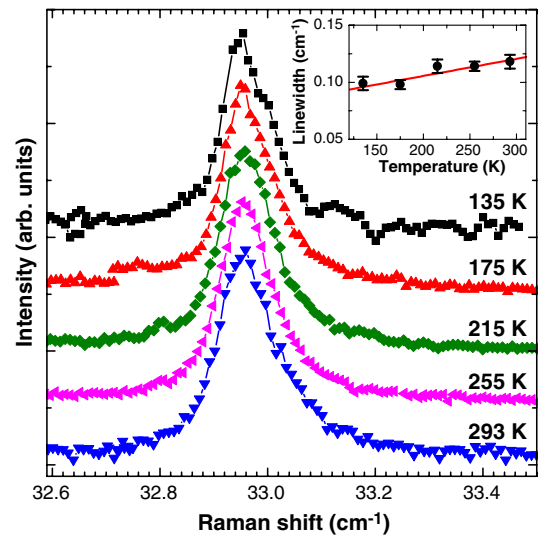


FIG. 3 (color online). Temperature dependence of the acoustic cavity mode Raman peak for the sample with 16 periods in the bottom superlattice. The inset shows the FWHM of this peak (full circles) fitted by a linear temperature dependence (full line).

is $(0.019 \pm 0.008) \text{ cm}^{-1}$ and amounts only to 15% of the total linewidth. We can estimate Γ proposing that the Raman line profile is the convolution of a temperature independent peak of width W_0 and the anharmonic broadening $W_A = 2\hbar/\tau_{\text{anh}}$. Fitting this temperature dependence with $\omega/(2\pi) = \nu_{\text{cav}} = 1 \text{ THz}$ to the experimental points results in $\Gamma = (3.6 \pm 1.0) \times 10^{-19} \text{ K}^{-1} \text{ s}$ (solid line in the inset). In order to obtain a theoretical estimation of this parameter, we can write $\Gamma = 2\nu A'$, where $\nu = 4950 \text{ m/s}$ is the effective sound velocity in the system and A' is the parameter defined in equation (10) of Ref. [13], calculated to be $1.1 \times 10^{-25} \text{ cm}^{-1} \text{ s}^2 \text{ K}^{-1}$ for bulk GaAs in the same reference. This sets $\Gamma = 1.1 \times 10^{-19} \text{ K}^{-1} \text{ s}$, in good agreement with our experimental value, and supports the prediction by Chen *et al.* [13] that Herring scattering should dominate over the relaxation process for frequencies above 500 GHz. The existent discrepancy in the values can have several origins: (i) bulk momentum conservation is modified in a SL by the folding of the dispersion relationship, opening new channels for umklapp processes [14]; (ii) we are dealing here with a localized mode, for which momentum conservation is relaxed [23].

Excluded anharmonic decay as the main contribution, the other possible sources of broadening for phonons in nanostructures are deviations from the ideal system, namely, scattering on roughness at interfaces and material mixing. As they are produced by fixed properties of the structure, these factors should be temperature independent. Besides, thickness fluctuations can have large consequences. Even if small variations in the layers widths do not affect significantly the linewidth of the cavity mode, the small energy shift produced by the different local parameters at each point of the sample can cause an inhomogeneous broadening of the Raman peak. To test the latter, we have performed Raman scattering calculations introducing a random variation in the position of the interfaces. Using an exponential random distribution with probability $p(\delta) = \exp(-|\frac{\delta}{\alpha}|)/(2\alpha)$ for the deviation δ from the expected position of each interface, we have concluded that fluctuations of 1/9 of a unit cell ($\alpha = 0.06 \text{ nm}$) can reproduce the experimental results for all the samples [empty squares in Fig. 2(b)]. As an example, we plot in Fig. 2(c) the average spectrum for 3000 random samples (dotted line) simulated with this α parameter and taking δ as deviations from the x-ray values. α in this 1D simulation can be seen as an average sensed by the phonon of the short range roughness typical of the GaAs-over-AlAs interfaces [24]. The observed slight peak asymmetry with a high-energy tail can be accounted for by including momentum relaxation as described in Ref. [25], in addition to the symmetric broadening just mentioned. Using the same α parameter and taking into account the in-plane parabolic energy dispersion of the cavity mode, a good description of the data (dash-dotted line) can be obtained assuming a

typical lateral size of the thickness fluctuations of $\sim 50 \text{ nm}$, which is probably related to the AlAs-over-GaAs interfaces [24]. We have also performed photoluminescence experiments at 8 K and measured the FWHM of the acoustic cavity fundamental electronic transition to be $(3.0 \pm 0.4) \text{ meV}$. From calculations in the envelope function approximation, the value of α required to produce this FWHM is 0.05 nm, in very good agreement with the one obtained from Raman scattering.

To summarize, we have shown that the Q factor of THz acoustic cavities can be tailored by design, and that the main present limitation is related to submonolayer thickness fluctuations. Once this extrinsic factors are addressed, these results imply that acoustic cavities with a Q factor as high as 1000 can be grown with MBE technology in the 0.1–1 THz range. We have also found a linear temperature dependence of anharmonic decay, opening the way to fundamental studies of phonon properties in the relevant THz and room-temperature regime.

We thank R. Ouillon and P. Ranson for their assistance with the FP system, L. Largeau and O. Mauguin for the x-ray measurements, and A. Bruchhausen for the core of the simulations program.

*afains@cab.cnea.gov.ar

- [1] K.-H. Lin *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 073307 (2004).
- [2] A. J. Kent *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 215504 (2006).
- [3] A. Akimov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 037401 (2006).
- [4] M. Trigo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 227402 (2002).
- [5] K. Sokolowski-Tinten *et al.*, Nature (London) **422**, 287 (2003).
- [6] M. F. Pascual Winter *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 265501 (2007).
- [7] A. Bartels *et al.*, Appl. Phys. Lett. **72**, 2844 (1998).
- [8] K. Iga, Jpn. J. Appl. Phys. **47**, 1 (2008).
- [9] V. Narayanamurti *et al.*, Phys. Rev. Lett. **43**, 2012 (1979).
- [10] A. Huynh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 115502 (2006).
- [11] P. G. Klemens, J. Appl. Phys. **38**, 4573 (1967).
- [12] C. Herring, Phys. Rev. **95**, 954 (1954).
- [13] W. Chen *et al.*, Philos. Mag. B **70**, 687 (1994).
- [14] W. S. Capinski *et al.*, Phys. Rev. B **59**, 8105 (1999).
- [15] B. C. Daly *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 024301 (2002).
- [16] C. Ulrich *et al.*, Phys. Rev. Lett. **78**, 1283 (1997).
- [17] C. Aku-Leh *et al.*, Phys. Rev. B **71**, 205211 (2005).
- [18] J. Kulda *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 045209 (2004).
- [19] A. Fainstein and B. Jusserand, Phys. Rev. B **57**, 2402 (1998); A. Fainstein *et al.*, Phys. Rev. B **53**, R13287 (1996).
- [20] P. Lacharmoise *et al.*, Appl. Phys. Lett. **84**, 3274 (2004).
- [21] R. Ouillon *et al.*, Chem. Phys. **91**, 119 (1984).
- [22] J. He *et al.*, Phys. Rev. B **37**, 4086 (1988).
- [23] P. G. Klemens, Phys. Rev. **122**, 443 (1961).
- [24] M. Tanaka *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **25**, L155 (1986).
- [25] T. Ruf *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 3035 (1993).

Acoustic phonon Raman scattering induced by a built-in electric field

G. Rozas,¹ M. F. Pascual Winter,^{1,2} A. Fainstein,^{1,*} B. Jusserand,² P. O. Vaccaro,^{3,†} and S. Saravanan³

¹Centro Atómico Bariloche & Instituto Balseiro, CNEA, R8402AGP S. C. de Bariloche, Río Negro, Argentina

²Institut des Nanosciences de Paris, UMR CNRS 7588, Université Pierre et Marie Curie, Campus Boucicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France

³ATR Wave Engineering Laboratories, 2-2-2 Hikaridai, Keihanna Science City, Kyoto 619-0288, Japan

(Received 6 September 2007; revised manuscript received 19 December 2007; published 9 April 2008)

We report acoustic phonon resonant Raman scattering experiments in strained piezoelectric [311] Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs superlattices with permanent built-in piezoelectric fields. The acoustic phonon spectra develop upon resonant excitation around the “forbidden” $hh_2 \rightarrow e_1$ interband transition into a broad intense structure, which is peaked at the first folded phonons. Standard narrow acoustic phonon doublets are recovered when the power of the resonant laser excitation is increased. Such change in the resonant Raman spectra with increasing power is accompanied by a strong shift and bleaching of a photoluminescence emission related to the $hh_2 \rightarrow e_1$ transition. None of these observations are present in [001] Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs superlattices that lack the built-in fields because of symmetry. We interpret these results as originated in a Raman process resonant with an intermediate transition that becomes allowed due to the built-in fields. We address the possible mechanisms by which the acoustic phonons strongly modulate the dielectric function in these piezoelectric nanostructures, including an electron-acoustic-phonon interaction involving the phonon modulation of the built-in fields. This mechanism, which is shown to be proportional to the magnitude of the built-in fields, is quenched when the latter are screened by photoexcited carriers.

DOI: [10.1103/PhysRevB.77.165314](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.165314)

PACS number(s): 78.30.Fs, 63.20.D-, 78.66.Fd, 42.60.Da

“Nanophononics,” which is the domain of acoustic phonons of gigahertz-terahertz frequencies and nanometer wavelengths, is relevant for the manipulation of sound and heat at the nanoscale. Through the electron-phonon interaction, such phonon engineering has implications on the control of charge and light at high frequencies and with reduced dimensions. Important progress has lately emerged in the development of nanowave phononic devices including, e.g., mirrors, cavities, and monochromatic sources.^{1–5} The deformation potential interaction that couples acoustic phonons and electrons is, however, relatively weak. This fact introduces an intrinsic limitation for the development of multifunctional acoustic devices designed to act on electronic or optical properties.

One alternative to overcome this limitation involves the piezoelectric coupling in noncentrosymmetric materials. It turns out, however, that the electron-acoustic phonon coupling through the piezoelectric interaction in III-V semiconductors is also relatively weak, which leads to minor changes in the electron and phonon lifetimes, sound velocities, and Raman cross sections. It has been recently pointed out that a different situation may arise when built-in *permanent* piezoelectric fields are present.^{6–10} Interestingly, a huge acoustic phonon coherent generation efficiency has been reported in GaInN/GaN piezoelectric superlattices (SLs), which is more than 2 orders of magnitude larger than that observed in standard GaAs/AlAs structures.^{6,7} The proposed mechanism involves the screening of the piezoelectric built-in field by photoexcited carriers, which triggers an instantaneous coherent displacement with wave vector determined by the SL period.⁸ These results suggest that the modulation of the built-in fields by the acoustic phonon strain should open an additional channel of electron-acoustic-phonon coupling that could, in principle, be tailored and dynamically controlled.¹⁰ In this paper, we report the first observation of electric-field

induced Raman scattering by acoustic phonons in strained [311] Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs superlattices with permanent built-in piezoelectric fields. We demonstrate that the Raman process is strongly resonant with a *forbidden* interband transition involving the second confined heavy-hole (hh_2) and the first confined electron (e_1) levels. Most interestingly, a quenching of this resonance is observed with increasing laser power, which demonstrates that the Raman process can be tuned by screening the built-in piezoelectric fields with photoexcited carriers. Possible mechanisms by which the acoustic phonons can strongly modulate the dielectric function in the presence of built-in fields (thus leading to the Raman scattered light) are addressed.

Polar III-V semiconductors, which are noncentrosymmetric materials and thus intrinsically piezoelectric, may display permanent built-in electric fields along the growth direction when grown in multilayers that are strained by lattice mismatch. Structures grown along [001] do not possess permanent piezoelectric fields because of symmetry, while very large fields (up to $\approx 10^5$ V/cm) are present for almost any other growth direction.¹¹ To investigate the role of these permanent piezoelectric fields on the Raman scattering by acoustic vibrations, we have performed a comparative study of Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs SLs grown both along [001] and [311]. The thickness of the 24 Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs layers, which are designed to have the first zone-center acoustic phonon minigap at ~ 18 cm⁻¹, were 21 Å/78 Å (23 Å/84 Å) for the [001]([311]) SL. A 1 μm Ga_{0.44}Al_{0.56}As alloy sacrificial layer was grown between the SLs and the GaAs substrate to eventually allow the chemical etching of the substrate. The excellent quality of the structures was evidenced by the observation of up to seven (five) doublets in the acoustic folded phonon Raman spectra.¹⁰ High resolution x-ray diffraction displays several SL satellites and indicates that the layers are pseudomorphic with the

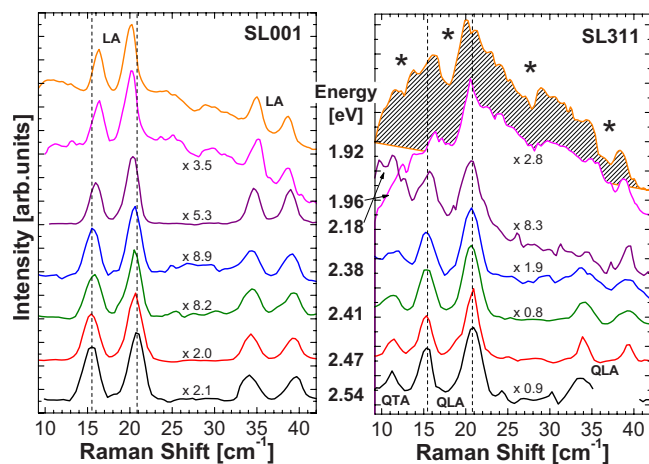


FIG. 1. (Color online) Acoustic phonon Raman spectra taken at 80 K for various laser lines of an Ar-Kr ion laser. Left: [001] SL. Right: [311] SL. The shaded region in the top spectrum of the right panel highlights the broad intense background that appears for the [311] sample at 1.96 and 1.92 eV.

substrate and $\sim 2\%$ thinner than the nominal values (in agreement with the Raman data). Strain relaxation, if any, should be below 0.5% (one dislocation every 3 μm). It thus follows that the AIAs layers are only weakly strained ($\approx 0.05\%$), while $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ is under a large ($\approx 1\%$) compressive in-plane strain. We have estimated the polarization charges and built-in electric fields following Ref. 11. By assuming a complete absence of dislocations and boundary conditions appropriate for a quasi-infinite SL (the electric potential averages to zero in every $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AIAs}$ bilayer), the built-in electric fields can be estimated to be $F \approx 0.5 \times 10^5$ V/cm in the $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ layers.¹¹

Figure 1 displays acoustic phonon Raman spectra, which are taken at 80 K for various lines of an Ar-Kr ion laser, with parallel incident and scattered polarizations. In all cases, the laser power was 5 mW, which is focused on a ~ 30 μm spot. The collected spectra were dispersed by using a Jobin-Yvon T64000 spectrometer and detected with a liquid- N_2 -cooled charge coupled device. For [001] oriented structures, there are two degenerate transverse acoustic (TA) and one longitudinal acoustic (LA) branches. For [311] grown structures, three nondegenerate branches exist, where one is purely transverse (TA), another is quasitransverse (QTA), and the third is quasilongitudinal (QLA). As illustrated in Fig. 1, for all laser energies in the [001] structure but only at high energies for the [311] oriented sample, narrow folded acoustic phonon peaks are clearly observed. In agreement with the Raman selection rules, only LA modes are observed along [001], while both QLA and QTA modes appear for polarized backscattering along [311].^{10,12} The spectra qualitatively change for the [311] oriented structure when the laser energy is decreased. Already for 2.18 eV, a laserlike tail develops, which turns into a broad intense background at 1.96 and 1.92 eV (see the shaded spectrum highlighted in Fig. 1). Concomitant with the appearance of this background, the folded acoustic peaks shift, broaden, and wash out, and new peak and diplike features develop (these are marked with asterisks in Fig. 1).

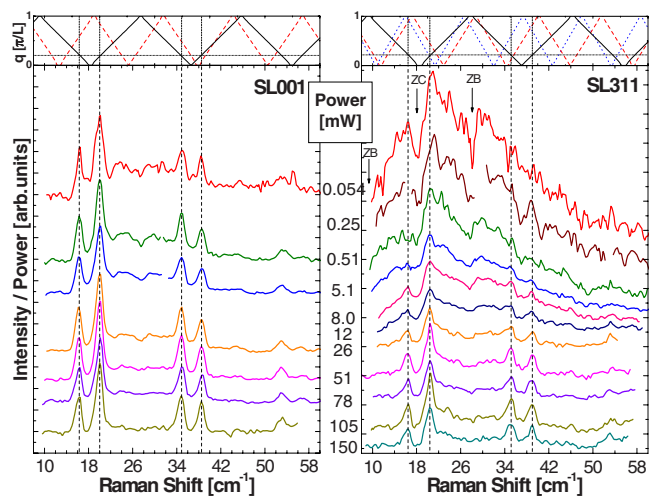


FIG. 2. (Color online) Folded acoustic phonon spectra taken with 1.92 eV resonant excitation with powers ranging from ~ 50 μW to ~ 150 mW. The spectra in the figure have been normalized to the incident power and an exponential tail has been subtracted. Left panel: [001] SL. Right panel: [311] SL. The top panels present the acoustic phonon dispersion calculated by using a continuum Rytov model for the LA (solid), TA (dashed), and QTA (dotted) phonons. ZC and ZB label the features related to zone-center and zone edge gaps, respectively.

The results displayed in Fig. 1 suggest that a resonant contribution to the Raman cross section is active for the [311] sample but absent for the [001] orientation. This resonant process displays a strikingly unusual power dependence, as shown for 1.92 eV resonant excitation in Fig. 2 for powers ranging from ~ 50 μW to ~ 150 mW. The spectra in the figure have been normalized to the incident power. An exponential tail, which is produced by the resonance with the fundamental (lower energy) transition and evident in the top spectra of Fig. 1, has been subtracted from every spectra on both samples. For the SL grown along [001] (left panel), the normalized Raman spectra are essentially independent of laser power, as expected. In contrast, the [311] structure (right panel) presents spectra that vary from the typical narrow doublets at high powers (bottom) to a large broad background at low powers (top). Similar to the spectra in Fig. 1, with decreasing power besides the appearance of the intense broad background, the doublets broaden and shift, and additional peaks and dips can be clearly observed (indicated with arrows in the figure). We also present at the top of Fig. 2 the acoustic phonon dispersion calculated by using a continuum Rytov model,¹³ with the material parameters from Ref. 12. It can be deduced from this figure that the large observed background corresponds to acoustic phonons coming from the whole Brillouin zone, while the additional peaks and dips can be identified with regions of higher and lower density of states, respectively, in the phonon dispersion (center and edge of the Brillouin zone).¹⁴

The observation of acoustic phonons from the whole Brillouin zone, including dips and peaks associated with the peculiarities of the phonon dispersion, was quite thoroughly discussed by Ruf *et al.*¹⁵ Their studies clearly established that wave vector nonconservation related to disorder and a

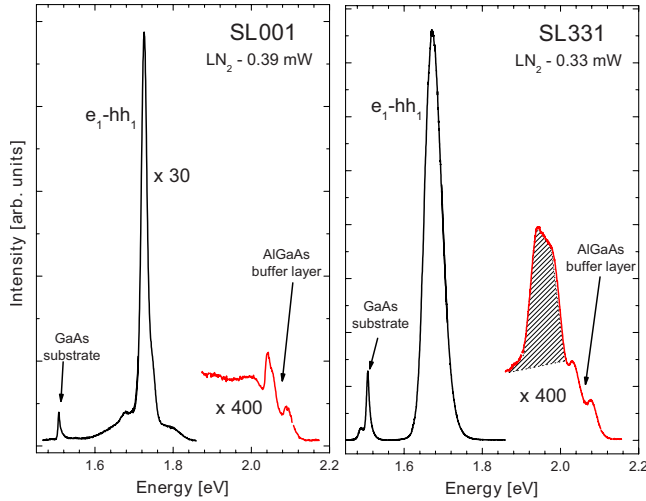


FIG. 3. (Color online) Photoluminescence measurements obtained for the [001] and [311] superlattices at 80 K and with 488 nm excitation.

strong Raman resonance are at the origin of such kind of features. Briefly stated, when the laser energy is away from resonance, the collection of quantum wells (QWs) contributing to the Raman polarization are basically equivalent and, consequently, their periodicity leads to a defined wave vector in the scattered light. Under these circumstances, narrow doublets are observed. On the other hand, when the laser is within or close to an inhomogeneously broadened distribution of QW states, each of the states differently contribute to the scattered light, those closer to the laser being more intense because of resonance. The interference of the scattered light thus loses coherence, the spectra reflect features belonging to scattering by individual QWs, and, for this reason, the wave vector is not conserved. The peculiarity of the results presented here is that such Raman resonance involving acoustic phonons is observed in a “forbidden” transition due to the presence of built-in electric fields, a resonance that can be tuned, and fully bleached, by increasing the laser power.

The presence of large permanent strain-induced fields modifies the potential landscape sensed by carriers, which changes in a fundamental way the optical properties of these structures. To begin with, the electric fields shift the confined energy levels through the quantum confined Stark effect.^{16,17} In addition, optical transitions that are otherwise forbidden by symmetry become allowed. In the absence of electric field, the envelope functions of the confined states are either even or odd. Consequently, optical transitions are only allowed between electron and hole levels of the same parity. The electric field removes the reflection symmetry and, consequently, also the parity selection rule. Figure 3 presents photoluminescence measurements obtained for the two studied samples at 80 K. A detail of these photoluminescence measurements which correspond to the spectral region where the strong resonant behavior is observed in Figs. 1 and 2 is presented in Fig. 4. The latter are shown for different powers of the 488 nm excitation laser (2.54 eV). The peaks observed in these spectral region are more than 2 orders of magnitude weaker than the fundamental first heavy-hole to first electron ($hh_1 \rightarrow e_1$) transition (observed at ~ 1.7 – 1.72 eV for the

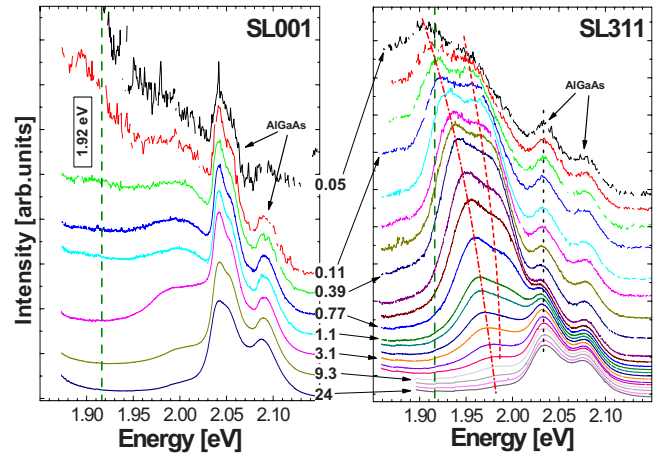


FIG. 4. (Color online) Photoluminescence measurements in the spectral region close to the energy of the $hh_2 \rightarrow e_1$ transition performed both in the [001] and [311] SLs at 80 K and for different excitation powers ranging from $\approx 50 \mu\text{W}$ (top) to ≈ 24 mW (bottom). The numbers indicate the incident power in mW. All curves have been normalized to display the same intensity of the peaks at ≈ 2.05 , which originated in the $\text{Ga}_{0.44}\text{Al}_{0.56}\text{As}$ sacrificial alloy layer. The vertical line at 1.92 eV in the left panel indicates the laser energy used for the resonant spectra displayed in Fig. 2. The lines in the right panel are guides to the eyes.

[001] SL in Fig. 3). For the [001] sample (left panel in Fig. 4), the spectra are basically independent of laser power, and are mainly characterized by the doublet localized at ≈ 2.05 and ≈ 2.09 eV which is due to indirect Γ - X transitions in the $\text{Ga}_{0.44}\text{Al}_{0.56}\text{As}$ sacrificial alloy layer. All curves in Fig. 4 have been normalized to display the same intensity of the peak at ≈ 2.05 .

The same kind of power-independent structure is also observed for the [311] structure (right panel of Fig. 4). In addition, at low excitations, the spectra display a relatively intense double peak (at ~ 1.9 and ~ 1.95 eV) that is not present in the [001] sample. With increasing power, this structure strongly blueshifts (~ 60 meV), reduces its splitting, and decreases its relative intensity until it is almost unobservable for incident power ≥ 15 mW. According to a standard calculation of electronic states with an effective mass envelope function model,¹⁷ this feature can be related to the second heavy-hole to first confined electron ($hh_2 \rightarrow e_1$) transition (calculated to appear at ≈ 1.99 eV). As a reference, we note that the fundamental gap is predicted to fall at ≈ 1.74 eV (not including any excitonic correlation). In the [001] SL, this transition (either direct or to neighbor wells) is forbidden by symmetry. For the [311] structure, on the other hand, the built-in fields lead to finite transition probabilities. With increasing laser power, photoexcited carriers screen the built-in fields, thus recovering the parity conservation selection rules that characterizes the [001] sample. We have calculated the density of free electrons required to fully screen the built-in fields to be $\approx 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Following Ref. 18, we have estimated that these densities are reached in our samples with an incident power of a few milliwatts, which is in very good agreement with the power dependence of the Raman and photoluminescence spectra

displayed in Figs. 2 and 4, respectively. The observed power dependent shift of ≈ 60 meV, on the other hand, is too large to be solely accounted for by the quantum confined Stark effect in our relatively narrow 21 Å GaAs QWs. A field-dependent coupling to the X states in the AlAs barrier, which fall approximately at the same energy, could be contributing to this large effect. In any case, it is apparent that the resonance with this strongly field-dependent transition leads to the notable Raman behavior displayed in Figs. 1 and 2. The mechanisms by which this phenomenon occurs will be discussed next.

The Raman efficiency for scattering by acoustic phonons is given by¹⁷

$$I(\omega) \propto \left| \int dz E_L E_S^* \frac{\partial \chi}{\partial \epsilon} \Delta \epsilon \right|^2, \quad (1)$$

where $E_L(E_S)$ is the laser (scattered) field and $\frac{\partial \chi}{\partial \epsilon}$ is the variation of the electric susceptibility with strain (ϵ). The strain generated by the acoustic phonon is defined as $\Delta \epsilon = \frac{\partial u(z)}{\partial z}$, where $u(z)$ is the phonon displacement. The electric susceptibility can be written in a simplified form as¹⁷

$$\chi(\omega) \propto \frac{|H_{cv}|^2}{\omega_{cv}(\omega_{cv}^2 - \omega^2)}, \quad (2)$$

with the nominator corresponding to the square matrix element of the radiation-matter Hamiltonian between the valence band and the electron states (H_{cv}) and the denominator basically reflecting a resonance at the interband energy $\hbar\omega_{cv}$. The change in electric susceptibility $\frac{\partial \chi}{\partial \epsilon}$ induced by the acoustic phonon thus has three terms, as follows:

$$\frac{\partial \chi}{\partial \omega_{cv}} \frac{\partial \omega_{cv}}{\partial \epsilon} \Big|_F + \frac{\partial \chi}{\partial \omega_{cv}} \frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F} \frac{\partial F}{\partial \epsilon} + \frac{\partial \chi}{\partial |H_{cv}|^2} \frac{\partial |H_{cv}|^2}{\partial F} \frac{\partial F}{\partial \epsilon}, \quad (3)$$

which reflect either the phonon modulation of the transition energy (first two) or of the transition probability (third term).

The first term in Eq. (3) describes the standard deformation potential interaction.¹⁷ Here, we would like to emphasize that the resonant contribution to the susceptibility responsible for the Raman anomalies presented in Figs. 1 and 2 is a function of the built-in fields (F). In fact, it is zero when the fields are absent (e.g., for the [001] samples) or when they are screened by photoexcited carriers (as for the [311] samples at high excitation powers). This field dependence $\chi(F)$ equally applies to both this first photoelastic term and to the other two contributions. In addition, the latter possess explicit field dependencies. In the second term of Eq. (3), $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F}$ and $\frac{\partial F}{\partial \epsilon}$ are related to the electro-optic and piezoelectric constants, respectively. This term accounts for the piezoelectric mechanism in bulk materials, which is usually weak for III-V compounds. In contrast and as follows from the huge laser-power dependence of the resonant transition observed for the [311] structure in Fig. 4, this term may provide an important contribution in our strained SLs with built-in fields. Similarly, the third term in Eq. (3) is usually disregarded because strain alone *does not* significantly modify the

optical transition probabilities. This is, however, clearly not the case when forbidden transitions are considered, as is our case here. In fact, by assuming that the matrix element corresponding to the studied forbidden transition linearly depends on the applied electric field F , $|H_{cv}|^2 = \frac{\gamma}{2} F^2$ (this is the case for the $hh_2 \rightarrow e_1$ transition), it follows that $\frac{\partial |H_{cv}|^2}{\partial \epsilon} = \frac{\partial |H_{cv}|^2}{\partial F} \frac{\partial F}{\partial \epsilon} = \gamma F \frac{\partial F}{\partial \epsilon}$. That is, a term proportional to the built-in field appears, which reflects the change in optical transition probability induced by the acoustic phonon modulation of the electric field. As apparent from Fig. 4, the transition probability is strongly sensitive to the applied field and, thus, such a term can also make a sizable contribution to the Raman cross section. A similar argument can be used to demonstrate that also the second term in Eq. (3) should lead to a contribution proportional to F . We note that the acoustic phonons that should scatter more effectively through the electron-acoustic phonon interactions described above [second and third terms in Eq. (3)] are those with wave vector that matches the periodicity of the permanent built-in fields. These correspond to the first zone-center folded phonons, which is in agreement with the maxima of the broad contributions described in Figs. 1 and 2.

Some simple calculations of $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial \epsilon} \Big|_F$ and $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F} \frac{\partial F}{\partial \epsilon}$ can be performed to estimate the relative weight of the two first terms in Eq. (3). $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial \epsilon} \Big|_F$ in the photoelastic contribution is simply the deformation potential, which for GaAs is given by ≈ -8.3 eV (electron plus hole contribution).¹⁹ The piezoelectric constant, on the other hand, gives again for GaAs, $\frac{\partial F}{\partial \epsilon} = 1.4 \times 10^7$ V/cm.²⁰ This term could be more than an order of magnitude larger for other more polar materials as, e.g., the nitrides.^{6,7} Concerning $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F}$, this term will be strongly dependent on the specific phenomena leading to the electro-optic modulation. From the experimentally observed strong luminescence shift of ≈ 60 meV and assuming that at the highest laser powers used the field is fully screened, we can derive a conservative estimate $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F} \approx \frac{\Delta \omega_{cv}}{\Delta E} = 1.2 \times 10^{-6}$ eV cm/V. Thus, $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F} \frac{\partial F}{\partial \epsilon} \approx 17$ eV, which leads to a contribution larger by a factor of 2 [4 in the Raman cross section, Eq. (1)], as compared to the standard photoelastic mechanism. In more general terms, the Stark shift in a QW in the presence of a field F is of the order of $\Delta \omega_{cv} \approx qFL$, where q is the electron charge and L is the well thickness. Thus, $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F} \approx qL$. For example, for a typical Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs QW with thickness $L=100$ Å, this gives $\frac{\partial \omega_{cv}}{\partial F} \approx 10^{-6}$ eV cm/V, which leads again to a contribution to the Raman scattering by acoustic phonons larger than that due to the standard photoelastic mechanism.

In summary, we have observed resonant Raman scattering from acoustic phonons induced by built-in electric fields. The resonant Raman process can be bleached out by screening the built-in fields through the injection of electron-hole pairs. Disorder and probably also inhomogeneities in the built-in electric fields lead to wave vector nonconservation and hence to scattering by phonons from the whole Brillouin zone. A mechanism of acoustic phonon Raman scattering is proposed that derives from the modulation of the optical transition probability and of the transition energy by the

acoustic phonon strain in the presence of built-in electric fields. This mechanism is shown to be proportional to the magnitude of the built-in fields. Although the experiments do not allow us to discriminate between these mechanisms and the deformation potential contribution, basic calculations yield a factor of at least 4 of the former with respect to the latter. The described electron-acoustic phonon interaction

could be relevant to other phenomena in piezoelectric strained nanostructures.

We acknowledge Karine Meunier for PLE measurements on the reported samples that helped to identify the involved electronic states. Support from SECyT-ECOS is also acknowledged.

*afains@cab.cnea.gov.ar

†Present address: ATR Laboratories, Sharp Corporation, 2613-1, Ichinomoto, Tenri, Nara 632-8567, Japan.

- ¹D. Bria, B. Djafari-Rhouhani, A. Bousfia, E. H. El Boudouti, and A. Nougouai, *Europhys. Lett.* **55**, 841 (2001).
- ²N. M. Stanton, R. N. Kini, A. J. Kent, M. Henini, and D. Lehmann, *Phys. Rev. B* **68**, 113302 (2003).
- ³M. Trigo, A. Bruchhausen, A. Fainstein, B. Jusserand, and V. Thierry-Mieg, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 227402 (2002).
- ⁴N. D. Lanzillotti Kimura, A. Fainstein, and B. Jusserand, *Phys. Rev. B* **71**, 041305(R) (2005).
- ⁵A. J. Kent, R. N. Kini, N. M. Stanton, M. Henini, B. A. Glavin, V. A. Kochelap, and T. L. Linnik, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 215504 (2006).
- ⁶C.-K. Sun, J.-C. Liang, and X.-Y. Yu, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 179 (2000).
- ⁷Ümit Özgür, Chang-Won Lee, and Henry O. Everitt, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5604 (2001).
- ⁸G. D. Sanders, C. J. Stanton, and C. S. Kim, *Phys. Rev. B* **64**, 235316 (2001); **66**, 079903(E) (2002); see also G.-W. Chern, K.-H. Lin, C.-K. Sun, *J. Appl. Phys.* **95**, 1114 (2004).
- ⁹B. A. Glavin, V. A. Kochelap, T. L. Linnik, and K. W. Kim, *Phys. Rev. B* **71**, 081305(R) (2005).
- ¹⁰G. Rozas, M. F. Pascual Winter, A. Fainstein, B. Jusserand, P. O. Vaccaro, S. Saravanan, and N. Saito, *Phys. Rev. B* **72**, 035331 (2005).
- ¹¹L. De Caro and L. Tapfer, *Phys. Rev. B* **51**, 4374 (1995).

- ¹²Z. V. Popovic, J. Spitzer, T. Ruf, M. Cardona, R. Nötzel, and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **48**, 1659 (1993).
- ¹³B. Jusserand and M. Cardona, in *Light Scattering in Solids V*, edited by M. Cardona and G. Güntherodt (Springer, Heidelberg, 1989), p. 49.
- ¹⁴We have basically observed the same behavior of the resonant spectra in a two laser experiment in which electron-hole pairs are injected, with varying density, by a second laser at higher energies. However, the appearance of a much more intense photoluminescence in this latter case masks out the subtle details displayed in the simpler experiment shown in Fig. 2.
- ¹⁵See, for example, T. Ruf, J. Spitzer, V. F. Sapega, V. I. Belitsky, M. Cardona, and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **50**, 1792 (1994), and references therein.
- ¹⁶H. Haug and S. W. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors* (World Scientific, London, 1993).
- ¹⁷P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Material Properties* (Springer, Berlin, 2003).
- ¹⁸I. Sela, D. L. Smith, S. Subbanna, and H. Kroemer, *Phys. Rev. B* **46**, 1480 (1992).
- ¹⁹I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, *J. Appl. Phys.* **89**, 5815 (2001).
- ²⁰G. Harbeke, O. Madelung, and U. Rössler, *Semiconductors: Physics of Group IV Elements and III-V Compounds*, edited by O. Madelung, Landolt-Börnstein, New Series, Group III, Vol. 17, Pt. A (Springer-Verlag, Berlin, 1982).

Confined optical phonons in piezoelectric [311] GaInAs/AlAs superlattices probed by Raman scattering

G Rozas¹, M F Pascual Winter^{1,2}, A Fainstein¹, B Jusserand² and P O Vaccaro³

¹ Centro Atómico Bariloche & Instituto Balseiro, C.N.E.A., 8400 S. C. de Bariloche, R. N., Argentina

² Institut des Nanosciences de Paris, UMR CNRS 7588, Université Pierre et Marie Curie, Campus Boucicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France

³ ATR Laboratories, Sharp Corporation, 2613-1, Ichinomoto, Tenri, Nara 632-8567, Japan

E-mail: rozasg@ib.cnea.gov.ar

Abstract. We present a resonant Raman scattering investigation of optical phonons in strained Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs superlattices grown along [001] and [311], the latter presenting built-in piezoelectric fields. The Raman configuration required to separate the deformation potential and Fröhlich contributions to the scattering are described and evidenced in resonant and non-resonant experiments.

1. Motivation

Sound manipulation in the THz range is interesting for the control of optical and electronic properties. The link between sound and optoelectronics is given by the electron-phonon interaction [1]. The latter proceeds through relatively weak mechanisms: deformation potential and, in materials which lack inversion symmetry, the piezoelectric coupling [1]. Photons and acoustic phonons can be confined in resonant cavities providing an alternative strategy for enhancing the coupling between light, charge and sound [2, 3, 4]. The intrinsic mechanism in these structures remains, however, the same. Piezoelectric heterostructures grown under internal strain in low-symmetry directions present built-in electric fields. It is the case of *GaInAs/AlAs* multilayers grown along [n11] directions (electric fields of the order of 10^5 V/cm) [5] and [0001] *GaInN/GaN* heterostructures (up to 10^6 V/cm) [6]. A giant phonon generation and detection efficiency in the presence of built-in electric fields has been reported for the latter structures [7]. The modulation of these huge built-in electric fields could lead, in fact, to an additional mechanism of electron-acoustic phonon interaction, conceptually connected to the Fröhlich coupling operative for optical phonons, and potentially important in strained piezoelectric heterostructures [8, 9, 10].

To evidence this mechanism we study [001] and [311] *GaInAs/AlAs* multilayers (without and with built-in fields respectively), for which high quality samples can be grown by molecular beam epitaxy (MBE) [9]. We concentrate here in the optical phonon Raman spectra of these samples. In heterostructures with built-in electric fields the selection rules for scattering by longitudinal

optical (LO) phonons are modified, displaying in addition a non-trivial dependence of Raman intensity with laser power [8]. Raman scattering can thus be used as a tool to probe the presence of built-in electric fields, and to understand its role in the process of inelastic scattering of light. The aim of this short communication is to describe an experimental configuration able to separate the deformation potential and Fröhlich interactions in strained superlattices grown along [311]. Resonant and non-resonant optical phonon Raman spectra are presented and analyzed in terms of the Raman tensors and selection rules applicable in the proposed scattering geometry.

2. Selection rules

The Raman cross-section is given, in terms of the Raman tensor \mathbf{R} , by [11] $d\sigma_R^{is} \propto |\hat{\mathbf{e}}_s \cdot \mathbf{R} \hat{\mathbf{e}}_i|^2$. R describes the specific vibrational mode, while \mathbf{e}_i and \mathbf{e}_s stand for the incident and scattered light polarizations, respectively. The Raman tensors corresponding to the deformation potential interaction for incidence along [001] can be found, e.g., in Ref. [1]. For the less common [311] direction, on the other hand, they are given by [12]:

$$\begin{aligned} \mathbf{R}_{01\bar{1}}^{[311]} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & -d & d \\ -d & 0 & 0 \\ d & 0 & 0 \end{pmatrix} & \mathbf{R}_{233}^{[311]} &= \frac{1}{\sqrt{22}} \begin{pmatrix} 0 & 3d & 3d \\ 3d & 0 & -2d \\ 3d & -2d & 0 \end{pmatrix} \\ \mathbf{R}_{311}^{[311]} &= \frac{1}{\sqrt{11}} \begin{pmatrix} 0 & d & d \\ d & 0 & 3d \\ d & 3d & 0 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1)$$

Here the sub-indices represents the phonon polarization. Along [001] there are two transversal (TO) and one longitudinal (LO) optical modes. For [311] there is one pure transversal (TO, [01 $\bar{1}$]), one quasi-transversal (QTO, mainly in [233]) and one quasi-longitudinal mode (QLO, mainly in [311]). For the LO and QLO phonons there is also a Fröhlich contribution, which is represented by a diagonal Raman tensor [11]

$$\mathbf{R}_F = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & a \end{pmatrix}. \quad (2)$$

To separate the Fröhlich (a) and deformation potential (d) contributions specific incident and scattered light polarizations can be chosen such that, for a certain $\mathbf{y} = \cos(\theta)\mathbf{x}' + \sin(\theta)\mathbf{y}'$ polarization, $\mathbf{y} \cdot \mathbf{R}_{LO}\mathbf{y} = 0$. \mathbf{x}', \mathbf{y}' are the crystal axes used to define Equation 1. For [001], this gives the crystallographic directions $\mathbf{x}^{[001]} = (100)$, $\mathbf{y}^{[001]} = (010)$. For [311], on the other hand, we obtain

$$\begin{aligned} \mathbf{x}^{[311]} &= (10, -15 + 11\sqrt{5}, -15 - 11\sqrt{5}) \\ \mathbf{y}^{[311]} &= (-2, 3 + \sqrt{5}, 3 - \sqrt{5}) \end{aligned}, \quad (3)$$

which correspond to an angle of $\theta \cong 56$ respect to \mathbf{x}', \mathbf{y}' . The Raman cross sections for these polarizations are summarized and compared to [001] in Table 1. It follows that only the Fröhlich (deformation potential) interaction contributes in the parallel yy (crossed xy) configuration.

Though the presence of the heterostructure does not modify in general the bulk selection rules discussed above, it introduces new selection rules related to the symmetry of the vibrations with respect to the center of the layers [12]. The confined optical modes can be divided into even B ($1^{st}, 3^{rd}, \dots$) and odd A ($2^{nd}, 4^{th}, \dots$) confined modes. It turns out that only even B modes are allowed through deformation potential, while only odd A modes contribute mediated by the Fröhlich interaction [12].

3. Experimental results

Details of the samples can be found in Ref.[9]. They are 21Å/78Å(23Å/84Å) Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs superlattices (SLs) grown along [001]([311]). The AlAs layers are only weakly strained (~ 0.05%), while Ga_{0.85}In_{0.15}As is under a large (~ 1%) compressive strain. The built-in electric fields in the Ga_{0.85}In_{0.15}As layers can be estimated for the [311] structure to be ~ 4.6 × 10⁴V/cm [5].

Figure 1 shows the GaAs-like optical phonon Raman spectra ($T = 80$ K) taken with 5mW of laser power focalized into a ~ 30μm spot. The out-of-resonance spectra (bottom, 2.54 eV) for both parallel and cross polarizations show clearly the selection rules stated in the previous section. For the cross (xy) configuration, only the first and third confined LO (QLO for [311]) modes are seen which can be related to the deformation potential interaction. For parallel (yy) configuration, on the other hand, only the even order confined LO (QLO) modes are seen related to the Fröhlich interaction. This applies to both [001] and [311] growth directions, implying that the axes defined by Equation 3 allow, indeed, the separation of the two scattering mechanisms.

Figure 1 also displays the corresponding near-resonance (1.83 eV) spectra (the fundamental

Table 1. Raman cross sections (Porto's notation) for incidence along [001] and [311]

Configuration	[001]			[311]		
	TO_{100}	TO_{010}	LO_{001}	$TO_{01\bar{1}}$	$QTO_{\bar{2}33}$	QLO_{311}
$z(x, x)\bar{z}$	0	0	a	$\frac{-5d}{4\sqrt{10}}$	$\frac{-7d}{44\sqrt{22}}$	$a - \frac{18d}{11\sqrt{11}}$
$z(x, y)\bar{z}$	0	0	d	$\frac{3d}{4\sqrt{22}}$	$\frac{95d}{44\sqrt{10}}$	$\frac{-3d\sqrt{5}}{11}$
$z(y, y)\bar{z}$	0	0	a	$\frac{5d}{4\sqrt{10}}$	$\frac{-11d}{4\sqrt{22}}$	a

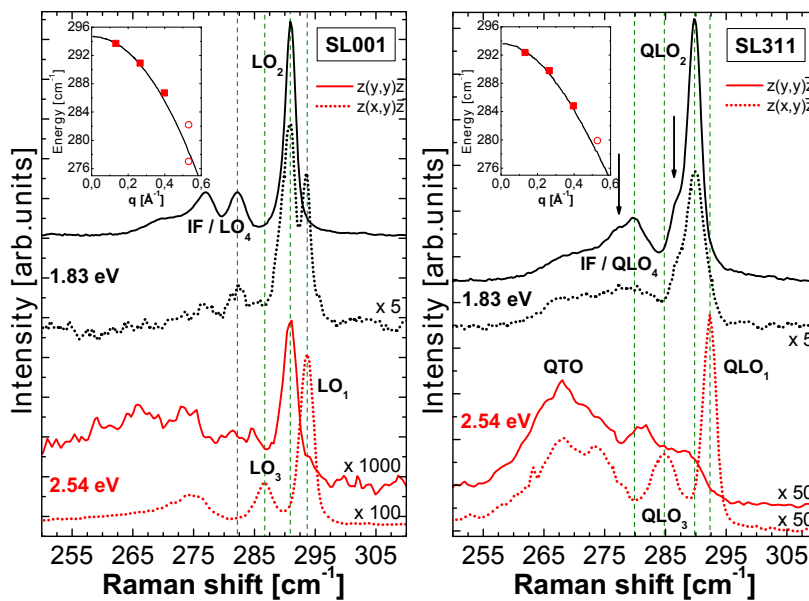


Figure 1. Optical GaAs-like phonon Raman spectra out-of (2.54eV) and near-resonance (1.83eV) with the fundamental electronic transition of the superlattice. LO, QLO, QTO, and IF stand for longitudinal, quasi-longitudinal, quasi-transversal, and interface optic phonon modes, respectively. The inset shows the confined modes peaks position (symbols) and the optical dispersion relation (continuous curve).

gap of the SL's is around $\sim 1.7eV$). The deformation potential contribution (odd order modes) can be seen to contribute in crossed polarizations in agreement with the above consideration. In contrast with the out-of-resonance case, however, it is observed that the second confined LO (QLO) mode dominates the spectra both in parallel and cross polarizations. This can be understood by the fact that the Fröhlich interaction requires a finite phonon wavevector and thus is strongly favored by the presence of impurities and defects, specially under resonant conditions [13, 14]. For each sample we show also in the inset to Figure 1 the peak positions associated to the confined LO and QLO modes (full squares), as a function of the corresponding effective momentum. We also show in this graphs the position of peaks associated to the coupling of interface phonons (IF) and higher order confined modes (open circles) which correspond approximately to the even order confined optical vibrations [15]. The peak positions closely map the bulk GaAs optical dispersion for each growth direction (shown with a continuous curve), further confirming the mode assignment.

Note the presence of low-energy shoulders in the QLO peaks of the [311] sample, marked by arrows in the near-resonance spectrum. High quality samples grown in the [311] direction develop a corrugation of the surfaces [16]. This corrugation induces an in-plane folding of the phonon bands allowing the observation of optical phonons with a finite in-plane wavevector, separated from the main peak by a certain energy given by the dispersion relationship and the effective quasi-momentum. Shields *et al.* [16] reported this separation for unstrained GaAs/AlAs SLs grown along [311] to be $\sim 1cm^{-1}$. We found a separation of around $\sim 2.8cm^{-1}$: the difference could be related to a different period for the corrugation produced by the internal strain.

4. Conclusions

We have described the Raman geometry appropriate to separate the deformation potential and Fröhlich terms contributing to the electron-optical-phonon interaction in SLs grown along [311]. The corresponding selection rules have been verified through the observation of confined optical phonons of different parity in non-resonant and resonant Raman scattering experiments. These results are relevant to study the effect of built-in electric fields on the Raman scattering process in strained piezoelectric superlattices.

References

- [1] Yu P Y and Cardona M 1996 *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties* (Heidelberg: Springer-Verlag)
- [2] Trigo M, Bruchhausen A, Fainstein A, Jusserand B and Thierry-Mieg V 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89**(22) 227402
- [3] Lacharaise P, Fainstein A, Jusserand B and Thierry-Mieg V 2004 *App. Phys. Lett.* **84**(17) 3274
- [4] Pascual Winter M F, Rozas G, Fainstein A, Jusserand B, Perrin B, Huynh A, Vaccaro P O and Saravanan S 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 265501
- [5] De Caro L and Tapfer L 1995 *Phys. Rev.* **51**(7) 4374
- [6] Ambacher O, Majewski J, Miskys C, Link A, Hermann M, Eickhoff M, Stutzmann M, Bernardini F, Fiorentini V, Tilak V, Schaff B and Eastman L F 2002 *J. Phys.* **14**(13) 3399
- [7] Sun C K, Liang J C and Yu X Y 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84**(1) 179
- [8] Sela I, Smith D L, Subbanna S and Kroemer H 1992 *Phys. Rev.* **46**(3) 1480
- [9] Rozas G, Pascual Winter M F, Fainstein A, Jusserand B, Vaccaro P O, Saravanan S and Saito N 2005 *Phys. Rev.* **72**(3) 035331
- [10] Glavin B A, Kochelap V A, Linnik T L and Kim K W 2005 *Phys. Rev.* **71**(8) 081305
- [11] Cardona M and Güntherodt G, eds 1982 *Light Scattering in Solids II: Basic Concepts and Instrumentation* vol 50 of *Topics in Applied Physics* (Springer-Verlag)
- [12] Shields A J, Popović Z V, Cardona M, Spitzer J, Nötzel R and Ploog K 1994 *Phys. Rev.* **49**(11) 7528
- [13] Shields A J, Trallero-Giner C, Cardona M, Grahn H T, Ploog K, Haisler V A, Tenne D A, Moshegov N T and Toropov A I 1992 *Phys. Rev.* **46**(11) 6990
- [14] Sood A K, Menéndez J, Cardona M and Ploog K 1985 *Phys. Rev. Lett.* **54**(19) 2111
- [15] Shields A J, Cardona M and Eberl K 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72**(3) 412
- [16] Shields A J, Nötzel R, Cardona M, Däweritz L and Ploog K 1992 *App. Phys. Lett.* **60**(20) 2537

Piezoelectric semiconductor acoustic cavities

G. Rozas,¹ M. F. Pascual Winter,¹ A. Fainstein,^{1,*} B. Jusserand,² P. O. Vaccaro,³ S. Saravanan,³ and N. Saito³¹Centro Atómico Bariloche & Instituto Balseiro, C.N.E.A., 8400 S. C. de Bariloche, R. N., Argentina²Institut des Nanosciences de Paris, UMR CNRS 7588, Université Pierre et Marie Curie, Campus Boucicaut, 140 Rue de Lourmel, 75015 Paris, France³ATR Wave Engineering Laboratories, 2-2-2 Hikaridai, Keihanna Science City, Kyoto 619-0288, Japan

(Received 10 March 2005; revised manuscript received 29 April 2005; published 14 July 2005)

We describe semiconductor cavities based on strained $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ multilayers with permanent built-in piezoelectric fields that confine acoustic phonons in the THz range. The possible role of piezoelectric fields on the phonon lifetimes and on Raman scattering is discussed. Phonon mirrors and cavities grown along [001] (non-piezoelectric) and along [311] (piezoelectric) are studied and compared using high-resolution Raman spectra and photoelastic model calculations. The high quality of the grown [001]([311]) structures is demonstrated by the observation of up to 7(5) orders of folded acoustic phonons and the excellent agreement with theory. We observe a large broadening of the acoustic phonon peaks in the piezoelectric [311] structures upon carrier injection with near-gap excitation. Such acoustic phonon lifetime reduction evidences a strongly modified electron-acoustic phonon interaction in these structures.

DOI: 10.1103/PhysRevB.72.035331

PACS number(s): 78.30.Fs, 63.20.Dj, 78.66.Fd, 42.60.Da

Planar acoustic cavities have been recently introduced as resonant structures that confine acoustic vibrations in the GHz-THz range.¹ Drawing a parallel with optical microcavities,² one can foresee the possibility of using such cavities to modify the way in which sound interacts with light,³ with other phonons,⁴ and with electrons. They could, in addition, provide the feedback mechanism required for phonon “lasing” devices.⁵ In this paper we will focus our attention on the possibility of tailoring the electron-phonon interaction in acoustic cavities. In fact, the amplified and localized strain associated to the acoustic confined mode should enhance this coupling. However, the deformation potential interaction that couples acoustic phonons and electrons is relatively small, and thus a sizable effect due to the confinement is not to be expected unless large strains are attained. On the other hand, the situation should be qualitatively different for piezoelectric materials in which strain plays an essentially different role.^{6,7} In these materials, besides the deformation potential coupling, a potentially much stronger Fröhlich-like interaction with carriers is present. We thus propose here acoustic cavities with built-in piezoelectric fields as potential devices with an enhanced electron-acoustic phonon coupling and, consequently, an amplified sound-light interaction.

Exploiting the piezoelectric coupling between acoustic phonons and photons in superlattices (SL's), a new type of polariton has been recently proposed to exist in ferroelectric oxide multilayers due to the retarded interaction between light and the transverse polarization accompanying longitudinal acoustic waves in these materials.⁸ Polar III-V semiconductors do not possess inversion symmetry and are intrinsically piezoelectric materials. When these materials are grown in multilayers with lattice mismatch, the induced strain may lead to *permanent* built-in electric fields along the growth direction. In fact, it turns out that in structures grown along [001] the existence of piezoelectric fields is forbidden by symmetry.⁹ On the other hand, the latter are present for almost any other growth direction, and very large fields

(larger than 10^5 V cm^{-1}) have been observed in such cases in a variety of III-V multilayers.⁹ The presence of these *permanent* strain-induced fields modifies the potential landscape sensed by carriers, changing in a fundamental way the optical properties of these structures. What we want to emphasize here is an aspect that has been, to the best of our knowledge, largely overlooked. This is the modification introduced by strain-induced piezoelectric fields on the coupling between acoustic phonons and electrons, and through it on the phonon and electron dephasing, and on the inelastic scattering of acoustic phonons by light.

Let us first discuss the electron-acoustic phonon coupling in SL's from a qualitative point of view. We show in Fig. 1 a scheme of the top and bottom of the valence and conduction bands, respectively, of SL's without (a) and with (b) built-in piezoelectric fields, and their variation upon deformation by acoustic phonon induced strain. In the standard case (a), by deforming the structure the phonons modify the energy levels of the quantum wells, leading to the relatively weak so-called deformation potential interaction.¹⁰ This mechanism

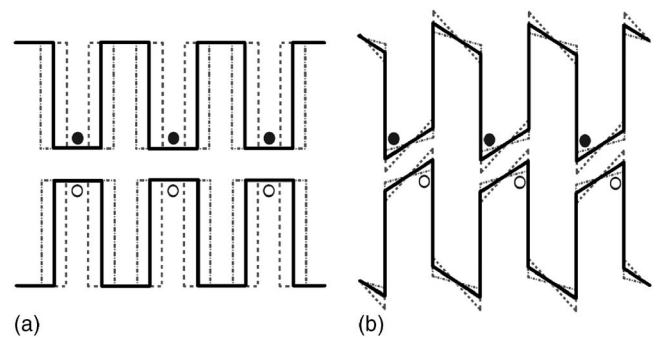


FIG. 1. The scheme of SL electronic bands (solid lines) without (a) and with (b) built-in piezoelectric fields. The dashed and dashed-dotted lines represent their variation upon deformation by acoustic phonon induced strain. The solid and empty circles indicate light-generated electron-hole pairs.

adds to the bulk-like deformation potential coupling also present in SL's.¹¹ When a piezoelectric field is present (b), an acoustic phonon of the appropriate wavelength will modulate the strain in such a way that the spatial periodicity of the modulated component of the built-in field (typically in the GHz-THz range) will match the periodic distribution of the permanent one. This modulation of polarization fields leads to an additional interaction mechanism between the acoustic-phonons and the electrons that is similar to the Fröhlich coupling between the latter and longitudinal optic (LO) phonons.¹¹ In principle, if this coupling is with carriers it can lead to an additional dephasing mechanism.^{12,13} On the other hand, if the phonon modulation affects *virtual* electronic levels that are intermediate states for a light-matter interaction, an amplified high-frequency modulation of the dielectric function and consequently of the inelastically (Raman) scattered light is to be expected. The electric-field-induced Raman cross section is even on the electric field E , and thus proportional to E^2 .¹⁴ Thus, we can infer that in a piezoelectric SL a new contribution to the Raman signal should exist that is proportional to $E_{pz}\delta E_{pz}$, where E_{pz} and δE_{pz} are, respectively, the permanent piezoelectric field along the growth direction z and its modulation by the acoustic phonon strain. In view of the huge fields present in semiconductor SL's (10^5 – 10^6 V cm⁻¹), a strongly modified Raman interaction should exist. We note that Raman processes have a counterpart in the time domain corresponding to coherent phonon generation. This corresponds to the impulsive generation of in-phase vibrations after a short and intense laser pulse (typically in the ps and fs range). Interestingly, huge coherent phonon generation efficiency in GaInN/GaN piezoelectric SL's has been reported.^{6,7} The proposed mechanism, i.e., the screening of the piezoelectric built-in field by photoexcited carriers, is one of the aspects of the modified electron-acoustic-phonon interaction we are addressing here.^{6,7}

It is the purpose of this paper to investigate these effects in strained phonon mirrors and cavities with and without induced permanent piezoelectric fields. For this purpose we have chosen to work with Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs SL's for three reasons. Firstly, these materials have been largely studied and the sample growth with molecular beam epitaxy (MBE) techniques is well managed with atomic layer control. Secondly, they are known to display piezoelectric fields in excess of 10^5 V cm⁻¹ with In concentrations around 15% for which good epitaxial growth is achieved.⁹ And, thirdly, AlAs barriers allow for the confinement of electronic states, thus enabling the resonant excitation of carriers specifically in the Ga_{0.85}In_{0.15}As wells.

Phonon mirrors are basically SL's made of two materials with contrasting acoustic impedance.¹⁵ Such structures reflect sound only within limited regions around a wavelength λ (and frequencies that are multiple of $v/2\lambda$, with v an effective sound velocity), which is set by design. These high reflectance regions are called "stop-bands." At the center of the Brillouin zone the lowest energy phonon stop-band is optimized by using $(\lambda/4, 3\lambda/4)$ stacks,^{3,16} that is, a period equal to an acoustic phonon wavelength. This stop-band corresponds to the first minigap at the Brillouin zone center in an acoustic folded-phonon scheme.¹⁶ Two such mirrors enclosing a spacer of thickness equal to an integer number of

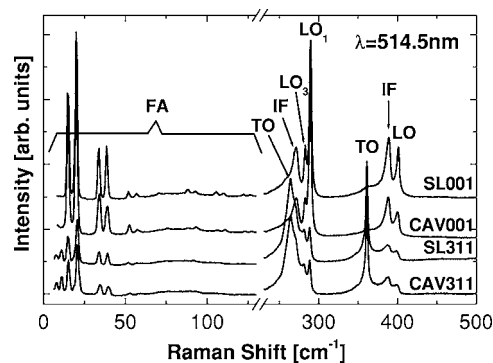


FIG. 2. The phonon mirror (SL) and cavity (CAV) room temperature Raman spectra taken with incident and scattered polarizations parallel to a $[110]$ axis ($[001]$ growth direction) and a $[\bar{2}33]$ axis ($[311]$), using 514.5 nm excitation and the spectrometer in subtractive mode. Both the folded acoustic (FA) phonon (0–130 cm⁻¹) and optic phonon (250–500 cm⁻¹) spectral regions are shown. LO, TO, IF, and LO₃ stand for longitudinal, transverse, interface, and confined optic phonon modes, respectively.

half-wavelengths defines a planar cavity.^{1,3} The phonon velocities and Raman selection rules for $[311]$ GaAs/AlAs SL's have been worked out in detail as a function of the corresponding elastic constants and densities by Popovic and co-workers.^{17,18} Those for $[001]$ structures are, on the other hand, well established. For the latter case two degenerate transverse acoustic (TA, Raman forbidden in backscattering configuration) and one longitudinal acoustic (LA, Raman allowed in backscattering) branches exist. For $[311]$ grown structures three nondegenerate bands exist, being one purely transverse (TA), another quasi-transverse (QTA), and the third quasi-longitudinal (QLA). All three modes are Raman allowed (though with different selection rules) in backscattering (BS) geometry.¹⁷

We report data on four different samples: two phonon mirrors (grown along $[001]$, SL001, and along $[311]$, SL311) and two phonon cavities (grown along $[001]$, CAV001, and along $[311]$, CAV311). The 24-period mirrors are designed to have an optimized first minigap stop-band and reflectivity ($R \sim 0.997$).³ The first Brillouin zone-center minigap and the cavity modes were nominally set at ~ 18 cm⁻¹. The cavities, on the other hand, consist of two 12-period mirrors enclosing a $\lambda/2$ spacer (nominal finesse ~ 330). Thus, the latter can be basically understood as a phononic defect in an otherwise periodic SL identical to the phonon mirrors. The layer thicknesses of the Ga_{0.85}In_{0.15}As/AlAs $[001]$ ($[311]$) mirrors were 21 Å/78 Å (23 Å/84 Å), while the $[001]$ ($[311]$) Ga_{0.85}In_{0.15}As cavity spacer was 42(46) Å thick. The reported Raman experiments were collected at room temperature and at 80 K using as exciting radiation different visible lines of an Ar-Kr ion laser focussed on a 20 μ m spot. The collected spectra were dispersed using both subtractive (lower resolution) and additive (higher resolution) configurations of a Jobin-Yvon triple spectrometer and detected with a liquid N₂-cooled charge coupled device (CCD).⁴

Figure 2 displays room temperature Raman spectra, taken with incident and scattered polarizations parallel to a $[\bar{2}33]$ axis, for the $[311]$ structures, and parallel to $[110]$ for the

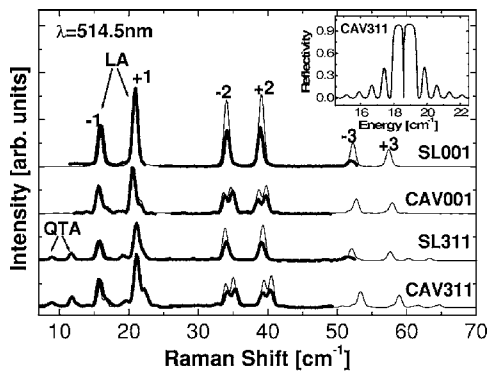


FIG. 3. The room temperature acoustic phonon Raman spectra obtained with an additive high-resolution configuration (thick solid curves). The thin solid curves correspond to spectra calculated with a photoelastic model. LA and QTA label longitudinal and quasi-transverse acoustic modes, respectively. The numbers indicate the successive orders of the LA folded phonon pairs. Inset: acoustic reflectivity calculated for the [311] cavity using the structural parameters deduced from the Raman scattering data. Note the high-Q cavity mode with zero reflectivity within the acoustic stop-band.

[001] grown samples. For these experiments we used 30 mW of 514.5 nm excitation and the spectrometer in subtractive mode. Both the folded acoustic (FA) phonon ($0\text{--}130\text{ cm}^{-1}$) and optic phonon ($250\text{--}500\text{ cm}^{-1}$) spectral regions are shown. The latter is characterized by two separate series of peaks. Those at $250\text{--}300\text{ cm}^{-1}$ correspond to GaAs-like vibrations of the $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ layers, while the peaks at $350\text{--}400\text{ cm}^{-1}$ are the AlAs vibrations of the barriers. The spectra agree well with the Raman selection rules for [001] and [311] grown SL's, which predict respectively the observation of only LO, and both LO and TO (transverse optic) modes.¹⁸ Besides these characteristic peaks, intense interface-like (IF) and GaAs confined phonon (LO_3) modes are also observed. As regards the FA spectral region, note the unusually large number of replicas (up to seven for [001] and up to five for [311]). This reflects the excellent quality of the structures. In agreement with theory, only LA modes are observed along [001], while both QLA and QTA modes appear for polarized backscattering along [311].¹⁷

The acoustic and optic phonon spectra presented above clearly distinguish between [001] and [311] grown structures. However, within the standard resolution of the subtractive mode of the triple Raman setup no difference can be identified between the phonon mirrors (SL's) and the cavity structures. The situation is completely different when an additive higher resolution configuration is used, as shown for the acoustic modes with thick solid curves in Fig. 3. In this figure also Raman spectra calculated with a photoelastic model⁴ are displayed with thin solid curves. The phonon displacements were calculated using a matrix method implementation of a continuum model that includes zero-strain boundary conditions at the SL-air interface.⁴ In addition, the curves were Gaussian convoluted to take into account the experimental resolution. The experimental curves, on the other hand, were corrected for the Bose factor. Several features should be highlighted from these spectra. (i) There is an excellent agreement with theory. The only adjusted param-

eters were the exact SL's period (which differed from the nominal values in $\leq 3\%$), the cavity-spacer thickness (which was increased by $\sim 2\%$), and the intensity ratio between QLA and QTA modes for the [311] structures. (ii) The SL spectra display the usual symmetric peaks corresponding either to LA modes ([001]) or to QLA and QTA modes ([311]). The shoulder of the +1 component of the first FA pair in SL311 corresponds to the second-order (+2) component of the QTA mode. (iii) The cavity spectra, on the other hand, display splittings of the FA pairs that are quite precisely taken into account in the model calculations.¹⁹ This splitting shows up as a high energy shoulder in the first-order component, and as a clear almost symmetric doubling for the second-order pair. In fact, the line shape is quite sensitive to the cavity spacer thickness, and can be used to characterize the phonon resonator even if the cavity confined mode is not observable in BS geometry.⁴ The direct observation of the cavity mode requires, on the other hand, access to a forward scattering geometry.¹

The excellent agreement between experiment and theory in Fig. 3 can be taken as an experimental demonstration of a high-quality piezoelectric cavity based on strained III-V semiconductors grown on high-index substrates. An example of the acoustic reflectivity calculated for the [311] cavity using the parameters deduced from the above presented Raman data is shown as an inset on Fig. 3. According to our calculations, for the reported [311] cavity the elastic displacement at the spacer is enhanced by a factor of ~ 6 , implying an increase of ~ 40 in the deformation energy resonant in the cavity as compared to a standard SL without acoustic confinement. These numbers increase to ~ 20 and ~ 400 , respectively, by using 20-period mirrors instead of 12. What needs then to be determined is the role of the piezoelectric fields in the coupling between acoustic phonons and electrons or light in these structures. Effects of piezoelectric fields on Raman scattering by *optic* phonons in $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ SL's have been previously reported by Sela and co-workers.²⁰ These experiments display selection rule modifications and LO phonon scattering enhancement upon resonant excitation with the spin-orbit-split $E_0 + \Delta_0$ band. For our samples with relatively thin $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ quantum wells (21 Å) and strong AlAs barrier confinement, resonant experiments tuned to the $E_0 + \Delta_0$ band or to the $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ quantum well confined states would require tunable dye lasers in the $1.7\text{--}2.1\text{ eV}$ ($\sim 590\text{--}720\text{ nm}$) range. Photoluminescence measurements show that at 80 K the E_0 gap of the phonon mirror SL's falls around 720 nm ($\sim 1.727\text{ eV}$), while the $E_0 + \Delta_0$ is estimated to be at $\sim 590\text{ nm}$ ($\sim 2.09\text{ eV}$).

In Fig. 4 we report Raman data, excited with 5 mW of the red 647.1 nm line of our Ar-Kr ion laser. These show that, in fact, significant changes occur when the Raman acoustic phonon peaks of the [311] grown structures are excited close to resonance. Note that the [001] sample spectra are essentially equivalent to those in Fig. 2, taken with the green 514.5 nm laser line. On the other hand, the peaks for the piezoelectric [311] structures strongly broaden (at least a factor of 3 at 647.1 nm) and shift with respect to the [001] structures. This contrasting behavior becomes more evident

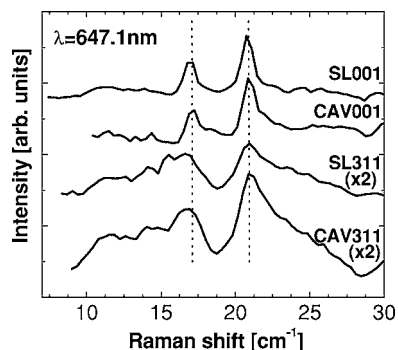


FIG. 4. The Raman spectra of SL's and cavity (CAV) structures grown both along [001] and [311], and excited at 80 K with 5 mW of the red 647.1 nm line of an Ar—Kr ion laser. Note the large broadening and shift of the acoustic phonon peaks of the [311] structures. The vertical dashed lines are only guides to the eye.

when Raman spectra for the [001] and [311] structures taken with different discrete wavelengths from the Ar-Kr laser are compared. This is shown for the [001] and [311] SL's in Fig. 5. The Raman intensities have been corrected for the grating and detector response of the spectrometer. In addition, for ease of comparison the spectra have been scaled to similar amplitudes by multiplication with the number shown between brackets. Narrow folded phonon doublets are observed for all wavelengths in the [001] SL. The scattered intensity increases towards the red because of the expected resonant enhancement of the spectra.¹¹ The only relevant feature that calls the attention is the appearance at 676 nm (close to resonance with the E_0 gap) of other peak and dip-like features (note, e.g., the dip-like feature observed at ~ 28 cm^{-1}). The latter could be due to scattering of acoustic phonons at the Brillouin zone edge due to wave vector nonconservation as described in detail for resonant Raman scattering by T. Ruf and co-workers.²¹ To more clearly display the folded phonon peaks for 676 nm in Fig. 5 a strong background that could

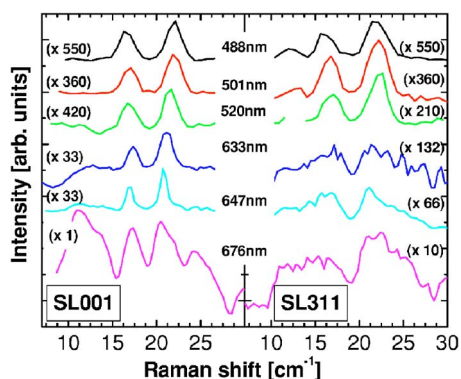


FIG. 5. (Color online) The Raman spectra of SL structures grown both along [001] (left) and [311] (right), excited at 80 K with 5 mW of various laser lines of an Ar-Kr ion laser. The Raman intensities have been corrected for the grating and detector response of the spectrometer. In addition, the spectra have been scaled by multiplication with the number between brackets. Note the acoustic folded phonon line broadening and amplitude reduction in the case of near-resonant (red) excitation for the [311] SL. See text for details.

also have the same origin (as explained in Ref. 21) was subtracted from the data. On the other hand, for the [311] SL striking effects occur when the laser excitation is in the red region of the spectra, either with 632.8, 647.1, or 676 nm. In these cases, and contrasting with the higher energy spectra, the folded-phonon peaks clearly broaden and reduce their amplitude. This is particularly noteworthy for 632.8 nm, which is close to the $E_0 + \Delta_0$ $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ well gap, and at 676 nm, which is close to the E_0 gap. In the latter case, an approximately tenfold amplitude reduction is observed with respect to the [001] SL spectra taken under identical conditions. Raman investigations with a tunable laser would be desirable to fully characterize the resonant behavior. In any case, what is clearly and systematically observed for near-resonant excitation is a relative broadening and amplitude reduction of the folded acoustic phonon peaks for the [311] structures with built-in piezoelectric fields.

To the best of our knowledge, little theoretical work has been reported describing the acoustic phonons, their Fröhlich-like interaction with electrons, and their scattering with light in piezoelectric strained SL's. Sanders *et al.* and Chern *et al.*²² have presented a thorough analysis of the coherent phonon generation process due to ultra-fast laser impulses in SL's with piezoelectric fields. Nevertheless, we are not aware of any theoretical work addressing the Raman scattering by acoustic phonons in similar structures. On the other hand, very recently it has been pointed out the existence of an electron-acoustic-phonon coupling mechanism associated with the dependence of crystal dielectric permittivity on the strain (the so-called Pekar mechanism),^{12,13} which could play a major role in electron relaxation in nanostructures characterized by strong confining electric fields.²³ We believe that a theory incorporating such kind of electron-phonon coupling could provide a formal framework to understand the phenomena we report here. In fact, the presented results can be understood at least qualitatively as due to a strong coupling between the electron-hole pairs excited close to resonance with the red laser light, and the polarization carrying piezoelectric acoustic phonons. The picture is similar to what is well known to occur between LO phonons and electrons or electron-hole pairs in polar doped or photoexcited semiconductors, respectively.^{24,25} In this case, the LO phonon is strongly screened upon carrier injection, leading to line broadenings and energy shifts. Depending on the excitations dispersion and damping, this coupling can lead in addition to coupled plasmon-phonon modes. As significant line broadening and amplitude reduction only occur for [311] samples we conclude that for the experiments we report in Figs. 4 and 5 the phenomena is mainly governed by an additional carrier-induced acoustic phonon dephasing (and hence a line-broadening) that involves the piezoelectric fields. The details of this strongly enhanced interaction should become clearer with complete resonant experiments as those performed for optic phonons by Sela and co-workers.²⁰ In addition, we believe that strong insight could be attained by time-dependent transmission measurements using femtosecond pump and probe setups as reported for GaInN/GaN SL's in Ref. 6. In such experiments both the photoexcitation screening of the piezoelectric fields and the strong phonon confinement should lead to efficient

monoenergetic coherent phonon generation.

In conclusion, we have discussed the role of strain-induced piezoelectric fields in SL's on the coupling between acoustic phonons and charge. We have proposed piezoelectric acoustic cavities with built-in electric fields designed to have an enhanced electron-phonon and photon-phonon coupling. These structures exploit the added effect of a Fröhlich-like interaction of polarization modulating acoustic phonons and their confinement in a resonating structure. These concepts have been demonstrated in structures of excellent quality based on strained $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ multilayers grown along [311]. High-resolution Raman scattering results clearly evidence the acoustic phonons of phonon mirror and cavity structures. These results compare excellently with photoelas-

tic model calculations of the Raman efficiency, providing a precise tool for the characterization of these acoustic devices. Upon almost resonant excitation of carriers in the $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$ quantum wells we observe a large broadening of the acoustic phonon peaks as compared to similar non-piezoelectric [001] $\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}/\text{AlAs}$ structures. These results evidence the existence of a strong electron-acoustic phonon coupling in the piezoelectric mirrors and cavities, similar to that existent for LO phonons in polar materials.

Support from SECyT-ECOS is acknowledged. AF acknowledges support from the ONR (USA), and PV, SS and NS from the National Institute of Information and Communications Technology of Japan.

*Email address: afains@cab.cnea.gov.ar

- ¹M. Trigo, A. Bruchhausen, A. Fainstein, B. Jusserand, and V. Thierry-Mieg, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 227402 (2002).
- ²*Confined Electrons and Photons: New Physics and Applications*, edited by E. Burstein and C. Weisbuch, (Plenum, New York, 1995).
- ³P. Lacharmoise, A. Fainstein, B. Jusserand, and V. Thierry-Mieg, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3274 (2004).
- ⁴M. F. Pascual Winter, A. Fainstein, M. Trigo, T. Eckhause, R. Merlin, A. Cho, and J. Chen, *Phys. Rev. B* **71**, 085305 (2005).
- ⁵P. A. Fokker, J. I. Dijkhuis, and H. W. de Wijn, *Phys. Rev. B* **55**, 2925 (1997); see also I. Camps, S. S. Makler, H. M. Pastawski, and L. E. F. Foa Torres, *Phys. Rev. B* **64**, 125311 (2001), and references therein.
- ⁶C.-K. Sun, J.-C. Liang, and X.-Y. Yu, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 179 (2000).
- ⁷Ümit Özgür, Chang-Won Lee, and Henry O. Everitt, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5604 (2001).
- ⁸Y. Y. Zhu, X. J. Zhang, Y. Q. Lu, Y. F. Chen, S. N. Zhu, and N. B. Ming, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 053903 (2003).
- ⁹L. De Caro and L. Tapfer, *Phys. Rev. B* **51**, 4374 (1995).
- ¹⁰F. T. Vasko and V. V. Mitin, *Phys. Rev. B* **52**, 1500 (1995); P. A. Knipp and T. L. Reinecke, *ibid.* **52**, 5923 (1995).
- ¹¹P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Material Properties* (Springer, Berlin, 2003).
- ¹²A. A. Demidenko, V. N. Piskovoi, S. I. Pekar, and B. E. Tsekvava, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **50**, 124 (1966) [*Sov. Phys. JETP* **23**, 84 (1966)].
- ¹³Y. V. Gulyaev, *Fiz. Tverd. Tela (Leningrad)* **9**, 1816 (1967) [*Sov. Phys. Solid State* **9**, 1425 (1967)].
- ¹⁴M. Kuball, N. Esser, T. Ruf, C. Ulrich, M. Cardona, K. Eberl, A. Garcia-Cristobal, and A. Cantarero, *Phys. Rev. B* **51**, 7353 (1995).
- ¹⁵P. V. Santos, L. Ley, J. Mebert, and O. Koblinger, *Phys. Rev. B* **36**, 4858 (1987).
- ¹⁶B. Jusserand and M. Cardona, in *Light Scattering in Solids V*, edited by M. Cardona and G. Güntherodt (Springer, Heidelberg, 1989), p. 49.
- ¹⁷Z. V. Popovic, J. Spitzer, T. Ruf, M. Cardona, R. Notzel, and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **48**, 1659 (1993).
- ¹⁸Z. V. Popovic, E. Richter, J. Spitzer, M. Cardona, A. J. Shields, R. Notzel, and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **49**, 7577 (1994).
- ¹⁹M. Giehler, T. Ruf, M. Cardona, and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **55**, 7124 (1997).
- ²⁰I. Sela, D. L. Smith, S. Subbanna, and H. Kroemer, *Phys. Rev. B* **46**, 1480 (1992).
- ²¹See, for example, T. Ruf, J. Spitzer, V. F. Sapega, V. I. Belitsky, M. Cardona, and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **50**, 1792 (1994) and references therein.
- ²²G. D. Sanders, C. J. Stanton, and C. S. Kim, *Phys. Rev. B* **64**, 235316 (2001); **66**, 079903 (2002); see also G.-W. Chern, K.-H. Lin, and C.-K. Sun, *J. Appl. Phys.* **95**, 1114 (2004).
- ²³B. A. Glavin, V. A. Kochelap, T. L. Linnik, and K. W. Kim, *Phys. Rev. B* **71**, 081305(R) (2005).
- ²⁴G. Abstreiter, M. Cardona, and A. Pinczuk, in *Light Scattering in Solids IV*, edited by M. Cardona and G. Güntherodt (Springer, Berlin, 1984).
- ²⁵A. Pinczuk, J. Shah, and P. A. Wolff, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1487 (1981).

Bibliografía

- [1] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, y J. Tauc. *Phys. Rev. B* **34**, 4129 (1986).
- [2] B. Perrin B. Bonello and, E. Romatet, y J.C. Jeannet. *Ultrasonics* **35**, 223 (1997).
- [3] O. B. Wright. *J. Appl. Phys.* **71**, 1617 (1992).
- [4] T. C. Zhu, H. J. Maris, y J. Tauc. *Phys. Rev. B* **44**, 4281 (1991).
- [5] J.-Y. Duquesne y B. Perrin. *Phys. Rev. B* **68**, 134205 (2003).
- [6] C.-T. Yu, K.-H. Lin, C.-L. Hsieh, C.-C. Pan, J.-I. Chyi, y C.-K. Sun. *Appl. Phys. Lett.* **87**, 093114 (2005).
- [7] K.-H. Lin, C.-F. Chang, C.-C. Pan, J.-I. Chyi, S. Keller, U. Mishra, S. P. DenBaars, y C.-K. Sun. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 143103 (2006).
- [8] W. S. Capinski, H. J. Maris, T. Ruf, M. Cardona, K. Ploog, y D. S. Katzer. *Phys. Rev. B* **59**, 8105 (1999).
- [9] H. T. Grahn, H. J. Maris, J. Tauc, y B. Abeles. *Phys. Rev. B* **38**, 6066 (1988).
- [10] B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, y E. Romatet. *Prog. Natural Sci.* **S6**, 444 (1996).
- [11] C. Rossignol, J. M. Rampnoux, M. Perton, B. Audoin, y S. Dilhaire. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 166106 (2005).
- [12] G. Tas y H. J. Maris. *Phys. Rev. B* **49**, 15046 (1994).
- [13] O. B. Wright. *Phys. Rev. B* **49**, 9985 (1994).
- [14] O. B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda, y V. E. Gusev. *Phys. Rev. B* **64**, 081202(R) (2001).
- [15] V. E. Gusev y O. B. Wright. *Phys. Rev. B* **57**, 2878 (1994).
- [16] D. Moss, A. V. Akimov, O. Makarovskiy, R. P. Champion, C. T. Foxon, L. Eaves, y A. J. Kent. *Phys. Rev. B* **80**, 113306 (2009).

- [17] D. R. Fowler, A. V. Akimov, A. G. Balanov, M. T. Greenaway, M. Henini, T. M. Fromhold, y A. J. Kent. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 232104 (2008).
- [18] M. T. Greenaway, A. G. Balanov, D. Fowler, A. J. Kent, y T. M. Fromhold. *Microelec. J.* **40**, 725 (2009).
- [19] T. Dekorsy, H. Auer, C. Waschke, H. J. Bakker, H. G. Roskos, y H. Kurz. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 738 (1995).
- [20] A. V. Scherbakov, T. Berstermann, A. V. Akimov, D. R. Yakovlev, G. Beaudoin, D. Bajoni, I. Sagnes, J. Bloch, y M. Bayer. *Phys. Rev. B* **78**, 241302(R) (2008).
- [21] A. V. Akimov, Y. Tanaka, A. B. Pevtsov, S. F. Kaplan, V. G. Golubev, S. Tamura, D. R. Yakovlev, y M. Bayer. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 033902 (2008).
- [22] U. Zeitler, A. M. Devitt, J-E-Digby, C-J-Mellor, A. J. Kent, K. A. Benedict, y T. Cheng. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 5333 (1999).
- [23] A. J. Kent, A. J. Naylor, P. Hawker, y M. Henini. *Phys. Rev. B* **61**, R16311 (2000).
- [24] R. M. White. *J. Appl. Phys.* **34**, 2123 (1963).
- [25] A. C. Tam. *Appl. Phys. Lett.* **45**, 510 (1984).
- [26] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, y J. J. Hauser. *J. Appl. Phys.* **53**, 989 (1984).
- [27] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, y J. Tauc. *Opt. Commun.* **60**, 55 (1986).
- [28] H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, y M. S. Dresselhaus. *Phys. Rev. B* **45**, 768 (1992).
- [29] A. V. Kusnetsov y C. J. Stanton. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3243 (1994).
- [30] A. V. Kusnetsov y C. J. Stanton. *Phys. Rev. B* **51**, 7555 (1995).
- [31] G. A. Garrett, T. F. Albrecht, J. F. Whitaker, y R. Merlin. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3661 (1996).
- [32] R. Merlin. *Solid State Commun.* **102**, 207 (1997).
- [33] T. E. Stevens, J. Kuhl, y R. Merlin. *Phys. Rev. B* **65**, 144304 (2002).
- [34] M. Cardona. Raman spectroscopy of vibrations in superlattices. M. Cardona y G. Güntherodt, editores, *Topics in Applied Physics - Vol.5: Light Scattering in Solids V*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1989.

- [35] A. Yamamoto, T. Mishina, Y. Masumoto, y M.Nakayama. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 740 (1994).
- [36] P. Basséras, S. M. Gracewski, G. W. Wicks, y R. J. D. Miller. *J. Appl. Phys.* **75**, 2761 (1994).
- [37] T. Mishina, Y. Iwazaki, Y. Masumoto, y M.Nakayama. *Solid State Commun.* **107**, 281 (1998).
- [38] K. Mizoguchi, M. Hase, S.Nakashima, y M.Nakayama. *Phys. Rev. B* **60**, 8262 (1999).
- [39] A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, y K. Köhler. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1044 (1999).
- [40] C.-K. Sun, J.-C. Liang, y X.-Y. Yu. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 179 (2000).
- [41] H. Takeuchi, K. Mizoguchi, T. Hino, y M.Nakayama. *Physica B* **316-317**, 308 (2002).
- [42] A. J. Kent N. M. Stanton, R. N. Kini y M. Henini. *Phys. Rev. B* **68**, 113302 (2003).
- [43] C.-K. Sun, G.-W. Chern, K.-H. Lin, y Y.-K. Huang. *Chinese J. Phys.* **41**, 643 (2003).
- [44] A. J. Kent N. M. Stanton, R. N. Kini y M. Henini. *Phys. Rev. B* **69**, 125341 (2004).
- [45] R.N. Kini, A. J. Kent, N. M. Stanton, y M. Henini. *J. Appl. Phys.* **98**, 033514 (2005).
- [46] Y. Ezzahri, S. Grauby, J. M. Rampnoux, H. Michel, G. Pernot, W. Claeys, S. Dilhaire, C. Rossignol, G. Zeng, y A. Shakouri. *Phys. Rev. B* **75**, 195309 (2007).
- [47] M. Trigo, T. A. Eckhause, J. K. Wahlstrand, R. Merlin, M. Reason, y R. S. Goldman. *App. Phys. Lett.* **91**, 23115 (2007).
- [48] A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, A. Fainstein, y A. Lemaître. *Phys. Rev. B* **78**, 233302 (2008).
- [49] W. Chen, Y. Lu, H. J. Maris, y G. Xiao. *Phys. Rev. B* **50**, 14506 (1994).
- [50] B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, y E. Romatet. *Physica B* **219-220**, 681 (1996).
- [51] S. Tamura, Y. Tanaka, y H. J. Maris. *Phys. Rev. B* **60**, 2627 (1999).
- [52] N.-W. Pu. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 076101 (2003).
- [53] C. Rossignol, B. Perrin, B. Bonello, P. Djemia, P. Moch, y H. Hurdequint. *Phys. Rev. B* **70**, 094102 (2004).

- [54] N.-W. Pu y J. Bokor. *Phys. Rev. B* **72**, 115428 (2005).
- [55] O. Matsuda y O. B. Wright. *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 3028 (2002).
- [56] O. Matsuda, I. Ishii, T. Fukui, J.J. Baumberg, y O.B. Wright. *Physica B* **316-317**, 202 (2002).
- [57] A. Devos, F. Poinsette, J. Groenen, O. Dehaese, N. Bertru, y A. Ponchet. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 207402 (2007).
- [58] M. Trigo, A. Bruchhausen, A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 227402 (2002).
- [59] Ü. Özgür, C.-W. Lee, y H. O. Everitt. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5604 (2001).
- [60] G. D. Sanders, C. J. Stanton, y C. S. Kim. *Phys. Rev. B* **64**, 235316 (2005).
- [61] E. Makarona, B. Daly, J.-S. Im, H. Maris, y A. Nurmikko. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2791 (2002).
- [62] C. E. Martinez, N. M. Stanton, P. M. Walker, A. J. Kent, S. V. Novikov, y C. T. Foxon. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 221915 (2005).
- [63] D. M. Moss, A. V. Akimov, A. J. Kent, B. A. Glavin, Kappers M. J, J. L. Hollander, M. A. Moram, y C. J. Humphreys. *Appl. Phys. Lett.* **94**, 11909 (2009).
- [64] A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, y K. Köhler. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2844 (1998).
- [65] C.-K. Sun, Y.-K. Huang, J.-C. Liang, A. Abare, y S. P. DenBaars. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1201 (2001).
- [66] G.-W. Chern, K.-H. Lin, Y.-K. Huang, y C.-K. Sun. *Phys. Rev. B* **67**, 121303(R) (2003).
- [67] N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, A. Miard, y A. Lemaître. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 217405 (2007).
- [68] F. Yang, T. J. Grimsley, y H. J. Maris. *J. Phys: Conf. Ser.* **92**, 012023 (2007).
- [69] Y. Li, A. V. Nurmikko, y H. J. Maris. *J. Appl. Phys.* **105**, 083516 (2009).
- [70] A. J. Kent, R.N. Kini, N. M. Stanton, M. Henini, B. A. Glavin, V. A. Kochelap, y T. L. Linnik. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 215504 (2006).
- [71] K. Vahala, M. Herrmann, S. Knünz, V. Batteiger, G. Saathoff, T. W. Hänsch, y Th. Udem. *Nature Physics* **5**, 682 (2009).

- [72] P. Giannozzi, S. R. Gironcoli, P. Pavone, y S. Baroni. *Phys. Rev. B* **43**, 7231 (1991).
- [73] S. M. Rytov. *Akust. Zh.* **2**, 71 (1956).
- [74] A. E. Bruchhausen. *Tesis de Doctorado en Física*. Instituto Balseiro, 2008.
- [75] P. Lacharmoise, A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3274 (2004).
- [76] V. Narayanmurti, H. L. Störmer, M. A. Chin, A. C. Gossard, y W. Wiegmann. *Phys. Rev. Lett.* **43**, 2012 (1979).
- [77] B. Jusserand, F. Alexandre, J. Dubard, y D. Paquet. *Phys. Rev. B* **33**, 2897 (1986).
- [78] A. Huynh, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M. F. Pascual-Winter, E. Peronne, y A. Lemaître. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 115502 (2006).
- [79] A. Bartels, F. Hudert, C. Janke, y T. Dekorsy. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 041117 (2006).
- [80] B. Perrin, C. Rossignol, B. Bonello, y J.-C. Jeannet. *Physica B* **263-264**, 571 (1999).
- [81] D. H. Hurley y O. B. Wright. *Opt. Lett.* **24**, 1305 (1999).
- [82] D. H. Hurley, O. B. Wright, O. Matsuda, V. E. Gusev, y O. V. Kolosov. *Ultrasonics* **38**, 470 (2000).
- [83] Y. Sugawara, O. B. Wright, O. Matsuda, M. Takigahira, Y. Tanaka, S. Tamura, y V. E. Gusev. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 185504 (2002).
- [84] T. Saito, O. Matsuda, y O. B. Wright. *Phys. Rev. B* **67**, 205421 (2003).
- [85] O. Matsuda, T. Tachizaki, T. Fukui, J. J. Baumberg, y O. B. Wright. *Phys. Rev. B* **71**, 115330 (2005).
- [86] E. Péronne y B. Perrin. *Ultrasonics* **44**, e1203 (2006).
- [87] A. N. Dharamsi y A. B. Hassam. *J. Acoust. Soc. Am.* **85**, 1560 (1989).
- [88] S. A. Akhmanov, V. É. Gusev, y A. A. Karabutov. *Infrared Physics* **29**, 815 (1989).
- [89] V. É. Gusev. *Phys. Status Solidi B* **158**, 367 (1990).
- [90] S. A. Akhmanov y C. É. Gusev. *Sov. Phys. Usp.* **35**, 153 (1992).
- [91] K. J. Yee, Y. S. Lim, T. Dekorsy, y D. S. Kim. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3661 (1996).

- [92] P. Babilotte, E. Morozov, P. Ruello, D. Mounier, M. Edely, J.-M. Breteau, A. Bulou, y V. Gusev. *J. Phys.: Conf. Ser.* **92**, 012019 (2007).
- [93] C. A. Paddock y G. L. Eesley. *Phys. Rev. Lett.* **60**, 285 (1986).
- [94] M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, y L. V. Tanatarov. *Sov. Phys. JETP* **4**, 173 (1957).
- [95] K. A. Nelson. *J. Appl. Phys.* **53**, 6060 (1982).
- [96] V. Gusev, P. Picart, D. Mounier, y J.-M. Breteau. *Opt. Commun.* **204**, 263 (2002).
- [97] E.N. Economou. *Green's functions in quantum mechanics*. Springer-Verlag, Berlin, 2006.
- [98] M. Nakayama, K. Kubota, H. Kato, y N. Sano. *J. Appl. Phys.* **60**, 3289 (1986).
- [99] M. W. C. Dharma-wardana. *Phys. Rev. B* **48**, 11960 (1993).
- [100] M. Trigo, A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. B* **66**, 125311 (2002).
- [101] P. Etchegoin, J. Kircher, M. Cardona, C. Grein, y E. Bustarret. *Phys. Rev. B* **46**, 15139 (1992).
- [102] Z. V. Popović, J. Spitzer, T. Ruf, M. Cardona, R. Nötzel, y K. Ploog. *Phys. Rev. B* **48**, 1659 (1993).
- [103] D. E. Aspnes y A. Froya. *Solid State Commun.* **7**, 155 (1969).
- [104] A. Miklós y A. Lörincz. *J. Appl. Phys.* **63**, 2391 (1988).
- [105] F. Abèles. Optics of thin films. A. C. S. Heel, editor, *Advanced Optical Techniques*. Wiley, New York, 1967.
- [106] M. Born y E. Wolf. *Principles of optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [107] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, y B. P. Flannery. *Numerical Recipes in C*. Cambridge University Press, Cambridge, 1992.
- [108] G. F. Simmons. *Ecuaciones diferenciales. Con aplicaciones y notas históricas*. McGraw-Hill, Madrid, 1993.
- [109] C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fischer, H. Morkoc, y A. C. Gossard. *Phys. Rev. B* **31**, 2080 (1985).
- [110] J. He, B. Djafari-Rouhani, y J. Sapriel. *Phys. Rev. B* **37**, 4086 (1988).

- [111] G. Rozas, M. F. Pascual Winter, B. Jusserand, A. Fainstein, B. Perrin, E. Semenova, y A. Lemaître. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 015502 (2009).
- [112] A. Devos y C. Lerouge. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2669 (2001).
- [113] A. Devos y A. Le Louarn. *Phys. Rev. B* **68**, 045405 (2003).
- [114] A. Devos y R. Côte. *Phys. Rev. B* **70**, 125208 (2004).
- [115] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, y S. Schnitt-Rink. *Phys. Rev. B* **33**, 6976 (1986).
- [116] W. Chen, H. J. Maris, Z. R. Wasilewski, y S.-I. Tamura. *Phil. Mag. B* **70**, 687 (1994).
- [117] S. Tamura y H. J. Maris. *Phys. Rev. B* **51**, 2857 (1995).
- [118] S. J. Orfanidis. *Introduction to signal processing*. Prentice-Hall, Inc., New Jersey, 1996.
- [119] C.-L. Hsieh, K.-H. Lin, S.-B. Wu, C.-C. Pan, J.-I. Chyi, y C.-K. Sun. *Appl. Phys. Lett.* **85**, 4735 (2004).
- [120] Landolt-Bornstein series. K. L. Hellwege y O. Madelung, editores, *Numerical data and functional relationships in science and technology*. Springer, Berlín, 1982.
- [121] C. Rossignol, J. M. Rampnoux, T. Dehoux, S. Dilhaire, y B. Audoin. *Ultrasonics* **44**, e1283 (2006).
- [122] C. A. C. Bosco, A. Azevedo, y L. H. Acioli. *Phys. Rev. B* **66**, 125406 (2002).
- [123] S. A. Cavill, A. V. Akimov, F. F. Ouali, L. J. Challis, A. J. Kent, y M. Henini. *Physica B* **263-264**, 537 (1999).
- [124] R. J. von Gutfeld y Jr. A. H. Nethercot. *Phys. Rev. Lett.* **12**, 641 (1964).
- [125] W. Eisenmenger y A. H. Dayem. *Phys. Rev. Lett.* **18**, 125 (1967).
- [126] H. Kinder. *Phys. Rev. Lett.* **28**, 1564 (1972).
- [127] M. Giehler, T. Ruf, M. Cardona, y K. Ploog. *Phys. Rev. B* **55**, 7124 (1997).
- [128] C. Weisbuch, R. Dingle, A. C. Gossard, y W. Wiegmann. *Solid State Commun.* **38**, 709 (1981).
- [129] F. Yang, M. Wilkinson, E. J. Austin, y K. P. O'Donnell. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 323 (1993).

- [130] T. Ruf. *Phonon Raman scattering in semiconductor quantum wells and superlattices*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1998.
- [131] A. V. Bragas, C. Aku-Leh, y R. Merlin. *Phys. Rev. B* **73**, 125305 (2006).

Agradecimientos

Agradezco a Alex Fainstein y a Bernard Jusserand por haberme guiado a lo largo de este trabajo de tesis y por haberme formado en la tarea de la investigación científica. Ha sido infinitamente enriquecedor para mí trabajar junto a ellos, tanto en el ámbito científico como en el humano.

Je remercie particulièrement à Bernard par son chaleureux accueil à Paris et par son soutien lors de mes séjours à l'INSP.

Je remercie à Bernard Perrin pour m'avoir appris la technique expérimentale de l'acoustique picoseconde et m'avoir ouvert les portes de son laboratoire où les expériences les plus marquantes de ce travail de thèse ont eu lieu.

Agradezco el financiamiento del Programa Alβan, *Programa de Becas de Alto Nivel de la Unión Europea para América Latina*, beca No. E05D051993AR, de la Beca de Excelencia Eiffel del Ministerio de Asuntos Extranjeros y Europeos de la República Francesa, y del Fondo para la Investigación Científica y Tecnológica (FONCyT) de la Agencia Nacional de Promoción Científica y Tecnológica de la República Argentina.

Agredezco a los jurados Dr. Robson Ferreira, Dr. Pascal Ruello, Dr. Jorge Tocho, Dra. Andrea Bragas y Dr. Gonzalo Usaj por haber aceptado la tarea de evaluar esta tesis.

Agradezco enormemente a Gonzalo Usaj por haber corregido este trabajo de tesis en un tiempo récord. Su ágil colaboración ha sido fundamental para su adecuada finalización.

Agradezco a los compañeros del Laboratorio de Propiedades Ópticas, Axel Bruchhausen, Nicolás Tognalli, Daniel Lanzillotti-Kimura y Guillermo Rozas por su entusiasmo, su excelente predisposición al trabajo, su ayuda, y por crear junto con Alex un agradable ambiente de trabajo.

Je remercie à l'équipe de l'INSP, axe *Nanostructures et systèmes quantiques*, pour leur accueil et pour m'avoir enseigné une autre façon de travailler qui a été largement enrichissante. Je remercie particulièrement à Catherine Gourdon, j'ai beaucoup apprécié son accueil hors laboratoire.

Je remercie à Laurent Belliard pour m'avoir "prêté" sa manip de temps en temps.