

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS  
INSTITUTO DE FÍSICA "GLEB WATAGHIN"

EXCITAÇÃO PARAMÉTRICA DE FONONS VIA MODOS  
LOCALIZADOS DE VIBRAÇÃO

Gerardo A. González de la Cruz

Tese apresentada ao Instituto de Física  
"Gleb Wataghin" da Universidade  
Estadual de Campinas, como parte dos  
requisitos para obtenção do título  
de Doutor em Ciências.

Campinas S.P.

1980

Este trabalho só foi possível graças a colaboração de diversas pessoas, dentre elas ressalto a excelente orientação do Dr. Luiz Carlos M. Miranda. A todos minha gratidão.

Tese parcialmente financiada pelas seguintes instituições:  
Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq-Brasil), Consejo Nacional de Ciencia y Tecnologia - (CONACyt-Mexico), Centro de Investigación y Estudios Avanzados del Instituto Politécnico Nacional (CIEA-IPN-Mexico).

## ÍNDICE

Abstract . . . . .	1
Resumo . . . . .	2
Capítulo I: Excitação paramétrica de fonons via modos localizados de vibração	
1.1 - Introdução . . . . .	4
1.2 - Modos localizados em cristais cúbicos diatômicos com uma impureza . . . . .	6
A - Equações básicas . . . . .	7
B - Equações seculares . . . . .	12
C - Energia de excitação dos modos localizados . . . . .	20
1.3 - Amplitude de probabilidade associada a modos localizados tipo s . . . . .	26
A - Amplitudes do modo s na impureza e nos seus vizinhos . . . . .	27
B - Amplitude do modo s em pontos distantes da impureza . . . . .	31
1.4 - Vértice para processos envolvendo um modo localizado e dois fonons da rede . . . . .	33
1.5 - Condição de instabilidade para processos envolvendo três modos . . . . .	38
1.6 - Excitação paramétrica de fonons via modos localizados . . . . .	43
1.7 - Estimativa da relaxação de modos localizados tipo s . . . . .	47
1.8 - Conclusões . . . . .	52

Capítulo II: Frequência de relaxação por processos de muitos fonons

2.1 - Introdução . . . . .	56
2.2 - Coeficiente de absorção . . . . .	59
A - Modos óticos de comprimento de onda grande . . . . .	63
2.3 - Frequência de relaxação . . . . .	69
A - Frequência de relaxação para processos de 4 fonons . . . . .	70
B - Frequência de relaxação para processos de ordem superior . . . . .	76
2.4 - Conclusões . . . . .	79

Capítulo III: Espalhamento de uma partícula de Landau na presença de um campo de laser

3.1 - Introdução . . . . .	83
3.2 - Formulação . . . . .	84
3.3 - Espalhamento por um potencial coulombiano . . . . .	93
3.4 - Discussão . . . . .	96
3.5 - Conclusões . . . . .	99

Referências . . . . .	101
-----------------------	-----

## ABSTRACT

The purpose of this thesis is to present some theoretical insights related to parametric instability multiphoton relaxation processes and scattering of a charged particle in the presence of both a magnetic field and a laser field.

In the parametric instability mechanism the theoretical basis for the study of the non-linear processes involving impurities in cubic crystal with NaCl structure, is given. In particular, the possibility to excite phonons with very large  $k$  due to decay of vibrational localized modes when these localized modes are pumped with a resonant laser field. Is discussed a rough estimate of the critical power of a laser source necessary to attain the instability threshold shows that the processes are experimentally feasible.

In the multiphonon relaxation processes, the temperature dependence of the life-time of phonon created by electromagnetic radiation absorption for frequencies greater than the reststrahl frequency is calculated. In particular we analyze the multiphoton relaxation frequency in the high temperature limit considering the scattering mechanism which shows that this mechanism is in agreement with the obtained by other people.

In conclusion, the problem of the scattering of a charged particle by a potential  $V(\vec{r})$  under the simultaneous presence of a strong d.c. magnetic field and an intense laser field is also considered. A description is given within the Born approximation which uses space and momentum translations and Green's function formalism. An application is made to the case of scattering by a Coulomb potential. The full resonance structure of the excitation amplitude for Landau levels transition is exhibited and discussed in connection to disclosing the effects of the external fields on the various possible resonant transitions.

## RESUMO

O propósito desta tese é investigar alguns aspectos teóricos relacionados com instabilidade paramétrica, relaxação por processos de muitos fonons e Espalhamento de partículas de Landau na presença de um campo de laser.

No mecanismo de instabilidade paramétrica apresentamos as bases teóricas para o estudo de processos não-lineares envolvendo impurezas em cristais cúbicos com estrutura da forma NaCl. Particularmente, analisamos teoricamente a possibilidade de se excitar fonons da rede com vetor de onda  $k$  elevado ao decaimento de modos de vibração localizados quando estes últimos são bombeados por lasers de infravermelho. A estimativa da potência crítica de uma fonte de laser capaz de fornecer o limiar para instabilidade paramétrica, mostra que estes processos são experimentalmente possíveis.

No processo de relaxação por muitos fonons analisamos a vida média de um fonon criado por absorção da radiação eletromagnética como sendo dependente da temperatura para frequências maiores que a máxima frequência do cristal. Particularmente investigamos a frequência de relaxação de muitos fonons em altas temperaturas considerando o mecanismo de espalhamento neste limite, mostra que este mecanismo é comparável ao obtido por outros autores.

E por último considerando o espalhamento de uma partícula carregada por um potencial  $V(\vec{r})$  na presença simultânea de um campo magnético forte e um campo intenso de laser. Uma descrição é dada usando a aproximação de Born, a qual usa traslações de espaço e momento e a técnica da função de Green. Uma aplicação é feita para o caso de espalhamento por um potencial Coulombiano. A amplitude de transição para excitação de níveis de Landau é analisada mostrando ressonância para certas condições dos campos externos.

CAPÍTULO I  
EXCITAÇÃO PARAMÉTRICA DE FONONS VIA MODOS  
LOCALIZADOS DE VIBRAÇÃO

## 1.1 INTRODUÇÃO

Quando uma impureza substitucional ou intersticial é introduzida em um cristal as frequências dos modos normais de vibração dos átomos do cristal bem como o espectro dos deslocamentos atômicos podem ser profundamente alterados. Os efeitos da impureza sobre as vibrações atômicas podem ser pelo menos de dois tipos diferentes. Por exemplo, se a impureza que substitui o átomo é mais leve ou se está acoplada mais fortemente a seus átomos vizinhos do cristal hospedeiro, aparecem certos modos vibracionais chamados de modos localizados. Estes tipos de modos são caracterizados pelo fato de que suas frequências estão acima da frequência máxima do cristal hospedeiro não-perturbado e as amplitudes dos deslocamentos dos átomos, quando o cristal está vibrando nesses modos, decai exponencialmente com a distância (supondo o sítio da impureza como origem). Mais ainda se o cristal tem um gap no espectro de frequências das vibrações acústicas e óticas, é possível também o aparecimento de modos localizados cujas frequências estão dentro do gap. Outro tipo de modo vibracional é o chamado modo ressonante, cujas frequências estão dentro dos intervalos das frequências permitidas dos modos normais do cristal hospedeiro, as quais estão caracterizados por uma grande amplitude de vibração.

O primeiro estudo teórico dos efeitos de impurezas sobre as propriedades vibracionais em cristais foi feito por Lifshitz (1943-56). Estes efeitos são, por exemplo, aparição de modos localizados de vibração, mudança das propriedades termodinâmicas do cristal, tal como a energia livre de Helmholtz, e mudanças no espectro de frequências. Montroll and Potts (1955-56) e Montroll, Maradudin e Weiss (1963), calcularam a energia livre de interação



entre duas impurezas, considerando a mudança da energia vibracional de uma impureza na presença da outra impureza. As primeiras evidências experimentais da existência de modos localizados foram obtidas através do espectro de absorção infravermelha em cristais de KCl contendo como impureza  $H^+$  (Schaefer 1960) e por espalhamento incoerente de neutrons em ligas de Ni-Pd (Mozer, Otnes e Meyers (1962)).

Na literatura existente sobre impurezas não encontramos trabalhos voltados para o estudo de processos não-lineares envolvendo modos localizados. Sabemos que a interação de um sistema de quasipartículas com um campo eletromagnético pode dar origem a processos não-lineares se o número de quasipartículas excede um certo número crítico. Orbach (1966) foi o primeiro a mostrar que o decaimento de fonons óticos de comprimento de onda elevado em dois fonons acústicos com igual e oposto vetor de onda é um processo paramétrico, e que, portanto com o bombeamento de fonons óticos com radiação eletromagnética, é possível dar origem a instabilidades paramétricas no sistema de fonons acústicos. A verificação experimental da proposta de Orbach foi feita por Colles e Giordmaine (1971) em Diamante. O resultado da experiência foi a geração de fonons acústicos fora do equilíbrio térmico.

Com o advento de lasers de alta potência no infravermelho, o interesse pelo estudo das propriedades dinâmicas das excitações elementares em cristais foi renovado. Condições para existência de modos localizados tipo s serão estabelecidas.

Na Seção 1.3 estudaremos as amplitudes do modo s na impureza e nos seus vizinhos, como também em pontos distantes da impureza. Usando a interação anarmônica obteremos na seção 1.4 o vértice para processos envolvendo um modo localizado tipo s e dois fonons da rede. Na seção 1.5 o critério geral de instabilidade para o

processo envolvendo três bosons será apresentado seguindo o tratamento por White e Sparks (1963). Na seção 1.6 proporemos um novo mecanismo de excitação paramétrica de fonons via modos localizados. Finalmente na seção 1.7 estimaremos a ordem de grandeza da vida média dos modos localizados e na seção 1.8 discutiremos os principais resultados e faremos as conclusões dos resultados obtidos.

Nosso objetivo neste capítulo será o de estabelecer as bases teóricas do estudo de processos não-lineares envolvendo modos localizados em cristais de simetria cúbica. Em particular nos propomos a investigar um novo mecanismo capaz, em princípio, de excitar parametricamente fonons com  $k$  muito elevado. O mecanismo aqui proposto envolve transições entre modos localizados e modos da rede, provenientes da interação anarmônica. O método é análogo ao de Orbach no qual fonons acústicos são excitados parametricamente via modos óticos de comprimento de onda elevado, com pulsos eletromagnéticos na região de infra-vermelho. No nosso caso, os fonons óticos ou acústicos são excitados parametricamente via modos localizados - bombeados com pulsos eletromagnéticos na região infravermelha por fontes de laser ressonantes com o modo localizado. Este capítulo tem como referência o trabalho desenvolvido por Fitipaldi, Rezende e Miranda (1973) sobre excitação paramétrica de ondas de spin em isolantes ferromagnéticos vis modos de magnon localizado.

Na Seção 1.2 deste capítulo, os modos localizados presentes em cristais cúbicos simples contendo uma impureza isotópica serão discutidos através de um método matemático usado por Mitiani e Takeno (1965), Dawber e Elliot (1963).

## 1.2 MODOS LOCALIZADOS EM CRISTAIS CÚBICOS DIATOMICOS COM UMA IMPUREZA

Nesta seção discutiremos os modos localizados em um

cristal cúbico diatômico contendo uma impureza substitucional com interação entre seus vizinhos mais próximos. As vibrações atômicas serão tratadas na aproximação harmônica.

O método matemático aqui empregado é análogo ao usado por Dawber e Elliot (1963), e Mitiani e Takeno (1965) no problema correspondente de um átomo de diferente massa em um cristal cúbico. Estes métodos dependem do uso da técnica da função de Green para obter soluções exatas para o problema dinâmico de impurezas.

## A - EQUAÇÕES BÁSICAS

Consideremos um cristal perfeito com N células primitivas com r átomos por célula primitiva. A posição da  $l$ -ésima célula unitária é dada pelo vetor

$$\vec{X}(l) = l_1 \vec{a}_1 + l_2 \vec{a}_2 + l_3 \vec{a}_3 \quad (1.2-1a)$$

onde  $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$  são os três retores primitivos de translação do cristal, e  $l_1, l_2, l_3$  são três inteiros os quais podem ser positivos, negativos ou zero, aqui serão representados por  $l$ . As posições dos r átomos na célula unitária são dados pelos vetores  $\{\vec{X}(\kappa)\}$ ,  $\kappa=0,1,2,\dots,r-1$  e escolheremos a origem dentro da célula tal que  $\vec{X}(\kappa=0)=0$ . A posição do  $\kappa$ -ésimo átomo na  $l$ -ésima célula unitária será

$$\vec{X}(l\kappa) = \vec{X}(l) + \vec{X}(\kappa) \quad (1.2-1b)$$

O deslocamento do átomo  $(l\kappa)$  de sua posição de equilíbrio será denotado por  $\vec{U}(l\kappa)$  e seu momento conjugado por  $\vec{p}(l\kappa)$ . A energia cinética do cristal hospedeiro é da forma

$$T = \sum_{\ell\kappa\alpha} \frac{P_{\alpha}^2(\ell\kappa)}{2M_{\kappa}} = \frac{1}{2} \sum_{\ell\kappa\alpha} M_{\kappa} \dot{U}_{\alpha}^2(\ell\kappa) \quad (1.2-2a)$$

onde  $\alpha$  indica a componente cartesiana de  $\vec{P}(\ell\kappa)$  e  $\vec{U}(\ell\kappa)$ ,  $M_{\kappa}$  é a massa do  $\kappa$ -ésimo átomo. A energia potencial do cristal na aproximação harmônica pode ser escrita na seguinte forma

$$\phi = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\ell\kappa\alpha \\ \ell'\kappa'\beta}} \phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa, \ell'\kappa') U_{\alpha}(\ell\kappa) U_{\beta}(\ell'\kappa') \quad (1.2-2b)$$

onde  $\phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa; \ell'\kappa')$  são as constantes de força atômica.

As equações de movimento para o cristal perfeito são dadas por

$$M_{\kappa} \ddot{U}_{\alpha}(\ell\kappa) = - \frac{\partial \phi}{\partial U_{\alpha}(\ell\kappa)} = - \sum_{\ell'\kappa'\beta} \phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa, \ell'\kappa') U_{\beta}(\ell'\kappa') \quad (1.2-3)$$

Supondo uma dependência harmônica no tempo para  $U_{\alpha}(\ell\kappa)$ ,

$$U_{\alpha}(\ell\kappa, t) = U_{\alpha}(\ell\kappa) e^{i\omega t} \quad (1.2-4)$$

as equações para as amplitudes independentes do tempo podem ser escritas na forma

$$\sum_{\ell'\kappa'\beta} \{ \phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa, \ell'\kappa') - M_{\kappa} \omega^2 \delta_{\kappa'\kappa} \delta_{\ell\ell'} \delta_{\alpha\beta} \} U_{\beta}(\ell'\kappa') = 0 \quad (1.2-5)$$

As constantes de força atômica  $\phi_{\alpha\beta}(\ell, \ell')$  tem um número de propriedades úteis as quais descreveremos de maneira sumária.  $\phi_{\alpha\beta}(\ell, \ell')$  é simétrica no seu argumento

$$\phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa; \ell'\kappa') = \phi_{\alpha\beta}(\ell'\kappa', \ell\kappa) \quad (1.2-6a)$$

A invariância da força sobre um átomo quando o cristal sofre uma trasladação dá a seguinte condição

$$\sum_{\ell' \kappa'} \phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa; \ell' \kappa') = 0 \quad (1.2-6b)$$

A invariância da energia potencial quando o cristal, como corpo rígido, sofre uma rotação infinitesimal dá a seguinte condição

$$\sum_{\ell' \kappa'} \phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa; \ell' \kappa') \chi_{\gamma}(\ell' \kappa') = \sum_{\ell' \kappa'} \phi_{\alpha\gamma}(\ell\kappa; \ell' \kappa') \chi_{\beta}(\ell' \kappa') \quad (1.2-6c)$$

As condições expressas pelas equações (1.2-6) são válidas para qualquer sistema de partículas cuja energia potencial dependa - quadraticamente dos deslocamentos das partículas de sua posição de equilíbrio; isto é, não dependem de um arranjo periódico das partículas.

Agora suponhamos que uma impureza de massa  $M'$  está localizada na origem (0,0,0), e os demais sítios contêm átomos do cristal - hospedeiro tal que  $M(d) = M_1$  para  $d$  par e  $M(d) = M_2$  para  $d$  ímpar onde  $d = \ell_1 + \ell_2 + \ell_3$  (veja Fig. 1). Aqui  $M_1$  e  $M_2$  representam as massas dos átomos do cristal hospedeiro. As equações de movimento independentes

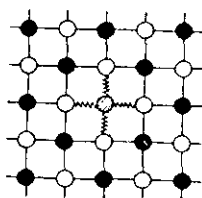


Fig. 1 Modelo de um átomo impuro substitucional

● átomo de massa  $M_1$

○ átomo de massa  $M_2$

⦿ átomo impuro substitucional

do tempo na aproximação harmônica que descrevem as vibrações atômicas

cas da rede com interação entre seus vizinhos mais próximos, são geralmente escritas na forma

$$\begin{aligned}
 M(l_1, l_2, l_3) \omega^2 U_\alpha(l_1, l_2, l_3) = & K(l_1+1, l_2, l_3; l_1, l_2, l_3) \{U_\alpha(l_1, l_2, l_3) - U_\alpha(l_1+1, l_2, l_3)\} \\
 & + K(l_1-1, l_2, l_3; l_1, l_2, l_3) \{U_\alpha(l_1, l_2, l_3) - U_\alpha(l_1-1, l_2, l_3)\} \\
 & + K(l_1, l_2+1, l_3; l_1, l_2, l_3) \{U_\alpha(l_1, l_2, l_3) - U_\alpha(l_1, l_2+1, l_3)\} \\
 & + K(l_1, l_2-1, l_3; l_1, l_2, l_3) \{U_\alpha(l_1, l_2, l_3) - U_\alpha(l_1, l_2-1, l_3)\} \\
 & + K(l_1, l_2, l_3+1; l_1, l_2, l_3) \{U_\alpha(l_1, l_2, l_3) - U_\alpha(l_1, l_2, l_3+1)\} \\
 & + K(l_1, l_2, l_3-1; l_1, l_2, l_3) \{U_\alpha(l_1, l_2, l_3) - U_\alpha(l_1, l_2, l_3-1)\} \quad (1.2-7)
 \end{aligned}$$

aqui os  $k$ 's são as constantes de força atômica entre átomos vizinhos. Como cada componente do vetor deslocamento é independente é suficiente estudarmos apenas uma. A equação (1.2-7) pode ser separada formalmente em termos perturbados e não-perturbados devido a impureza na forma.

Para  $l_1 + l_2 + l_3 = \text{par}$

$$\begin{aligned}
 (i) \quad (M_1 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2) U(l_1, l_2, l_3) + k_1 \{U(l_1+1, l_2, l_3) + U(l_1-1, l_2, l_3)\} \\
 + k_2 \{U(l_1, l_2+1, l_3) + U(l_1, l_2-1, l_3) + U(l_1, l_2, l_3+1) + U(l_1, l_2, l_3-1)\} \\
 = \sum_{l_1', l_2', l_3'} V(l_1 l_1', l_2 l_2', l_3 l_3') U(l_1', l_2', l_3') \quad (1.2-8a)
 \end{aligned}$$

(ii) para  $l_1 + l_2 + l_3 = \text{impar}$

$$\begin{aligned}
 & (M_2 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2) U(l_1, l_2, l_3) + k_1 \{U(l_1+1, l_2, l_3) + U(l_1-1, l_2, l_3)\} \\
 & + k_2 \{U(l_1, l_2+1, l_3) + U(l_1, l_2-1, l_3) + U(l_1, l_2, l_3+1) + U(l_1, l_2, l_3-1)\} \\
 & = \sum_{l'_1, l'_2, l'_3} V(l'_1, l'_2, l'_3) U(l'_1, l'_2, l'_3) \quad (1.2-8b)
 \end{aligned}$$

Onde os primeiros membros das equações anteriores descrevem a equação de movimento independente do tempo para um cristal perfeito, e os parâmetros  $k_1$  e  $k_2$  representam respectivamente as constantes de força central e não-central. As forças não-centrais, são forças sobre um átomo produzidas pelo deslocamento de um átomo vizinho perpendicular a linha que une-os. O segundo membro de (1.2-8) representa a perturbação em (1.2-5) produzida pela impureza, os  $V'_s$  caracterizam o efeito da massa introduzida no cristal puro. Fazendo-se a mudança de variável

$$\begin{aligned}
 v(l_1, l_2, l_3) &= [M_1 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2]^{1/2} U(l_1, l_2, l_3) \quad \text{para } l = \text{par} \\
 v(l_1, l_2, l_3) &= [M_2 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2]^{1/2} U(l_1, l_2, l_3) \quad \text{para } l = \text{impar}
 \end{aligned} \quad (1.2-9)$$

as equações (1.2-8a) e (1.2-8b) são reduzidas a uma única equação

$$\begin{aligned}
 & (M \omega^2 - 2k_1 - 4k_2) v(l_1, l_2, l_3) + k_1 \{v(l_1+1, l_2, l_3) + v(l_1-1, l_2, l_3)\} \\
 & + k_2 \{v(l_1, l_2+1, l_3) + v(l_1, l_2-1, l_3) + v(l_1, l_2, l_3+1) + v(l_1, l_2, l_3-1)\} =
 \end{aligned}$$

$$\sum_{l_1' l_2' l_3'} \Gamma(l_1 l_1', l_2 l_2', l_3 l_3') V(l_1 l_1', l_2 l_2', l_3 l_3') V(l_1' l_2' l_3') \quad (1.2-10)$$

onde  $M^* \omega^2$  é definido por

$$M^* \omega^2 - 2k_1 - 4k_2 = [(M_1 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2)(M_2 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2)]^{1/2} \quad (1.2-11)$$

e

$$\Gamma(l_1 l_1', l_2 l_2', l_3 l_3') = \begin{cases} 1 & \begin{cases} \text{para } l=\text{par e } l'=\text{impar ou} \\ \text{para } l=\text{impar e } l'=\text{par.} \end{cases} \\ \Delta & \text{para } l=\text{par e } l'=\text{par} \\ 1/\Delta & \text{para } l=\text{impar e } l'=\text{impar} \end{cases} \quad (1.2-12)$$

Aqui  $\Delta$  é definida por

$$\Delta = [(M_2 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2) / (M_1 \omega^2 - 2k_1 - 4k_2)]^{1/2} \quad (1.2-13)$$

Note que, o primeiro membro da equação (1.2-10) descreve as vibrações atômicas de um cristal puro monoatômico com massa  $M^*$

## B - EQUAÇÕES SECULARES

Para determinarmos as energias dos modos localizados bem como a existência dos mesmos, faremos usada técnica da função de Green definida por Maradudin (1969) como

$$G_{\alpha\beta}(l\kappa, l'\kappa'; \omega^2) = \frac{1}{N(M_\kappa M_{\kappa'})^{1/2}} \sum_{\vec{q}\sigma} \frac{\epsilon_\alpha(\vec{q}\sigma\kappa) \epsilon_\beta^*(\vec{q}\sigma\kappa')}{\omega_\sigma^2(\vec{q}) - \omega^2} e^{i\vec{q} \cdot (\vec{R}_l - \vec{R}_{l'})} \quad (1.2-14)$$



Nesta expressão  $\omega_{\sigma}(\vec{q})$  é a frequência do modo normal do cristal perfeito descrita pelo vetor de onda  $\vec{q}$  e o índice de ramo de fonon  $\sigma$ , e  $\vec{\epsilon}(\vec{q}\sigma\kappa)$  é o vetor unitário de polarização. A somatória é feita sobre a primeira zona de Brillouin no espaço do vetor  $\vec{q}$  e  $\vec{R}_{\ell}(\vec{R}_{\ell}')$  é o vetor que conecta a origem do sistema de coordenador ao ponto  $\ell(\ell')$ . Note que a função de Green assim definida depende dos pontos  $\ell$  e  $\ell'$  através da diferença  $\vec{R}_{\ell} - \vec{R}_{\ell}'$ . As operações de simetria do grupo  $O_h$  são 48 rotações próprias e impróprias as quais deixam o cubo invariante. Usando tais operações Maradudin (1969) demonstrou que a função de Green (1.2-14) para um cristal cúbico pode ser escrita na seguinte forma

$$G_{\alpha\beta}(\ell\kappa; \ell'\kappa', \omega^2) = \frac{\delta_{\alpha\beta}}{N(M\kappa M\kappa')^{1/2}} \frac{\sum_{\vec{q}\sigma} \frac{\epsilon_{\alpha}(\vec{q}\sigma\kappa) \epsilon_{\beta}^*(\vec{q}\sigma\kappa')}{\omega_{\sigma}^2(\vec{q}) - \omega^2}}{e^{i\vec{q} \cdot (\vec{R}_{\ell} - \vec{R}_{\ell}')}} \quad (1.2-15)$$

Usando o fato de que as constantes de força atômica  $\phi_{\alpha\beta}(\ell\kappa; \ell'\kappa')$  dependem unicamente da diferença entre os pontos  $\ell$  e  $\ell'$  para um cristal perfeito e que as frequências  $\omega_{\sigma}(\vec{q})$  são determinadas pela equação secular

$$\sum_{\kappa'\beta} \vec{h} \frac{\phi_{\alpha\beta}(\vec{h}; \kappa, \kappa') e^{i\vec{q} \cdot \vec{h}}}{(M\kappa M\kappa')^{1/2}} \epsilon_{\beta}(\vec{q}, \sigma, \kappa') = \omega_{\sigma}^2(\vec{q}) \epsilon_{\alpha}(\vec{q}, \sigma, \kappa) \quad (1.2-16)$$

é fácil verificarmos que a função de Green, para um cristal monoatômico, é solução da equação (1.2-5)

$$-M\omega^2 G_{\alpha\beta}(\ell, \ell', \omega^2) + \sum_{m\gamma} \phi_{\alpha\gamma}(\ell m) G_{\gamma\beta}(m, \ell; \omega^2) = \delta_{\alpha\beta} \delta_{\ell\ell'} \quad (1.2-17)$$

Isto é, a função de Green é a inversa da equação dinâmica para um cristal perfeito.

Em termos da função de Green

$$G(l_1, l_2, l_3, \omega^2) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{q}} \frac{e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}}}{M^* \omega^2(\vec{q}) - M^* \omega^2} \quad (1.2-18)$$

para um cristal cúbico simples monoatômico de massa  $M$  com ramos acústicos degenerados, a equação (1.2-10), usando (1.2.17), é reduzida a

$$\begin{aligned} V(l_1, l_2, l_3) = & \sum_{\substack{l'_1 l'_2 l'_3 \\ l''_1 l''_2 l''_3}} G(l_1 - l'_1, l_2 - l'_2, l_3 - l'_3, \omega^2) \Gamma(l'_1 l''_1, l'_2 l''_2, l'_3 l''_3) \times \\ & \times V(l'_1 l''_1, l'_2 l''_2, l'_3 l''_3) v(l''_1 l''_2 l''_3) \end{aligned} \quad (1.2-19)$$

onde

$$M^* \omega^2(q) = 2k_1 + 4k_2 - 2k_1 \cos q_1 a - 2k_2 \cos q_2 a - 2k_2 \cos q_3 a \quad (1.2.20)$$

determina as frequências do cristal não-perturbado pela impureza,  $a$  é o parâmetro da rede e  $N$  o número de sítios da rede. A equação (1.2-19) é válida para todos os sítios da rede. Fazendo-se  $(l_1, l_2, l_3)$  sucessivamente igual aos valores de  $(l''_1, l''_2, l''_3)$ , obtemos um conjunto de equações homogêneas para os sítios diretamente perturbados pela impureza. Assim para uma impureza substitucional de massa  $M'_1$  localizada na origem  $(0,0,0)$  com interação entre seus vizinhos mais próximos,  $k'_1$  e  $k'_2$  as constantes de força central e não-central respectivamente, a equação que descreve as vibrações da impureza pode ser escrita na forma

$$M_1' \omega^2 U(0,0,0) = (2K_1' + 4K_2') U(0,0,0) - K_1' \{U(1,0,0) + U(-1,0,0)\} \\ - K_2' \{U(0,1,0) + U(0,-1,0) + U(0,0,1) + U(0,0,-1)\} \quad (1.2-21)$$

ou em analogia com (1.2-8a)

$$(M_1' \omega^2 - 2K_1' - 4K_2') U(0,0,0) + K_1' \{U(1,0,0) + U(-1,0,0)\} + \\ + K_2' \{U(0,1,0) + U(0,-1,0) + U(0,0,1) + U(0,0,-1)\} \\ = (2\mu_1 K_1' + 4\mu_2 K_2' + \epsilon M_1' \omega^2) U(0,0,0) - \\ - \mu_1 K_1' \{U(1,0,0) + U(-1,0,0)\} - \mu_2 K_2' \{U(0,1,0) + U(0,-1,0) + \\ + U(0,0,1) + U(0,0,-1)\} \quad (1.2-22)$$

onde  $\mu_1$ ,  $\mu_2$  e  $\epsilon$  são parâmetros adimensionais que caracterizam o efeito da massa introduzida pela impureza, definidos por

$$\mu_1 = \frac{K_1'}{K_1} - 1, \quad \mu_2 = \frac{K_2'}{K_2} - 1, \quad \epsilon = 1 - \frac{M_1'}{M_1} \quad (1.2-23)$$

usando o mesmo procedimento para os átomos mais próximos da impureza, obtemos

$$\{M_2' \omega^2 - D\} U(\pm 1, 0, 0) = \mu_1 K_1' \{U(\pm 1, 0, 0) - U(0, 0, 0)\} \quad (1.2-24)$$

$$\{M_2' \omega^2 - D\} U(0, \pm 1, 0) = \mu_2 K_2' \{U(0, \pm 1, 0) - U(0, 0, 0)\} \quad (1.2-25)$$

$$\{M_2' \omega^2 - D\} U(0, 0, \pm 1) = \mu_2 K_2' \{U(0, 0, \pm 1) - U(0, 0, 0)\} \quad (1.2-26)$$

onde  $D$  representa o operador do segundo membro de equação (1.2-7) - para um cristal perfeito. Para os demais sítios da rede obtemos a equação (1.2-8a) ou (1.2-8b) fazendo-se os  $V$ 's igual com zero. Comparando as equações (1.2-22), (1.2-24), (1.2-25) e (1.2-26) com as equações (1.2-8a) e (1.2-8b), obtemos:

$$V(00,00,00) = 2\mu_1 K_1 + 4\mu_2 K_2 + \epsilon M_1 \omega^2$$

$$V(\pm 1, \pm 1, 0, 0, 0, 0) = -V(0, \pm 1, 0, 0, 0, 0) = V(\pm 1, 0, 0, 0, 0, 0) = \mu_1 K_1$$

$$V(0, 0, \pm 1, \pm 1, 0, 0) = V(0, 0, 0, 0, \pm 1, \pm 1) = -V(0, 0, 0, \pm 1, 0, 0)$$

$$= -V(0, 0, \pm 1, 0, 0, 0) = -V(0, 0, 0, 0, 0, \pm 1)$$

$$= -V(0, 0, 0, 0, \pm 1, 0) = \mu_2 K_2 \quad (1.2-27)$$

usando a Eq. (1.2-27) é fácil verificar que a Eq. (1.2-19) pode ser escrita na seguinte forma (Mitiani e Takeno (1965))

$$\begin{aligned} v(\ell_1, \ell_2, \ell_3) = & \left[ \Delta(2\mu_1 + 4\mu_2 K_2 + \epsilon M_1 \omega^2) G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) \right. \\ & - \mu_1 K_1 \{ G(\ell_1 - 1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) + G(\ell_1 + 1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) \} - \mu_2 K_2 \{ G(\ell_1, \ell_2 - 1, \ell_3, \omega^2) \\ & + G(\ell_1, \ell_2 + 1, \ell_3, \omega^2) + G(\ell_1, \ell_2, \ell_3 - 1, \omega^2) + G(\ell_1, \ell_2, \ell_3 + 1, \omega^2) \} \Big] v(0, 0, 0) \\ & + \mu_1 K_1 \{ \Delta^{-1} G(\ell_1 - 1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) - G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) \} v(1, 0, 0) \\ & + \mu_1 K_1 \{ \Delta^{-1} G(\ell_1 + 1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) - G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) \} v(-1, 0, 0) \\ & + \mu_2 K_2 \{ \Delta^{-1} G(\ell_1, \ell_2 - 1, \ell_3, \omega^2) - G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) \} v(0, 1, 0) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & +\mu_2 K_2 \{\Delta^{-1} G(\ell_1, \ell_2+1, \ell_3, \omega^2) - G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2)\} v(0, -1, 0) \\
 & +\mu_2 K_2 \{\Delta^{-1} G(\ell_1, \ell_2, \ell_3-1, \omega^2) - G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2)\} v(0, 0, 1) \\
 & +\mu_2 K_2 \{\Delta^{-1} G(\ell_1, \ell_2, \ell_3+1, \omega^2) - G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2)\} v(0, 0, -1) \quad (1.2-28).
 \end{aligned}$$

Para obtermos a solução do sistema de equações (1.2-28) podemos proceder da seguinte maneira. Escrever o sistema (1.2-28) na forma matricial e pela imposição de não-existência de solução trivial, as frequências dos estados impuros são determinadas pelos zeros do seguinte determinante

$$\begin{aligned}
 \det | \delta_{\ell_1 \ell_1'} \delta_{\ell_2 \ell_2'} \delta_{\ell_3 \ell_3'} - \sum_{\ell_1' \ell_2' \ell_3'} G(\ell_1 - \ell_1', \ell_2 - \ell_2', \ell_3 - \ell_3', \omega^2) \times \\
 \Gamma(\ell_1' \ell_2'', \ell_2' \ell_2'', \ell_3' \ell_3'') V(\ell_1', \ell_1'', \ell_2', \ell_2'', \ell_3', \ell_3'') | = \det | 1 - G \Gamma V | = 0 \quad (1.2-29)
 \end{aligned}$$

A equação determinantal (1.2-29) pode ser diagonalizada em blocos, usando transformações unitárias obtidas a partir das representações irredutíveis do grupo característico da estrutura cúbica em questão. Por exemplo, no caso de uma estrutura cúbica simples a transformação unitária é obtida de acordo com as representações irredutíveis do grupo cúbico pontual  $O_h$  (Wolfram e Callaway [1963]). Desta forma (de maneira geral) a equação (1.2-29) pode ser escrita como

$$\det | 1 - G \Gamma V | = \prod_{\mu} D_{\mu}^{g_{\mu}}(\omega) = 0 \quad (1.2-30)$$

onde  $\mu$  designa as representações irredutíveis do grupo pontual e  $g_{\mu}$  o grau de degenerescência da representação  $\mu$ . Os zeros de cada fator  $D_{\mu}(\omega)$  determinam as frequências dos modos localizados com simetria  $\mu$ . Em geral, convencionou-se designar  $\mu$  pelos símbolos de mo-

momentum angular s,p,d,f. Esta forma de fatorização do determinante foi previamente discutida por Koster e Slater (1954) considerando estados eletrônicos localizados associados com impurezas. O problema de determinar as combinações lineares dos v's os quais fatorizam o determinante secular é análogo ao problema de construir combinações lineares de ondas planas simetrizadas em um cálculo de banda de energia. No nosso problema o modo s é totalmente simétrico enquanto que os modos p, d e f representam modos antisimétricos.

Portanto a maneira de resolver o sistema (1.2-28) é fazendo uso direto das propriedades de simetria dos modos de vibração da rede, associadas aos modos do tipo s, p e d. (para facilitar os cálculos suponhamos que  $K_1=K_2$ )

#### (i) Soluções do tipo s

Para obtermos as soluções tipo s, caracterizadas por terem

$$v(1,0,0)=v(-1,0,0)=v(0,1,0)=v(0,-1,0)=v(0,0,1)=v(0,0,-1) \quad (1.2-31)$$

usaremos a Eq. (1.2-28) é o fato de que a função de Green é a inversa da equação dinâmica

$$\begin{aligned} & [(M_1\omega^2 - 2K_1 - 4K_2)(M_2\omega^2 - 2K_1 - 4K_2)]^{1/2} G(\ell_1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) \\ & + K_1 \{ G(\ell_1 - 1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) + G(\ell_1 + 1, \ell_2, \ell_3, \omega^2) \} \\ & + K_2 \{ G(\ell_1, \ell_2 - 1, \ell_3, \omega^2) + G(\ell_1, \ell_2 + 1, \ell_3, \omega^2) + \\ & G(\ell_1, \ell_2, \ell_3 - 1, \omega^2) + G(\ell_1, \ell_2, \ell_3 + 1, \omega^2) \} = \delta_{\ell_1,0} \delta_{\ell_2,0} \delta_{\ell_3,0} \end{aligned} \quad (1.2-32)$$

Com isto, as frequências dos modos do tipo s, são obtidas através das soluções da seguinte equação secular

$$D_s(\omega) = 1 + \mu_1 - (\mu_1 + \epsilon) M_1 \omega^2 \Delta G(0,0,0,\omega^2) + \mu_1 (1 - \epsilon) M_1 \omega^2 G(1,0,0) = 0 \quad (1.2-33)$$

(ii) Soluções do tipo p

Existem três soluções tipo p caracterizados por (Take-no [1963])

$$v(1,0,0) = -v(-1,0,0); v(0,0,0) = v(0,1,0) = v(0,-1,0) = v(0,0,1) = v(0,0,-1) = 0$$

$$v(0,1,0) = -v(0,-1,0); v(0,0,0) = v(1,0,0) = v(-1,0,0) = v(0,0,1) = v(0,0,-1) = 0$$

$$v(0,0,1) = -v(0,0,-1); v(0,0,0) = v(1,0,0) = v(-1,0,0) = v(0,1,0) = v(0,-1,0) = 0$$

(1.2-34)

Estes três modos do tipo p são degenerados, com frequência determinada pela seguinte equação secular

$$D_p(\omega) = \frac{\mu_1 K_1}{\Delta} \{G(0,0,0,\omega^2) - G(2,0,0,\omega^2)\} - 1 = 0 \quad (1.2-35)$$

(iii) Solução do tipo d

As soluções do tipo d são caracterizadas por

$$v(0,1,0) = v(0,-1,0) = -v(0,0,1) = -v(0,0,-1)$$

(1.2-36)

$$v(0,0,0) = v(1,0,0) = v(-1,0,0) = 0$$

cujas frequências são determinadas pela seguinte equação secular

$$D_d(\omega) = \frac{\mu_1 K_1}{\Delta} \{ G(0,0,0,\omega^2) + G(2,0,0,\omega^2) - 2G(1,1,0,\omega^2) \} - 1 = 0 \quad (1.2-37)$$

Ao obtermos estas equações usamos o fato de que, em redes cúbicas, a função de Green é independente da direção do vetor  $(l_1, l_2, l_3)$ . Note que as frequências dos modos do tipo p e d não dependem do parâmetro de massa  $\epsilon$ . Isto ocorre, porque nestes tipos de modos a impureza não participa do movimento harmônico. Existe um comportamento interessante do modo tipo s quando  $M'_1 \rightarrow 0$ . Neste caso a Eq. (1.2-33) torna-se

$$M_1 \omega^2 \Delta G(0,0,0,\omega^2) = 1 \quad (\mu_1 \neq -1) \quad (1.2-38)$$

Esta equação também é derivada da Eq. (1.2-28) fazendo-se  $\mu_1 = \mu_2 = 0$ . Isto ocorre, porque se a massa do átomo impuro é infinitamente leve a frequência do modo tipo s é invariante com relação as mudanças das constantes de força atômica.

#### C - ENERGIAS DE EXCITAÇÃO DOS MODOS LOCALIZADOS

As soluções das equações seculares (1.2-33), (1.2-35) e (1.2-37) fornecem como soluções, frequências localizadas aparecendo acima da banda ótica ou dentro do gap proibido entre as bandas ótica e acústica. Aqui as bandas óticas e acústicas serão caracterizadas pelas seguintes relações

$$\omega_m^2 = (2K_1 + 4K_2)(M_1^{-1} + M_2^{-1}) \quad (1.2-39a)$$

$$\omega_{op}^2 = (2K_1 + 4K_2)/M_2, \quad \omega_{ac}^2 = (2K_1 + 4K_2)/M_1 \quad \text{para } M_1 > M_2 \quad (1.2-39b)$$



$$\omega_{op}^2 = (2K_1 + 4K_2)/M_1; \quad \omega_{ac}^2 = (2K_1 + 4K_2)/M_2 \quad \text{para } M_2 > M_1 \quad (1.2-39c)$$

onde  $\omega_m$  e  $\omega_{op}$  são respectivamente as frequências máxima e mínima da banda ótica e  $\omega_{ac}$  representa a máxima frequência da banda acústica. Em termos de  $\omega_{op}$  e  $\omega_{ac}$  a Eq. (1.2-13) pode ser escrita na forma:

a) - para  $\omega^2 > \omega_m^2$

$$\Delta = \begin{cases} \xi & \text{para } M_1 > M_2 \\ 1/\xi & \text{para } M_1 < M_2 \end{cases} \quad (1.2-40)$$

onde

$$\xi = \left| \left( \frac{\omega^2}{\omega_{op}^2} - 1 \right) / \left( \frac{\omega^2}{\omega_{oc}^2} - 1 \right) \right|^{1/2} \quad (1.2-41)$$

e

b) - para  $\omega_{op}^2 > \omega^2 > \omega_{ac}^2$

$$\Delta = \begin{cases} i \xi' & \text{para } M_1 > M_2 \\ 1/i\xi' & \text{para } M_1 < M_2 \end{cases} \quad (1.2-42)$$

onde

$$\xi' = \left| \left( 1 - \frac{\omega^2}{\omega_{op}^2} \right) / \left( \frac{\omega^2}{\omega_{oc}^2} - 1 \right) \right|^{1/2} \quad (1.2-43)$$

substituindo na Eq. (1.2-18) a soma sobre  $\vec{q}$  por uma integral fazendo-se o limite  $N \rightarrow \infty$ , Takeno (1963) calculou a função de Green para  $\omega^2 > \omega_m^2$

$$G(\ell_1, \ell_2, \ell_3; \omega^2) = \{(-1)^{(\ell_1 + \ell_2 + \ell_3)} / 2K_1 I\{(1+2\eta) \left[ \left( \frac{\omega^2}{\omega_{op}^2} - 1 \right) \left( \frac{\omega^2}{\omega_{ac}^2} - 1 \right) \right]^{1/2}; \ell_1, \ell_2, \ell_3\} \quad (1.2-44)$$

onde

$$I(z; \ell_1, \ell_2, \ell_3) = \int_0^\infty e^{-zt} I_{\ell_1}(t) I_{\ell_2}(t) I_{\ell_3}(t) dt \quad (1.2-45)$$

aqui  $\eta = K_2/K_1$  e os I's representam funções de Bessel de argumento - imaginário. Para o caso onde  $\omega_{op}^2 > \omega^2 > \omega_{ac}^2$  a função de Green pode ser escrita como

$$G(\ell_1, \ell_2, \ell_3; \omega^2) = \{i^{(\ell_1 + \ell_2 + \ell_3 - 1)} / 2K_1 J\{(1+2\eta) \left[ \left( 1 - \frac{\omega^2}{\omega_{op}^2} \right) \left( \frac{\omega^2}{\omega_{ac}^2} - 1 \right) \right]^{1/2}; \ell_1, \ell_2, \ell_3\} \quad (1.2-46)$$

onde

$$J(z; \ell_1, \ell_2, \ell_3) = \int_0^\infty e^{-zt} J_{\ell_1}(t) J_{\ell_2}(t) J_{\ell_3}(t) dt \quad (1.2-47)$$

e  $J_\nu(t)$  representa a função Bessel.

As integrais (1.2-45) foram calculadas por Takeno, Kashiwamura e Teramoto (1962); Maradudin, Montrall, Weiss, Herman e Milnes (1960) e as integrais (1.2-47) foram tabeladas por Mitani e Takeno (1965) para o caso  $\eta=1$ . Assim, uma vez obtido estes valores numéricos, as equações transcendentais (1.2-33), (1.2-35) e (1.2-37) podem ser resolvidas.

Antes de resolver as equações transcendentais é inter

sante no caso de uma impureza substitucional obter valores críticos de  $\epsilon$  e  $\mu_1$  para o qual modos localizados aparecem quando  $\omega^2 = \omega_m^2$ ,  $\omega_{op}^2$  e  $\omega_{ac}^2$ .

Primeiro analisaremos o caso dos modos localizados que aparecem no gap quando  $\omega^2 \rightarrow \omega_{ac}^2$  e  $\omega^2 \rightarrow \omega_{op}^2$ . As equações (1.2-42) e (1.2-43) tornam-se

$$\lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{ac}^2} \xi' = \infty, \quad \lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{op}^2} \xi' = 0 \quad (1.2-48a)$$

$$\lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{ac}^2} \frac{1}{\xi'} = 0, \quad \lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{op}^2} 1/\xi' = \infty \quad (1.2-48b)$$

Usando o fato de que a função de Bessel  $J(0, l_1, l_2, l_3)$  é finita, das equações (1.2-33), (1.2-35) e (1.2-37), obtemos os seguintes resultados.

i) para os modos tipo p e d

$$\lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{op}^2} \mu_1 = \begin{cases} 0 & \text{para } M_1 > M_2 \\ \infty & \text{para } M_2 > M_1 \end{cases} \quad (1.2-49a)$$

$$(1.2-49b)$$

$$\lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{ac}^2} \mu_1 = \begin{cases} -\infty & \text{para } M_1 > M_2 \\ 0 & \text{para } M_2 > M_1 \end{cases} \quad (1.2-50a)$$

$$(1.2-50b)$$

ii) para modos tipo s

$$\lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{op}^2} \epsilon = \begin{cases} 1+p+P/\mu_1 & \text{para } M_1 > M_2 \\ -\mu_1 & \text{para } M_2 > M_1 \end{cases} \quad (1.2-51a)$$

$$(1.2-51b)$$

$$\lim_{\omega^2 \rightarrow \omega_{ac}^2} \epsilon = \begin{cases} -\mu_1 & \text{para } M_1 > M_2 \\ 1+p+p/\mu_1 & \text{para } M_2 > M_1 \end{cases} \quad (1.2-52a)$$

$$(1.2-52b)$$

onde  $p=M_2/M_1$ . As equações acima foram obtidas usando-se a relação  $M_1/2K_1=3/\omega_{ac}^2$  ou  $3/\omega_{op}^2$  dependendo se  $M_1 > M_2$  ou  $M_2 > M_1$ . Da definição de  $\epsilon$  e  $\mu_1$ , satisfazendo respectivamente a desigualdade  $\epsilon < 1$  e  $\mu_1 > -1$ , vemos que as frequências dos modos tipo p e d entre o fundo da banda ótica e o topo da banda acústica são obtidas dependendo de se  $M_1 > M_2$  e  $\mu_1 \leq 0$  ou  $M_2 > M_1$  e  $\mu_1 \geq 0$ . Note que para o modo tipo s as equações (1.2-51a) e (1.2-51b) são válidas se  $\mu_1$  satisfaz a desigualdade  $-1 < \mu_1 < 0$ . Os valores críticos de  $\epsilon$  e  $\mu_1$  para  $\omega^2 = \omega_m^2$  são calculados a partir dos seguintes valores da função de Green:  $I(3,0,0,0)=0.5055$ ,  $I(3;1,0,0)=0.1721$ ,  $I(3,1,1,0)=0.1104$ ;  $I(3,2,0,0) = 0.0858$ . Neste caso os modos localizados são análogos aos modos localizados obtidos em uma rede monoatômica. Os valores críticos obtidos acima são úteis para os gráficos das frequências dos modos localizados como função de  $\epsilon$  e  $\mu_1$ .

Nas figuras (1.2-2a) e (1.2-2b) são ilustrados o comportamento da frequência do modo tipo s como função de  $\epsilon$  tomando  $\mu_1$  como parâmetro. Os resultados aqui obtidos podem ser considerados uma generalização dos resultados de Mazur, Montroll and Potts (1956) para o cálculo das frequências dos modos localizados de vida a uma impureza isotópica em uma cadeia linear diatômica.

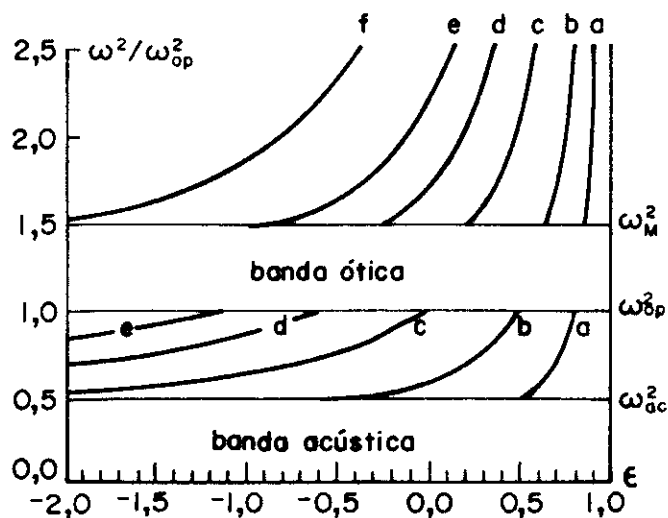
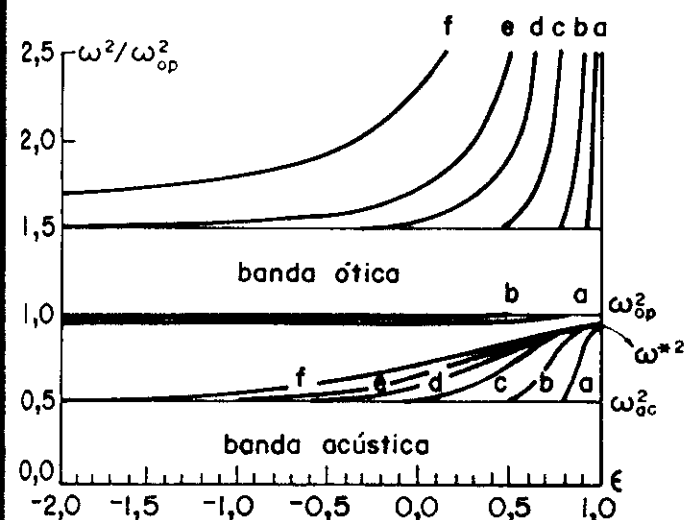


Fig. (1.2-3a) - Frequências do modo tipo s como função de  $\epsilon$  para  $M_1 > M_2$ . As curvas a, b, c, d, e, f correspondem respectivamente aos valores a)  $\mu_1 = -.8$ , b)  $-\mu_1 = -0.5$ , c)  $-\mu_1 = 0$ , d)  $\mu_1 = 0.5$ , e)  $-\mu_1 = 1$ , f)  $-\mu_1 = 2$ .

Fig. (1.2-2b) - Frequências do modo tipo s para  $M_2 > M_1$ .

Existe um interessante comportamento da frequência que aparece dentro do gap no caso quando  $M_1 > M_2$ , todas as frequências convergem para o mesmo valor  $\omega^*$  quando  $\epsilon = 1$  e para  $-1 < \mu_1 < 0$  acima desta frequência os modos que aparecem abaixo do fundo da banda ótica são independentes de  $\epsilon$ . Está demonstrado que a frequência  $\omega^*$  é uma solução de Eq. (1.2-38). Com valor numérico  $\omega^2/\omega_{op}^2 \approx 0.93$ . Takeno (1963) considerou o modo com autofrequência  $\omega^*$  como um modo superficial de uma superfície constituída por seis átomos os quais são os vizinhos mais próximos da impureza.

É interessante notar que do ponto de vista teórico, des

de que os parâmetros da impureza ( $K'_1$  e  $M'_1$ ) não sejam muito diferentes aos do cristal hospedeiro é possível obtermos modos localizados próximos do topo da banda de modos óticos e modos de gap. Para o caso de modos localizados, tais modos devem apresentar uma vida média finita uma vez que suas energias estão próximas ao do cristal hospedeiro, facilitando assim o decaimento. Por outro lado, esperamos que o processo de decaimento de um modo localizado em modos (perturbado) da rede, conserve apenas a energia.

### 1.3 AMPLITUDE DE PROBABILIDADE ASSOCIADA A MODOS LOCALIZADOS TIPO s

É bem conhecido que o Hamiltoniano que descreve as vibrações atômicos de um cristal (perfeito) cúbico simples da forma NaCl, na aproximação harmônica pode ser escrito na forma

$$H = \sum_{\lambda \kappa} \frac{P_{\alpha}^2(\lambda \kappa)}{2 M_{\kappa}} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{\lambda \kappa \\ \lambda' \beta \kappa'}} U_{\alpha}(\lambda \kappa) \phi_{\alpha \beta}(\lambda \kappa; \lambda' \kappa') U_{\beta}(\lambda' \kappa') \quad (1.3-1)$$

onde  $\phi_{\alpha \beta}(\lambda \kappa; \lambda' \kappa')$  etc. foram definidas na seção 1.2 o hamiltoniano (1.3-1) assim escrito pode ser diagonalizado pela seguinte transformação canônica

$$U_{\alpha}(\lambda \kappa) = \frac{\hbar}{2}^{1/2} \sum_{\lambda} \frac{A_{\alpha}^{\lambda}(\lambda \kappa)}{\{\omega_{\lambda}\}^{1/2}} (b_{\lambda} + b_{-\lambda}^+) \quad (1.3-2a)$$

$$P_{\alpha}(\lambda \kappa) = -i \frac{\hbar}{2}^{1/2} M_{\kappa} \sum_{\lambda} \omega_{\lambda}^{1/2} A_{\alpha}^{\lambda}(\lambda \kappa) (b_{\lambda} - b_{-\lambda}^+) \quad (1.3-2b)$$

onde os operadores  $b_{\lambda}^+$  e  $b_{\lambda}$  são respectivamente os operadores de criação e destruição de fonon no modo  $\lambda = (\vec{q}, \sigma)$  e satisfazem as seguintes relações de comutação de bosons

$$|b_{\lambda} b_{\lambda}^+| = \delta_{\lambda \lambda}, \quad |b_{\lambda} b_{\lambda}| = |b_{\lambda}^+ b_{\lambda}^+| = 0 \quad (1.3-3)$$

O coeficiente  $A_{\alpha}^{\lambda}(\ell\kappa)$  representa a amplitude de probabilidade de destruir ou criar um fonon  $\lambda$ , e satisfazem as seguintes relações de ortogonalidade e completeza.

$$\sum_{\lambda} A_{\alpha}^{\star\lambda}(\ell\kappa) A_{\beta}^{\lambda}(\ell'\kappa') = \frac{\delta_{\alpha\beta} \delta_{\ell\ell'} \delta_{\kappa\kappa'}}{M_{\kappa}} \quad (1.3-4a)$$

$$\sum_{\ell\kappa\alpha} M_{\kappa} A_{\alpha}^{\lambda}(\ell\kappa) A_{\alpha}^{\star\lambda'}(\ell\kappa) = \delta_{\lambda\lambda'} \quad (1.3-4b)$$

aqui  $A_{\alpha}^{\star(\lambda)}(\ell\kappa) = A_{\alpha}^{-\lambda}(\ell\kappa)$  denota o complexo conjugado. Para um cristal perfeito  $A_{\alpha}^{\lambda}(\ell\kappa)$  é definido como

$$A_{\alpha}^{(\vec{q},\sigma)}(\ell\kappa) = \frac{1}{(NM_{\kappa})^{1/2}} \epsilon_{\alpha}(\vec{q}\sigma\kappa) e^{i\vec{q}\cdot\vec{R}_{\ell}} \quad (1.3-5)$$

Nosso principal objetivo nesta seção será obtermos uma expressão assintótica para a amplitude de probabilidade  $A_{\alpha}^{\lambda}(\ell\kappa)$  associada a um modo localizado. Desta forma, podemos determinar a perturbação do modo localizado em átomos distantes da impureza o que será de nosso interesse ao tratarmos os termos anarmônicos.

No que segue nos limitaremos ao estudos dos modos localizados do tipo s. O modo localizado do tipo s é o único modo associado ao movimento da impureza ( $v(0) \neq 0$ ). Caracterizado por apresentar grande amplitude, localizada principalmente sobre a impureza. Por esta razão, este tipo de modo pode ser diretamente excitado por um campo de radiação externo.

#### A - AMPLITUDES DO MODO s NA IMPUREZA E NOS SEUS VIZINHOS

Para um cristal perfeito os modos normais  $Q(\vec{q},\sigma)$  definidos por

$$Q(\vec{q}, \sigma) = \frac{\hbar}{\omega_{\lambda}}^{1/2} (b_{\lambda} + b_{-\lambda}^{\dagger}) \quad (1.3-6)$$

são relacionados aos deslocamentos  $U_{\alpha}(\ell\kappa)$  por uma transformação canônica dado pela Eq. (1.3-2). Os índices  $\lambda = (\vec{q}, \sigma)$  deixam de ser apropriados quando uma impureza substitucional é introduzida num cristal perfeito devido ao fato de que a simetria translacional é destruída. Para nosso problema de um modo localizado tipo s usaremos a notação  $\lambda = s$ .

Na seção anterior estudamos de uma maneira geral, que as equações dinâmicas para uma rede cúbica diatômica podem ser reduzidas a uma única equação de movimento dada pela Eq. (1.2-10), onde o primeiro membro representa as vibrações atômicas de um cristal cúbico simples monoatômico de massa  $M^*$  e a solução da Eq. (1.2-10) em termos da função de Green é dada por

$$v(\ell) = \sum_{\ell', \ell''} G(\ell, \ell', \omega^2) \Gamma(\ell', \ell'') V(\ell', \ell'') v(\ell'') \quad (1.3-7)$$

Para uma impureza substitucional os deslocamentos e os modos normais são relacionados pela transformação canônica (Dawber e Elliott (1963))

$$v(\ell) = \sum_s A^{(s)}(\ell) Q(s) \quad (1.3-8)$$

semelhantemente ao caso de uma rede perfeita. Substituindo a Eq. (1.3-8) em a Eq. (1.3-7) encontramos que a amplitude de probabilidade de  $A^{(s)}(\ell)$  no ponto  $R\vec{\ell}$  associada ao modo s é dada pela seguinte equação

$$\begin{aligned} A^{(s)}(\ell) &= \sum_{\ell', \ell''} G(\ell, \ell', \omega^2) \Gamma(\ell', \ell'') V(\ell', \ell'') A^{(s)}(\ell'') \\ &\equiv \sum_{\ell', \ell''} G(\ell, \ell', \omega^2) C(\ell', \ell'') A^{(s)}(\ell'') \end{aligned} \quad (1.3-9a)$$



com

$$C(\ell', \ell'') = \Gamma(\ell', \ell'') V(\ell', \ell'') \quad (\ell' \neq 0) \quad (1.3-9b)$$

Considerando uma impureza substitucional isotópica  $M'_1$  - junto com  $K_1=K_2$  e usando a simetria do modo  $s$  e a Eq. (1.2-27) podemos escrever (1.3-9) na forma

$$A^{(s)}(\ell) = \epsilon \Delta M_1 \omega_s^2 G(\ell, 0, \omega_s^2) A^{(s)}(0) \quad (1.3-10)$$

Agora, usando a condição de normalização (1.3-4b) para o cristal impuro

$$\sum_{\ell \alpha} M^* [A_{\alpha}^{(s)}(\ell)]^2 - \sum_{\alpha} \epsilon^* M^* [A_{\alpha}^{(s)}(0)]^2 = 1 \quad (1.3-11)$$

onde

$$\epsilon^* = \epsilon \Delta M_1 / M^*$$

podemos obter o quadrado da amplitude de um modo localizado ( $\omega_s^2 > \omega_m^2$ ) do tipo  $s$  na posição da impureza como sendo

$$|A^{(s)}(0)|^2 = \frac{1}{3M^*} \left[ \epsilon^2 M_1^2 \Delta^2 \omega_s^4 \sum_{\ell} |G(\ell, 0, \omega_s^2)|^2 - \epsilon^* \right]^{-1} \quad (1.3-12)$$

Considerando a definição da função de Green (1.2-18) e as Eqs. (1.2-11) e (1.2-20) com  $K_1=K_2$ , podemos escrever a somatória que aparece em (1.3-12) na forma

$$\sum_{\vec{l}} [G(\vec{l}, 0, \omega_s^2)]^2 = \frac{1}{36 K_1^2 N} \sum_{\vec{q}} (\epsilon_s + \epsilon_q)^{-2} \quad (1.3-13)$$

onde  $\epsilon_s$  e  $\epsilon_q$  são definidos por

$$\epsilon_s = \left[ \left( \frac{\omega_s^2}{\omega_{oc}^2} - 1 \right) \left( \frac{\omega_s^2}{\omega_{op}^2} - 1 \right) \right]^{1/2} \quad (1.3-14a)$$

$$\epsilon_q = \frac{1}{6} \sum_{\delta} \cos \vec{q} \cdot \vec{R}_{\delta} \quad (1.3-14b)$$

aqui  $\sum_{\delta}$  representa a soma sobre os primeiros vizinhos.

A soma (1.3-13) pode ser calculada com boa aproximação, na região  $\epsilon_s > 1$  (região dos modos localizados  $\omega_s^2 > \omega_m^2$ ) através de uma expansão em  $\epsilon_q/\epsilon_s$  (Ishii, Kanamori e Nakumara (1965)). Desenvolvendo  $(\epsilon_s + \epsilon_q)^{-2}$  em série de potências de  $\epsilon_q/\epsilon_s$  e retendo os termos até segunda ordem, obtemos

$$\sum_{\vec{l}} [G(\vec{l}, 0, \omega_s^2)]^2 = \frac{1}{36 K_1^2 \epsilon_s^4} \{ \epsilon_s^2 + 3(F(2) - 1) \} \quad (1.3-15)$$

onde a função  $F(2)$ , definida por

$$F(n) = N^{-1} \sum_{\vec{q}} (1 - \epsilon_q)^n \quad (1.3-16)$$

foi calculada por Tahir-Kheli e Ter Haar (1962) como sendo

$$F(2) = 1 + Z^{-1} \quad (1.3-17)$$

Aqui  $Z$  representa o número de vizinhos. De maneira análoga podemos obter o quadrado da amplitude do modo  $s$  associado aos primeiros vizinhos

$$[A^{(s)}(\delta)]^2 = \frac{1}{3} \epsilon^2 \Delta M_1 \omega_s^4 G(\delta, 0, \omega_s^2) [\epsilon^2 M^* M_1 \Delta \omega_s^4 \sum_{\ell} [G(\ell, 0, \omega_s^2)]^2 - \epsilon]^{-1} \quad (1.3-18)$$

## B - AMPLITUDE DO MODO s EM PONTOS DISTANTES DA IMPUREZA

Mais adiante, ao tratarmos os termos da interação anharmonica, estaremos interessados na perturbação do modo s em átomos distantes da impureza. Nesta sub-seção, obteremos uma forma assintótica de  $A^{(s)}(\ell)$ , a qual é uma boa aproximação para tratar termos anarmônicos.

A amplitude do modo s em pontos quaisquer do cristal não-situados na impureza, é dado por (Eq. (1.3-10))

$$A^{(s)}(\ell) = \epsilon \Delta M_1 \omega_s^2 A^{(s)}(0) G(\ell, 0, \omega_s^2) \quad (\ell \neq 0) \quad (1.3-19)$$

para obtermos  $A^{(s)}(\ell)$  em pontos distantes da impureza, usaremos uma expressão assintótica para a função de Green  $G(\ell, 0, \omega_s^2)$ , a qual foi obtida por Callaway (1964) aplicando o método de fase estacionária. Aqui descreveremos de maneira sumária sua obtenção, para rede cúbica simples.

O procedimento de Callaway consistia primeiro em transformar de maneira usual a soma em integral a função de Green dada pela Eq. (1.2-18)

$$G(m, n, \omega_s^2) = \frac{V_c}{(2\pi)^3} \int \frac{e^{i\vec{q} \cdot (\vec{R}_m - \vec{R}_n)} d^3\vec{q}}{M^* \omega^2(\vec{q}) - M^* \omega_s^2 - i\epsilon}, \quad \epsilon \rightarrow 0^+ \quad (1.3-20)$$

onde  $V_c$  é o volume da célula unitária e a integração é estendida a primeira zona de Brillouin, e em seguida integrar a Eq. (1.3-20) - fazendo uso do método de fase estacionária, o que nos leva para a seguinte expansão assintótica para a função de Green  $G(m,n,\omega_s^2)$

$$G(m,n,\omega_s^2) = \frac{3a}{2\pi(6K_1)} \left(1 + \frac{(q_0 a)^2}{10}\right) \frac{e^{iq_0|\vec{R}_m - \vec{R}_n|}}{|\vec{R}_m - \vec{R}_n|} ; |\vec{R}_m| \gg |\vec{R}_n| \quad (1.3-21)$$

onde  $q_0$  é determinado pela condição

$$\omega_s = \omega(q_0) \quad (1.3-22)$$

A Eq. (1.3-21) é válida para qualquer tipo de modo de impureza em uma rede cúbica simples. Para modos localizados ( $\omega_s^2 > \omega_1^2 + \omega_2^2$ )  $q_0$  é complexo.

Considerando modos localizados tipo s e usando a definição de  $\epsilon_s$  (Eq. (1.3-14a)) temos para  $G(m,0,\omega_s^2)$

$$G(m,0,\omega_s^2) = \frac{1}{4} \frac{a}{\pi K_1} \left(1 - \frac{(\kappa_s a)^2}{10}\right) \frac{e^{-\kappa_s R_m}}{R_m} , \quad R_m \gg 0 \quad (1.3-23)$$

onde usamos o fato de ser  $q_0$  complexo para modos localizados, escrevendo

$$q_0 = i\kappa \quad (1.3-24)$$

$\kappa$  é determinado pela seguinte equação transcendental

$$\epsilon(i\kappa_s) = \epsilon_s \quad ; \quad \epsilon_s > 1 \quad (1.3-25)$$

uma solução analítica de

$$M^* \omega^2(q) = 2\kappa_1 (3 - \cos q_x a - \cos q_y a - \cos q_z a) \quad (1.3-26)$$

pode ser obtida através de uma expansão em  $a\kappa_s$  limitando porém a modos localizados próximos do topo da banda ótica com esta condição podemos usar como solução de (1.3-26)

$$\kappa_s = a^{-1} \sqrt{6(\epsilon_s - 1)} \quad (1.3-27)$$

Finalmente a função de onda associada a um modo localizado tipo  $s$  pode ser escrita na forma (usando (1.3-15), (1.3-23) e (1.3-27))

$$A^{(s)}(m) = \frac{a\epsilon\Delta M_1 \omega_s^2}{4\pi\kappa_1} \mu(\epsilon_s) \frac{e^{-\kappa_s R_m}}{R_m} A^{(s)}(0), R_m \gg 0 \quad (1.3-28)$$

$$\text{onde } \mu(\epsilon_s) = \frac{8-3\epsilon_s}{5} \quad (1.3-29)$$

#### 1.4 VÉRTICE PARA PROCESSOS ENVOLVENDO UM MODO LOCALIZADO E DOIS FONONS DA REDE

Nosso objetivo nesta seção é obtermos o vértice para processos envolvendo um modo localizado tipo  $s$  e dois modos de fo-

non da rede usando para isto a interação anarmônica. Nos limitaremos a termos envolvendo três modos, porque, sendo este o processo não-linear de ordem mais baixa, obteremos para excitação paramétrica de fonons via modos localizados (que veremos mais adiante) limites de potência mais baixos.

A interação anarmônica num cristal (cúbico simples de massa  $M^*$ ) contendo uma impureza isotópica pode ser escrito na seguinte forma

$$H_I = \frac{1}{3!} \sum_{\ell, \ell', \ell''} \vec{v}(\ell) \vec{v}(\ell') \vec{v}(\ell'') \vec{\Phi}(\ell, \ell', \ell'') \quad (1.4-1)$$

onde  $\vec{v}(\ell)$  é o deslocamento do  $\ell$ -ésimo átomo de sua posição de equilíbrio e  $\vec{\Phi}(\ell, \ell', \ell'')$  é um tensor de ordem três que caracteriza o acoplamento anarmônico. Em termos dos operadores  $b_s$  e  $b_s^+$ , usando para isto as equações (1.3-6) e (1.3-8) podemos escrever  $\vec{v}(\ell)$  na seguinte forma

$$\vec{v}(\ell) = \hbar^{1/2} \left( \sum_q \frac{\vec{A}^{(q)}(\ell)}{\omega_q^{1/2}} (b_q + b_{-q}^+) + \sum_\alpha \frac{\vec{A}^{(\alpha)}(\ell)}{\omega_\alpha^{1/2}} (b_\alpha + b_{-\alpha}^+) \right) \quad (1.4-2)$$

onde o somatório em  $q$  refere-se aos modos não-perturbados de fonon da banda de energia do cristal hospedeiro, enquanto que o somatório em  $\alpha$  refere-se aos modos da impureza. Usando-se (1.4-2) em (1.4-1) e seleccionando apenas os termos que representam o decaimento de um modo de impureza em dois modos da rede, obtemos

$$H_I = \frac{\hbar^{3/2}}{2} \sum_{\substack{\ell, \ell', \ell'' \\ \alpha, q, q'}} \vec{A}^{(\alpha)}(\ell) \frac{\vec{A}^{(q)}(\ell') \vec{A}^{(q')}(\ell'')}{(\omega_\alpha \omega_q \omega_{q'})^{1/2}} \vec{\Phi}(\ell, \ell', \ell'') .$$

$$. (b_\alpha b_{-q}^+ b_{-q'}^+ + \text{c.c.}) \quad (1.4-3)$$

Substituindo-se  $A^{(\alpha)}(\ell)$  por (1.3-28) e aproximando os  $\vec{A}^{(q)}(\ell)$  perturbados por (1.3-5) (o qual é uma boa aproximação para pontos distantes da impureza). (1.4-3) pode ser escrita na forma

$$H_I = \frac{1}{N} \sum_{\ell, \alpha, q, q'} F(\vec{q}, \vec{q}') A^{(\alpha)}(\ell) e^{i(\vec{q} + \vec{q}') \cdot \vec{R}\ell} .$$

$$(b_\alpha b_{-q}^+ b_{-q'}^+ + b_{-\alpha}^+ b_{q'} b_q) \quad (1.4-4)$$

onde

$$F(q, q') = \frac{\hbar^{3/2}}{2M^*} \sum_{h, h'} \frac{e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}_h} e^{i\vec{q}' \cdot \vec{R}_{h'}} \vec{\epsilon}^{(\alpha)} \vec{\epsilon}^{(q)} \vec{\epsilon}^{(q')}: \vec{\Phi}}{(\omega_\alpha \omega_q \omega_{q'})^{1/2}} \quad (1.4-5)$$

$$(1.4-5)$$

Aqui  $\vec{\epsilon}^{(\alpha)}$  representa um vetor de polarização associado a impureza e  $\vec{\Phi}$  o tensor de força anarmônica (constante). Considerando interação só entre primeiros vizinhos e transformando a soma em  $\ell$  por uma representação integral, isto é

$$N^{-1} \sum_{\ell} \frac{C}{R\ell} e^{i(\vec{q} + \vec{q}') \cdot \vec{R}\ell} e^{-\kappa_\alpha R\ell} \rightarrow \frac{1}{V} \int \frac{e^{i(\vec{q} + \vec{q}') \cdot \vec{R}\ell} e^{-\kappa_\alpha R\ell}}{R\ell} d^3 R\ell$$

$$(V = N_a^3) \quad (1.4-6)$$

O Hamiltoniano para o processo envolvendo um modo localizado e dois fonons da rede pode ser escrito na forma

$$H_I = \sum_{\alpha q q'} V(qq', \alpha) (b_{\alpha} b_{-q}^+ b_{-q'}^+ + b_{-\alpha}^+ b_q b_{q'}) \quad (1.4-7a)$$

onde

$$V(q, q', \alpha) = N^{-1} F(qq') F(\alpha) \sigma(qq', \kappa_{\alpha}) \quad (1.4-7b)$$

$$\sigma(qq', \kappa_{\alpha}) = \frac{a^{-2}}{|\vec{q} + \vec{q}'|^2 + \kappa_{\alpha}^2} \quad (1.4-7c)$$

$$\kappa_{\alpha} = a^{-1} \sqrt{6(\epsilon_{\alpha} - 1)} \quad (1.4-7d)$$

$$F(\alpha=s) = \frac{\Delta \epsilon M_1 \omega_s^2}{K_1} \mu(\epsilon_s) A^{(s)}(0) \quad (1.4-7e)$$

A equação (1.4-7a) representa um processo no qual um modo localizado decai em um par de fonons da banda de energia do cristal hospedeiro, como também o processo inverso, onde um modo de impureza é criado pela destruição de dois modos de onda de fonon (veja Figs. (1.4-1a) e (1.4-1b)). Nestes processos como era de se esperar, não temos conservação de momentum, devido a presença da função  $\sigma(q, q', \kappa_{\alpha})$  no vértice (1.4-7b)



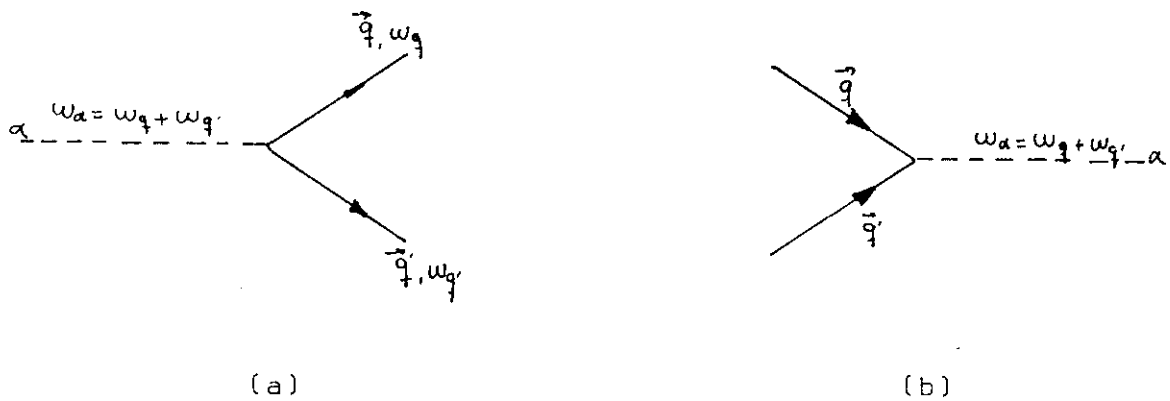


Fig. (3.5-1) Processos envolvendo três modos. (a) Decaimento de um modo localizado em um par de fonons da banda de energia do cristal hospedeiro. (b) um modo localizado é criado pela destruição de dois modos de onda de fonon.

Contudo, vemos que a amplitude máxima de  $\sigma(q, q', \kappa_\alpha)$  se verifica para  $\vec{q} = -\vec{q}'$  traduzindo assim o processo mais provável. No estudo de excitação paramétrica de fonons da rede via modos localizados, nos limitaremos a este processo ( $\vec{q} = -\vec{q}'$ ), pelo fato de sendo o mais provável, conduzirá a limiares de potência mais baixo.

Na análise que se segue nas próximas seções, escreveremos o Hamiltoniano total do nosso sistema, considerando só processos nos quais  $\vec{q} = -\vec{q}'$ , na forma

$$\begin{aligned}
 H = & \sum_q \hbar \omega_q b_q^\dagger b_q + \sum_{\alpha (=s)} \hbar \omega_\alpha b_\alpha^\dagger b_\alpha + \\
 & + \sum_q \hbar f(q) \{ b_{\alpha=-q}^\dagger b_q + b_\alpha b_{-q}^\dagger b_q \}
 \end{aligned}
 \tag{1.4-8}$$

onde  $\hbar \omega_q$  representa a relação de dispersão dos modos de fonons da banda de energia do cristal hospedeiro,  $\hbar \omega_\alpha$  é a energia do modo lo

calizado definida por

$$\omega_s = \frac{1}{2} \omega_m (1 + \epsilon_s) \quad (1.4-9)$$

$\omega_m$  é a frequência máxima de banda ótica. Finalmente, o vértice do termo não-linear apresenta em (1.4-12) é escrito na forma

$$f(q) = \hbar^{-1} V(q, -q, \kappa_\alpha) \quad (1.4-10)$$

Na seção seguinte estudaremos de uma maneira geral a condição de instabilidade para processos envolvendo três bosons, para depois aplicarmos estes resultados ao processo envolvendo um modo localizado e dois fonons.

#### 1.5 CONDIÇÃO DE INSTABILIDADE PARA PROCESSOS ENVOLVENDO TRÊS MODOS

Processos de instabilidade paramétrica são bem conhecidos, por exemplo, em trabalhos de ressonância ferromagnética (Damon (1953), Shul (1957)), física de plasmas (DuBois e Goldman (1965)) e ótica não-linear (Blombergen 1965). Orbach (1965) foi o primeiro em demonstrar que é possível criar um número muito grande de fonons acústicos por instabilidade paramétrica e Sparks e Chow (1974) consideraram absorção não-linear de radiação infravermelha por excitação paramétrica de fonons. A principal característica deste fenômeno é que, se um destes modos é bombeado por um campo eletromagnético bastante forte, verifica-se que, a partir de um certo valor crítico do campo, o número de fonons diretamente acoplados com o modo bombeado crescem causando assim instabilidade.

Antes de considerarmos o caso específico de três modos discutiremos de maneira sumária a teoria geral da instabilidade in

introduzida por White e Sparks (1963). Vamos supor que o sistema é descrito por um Hamiltoniano de interação  $H_I$ , envolvendo produtos de operadores de bosons, as auto-funções de tal sistema

$$|n_{k_1}, n_{k_2} \dots n_{k_1} \dots\rangle \quad (1.5-1)$$

sendo representadas pelo número de bosons em cada estado. Os operadores de criação e destruição  $b_{k_1}^+$ ,  $b_{k_1}$ , possuem os seguintes elementos de matriz não nulos

$$\langle n_{k_1}, n_{k_2} \dots (n_{k_1} + 1) \dots | b_{k_1}^+ | n_{k_1}, n_{k_2} \dots n_{k_1} \rangle = (n_{k_1} + 1)^{1/2} \quad (1.5-2a)$$

$$\langle n_{k_1}, n_{k_2} \dots (n_{k_1} - 1) | b_{k_1} | n_{k_1}, n_{k_2} \dots n_{k_1} \rangle = (n_{k_1})^{1/2} \quad (1.5-2b)$$

Segundo a teoria de perturbação dependente do tempo, a probabilidade de transição por unidade de tempo (TP) para que o sistema em um estado inicial  $|n_{k_1}, n_{k_2} \dots n_{k_1}\rangle = |k\rangle$  faça uma transição para um outro estado  $|n_{k'_1}, n_{k'_2} \dots n_{k'_1}\rangle = |k'\rangle$  é dada por

$$TP(k \rightarrow k') = \frac{2\pi}{\hbar} \int |\langle k' | H_I | k \rangle|^2 \rho(E) \delta(E_k - E_{k'}) dE \quad (1.5.3a)$$

com a densidade dos estados finais  $\rho(E)$ , suposta na forma Lorentziana

$$\rho(E) = \frac{1}{\pi\hbar} \frac{\eta_{k'}}{\eta_{k'}^2 + (\omega_{k'} - \omega_k)^2} \quad (1.5-3b)$$

onde  $\eta_{k'}$ , é a frequência de relaxação do estado final. Aqui vamos limitar a processos nos quais o estado final é constituído de dois

bosons com vetores de onda iguais e opostos. Neste caso, supondo que as frequências de relaxação  $\eta_k$  são independentes da direção dos vetores de onda, podemos então escrever a frequência de relaxação do estado final na forma

$$\eta_{k'} = \eta_k + \eta_{-k} = 2\eta_k \quad (1.5-4)$$

Em geral, o Hamiltoniano de interação  $H_I$  produz transições entre os vários estados do sistema, mudando assim o número de ocupação destes estados. Em particular, estaremos interessados na parte de  $H_I$  a qual produz transições entre o modo inicialmente excitado (modo localizado) e os modos que tornam-se instáveis (fônons da rede). Denotando o número de ocupação do modo inicial (modo bombeado) por  $n_0$ , podemos então escrever para a taxa de energia que é transferida para os modos eventualmente instáveis,

$$\hbar\omega_0 \left( \frac{dn_0}{dt} \right)_{\text{trans}} = \Delta n_0 \hbar\omega_0 \{ TP(n_0 \rightarrow \Delta n_0 + n_0) - TP(n_0 + n_0 - \Delta n_0) \} \quad (1.5-5)$$

A variação no número de ocupação,  $\Delta n_0$ , depende da ordem do processo. Assim, por exemplo, em qualquer processo de primeira ordem (ao qual limitaremos nossas considerações) teremos  $\Delta n_0 = 1$ . Por outro lado, se a relaxação de um modo  $k$  potencialmente instável pode ser descrita pela frequência de relaxação  $\eta_k$ , então podemos escrever para a taxa de energia que deixa este modo

$$\hbar\omega_k \left( \frac{dn_k}{dt} \right)_{\text{relax}} = -\hbar\omega_k (2\eta_k) (n_k - \bar{n}_k) \quad (1.5-6)$$

onde

$$\bar{n}_k = [\exp(\beta \hbar\omega_k) - 1]^{-1}; \quad \beta = (k_B T)^{-1},$$

é o número de ocupação dos modos  $k$  em equilíbrio térmico.

A condição física para se estabelecer um critério geral de instabilidade, é que a instabilidade ocorre quando o número de quanta no modo  $k$  exigido para manter o equilíbrio (igualdade das equações (1.5-5) e (1.5-6)) se torna infinito. Desde que estejamos sempre no mais baixo limiar, tomaremos o valor máximo da probabilidade de transição (1.5-3) o qual ocorre para  $\omega_k = \omega_{k'}$ .

Vamos agora considerar o caso particular de processos envolvendo três modos. O Hamiltoniano do sistema, incluindo a parte responsável pela transição entre o modo bombeado (denotado pelo índice  $o$ ) e os modos  $k$  e  $-k$  será escrito na forma

$$H = \sum_{k(\neq 0)} \hbar \omega_k b_k^\dagger b_k + \hbar \omega_o b_o^\dagger b_o + \sum_{k(\neq 0)} (\hbar \tilde{f}(k) c_o^\dagger c_k^\dagger c_{-k} + \hbar \tilde{f}(k) c_o^\dagger c_k c_{-k}) \quad (1.5-7)$$

onde  $f(k)$  representa o acoplamento entre os modos envolvidos no processo.

Usando o segundo termo de (1.5-7) como Hamiltoniano de interação, teremos para os elementos da matriz não nulas, que entram no cálculo das probabilidades de transição em (1.5-2)

$$\langle (n_o+1)(n_k-1)(n_{-k}-1) | H_I | n_o n_k n_{-k} \rangle = \hbar \tilde{f}(k) \sqrt{(n_o+1)n_k n_{-k}} \quad (1.5-8a)$$

$$\langle (n_o-1)(n_k+1)(n_{-k}+1) | H_I | n_o n_k n_{-k} \rangle = \hbar \tilde{f}(k) \sqrt{n_o(n_k+1)(n_{-k}+1)} \quad (1.5-8b)$$

Usando agora estes elementos de matrizes podemos obter a taxa de energia que é transferida do modo bombeado para os modos  $k$  e  $-k$ , eventualmente instáveis.

$$\hbar\omega_0\left(\frac{dn_0}{dt}\right)_{\text{trans}} = \frac{2\pi}{\hbar} \frac{\hbar\omega_0}{2\pi\hbar\eta_k} |\hbar f(k)|^2 \{(n_0+1)n_k n_{-k} - n_0(n_k+1)(n_{-k}+1)\} \quad (1.5-9)$$

Por outro lado, a taxa de energia que deixa o par modos  $k, -k$  por processos de relaxação será

$$\hbar\omega_k\left(\frac{dn_k}{dt}\right)_{\text{relax}} = -\hbar\omega_k(2\eta_k)\{(n_k - \bar{n}_k) + (n_{-k} - \bar{n}_{-k})\} \quad (1.5-10)$$

Da igualdade das equações (1.5-9) e (1.5-10) podemos obter o número de quanta no modo  $k$  exigido para manter o equilíbrio, na forma

$$n_k = \left[ \frac{n_c}{n_c - n_0} \right] \bar{n}_k \quad (1.5-11)$$

onde

$$n_c = \frac{\eta_k^2}{|f(k)|^2} \quad (1.5-11b)$$

Ao estabelecermos as Eqs. (1.5-11) usamos a conservação da energia  $\omega_0 = 2\omega_k$  e a desigualdade  $1 \ll n_k, n_{-k} \ll n_0$  válida em instantes antes de ocorrer a instabilidade. Podemos agora aplicar a condição física que define a instabilidade, discutida anteriormente. Portanto, instabilidade ocorre quando  $n_c = n_0$ . Assim, o número crítico de modos bombeados não-lineares é dado por

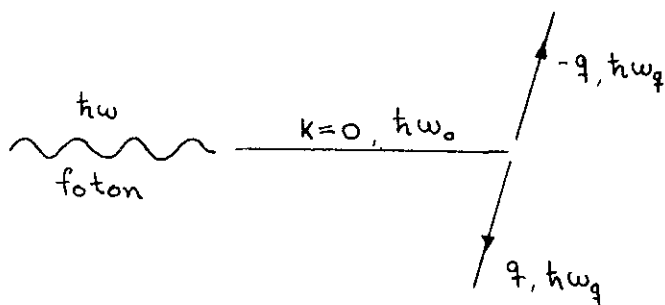
$$n_0^{\text{crit}} = \frac{\eta_k^2}{|f(k)|^2} \quad (1.5-12)$$

Na seção seguinte usaremos este resultado no estudo de excitação pa-ramétrica de fonons, via modos localizados.

## 1.6 EXCITAÇÃO PARAMÉTRICA DE FONONS VIA MODOS LOCALIZADOS

Os processos de instabilidade paramétrica produzidos - por absorção de radiação infravermelha foram estudados teoricamente por Levinson (1973), Sparks e Chow (1974) e observados em experiências de luminescência por Colles e Giordmaine (1971). A descrição física de instabilidade paramétrica de dois fonons é a seguinte:

Consideremos o processo de dois fonons onde um foton é destruído, um fonon fundamental (modo ótico transversal com vetor de onda  $k \approx 0$ ) é criado, depois destruído, e outros dois fonons são criados, ver figura (1.6-1)



Este processo é diretamente análogo ao processo de ressonância subsidiária de Shul (1957) descoberta em conexão com experiências de ressonância ferromagnética (Damón (1953)), Bloembergen e Wang (1954). O fonon fundamental corresponde ao magnon de precessão uniforme (com  $\vec{k}=0$ ) e o par de fonons correspondem ao par de magnons criados.

Nosso principal objetivo nesta seção será propor um novo mecanismo capaz, em princípio, de excitar pares de fonons com  $|\vec{q}|$  muito elevado. Como vimos anteriormente, a interação anarmônica com impurezas pode induzir transições entre modos de impureza e modos de fonon da rede. Usando esta interação podemos então estudar

a instabilidade de fonons após a aplicação de radiação eletromagnética na região infra-vermelha, a qual poderá ser fornecida por uma fonte de laser. Alguns fotons absorvidos pelo cristal a partir de um certo número crítico  $n_0^{\text{crit.}}$  será imediatamente convertido em pares de fonons, através do aniquilamento de um modo localizado. Nestas condições, a probabilidade para existirem processos diretos (decaimento de modos localizados em pares de fonons) excede a probabilidade de relaxação (dos fonons  $\vec{q}$ ) fazendo com que a população dos fonons paramétricos atinja valores altos.

O mecanismo aqui proposto para excitar parametricamente fonons via modos localizados tem como base o hamiltoniano (1.4-8)

$$H = \sum_q \hbar \omega_q b_q^\dagger b_q + \sum_{\alpha (=s)} \hbar \omega_\alpha b_\alpha^\dagger b_\alpha + \sum_q \hbar f(q) \{ b_s^\dagger b_{-q} b_q + b_s b_{-q}^\dagger b_q^\dagger \} \quad (1.6-1)$$

obtido de maneira a fornecer limiar (threshold) de potência mais baixo. Vamos agora introduzir em (1.6-1) o Hamiltoniano de interação do campo de fotons, responsável pelo bombeamento dos modos localizados

$$H_{ff} = \frac{-e}{M'C} \vec{A}(0) \cdot \vec{P}(0) \quad (1.6-2)$$

O potencial vetorial na posição da impureza, pode ser escrito na forma

$$\vec{A}(0) = \left( \frac{2\pi\hbar c^2}{V\omega} \right)^{1/2} \vec{E}(a_k + a_k^\dagger) \quad (1.6-3)$$

e  $\vec{p}(0)$  o momento da impureza, considerando apenas o modo de tipo s, é escrito como



$$\vec{P}(0) = -ie_0 \frac{\hbar}{2} M' \omega_s^{1/2} (\vec{A}^{(s)}(0) b_s - A^{*(s)}(0) b_s^\dagger) \quad (1.6-4)$$

(o fato de considerar apenas o modo de tipo s é devido a que este modo é totalmente simétrico e portanto, como demonstrou Wallis e Maradudin (1960), o momento dipolar elétrico é não nulo).

Aqui  $e_0$  é a carga da impureza,  $c$  a velocidade da luz,  $a_k^\dagger$  e  $a_k$  são operadores de criação e destruição de fons,  $\vec{e}$  vetor de polarização da radiação  $\hbar$  é a constante de Planck e  $V$  é o volume o qual define, para  $n_L$  fons incidentes, uma densidade de energia eletromagnética  $n_L \hbar \omega / V$ . Desta maneira, podemos obter a parte de (1.6-2) responsável pela excitação direta dos modos localizados tipo s, escrita na forma

$$H_{f \sim f} = iG\hbar (a_k^\dagger b_s - a_k b_s^\dagger) \quad (1.6-5)$$

onde

$$G = e_0 \left( \frac{\pi}{V} \right)^{1/2} A^{(s)}(0) \quad (1.6-6)$$

onde  $A^{(s)}(0)$  é a amplitude do modo s na posição da impureza.

Finalmente o Hamiltoniano total para o processo de excitação paramétrica de fons via modos localizados é,

$$H = \sum_q \hbar \omega_q b_q^\dagger b_q + \sum_{\alpha (=s)} \hbar \omega_\alpha b_\alpha^\dagger b_\alpha + \\ + \sum_q \hbar f(q) \{ b_{\alpha-q}^\dagger b_q + b_\alpha^\dagger b_{-q} \} + iG\hbar (a_k^\dagger b_s - a_k b_s^\dagger) \quad (1.6-7)$$

Usando agora os resultados da seção 1.5 vemos que o número crítico de modos localizados bombeados  $n_s^{\text{crit}}$  necessário para dar início ao

processo não-linear será dado por [comparando (1.4-8) e (1.6-1) e usando Eq. (1.5-12)]

$$n_s^{\text{crit}} = \frac{\eta_q^2}{|f(q)|^2} \quad (1.6-8)$$

para obtermos a relação entre o número de ftons incidentes e o número de modos localizados bombeados, vamos obter a equação de movimento para os operadores  $b(t)$  escrito como  $b(t) = C(t) e^{i\omega t}$  através de  $i\hbar b(t) = [b, H]$  com  $H$  dado em (1.6-7). Temos

$$\dot{C}_s = 2\eta_s C_s + I_m \sum_q f(q) C_{-q} C_q e^{i(2\omega_q - \omega_s)t} - G A_k e^{i(\omega - \omega_s)t} \quad (1.6-9)$$

onde a frequência de relaxação dos modos localizados  $\eta_s$ , foi introduzida fenomenologicamente de maneira usual ( $\omega_s \rightarrow \omega_s + i\eta_s$ ). Portanto, na região linear ( $f(q) = 0$ ) estacionária ( $\dot{C}_s(t) = 0$ ), o número de ocupação dos modos localizados  $n_s = C_s^\dagger C_s$  é proporcional ao número de ocupação dos ftons incidentes  $n_k = A_k^\dagger A_k$ .

$$n_s = \frac{G^2}{2\eta_s} n_k \quad (1.6-10)$$

Assim, o número crítico de ftons incidentes necessário para dar início aos processos não-lineares com a condição de ressonância  $\omega = \omega_s = 2\omega_q$ , será

$$n_k = \frac{2\eta_s \eta_q}{G |f(q)|^2} \quad (1.6-11)$$

A amplitude  $E$  do campo eletromagnético responsável pela excitação dos modos localizados é de fácil acesso experimental,

e pode ser obtida igualando a densidade de energia eletromagnética

$$a \frac{n_q \hbar \omega}{V} ; \text{ i.e.}$$

$$\frac{E^2}{8\pi} = \frac{n_q \hbar \omega}{V} \quad (1.6-12)$$

Assim, a amplitude crítica será

$$(E_{\text{crit}})^2 = \frac{8\pi}{V} \hbar \omega \frac{2\eta_s \eta_q}{G |f(q)|}^2 \quad (1.6-13)$$

usando agora a expressão para  $f(q)$  dada em (1.4-10) obtemos

$$\eta_q^{\text{crit}} = \frac{\hbar^2}{C_0^2 |\sigma(\kappa_s)|^2 |F(s)|^2} \left| \frac{2\eta_s \eta_q}{G F(q)} \right|^2 \quad (1.6-14)$$

aqui  $C_0$  representa a concentração de impurezas ( $C_0 = \frac{N_{\text{imp}}}{N}$ ).

O efeito de adicionar mais impurezas foi suposto ser - aproximadamente aditivo (baixa-concentração). Na próxima seção, com objetivo de estimar a ordem de grandeza de potência de uma fonte de laser capaz de fornecer  $\eta_q^{\text{crit}}$ , estimaremos a ordem de grandeza da relaxação do modo localizado, usando como mecanismo o decaimento de um modo  $s$  em dois fonons.

## 1.7 ESTIMATIVA DA RELAXAÇÃO DE MODOS LOCALIZADOS TIPO $s$

Como vimos na seção anterior para obtermos a potência - de laser capaz de fornecer  $\eta_q^{\text{crit}}$  será necessário conhecermos a relaxação do modo localizado. Nesta seção procuraremos obter a ordem de grandeza de relaxação de modos localizados tipo  $s$ , escolhendo como

mecanismo o decaimento do modo  $s$  em dois fonons da banda do cristal hospedeiro. No cálculo usaremos teoria de perturbação em primeira - ordem e faremos algumas hipóteses simplificadoras no cálculo das integrais envolvidas. (para detalhes do cálculo veja por exemplo - Akhiezer, Baryakhtar e Poletminskii (1968); Sparks (1964)).

O Hamiltoniano que fornece o decaimento de um modo localizado em um par de fonons da banda de energia do cristal hospedeiro Eq. (1.4-11a) é

$$H_I = \sum_{\alpha q q'} V(qq'\alpha) b_{\alpha}^{\dagger} b_q^{\dagger} b_{q'} + \text{C.C.} \quad (1.7-1)$$

Vamos considerar inicialmente a probabilidade de transição por unidade de tempo (TP), para que o modo localizado decaia em dois fonons (veja fig. (1.7-1) o elemento de matriz para este processo será

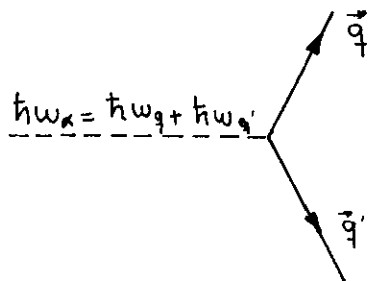


Fig. (1.7-1) Decaimento do modo localizado em dois fonons

$$\langle (n_{\alpha}-1)(n_q+1)(n_{q'}+1) | H_I | n_{\alpha} n_q n_{q'} \rangle =$$

$$\left[ n_{\alpha} (n_q+1) (n_{q'}+1) \right]^{1/2} (V(qq'\alpha) + V(q'q\alpha))$$

(1.7-2)

a probabilidade por unidade do tempo pode ser escrita na forma

$$TP(m \rightarrow n) = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle n | H | m \rangle|^2 \delta(E_n - E_m) \quad (1.7-3)$$

Portanto, a probabilidade para o decaimento será

$$TP(n_\alpha \rightarrow n_\alpha - 1) = \frac{2\pi}{\hbar} [V(q, q', \alpha) + V(q', q, \alpha)]^2 n_\alpha (n_q + 1) (n_{q'} + 1) \delta(\hbar\omega_q + \hbar\omega_{q'} - \hbar\omega_\alpha) \quad (1.7-4)$$

Para o processo inverso (veja fig. (1.7-2)), onde um modo localizado é criado pela destruição de dois fonons, temos

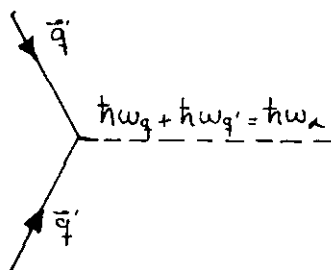


Fig. (1.7-2) Criação do modo localizado pela destruição de dois fonons

$$\langle (n_\alpha + 1) (n_q + 1) (n_{q'} - 1) | H_I | n_\alpha n_q n_{q'} \rangle = |(n_\alpha + 1) n_q n_{q'}|^{1/2} |V(qq', \alpha) + V(q', q, \alpha)| \quad (1.7-5)$$

e conseqüentemente

$$TP(n_\alpha \rightarrow n_\alpha + 1) = \frac{2\pi}{\hbar} |V(qq', \alpha) + V(q', q, \alpha)|^2 (n_\alpha + 1) n_q n_{q'} \delta(\hbar\omega_q + \hbar\omega_{q'} - \hbar\omega_\alpha) \quad (1.7-6)$$

a taxa de variação por unidade de tempo, do número de ocupação dos

modos localizados, como consequência dos processos de decaimento e de criação, será dada pela diferença

$$\frac{dn_{\alpha}}{dt} = \sum_{qq'} |TP(n_{\alpha} \rightarrow n_{\alpha}-1) - TP(n_{\alpha} \rightarrow n_{\alpha}+1)| \quad (1.7-7)$$

a qual pode ser escrita na forma

$$\frac{dn_{\alpha}}{dt} = L_d\{n\} \quad (1.7-8a)$$

onde

$$L_d\{n\} = \frac{1}{2} \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{qq'} |V(qq'\alpha) + V(q'q\alpha)|^2 [n_{\alpha}(n_q+1)(n_{q'}+1) - (n_{\alpha}+1)n_q n_{q'}] \delta(\hbar\omega_q + \hbar\omega_{q'} - \hbar\omega_{\alpha}) \quad (1.7-9)$$

a quantidade  $L_d\{n\}$  é denominada de "integral de colisão" e facilmente se verifica que (usando conservação de energia)

$$L_d\{\tilde{n}\} = 0 \quad (1.7-10)$$

onde  $\tilde{n}$  é o número de ocupação em equilíbrio térmico dado por

$$\bar{n}_q = [\exp(\beta\hbar\omega_q) - 1]^{-1} \quad \beta = (k_B T)^{-1} \quad (1.7-11)$$

o fator  $\frac{1}{2}$  em (1.7-9) leva em conta o fato de que a troca  $q \rightleftharpoons q'$  não conduz a estados finais diferentes. Supondo que  $n_q$  não seja muito diferente de seu valor de equilíbrio

$$n_q = \bar{n}_q + \delta n_q, \quad \delta n_q \ll \bar{n}_q \quad (1.7-12)$$

podemos obter, através da expansão de  $L_d\{n\}$  em termos de  $\delta_{nk}$  a frequência de relaxação dos modos localizados devido ao processo de decaimento em dois fonons

$$\frac{1}{\tau_\alpha} = \frac{dL_d\{n\}}{d\delta n} = \frac{\pi}{\hbar} \sum_{qq'} |V(qq'\alpha) + V(q'q\alpha)|^2 (\bar{n}_q + \bar{n}_{q'} + 1) \times$$

$$\times \delta(\hbar\omega_q + \hbar\omega_{q'}, -\hbar\omega_\alpha) \quad (1.7-13)$$

usando (1.7-11) e a conservação de energia, podemos escrever

$$(\bar{n}_q + \bar{n}_{q'} + 1) = \frac{1}{2} \frac{\sinh(\frac{1}{2}\beta\hbar\omega_\alpha)}{\sinh(\frac{1}{2}\beta\hbar\omega_q) \sinh(\frac{1}{2}\beta\hbar\omega_{q'})}$$

$$\approx k_B T \frac{\omega_\alpha}{\hbar\omega_q \omega_{q'}} \quad k_B T \gg \hbar\omega_{q,q'} \quad (1.7-14)$$

usando agora o vértice (1.4-7b), podemos escrever

$$\frac{1}{\tau_s} \approx \frac{1300 \pi k_B T |F(\alpha=s)|^2 \phi^2}{M^{*2}} \frac{1}{N^2} \sum_{qq'} \frac{\sigma^2(qq'\alpha)}{(\omega_q \omega_{q'})^2} \delta(\omega_q + \omega_{q'} - \omega_\alpha) \quad (1.7-15)$$

transformando o somatório em integral de maneira usual, temos

$$\frac{1}{\tau_s} \approx \frac{1300 \pi k_B T |F(\alpha=s)|^2 \phi^2}{M^{*2}} I \quad (1.7-16)$$

onde

$$I = \frac{V_c^2}{(2\pi)^6} \int \frac{d^3q d^3q'}{(\omega_q \omega_{q'})^2} \sigma^2(qq'\alpha) \delta(\omega_q + \omega_{q'} - \omega_\alpha) \quad (1.7-17)$$

e  $V_c$  é o volume da célula unitária. A integral de cima foi estimada supondo uma relação de dispersão linear  $\omega_q = \alpha q$  para o decaimento em dois fonons acústicos.

## 1.8 CONCLUSÕES

Neste capítulo, efeitos não lineares envolvendo modos localizados de vibração associados a impurezas isotópicas, foram analisados teoricamente. Com o mecanismo aqui proposto é possível excitar pares de fonon com vetor de onda elevado (o que é uma limitação nos outros processos) como vimos na seção 1.4, no processo de decaimento de um modo localizado em um par de fonons (o qual é responsável pelo mecanismo proposto) apenas a energia deve ser conservada. Como a energia dos fonons localizados aparece acima do topo da banda dos fonons óticos, vemos por conservação de energia - que, o par de fonons criado no processo está próximo do fim da zona de Brillouin. Isto sugere imediatamente que, o presente processo pode ser usado para medir a vida média dos fonons nesta região ( $k \sim 10^8 \text{ cm}^{-1}$ ). Infelizmente até o presente não temos informações suficientes sobre impurezas onde nossa teoria poderia ser aplicada. Contudo, usando a estimativa feita na seção anterior poderemos antecipar a ordem de grandeza para diferentes temperaturas da potência de uma fonte de laser capaz de fornecer o número crítico de fotons necessário para dar início aos processos não lineares. Para obter esta ordem de grandeza para diferentes temperaturas vamos -



usar valores típicos para os parâmetros presentes na Eq. (1.6-13) considerando a frequência do modo localizado como  $\omega_s = 3.32 \cdot 10^{13} \text{ seg}^{-1}$ ;  $F(\alpha=s) = 6.48 \cdot 10^{11} g_r^{-1/2}$ ,  $F(q) = 1.2 \cdot 10^{-24} / N g_r^{3/2} \text{ cm}^2 / \text{seg}^2$ ,  $\sigma(\kappa_s) = .5052$ ,  $G = 87.42 / V \text{ seg}^{-1}$  e  $c_0 = 1\%$  os quais são válidos para NaCl. Usando estes valores obtemos para a potência crítica da fonte de laser os seguintes valores mostrados na seguinte tabela para diferentes temperaturas.

	$T=300^\circ K$	$T=80^\circ K$	$T=20^\circ K$
$\eta_s (\text{seg}^{-1})$	$1.05 \cdot 10^5$	$2.78 \cdot 10^{14}$	$7 \cdot 10^{13}$
$\eta_q (\text{seg}^{-1})$	$10^{10}$	$2.66 \cdot 10^{10}$	$6.66 \cdot 10^7$
$I_c \frac{\text{watts}}{\text{cm}^2}$	$4.3 \cdot 10^{11}$	$2.16 \cdot 10^7$	$8.6 \cdot 10^6$

Da tabela anterior vemos portanto que para baixas temperaturas a intensidade crítica ( $10^6 - 10^7 \text{ watts/cm}^2$ ) está dentro da capacidade de fontes de laser de metanol (Izatt, Bean e Caudle (1975)). A dificuldade de se realizar a experiência aqui sugerida é a de se excitar diretamente os modos localizados, ou seja, sincronizar a ressonância dos modos localizados com as frequências dos lasers existentes.

Finalmente é interessante ressaltar que, embora nossos resultados tenham sido desenvolvidos para cristais com estrutura cúbica simples, é de se esperar que as características qualitativas dos efeitos aqui introduzidos não dependam criticamente da estrutura do cristal, e portanto a ordem de grandeza dos resultados obtidos não sejam muito diferentes para outros tipos de estrutura cúbica. Considerando o argumento anterior podemos calcular a

ordem de grandeza da intensidade crítica para o cristal de estrutura cúbica  $\text{CaF}_2$  contendo  $\text{H}^-$  como impureza, onde os modos localizados tem sido investigado experimentalmente (Vasconcellos (1978)). Na seguinte tabela as intensidades críticas para diferentes temperaturas são mostradas:

	$T=300^\circ\text{K}$	$T=80^\circ\text{K}$	$T=20^\circ\text{K}$
$\eta_s (\text{seg}^{-1})$	$5.84 \cdot 10^{13}$	$1.55 \cdot 10^{13}$	$3.89 \cdot 10^{12}$
$n_q (\text{seg}^{-1})$	$10^{11}$	$2.66 \cdot 10^{10}$	$6.66 \cdot 10^9$
$I_c \left( \frac{\text{watts}}{\text{cm}^2} \right)$	$7.48 \cdot 10^{12}$	$3.72 \cdot 10^{10}$	$1.47 \cdot 10^8$

vemos portanto que as intensidades críticas estão dentro da capacidade das fontes de laser de  $\text{CO}_2$ .

## CAPÍTULO II

FREQUÊNCIA DE RELAXAÇÃO POR PROCESSOS DE MUITOS FONONS

## 2.1 INTRODUÇÃO

A absorção de radiação eletromagnética pelas vibrações da rede em cristais anarmônicos tem sido estudada extensivamente tanto teoricamente como experimentalmente por muitos anos. Em todos os estudos feitos até agora a frequência da radiação eletromagnética é aproximadamente igual a frequência de reststrahl (máxima frequência da banda ótica com vetor de onda  $q=0$ ), de tal maneira que a principal contribuição para o coeficiente de absorção é devido a processo de dois fonons (Born e Huang (1954)), com o advento de lasers de alta potencia despertou-se o interesse em estudar o comportamento do coeficiente de absorção dependente da frequência e da temperatura para frequências mais altas que a frequência máxima do cristal, mas ainda pequenas comparadas com a energia do gap eletrônico.

Absorção em altas frequências é devido ao fato que a largura de linha da frequência máxima do cristal aumenta ou diminui com a temperatura. Neste intervalo de frequência a principal contribuição para o coeficiente de absorção em cristais puros vem de muitos fonons, onde o número de fonons presente pode ser muito grande, experimentalmente tem sido observado que o coeficiente de absorção para altas frequências varia exponencialmente com a frequência (Detsch (1973)), isto é

$$\alpha(\omega) = B e^{-A\omega} \quad (2.1-1)$$

para cristais iônicos como por exemplo LiF, NaF, NaCl, KCl, KBr, MgF<sub>2</sub>, CaF<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub>, SrF<sub>2</sub>, MgO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, BaTiO<sub>3</sub>, os quais podem ser usados como janelas em lasers de alta potencia. Na Eq. (2.1-1), B e A são constantes características do cristal particular. Para NaCl a temperatura ambiente, por exemplo,  $\alpha(\omega)$  decresce

quase de uma forma exponencial com a frequência como é mostrado na fig. (2.1-1) por outro lado Harrington e Hass (1973) mostraram experimentalmente que o coeficiente da temperatura para altas temperaturas, comparada com a temperatura de Debye  $\theta_D$ , varia aproximadamente como  $T^{n-2}$  para processos de muitos fonons ( $n$  é o número total de fonons envolvidos no processo).

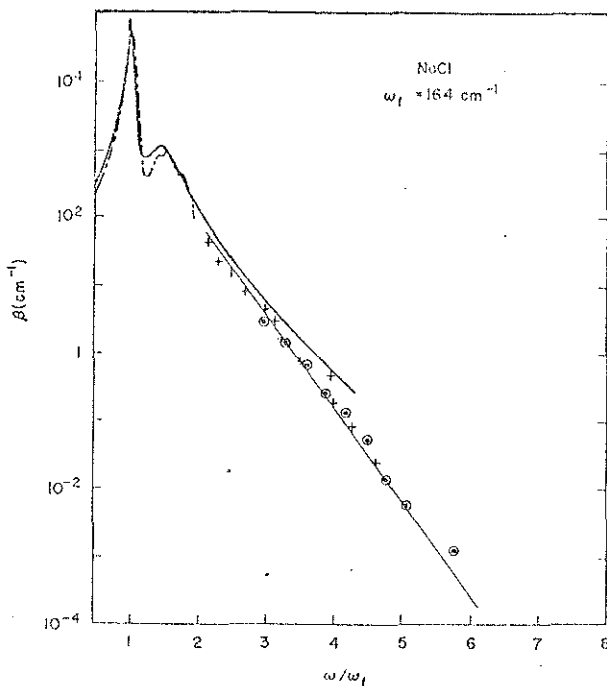


Fig. 2.1-1 Coeficiente de absorção dependente da frequência para NaCl

Modelos teóricos tanto clássicos como quânticos, usando diferentes suposições ou aproximações para potenciais interatômicos e curvas de dispersão de fonons tem sido desenvolvidos para explicar a dependencia do coeficiente de absorção da frequência e da temperatura (Mills e Maradudin (1973), Maradudin e Mills (1973), Sparks e Sham (1972), (1973a), (1973b), (1974), McGill, Hellwarth, Mangir e Winston (1973), Bendow, Ying e Yukon (1973), Rosenstock (1973), Nanjoshi e Mitra (1973), Billord, Gervais e Piriou (1976)). Todos os autores supõem dois possíveis mecanismos de absorção, isto é, acoplamento anarmonico de fonons com o modo fundamental "reststrahlen" (mecanismo anarmônico) ou/e o acoplamento direto de fonons com a radiação via momentos dipolares elétricos de ordem superior (mecanismo de Lax-Burstein). O primeiro mecanismo foi considerado como predô

minante em cristais polares, embora não exista uma resposta satisfatória para este problema (Mills e Maradudin (1974), Bendow, Ying e Yukon (1974) e Sparks (1974)). Em todos os modelos teóricos que existem na literatura o coeficiente de absorção dependente da frequência e da temperatura para processos a muitos fonons, é calculado considerando o processo no qual o foton é absorvido pelo cristal, através da excitação virtual do modo fundamental "reststrahl" o qual finalmente emite  $n$  fonons; ou seja, a radiação eletromagnética, cuja frequência é alta, cria um fonon fundamental cujo tempo de relaxação é determinado pela soma de todos os possíveis processos de decaimento em modos normais das vibrações da rede. (Veja fig. 2.1-2)

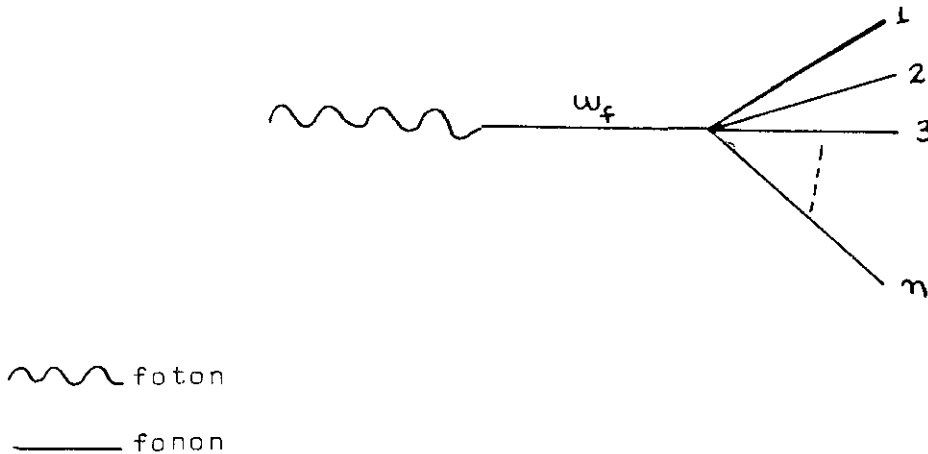


Fig. 2.1-2 - Processo multifônico para o cálculo do coeficiente de absorção (Sparks e Sham (1973))

Neste capítulo nosso principal objetivo é estudar o comportamento do coeficiente de absorção ótico dependente da temperatura para processos multi-fonons confluentes assim como é ilustrado na fig. 2.1-3.

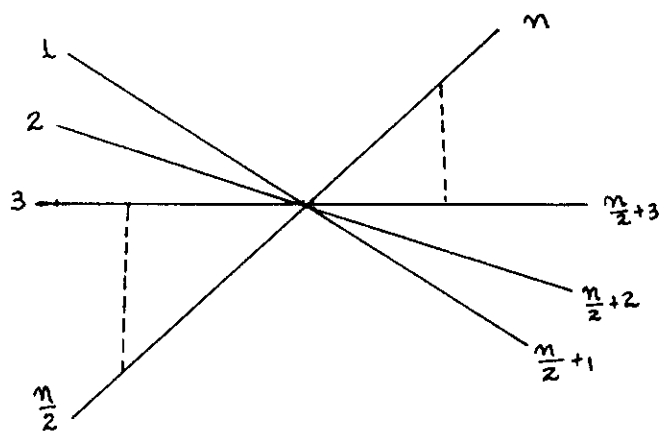


Fig. 2.1-3 - Processo multifônico confluyente

Este tipo de processo, considerado desprezível em trabalhos anteriores (Sparks e Sham (1973)), se espera que seja dominante ou pelo menos não desprezível em altas temperaturas (processos destes tipos já se mostrou que é dominante em relaxação antiferromagnética de magnons em altas temperaturas, Rezende e White (1976)), já que neste limite o número de ocupação de fonons é grande e fisicamente, o processo confluyente tem um caráter mais caótico que o processo de decaimento (Splitting).

## 2.2 COEFICIENTE DE ABSORÇÃO

A radiação eletromagnética quando incide sobre um cristal iônico isolante faz com que o mesmo seja perturbado devido a excitação do momento dipolar pelo campo elétrico oscilante. O coeficiente de absorção está relacionado a parte imaginária da constante dielétrica por

$$\beta(\omega) = \frac{\omega \varepsilon''(\omega)}{\eta(\omega) c} \quad (2.2-1)$$

onde  $c$  é a velocidade da luz  $\eta(\omega)$  é o índice de refração dependen

te da frequência e  $\epsilon''$  é a parte imaginária da constante dielétrica a qual representa a resposta linear do momento dipolar (Wallis e Maradudin (1962)).

Nesta seção nosso principal objetivo é calcular a contribuição das vibrações da rede para a constante dielétrica, com particular ênfase em cristais iônicos com dois átomos por célula unitária. A constante dielétrica  $\epsilon(\omega)$  é definida pelas seguintes equações.

$$\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi \chi(\omega) \quad (2.2-2a)$$

$$\vec{P} = \chi(\omega) \vec{E} \quad (2.2-2b)$$

onde a polarização  $\vec{P}$  é o momento dipolar por unidade de volume produzido pelo campo macroscópico  $\vec{E}$  e  $\chi(\omega)$  é a susceptibilidade elétrica. Em geral  $\chi(\omega)$  e  $\epsilon(\omega)$  são tensores complexos de segunda ordem.

Para cristais com simetria cúbica eles são escalares. Em cristais iônicos duas contribuições dominantes para a constante dielétrica podem ser consideradas: uma parte eletrônica e uma parte iônica. A parte eletrônica é proveniente da deformação da nuvem eletrônica em redor do núcleo, e a parte iônica é devida aos deslocamentos dos íons. Nestes casos, existem frequências ressonantes associadas com a polarização eletrônica ( $\omega_{uv}$ , frequência no ultravioleta) e com a polarização iônica ( $\omega_{ir}$ , frequência no infravermelho); na vizinhança dessas frequências  $\epsilon(\omega)$  cresce rapidamente e é aproximadamente independente da frequência fora deste intervalo. O valor de  $\epsilon(\omega)$  no limite de baixas frequências  $\omega \ll \omega_{ir}$  será denotado por  $\epsilon_0$ , e pode ser medido usando campos estáticos ou campos que variam lentamente. Como  $\omega_{uv} \gg \omega_{ir}$  existe um intervalo de



frequência no infravermelho onde  $\epsilon(\omega)$  é aproximadamente constante; este valor será designado por  $\epsilon_\infty$ .

As únicas vibrações que contribuem a constante dielétrica são aquelas para as quais o vetor de onda é nulo ( $\vec{q} = 0$ ). A figura (2.2-1) mostra a relação de dispersão da radiação eletromagnética superposta a relação de dispersão de uma cadeia linear diatômica.

Ondas da rede e ondas eletromagnéticas podem interagir somente quando os vetores de onda e as frequências sejam iguais, como a ordem de grandeza da máxima frequência da rede é de  $10^{13} \text{ seg}^{-1}$ , o valor do vetor de onda no ponto de intersecção ( $q=k=\omega/c$ ) é aproximadamente igual a  $300 \text{ cm}^{-1}$ , o qual é desprezível comparado com a variação de  $\vec{q}$  desde o centro da zona de Brillouin até a borde da zona ( $\sim 10^8 \text{ cm}^{-1}$ ). Portanto o comprimento de onda da radiação é muito grande comparado com a distância interiônica. As condições anteriores correspondem a conservação de energia e momento.

$$\hbar\omega(\vec{q}) = \hbar\omega(\vec{k}) \quad (2.2.3a)$$

$$\hbar\vec{q} = \hbar\vec{k} \quad (2.2.3b)$$

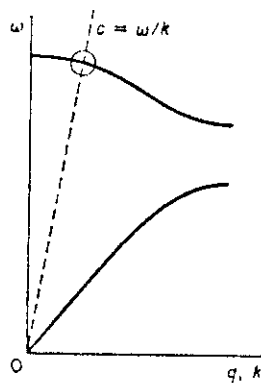


Fig. (2.2-1) - Curvas de dispersão para ondas da rede (linha contínua) e ondas eletromagnéticas (dashed line).

Adotando um modelo semi-clássico, a energia de interação pode ser escrita na seguinte forma  $-\vec{M} \cdot \vec{E}$ , onde  $\vec{M}$  é o momento dipolar do cristal. Para um cristal anarmônico, o momento dipolar pode ser expandido em potências dos deslocamentos iônicos (Born e Huang (1954)). Cowley (1963), Keating e Rupprecht (1965) mostraram que o termo linear nos deslocamentos iônicos é dominante sobre os termos não-lineares, especialmente em halogenetos alcalinos. Nesta seção os termos não-lineares não serão considerados. O momento dipolar na aproximação linear pode ser escrita como

$$\vec{M} = \sum_{\ell\kappa} Z_{\kappa} |e| \vec{U}(\ell\kappa) \quad (2.2-4)$$

onde "e" é a carga eletrônica e  $Z_{\kappa}$  são inteiros positivos ou negativos.  $\vec{U}(\ell\kappa)$  representa o deslocamento do átomo  $\kappa$  da posição de equilíbrio na célula  $\ell$ . Considerando especificamente um cristal com dois íons por célula unitária, com cargas  $\pm Ze$ , e expandindo  $\vec{U}(\ell\kappa)$  em coordenadas normais

$$\vec{U}(\ell\kappa) = \sum_{\vec{qj}} \frac{\vec{e}(\kappa|\vec{qj})}{(M_{\kappa}N)^{1/2}} e^{i\vec{q} \cdot (\vec{R}(\ell))} \quad (2.2-5)$$

onde  $\vec{e}(\kappa|\vec{qj})$  é o vetor de polarização do átomo  $\kappa$ ,  $\vec{R}(\ell)$  o vetor de posição da célula  $\ell$  e  $M_{\kappa}$  a massa do  $\kappa$ -ésimo átomo, a polarização pode ser escrita na forma

$$\vec{P} = \frac{\vec{M}}{V} = \frac{Ze}{V\sqrt{N}} \sum_{\ell, qj} Q_{qj} \left[ \frac{\vec{e}(+, \vec{qj})}{\sqrt{M_+}} - \frac{\vec{e}(-, \vec{qj})}{\sqrt{M_-}} \right] e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}(\ell)} \quad (2.2-6)$$

onde  $V$  é o volume do cristal. Fazendo-se a somatória em  $\ell$  encontramos que só os modos com  $\vec{q} = 0$  contribuem a  $\vec{P}$ , isto é

$$\vec{P} = \frac{Ze\sqrt{N}}{V} \sum_j Q_{oj} \left[ \frac{\vec{e}(+,oj)}{\sqrt{M+}} - \frac{\vec{e}(-,oj)}{\sqrt{M-}} \right] \quad (2.2-7)$$

Para modos óticos de comprimento de onda grande, os deslocamentos podem ser escritos como

$$\vec{U}(\ell\kappa) = \vec{U}(\kappa) = \sum_j (NM_{\kappa})^{-1/2} Q_{oj} \vec{e}(\kappa|oj) \quad (2.2-8)$$

os quais são independentes de  $\ell$ , nestes modos todos os átomos numa rede de Bravais vibram em sentido oposto aos átomos de outra rede de Bravais. Substituindo a Eq. (2.2-8) em Eq. (2.2-7) a polarização é dada por

$$\vec{P} = \frac{ZeN}{V} (\vec{U}_+ - \vec{U}_-) \quad (2.2-9)$$

onde  $\vec{U}_{\pm}$  representam os deslocamentos dos íons do modo ótico para  $\vec{q}=0$ .

Voltando para a situação apresentada na Fig. (2.2-1), parece ser que as vibrações da rede e as ondas eletromagnéticas - devem ser tratadas independentemente, contudo isto não é certo, uma vez que as equações que descrevem as vibrações iônicas tem que ser resolvidas simultaneamente com as equações de Maxwell. Dessa forma, quando combinamos modos óticos e a radiação obtemos curvas de dispersão, diferente as da fig. (2.2-1). Este problema é estudado na seguinte sub-seção.

#### A - MODOS ÓTICOS DE CUMPRIMENTO DE ONDA GRANDE

É bem conhecido que as vibrações acústicas de comprimento de onda grande são idênticas com ondas elásticas, e podem ser descritas por equações macroscópicas.

Da mesma forma a teoria para as vibrações óticas com  $\vec{q}=0$  foi estudada por Huang (1951).

O ponto de partida do tratamento de Huang consiste num par de equações para o campo elétrico macroscópico  $\vec{E}$  e o deslocamento relativo dos dois íons na célula unitária. A equação de movimento e a polarização são escritas na forma

$$\vec{W} = b_1 \vec{W} + b_2 \vec{E} \quad (2.2-10)$$

$$\vec{P} = b_2 \vec{W} + b_3 \vec{E}$$

onde

$$\vec{W} = \left( \frac{m_r}{V_a} \right)^{1/2} (\vec{U}_+ - \vec{U}_-) \quad (2.2-11)$$

$m_r = M_+ M_- / (M_+ + M_-)$  é a massa reduzida dos íons e  $V_a$  é o volume da célula unitária. Os  $b$ 's são coeficientes escalares os quais serão calculadas mais adiante.

Se considerarmos soluções periódicas da forma  $e^{-i\omega t}$ , a constante dielétrica para qualquer frequência  $\omega$  pode ser calculada de (2.2-10), substituindo

$$\left. \begin{aligned} \vec{E} &= \vec{E}_0 \\ \vec{W} &= \vec{W}_0 \\ \vec{P} &= \vec{P}_0 \end{aligned} \right\} e^{-i\omega t} \quad (2.2-12)$$

em (2.2-10) obtemos

$$\vec{P} = \left( b_3 - \frac{b_2^2}{b_1 + \omega} \right) \vec{E} \quad (2.2-13)$$

e comparando com a Eq. (2.2-2a,b), a constante dielétrica pode ser escrita na seguinte forma:

$$\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi b_3 - \frac{4\pi b_2^2}{b_1 + \omega^2} \quad (2.2-14)$$

Os  $b$ 's podem ser obtidos considerando as equações (2.2-10) simultaneamente com a equação de eletrostática (para cristais eletricamente neutros)

$$\nabla \cdot \vec{D} = \nabla \cdot (\vec{E} + 4\pi\vec{P}) = 0 \quad (2.2-15)$$

usando o valor de  $\vec{P}$  de Eq. (2.2-10) em (2.2-15), encontramos que:

$$\nabla \cdot \vec{E} = - \frac{4\pi b_2}{1 + 4\pi b_3} \nabla \cdot \vec{W} \quad (2.2-16)$$

A solução para  $\vec{E}$  pode ser obtida da seguinte forma:

Seja  $\vec{W}_t$  e  $\vec{W}_\ell$  as partes solenoidal e irrotacional de  $\vec{W}$ , isto é

$$\vec{W} = \vec{W}_t + \vec{W}_\ell \quad (2.2-17)$$

onde:

$$\nabla \cdot \vec{W}_t = 0 \text{ (solenoidal)} \quad (2.2-18)$$

$$\nabla \times \vec{W}_\ell = 0 \text{ (irrotacional)}$$

então (2.2-16) pode ser escrita como

$$\nabla \cdot \vec{E} = - \frac{4\pi b_2}{1 + 4\pi b_3} \nabla \cdot \vec{W}_\ell \quad (2.2-19)$$

uma solução óbvia para  $\vec{E}$  e

$$\vec{E} = - \frac{4\pi b_2}{1+4\pi b_3} \vec{W}_\ell \quad (2.2-20)$$

Esta solução de fato é única. A Eq. (2.2-20) nos diz que unicamente os modos longitudinais óticos com  $\vec{q}=0$ , podem gerar campos elétricos. Substituindo (2.2-20) em (2.2-10) e escrevendo  $\vec{W}$  como soma de  $\vec{W}_t$  e  $\vec{W}_\ell$

$$\ddot{\vec{W}}_t + \ddot{\vec{W}}_\ell = \left( b_1 - \frac{4\pi b_2^2}{1+4\pi b_3} \right) \vec{W}_\ell + b_1 \vec{W}_t \quad (2.2-21)$$

como  $\vec{W}_t$  e  $\vec{W}_\ell$  são independentes, podemos igualar a parte solenoidal em ambas as partes de (2.2-21) separadamente:

$$\begin{aligned} \ddot{\vec{W}}_t &= b_1 \vec{W}_t = -\omega_f^2 \vec{W}_t \\ \ddot{\vec{W}}_\ell &= \left( b_1 - \frac{4\pi b_2^2}{1+4\pi b_3} \right) \vec{W}_\ell \end{aligned} \quad (2.2-22)$$

onde  $\omega_f$  representa a frequência do modo ótico transversal. (chamado também de fundamental)

A constante dielétrica (2.2-14) pode ser escrita na forma:

$$\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi b_3 + \frac{4\pi b_2^2}{\omega_f^2 - \omega^2} \quad (2.2-23)$$

onde as constantes estão relacionadas a quantidades que podem ser medidas da seguinte maneira. Para  $\omega \rightarrow 0$  obtemos a constante dielétrica estática

$$\epsilon_0 = 1 + 4\pi b_3 + \frac{4\pi b_2^2}{\omega_f^2} \quad (2.2-24)$$

e para altas frequências

$$\epsilon_{\infty} = 1 + 4\pi b_3 \quad (2.2-25)$$

a qual é válida para  $\omega \gg \omega_f$  mas muito menor que a energia das transições eletrônicas. Portanto a Eq. (2.2-23) pode ser expressa como:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_{\infty}) \omega_f^2}{\omega_f^2 - \omega^2} \quad (2.2-26)$$

A Eq. (2.2-26), embora simples, oferece uma explicação do comportamento geral da dispersão infravermelha para baixas ( $\omega \ll \omega_f$ ) e altas ( $\omega \gg \omega_f$ ) frequências. Mas tal fórmula é inadequada para explicar o comportamento experimental da refletividade e a forte absorção infravermelha na vizinhança da frequência  $\omega_f$ , devido a que  $\epsilon(\omega)$  é real.

A relação de dispersão (2.2-26) foi obtida a partir das equações fenomenológicas de movimento (2.2-10) as quais representam equações de oscilador harmônico simples, e como consequência descrevem ondas da rede independentes. Em cristais reais, essas ondas são acopladas considerando termos anarmônicos, os quais são importantes para explicar a forte absorção infravermelho.

Uma fórmula de dispersão mais realista pode ser obtida introduzindo um termo de amortecimento nas equações de movimento (2.2-10) o qual representa uma força oposta ao movimento e proporcional a velocidade.

Com essas considerações a equação (2.2-10) é escrita como:

$$\ddot{\vec{W}} = b_1 \vec{W} - \Gamma \dot{\vec{W}} + b_2 \vec{E} \quad (2.2-27)$$

introduzindo as soluções periódicas  $(\vec{W}, \vec{E}) = (\vec{W}_0, \vec{E}_0) e^{-i\omega t}$  obtemos:

$$\vec{P} = \left( b_3 - \frac{b_2^2}{b_1 + i\omega + \Gamma - \omega^2} \right) \vec{E} \quad (2.2-28)$$

Comparando a Eq. (2.2-28) com a Eq. (2.2-13), nota-se que o termo de amortecimento a mais é equivalente a substituir o coeficiente  $b_1$  por  $b_1 + i\Gamma\omega$ , portanto a fórmula de dispersão, Eq. (2.2-26), pode ser escrita da seguinte maneira:

$$\begin{aligned} \epsilon(\omega) &= \epsilon_\infty + \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)\omega_0^2}{\omega_f^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \\ &= \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega) \end{aligned} \quad (2.2-29)$$

a qual agora considera absorção usando a Eq. (2.2-1) o coeficiente de absorção é escrito na forma

$$\beta(\omega) = \frac{(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)\omega_f^2}{\text{Cn}(\omega)} \cdot \frac{\omega^2 \Gamma}{(\omega^2 - \omega_f^2)^2 + (\omega\Gamma)^2} \quad (2.2-30)$$

Comentou-se anteriormente que para explicar satisfatoriamente os resultados experimentais de refletividade e absorção de luz na região infravermelha foi necessário introduzir termos anarmônicos na equação de movimento (2.2-10). Quanticamente, isto significa, considerar os termos anarmônicos na expansão da energia potencial do cristal, os quais são os responsáveis pela largura da linha de absorção para  $\omega = \omega_f$ . Em princípio, a frequência de relaxação  $\Gamma$ , deve ser calculada usando probabilidades de transição dependentes do tempo. É interessante notar, que no limite de altas frequências ( $\omega^2 \gg \omega_f^2 \Gamma^2$ ) o coeficiente de absorção é proporcional a frequência de relaxação, e é neste limite onde nós estamos interessados em calcular a frequência de relaxação para processos de mui-



tos fonons, usando o Hamiltoniano anarmônico envolvendo n fonons.

### 2.3 FREQUÊNCIA DE RELAXAÇÃO

Nosso principal interesse nesta secção, é calcular as frequências de relaxação  $\Gamma_n(\omega)$  para processos de muitos fonons, assim como é ilustrado na figura (2.1-3), onde se espera que este processo seja importante para altas temperaturas.

O Hamiltoniano anarmônico que descreve o espalhamento de n fonons pode ser escrito na seguinte forma (Born e Huang (1954), Cowley (1963))

$$H_n = \sum_{Q_1} \sum_{Q_2} \cdots \sum_{Q_n} V(Q_1, Q_2, \dots, Q_n) \Delta\left(\sum_{i=1}^n \vec{q}_i\right) A_{Q_1} \cdots A_{Q_n} \quad (2.3-1)$$

onde  $V(Q_1, Q_2, \dots, Q_n)$  representa o acoplamento entre os modos envolvidos no processo,  $\Delta\left(\sum_{i=1}^n \vec{q}_i\right)$  é a delta de Kronecker representando a conservação de momento e  $A_{Q_i}$  definido na forma:

$$A_Q = A_{\vec{q}b}^+ = a_{\vec{q}b}^+ + A_{-\vec{q}b} \quad (2.3-2)$$

onde  $a_{\vec{q}b}^+$  e  $a_{\vec{q}b}$  são os operadores de destruição e criação de fonon respectivamente. O cálculo da frequência de relaxação de um dado modo  $\vec{q}$ , pode ser derivado fazendo-se uso da probabilidade por unidade de tempo TP, de que o sistema originalmente num estado  $|i\rangle$ , sofra uma transição para um outro estado final  $|f\rangle$ , ou seja:

$$TP = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H_n | i \rangle|^2 \delta(\hbar\omega_i - \hbar\omega_f) \quad (2.3-3)$$

Em geral o Hamiltoniano (2.3-1) produz transições entre os vários estados do sistema, mudando assim o número de ocupa-

ção destes estados. Em particular, estaremos interessados na parte de  $H_n$ , a qual produz transições para o número de fonons par (Fig. 2.1-3). Para este processo os estados inicial e final podem ser escritos na seguinte forma:

$$\begin{aligned} |i\rangle &= |n_1 n_2 \dots n_n\rangle \\ |f\rangle &= |n_1-1, n_2-1, \dots, n_{\frac{n}{2}-1}, n_{\frac{n}{2}+1}+1, \dots, n_n+1\rangle \end{aligned} \quad (2.3-4)$$

onde

$$n_i \equiv n_{Q_i}$$

A variação no número de ocupação  $n_1$ , usando (2.3-2) é escrita como:

$$\frac{dn_1}{dt} = \sum_{Q_2 \dots Q_n} \{TP(n_1 \rightarrow n_1-1) - TP(n_1 \rightarrow n_1+1)\} \quad (2.3-5)$$

onde  $TP(n_1 \rightarrow n_1-1)$  representa a probabilidade por unidade de tempo do processo da Fig. (2.1-3), isto é

$$TP(n_1 \rightarrow n_1-1) = \frac{2\pi}{\hbar^2} |\langle n_1-1, n_2-1, \dots, n_{\frac{n}{2}-1}, n_{\frac{n}{2}+1}+1, \dots, n_n+1 | H_n | n_1, \dots, n_n \rangle|^2 \delta(\omega) \quad (2.3-6)$$

onde

$$\delta(\omega) = \delta(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_{\frac{n}{2}} - \omega_{\frac{n}{2}+1} - \dots - \omega_n) \quad (2.3-7)$$

e  $TP(n_1 \rightarrow n_1+1)$  representa a probabilidade por unidade de tempo

de ocorrer o processo inverso usando o fato de que os operadores de criação e destruição  $a_{Q_i}^+$  e  $a_{Q_i}$ , possuem os seguintes não-nulos elementos de matriz

$$\begin{aligned} \langle n_1 \dots n_{i-1}+1 \dots n_i | a_{Q_i}^+ | n_1 \dots n_i \rangle &= (n_{i+1})^{1/2} \\ \langle n_1 \dots n_{i-1}, n_i | a_{Q_i} | n_1 \dots n_i \rangle &= (n_i)^{1/2} \end{aligned} \quad (2.3-8)$$

a equação (2.2-6) pode ser escrita na seguinte forma:

$$\begin{aligned} \frac{dn_1}{dt} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \frac{\left(\frac{n}{2}\right)!^3}{\left(\frac{n}{2}-1\right)!} \sum_{Q_2 \dots Q_n} |V_n|^2 \{n_1 n_2 \dots n_{\frac{n}{2}} (n_{\frac{n}{2}}+1) \dots (n_{\frac{n}{2}}+1) - \\ - (n_1+1) \dots (n_{\frac{n}{2}}+1) n_{\frac{n}{2}+1} \dots n_n\} \Delta(q_1+q_2+\dots+q_{\frac{n}{2}-1} - \dots - q_n) \delta(\omega) \end{aligned} \quad (2.3-9)$$

onde  $V_n = V(Q_1 \dots Q_n)$  e o fator  $\left(\frac{n}{2}\right)!^3 / \left(\frac{n}{2}-1\right)!$  em (2.3-9) representa o número de elementos de matriz diferentes e não-nulas.

O procedimento para obtermos a frequência de relaxação para processos multi-fonons é escrevermos (2.3-9) na forma de equação de relaxação, isto é:

$$\frac{dn_1}{dt} = -\Gamma_n (n_1 - \tilde{n}_1) \quad (2.3-10)$$

onde  $\Gamma_n$  é a frequência de relaxação do processo e  $\tilde{n}_1$  é o número de ocupação em equilíbrio térmico do modo  $\vec{q}_1$ .

Um procedimento padrão para reduzir a Eq. (2.3-9) em (2.3-10) (Sparks (1964)) consiste em supor, que o número de ocupação  $n_i$  ( $i \neq 1$ ) não mude de valor em equilíbrio térmico  $\tilde{n}_i$  durante o processo de relaxação. Esta suposição, é de fato, tacitamente incluída na definição de frequência de relaxação. Frequência de relaxação,

implica que uma partícula tem um número de ocupação maior comparado com o valor em equilíbrio térmico e esta partícula relaxa por interações com as outras partículas que estão em equilíbrio térmico. Com esta suposição e usando conservação de energia é fácil verificarmos que a frequência de relaxação é dada por:

$$\Gamma_n(\omega_1 T) = \frac{2\pi}{\hbar^2} \frac{\eta_1^3}{\eta_1^{-1}} \sum_{Q_2 \dots Q_n} (e^{\beta \hbar \omega_1 - 1}) |V_n|^2 \{\eta_2 \dots \eta_n\} * e^{\beta \hbar (\omega_2 + \dots + \omega_n)} \frac{n}{2} \Delta(k) \delta(\omega) \quad (2.3-11)$$

onde

$$\beta = 1/k_B T, \quad n_k = (e^{\beta \hbar \omega_k} - 1)^{-1},$$

$$\Delta(k) = \Delta(\vec{q}_1 + \vec{q}_2 + \dots + \vec{q}_{n/2} - \vec{q}_{n/2} - 1 - \dots - \vec{q}_n)$$

#### A - FREQUÊNCIA DE RELAXAÇÃO PARA PROCESSO DE 4 FONONS

A solução analítica da Eq. (2.3-11) quando o número de fonons é grande, é em geral muito difícil. Contudo podemos obter resultados muito bons, considerando aproximações para o coeficiente de acoplamento  $V_n$  e para as relações de dispersão de fonon. Um problema análogo foi estudado por Sparks e Sham (1973) ao tratar o coeficiente de absorção à muito fonons, considerando que um fonon virtual de frequência  $\omega_f$  relaxa em  $n$  fonons, todos eles com a mesma frequência  $\omega_g$  para a qual a densidade de estados é maior. As aproximações usadas neste trabalho, são análogas as usadas no trabalho de relaxação de multimagnons antiferromagnéticos, feito por Rezende e White (1976).

As seguintes aproximações serão usadas para calcular  $\Gamma_4$ :

a) As somas na Eq. (2.2-12) serão transformadas em integrais no espaço  $\vec{q}$  da maneira usual

$$\sum_{\vec{q}} \rightarrow \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \int q^2 dq d(\cos\theta) d\phi \quad (2.3-12)$$

b) Para as relações de dispersão de fonons usaremos o modelo de Debye generalizando definido por:

$$\omega_{\vec{q}} = Sq \quad (2.3-13)$$

onde S representa uma velocidade promedio de fonons (Bendow (1973), McGill et al (1973)).

A aproximação linear (2.3-13) nos permite simplificar a função  $\delta(\omega)$  de conservação de energia, fazendo-se  $\omega_1 = \omega_m$  onde  $\omega_m$  é a máxima frequência da rama ótica, isto é  $\vec{q}_1 = 0$  então  $\vec{q}_4 = \vec{q}_2 - \vec{q}_3$ . Usando as aproximações (a) e (b) a função  $\delta(\omega)$  pode ser escrita na seguinte forma:

$$\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) = \delta(\omega_m + Sq_2 - Sq_3 - S/q_2^2 + q_3^2 - 2q_2q_3 \cos\theta_{23})^{1/2}, q_2 \geq q_3 \quad (2.3-14)$$

onde  $\theta_{23}$  é o ângulo entre  $\vec{q}_2$  e  $\vec{q}_3$  e a condição  $\vec{q}_2 \geq \vec{q}_3$  vem da conservação de energia. A integral sobre  $q_4$  foi feita usando a delta de Kronecher  $\Delta(\vec{K})$ ; as integrais em  $\theta_2, \phi_2$  e  $\phi_3$  são facilmente calculadas, a integral sobre  $\theta_3$  é calculada considerando a seguinte propriedade da função delta:

$$\delta|f(x)| = \frac{\delta(x-x_0)}{f'(x_0)} \quad (2.3-15)$$

onde  $x_0$  é uma raiz da função  $f(x_0)$ .

c) Sparks e Sham (1972) calcularam um coeficiente de acoplamento médio para cristais polares considerando um potencial iônico, formado por um potencial coulombiano e um potencial repulsivo entre ions vizinhos da forma:

$$\phi(r) = Ce^{-r/\rho a} \quad (2.3-16)$$

onde  $a$  é a distância de equilíbrio entre ions mais próximos. A interação coulombiana foi considerada só para determinar as constantes  $C$  e  $\rho$  na Eq. (2.3-16).

Usando a condição de equilíbrio e o valor do módulo volumétrico  $B$  (bulk Modulus), a constante  $C$  pode ser escrita na forma:

$$C = 3Ba^2\rho^2e^{1/\rho}/(1-2\rho) \quad (2.3-17)$$

e

$$\rho \approx 0.1 \quad \text{para} \quad \text{NaCl}$$

O coeficiente de acoplamento anarmônico obtido por Sparks e Sham usando as condições acima pode ser escrito na seguinte forma:

$$|V(Q_1 \dots Q_{n+1})| = \tilde{V}_{n+1} = \frac{a^3 B}{4n! N^{(n-1)/2}} \left( \frac{\hbar}{m_r \omega_g a^2} \right)^{1/2} \left( \frac{55\hbar}{m_{<} \omega_g a^2} \right)^{n/2} \quad (2.3-18)$$

onde  $N$  é o número de células unitárias  $M_{<}$  é a massa mais leve (massa do ion sódio para NaCl) e  $\omega_g$  é a frequência para a qual a densidade de estados de fonon é maior.

Usando as aproximações (a), (b) e (c), a frequência de relaxação para o processo de 4 fonons do modo  $\vec{q}_1 = 0$  pode ser escrito na forma:

$$\Gamma_4 = \frac{128\pi^3 \Omega^2 |\tilde{V}_4|^2}{\hbar^2 S^2 (2\pi)^6} \int_0^{q_{\max}} dq_2 q_2 \frac{e^{\beta \hbar \omega_2}}{(e^{\beta \hbar \omega_2} - 1)} \int_0^q dq_3 q_3 \frac{(\omega_m + sq_2 - sq_3) (e^{\beta \hbar \omega_m} - 1)}{(e^{\beta \hbar \omega_3} - 1) (e^{\beta \hbar (\omega_m + sq_2 - sq_3)} - 1)} \quad (2.3-19)$$

onde  $q_{\max}$  será definido mais adiante.

É interessante notar que a dependência na temperatura da frequência de relaxação está totalmente contida nas funções exponenciais. Esta dependência pode ser estudada considerando duas aproximações limites: alta temperatura, a qual é válida no intervalo onde  $\hbar \omega_q \ll k_B T$  e baixas temperaturas a qual é válida para  $T \ll \theta_D$ .

( $\theta_D$  = temperatura de Debye)

Fazendo-se a mudança de variáveis:

$$x = \hbar s q_2 / k_B T \quad y = \hbar s q_3 / k_B T \quad (2.3-20)$$

e podemos escrever a Eq. (2.2-20) na forma:

$$\Gamma_4 = \frac{128\pi^3 \Omega^2 |\tilde{V}_4|^2}{\hbar^2 S^2 (2\pi)^6} (e^{\beta \hbar \omega_m} - 1) \frac{k_B T^5}{\hbar s} I_4(T) \quad (2.3-21)$$

onde

$$I_4(T) = \int_0^{x_{\max}} \frac{x e^x dx}{(e^x - 1)} \int_0^x \frac{(\beta \hbar \omega_m + x - y) y dy}{(e^y - 1) (e^{\beta \hbar \omega_m + x - y} - 1)} \quad (2.3-22)$$

no limite de baixas temperaturas todos os fonons estão dentro da

esfera de Debye de rádio  $q_0$ . Portanto o vetor de onda máxima que podem atingir os fonons seria o vetor de onda de Debye e o limite  $x_{\max} = \theta_D/T$  pode ser extendido ao infinito. Neste limite a Eq. (2.3-22) é escrita na forma:

$$I_4(T) = \beta \hbar \omega_m e^{-\beta \hbar \omega_m} \int_0^\infty \frac{x}{(e^x - 1)} dx \int_0^x \frac{-y e^y}{(e^y - 1)} dy \quad (2.3-23)$$

portanto, a frequência de relaxação (2.3-22) para o processo de 4 fonons para baixas temperaturas é proporcional a  $T^4$ . Aqui também foi considerado que  $\beta \hbar \omega_m \gg x, y$  devido a que  $\omega_m$  é a frequência máxima do cristal.

Quando a temperatura aumenta a população dos estados de fonon de maior energia também aumenta. Como consequência o limite superior da integral em  $x$  limita o aumento total de população de fonons com a temperatura. Para calcular a integral (2.3-22) supomos que  $k_B T \gg \hbar \omega_q$  e expandindo as exponenciais obtemos para (2.3-22):

$$I_4(T) = \int_0^{x_{\max}} dx \int_0^x dy = \frac{1}{2} x_{\max}^2 \quad (2.3-24)$$

Donde para altas temperaturas a frequência de relaxação para o processo de 4 fonons é proporcional a  $T^2$ . Na sub-seção seguinte discutiremos a frequência de relaxação para processos envolvendo  $n$  (Par) fonons.

## B - FREQUÊNCIA DE RELAÇÃO PARA PROCESSOS DE ORDEM SUPERIOR

Para calcular a frequência de relaxação do modo fundamental ( $\tilde{q}_1=0$ ), para o processo de  $n$ -fonons, usaremos as aproximações da seção anterior, isto é:

- (a) A soma sobre os vetores de onda serão substituídas por integrais no espaço  $\vec{q}$ :



$$\sum_{\vec{q}_m} \rightarrow \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \int q_m^2 dq_m d(\cos\theta_m) d\phi_m \quad (2.3-25)$$

Das  $n$  somas sobre os vetores de onda, unicamente ficam  $n-2$  integrais sobre  $q_m$ ,  $\theta_m$  e  $\phi_m$ , já que a soma em um deles é feita usando a função delta de conservação de momento e  $\vec{q}_1 = 0$ .

b) Para simplificarmos os cálculos vamos supor uma aproximação linear para a relação de dispersão e supor que todos os vetores de onda  $\vec{q}_i$  ( $i=2, \dots, n-2$ ) são colineares. Com esta aproximação a função delta de conservação de energia pode ser escrita na seguinte forma:

$$\delta(\omega_m + \omega_1 + \dots + \omega_{\frac{n}{2}} - \omega_{\frac{n}{2}+1} - \dots - \omega_n) = \delta(\omega_m + Sq_1 + \dots + Sq_{\frac{n}{2}} - Sq_{\frac{n}{2}+1} - \dots - S|\vec{q} - \vec{q}_{n-1}|) \quad (2.3-26)$$

onde

$$\vec{q} = \vec{q}_2 + \dots + \vec{q}_{\frac{n}{2}} - \vec{q}_{\frac{n}{2}+1} - \dots - \vec{q}_{n-2}$$

$$|\vec{q} - \vec{q}_{n-1}| = \{q^2 + q_{n-1}^2 - 2qq_{n-1} \cos\theta_{n-1}\}^{1/2} \quad (2.3-27)$$

$\theta_{n-1}$  é o ângulo entre  $\vec{q}$  e  $\vec{q}_{n-1}$ .

c) Aproximando o coeficiente de acoplamento  $V_n$  por  $\tilde{V}_n$  (Eq.(2.2-19)) a frequência de relaxação para processos de  $n$  fonons pode ser escrita na forma:

$$\Gamma_n = A_n I_n(T) (k_B T / \hbar s)^{3n-7} (e^{\beta \hbar \omega_m} - 1) \quad (2.3-28)$$

onde

$$A_n = \frac{2^{n-3} |\tilde{V}_n|^2 \Omega^{n-2}}{(2\pi)^{3n-6} \hbar^2 s} \frac{n!}{2!} (2\pi)^{n-1} \quad (2.3-29)$$

$$I_n(T) = \int_0^{x_{\max}} x_2^2 dx_2 \dots \int_0^{x_{\max}} x_{\frac{n}{2}}^2 dx_{\frac{n}{2}} \int_0^{(x_2+x_3+\dots+x_{\frac{n}{2}})'} x_{\frac{n}{2}+1}^2 dx_{\frac{n}{2}+1} \dots$$

$$\int_0^{x'} x_{n-1}^2 dx_{n-1} \frac{e^{x_2+\dots+x_n/2} e^{\beta\hbar\omega_m+x_2+\dots+x_{\frac{n}{2}}-\frac{x_{\frac{n}{2}+1}}{2}-\dots-x_n}}{xx_{n-1} e^{\beta\hbar\omega_m+x_2+\dots-x_{n-1}-1}} \tilde{n}_2 \dots \tilde{n}_{n-1} \quad (2.3-30)$$

$$x_i = \hbar s q_i / k_B T \quad (2.3-31)$$

e as  $x'$  são definidos como:

$$x' = \begin{cases} x, & x < x_{\max} \\ x_{\max}, & x \geq x_{\max} \end{cases} \quad (2.3-32)$$

onde

$$x_{\max} = \hbar q_{\max} s / k_B T$$

Obtida a expressão para a frequência de relaxação podemos analisar sua dependência na temperatura para baixas temperaturas  $\beta\hbar\omega_m \gg x_i$ , neste limite

$$I_n(T) \sim \beta\hbar\omega_m e^{-\beta\hbar\omega_m} \quad (2.3-33)$$

e a frequência de relaxação depende da temperatura na forma:

$$\Gamma_n(T) \sim T^{3n-8} \quad (2.3-34)$$

No limite de alta temperatura os vetores de onda dos fonons antes do espalhamento tem um valor aproximado ao vetor de onda no limite da zona de Brillouin  $k_{zB}$ . Analogamente os fonons

após o espalhamento o vetor de onda é aproximadamente igual a  $k_{zB}$  exceto um deles com  $k \approx 0$ . Neste caso o limite superior na Eq.(2.3-30) é  $X_{\max}$ . Portanto

$$I_n(T) = \left(\frac{1}{2} x_{\max}^2\right)^{n-3} \quad (2.3-35)$$

como  $X_{\max} \sim 1/T$  a dependência da frequência de relaxação com a temperatura pode ser escrita na forma:

$$\Gamma_n = T^{n-2} \quad (2.3-36)$$

Esta mesma dependência da frequência de relaxação para altas e baixas temperaturas foi também obtida por Rezende e White ao estudar relação em antiferromagnetos por processos de muitos magnons.

Na tabela (2.3-1) mostramos os valores numéricos para processos a n-fonons confluentes comparados com o processo de Splitting considerados por Sparks e Sham (1973) no limite de altas temperaturas, note-se que neste limite o processo a n-fonons confluentes é comparável com o processo de Splitting, pelo menos até oito fonons.

## 2.4 - CONCLUSÕES

Neste capítulo, a frequência de relaxação para processos multifônicos confluentes dependente da temperatura em cristais cúbicos isolantes da forma NaCl, foi analisada teoricamente. Na seção 2.2 o coeficiente de absorção foi obtido calculando a parte imaginária da constante dielétrica usando um modelo semiclássico. No limite de altas frequências a contribuição para o coefi -

ciente de absorção é devido a processos a n-fonons é proporcional a frequência de relaxação. Na seção 2.3 a frequência de relaxação para processos a n-fonons confluentes os quais foram considerados desprezíveis em trabalhos anteriores, é analisada como função da temperatura usando um Hamiltoniano anarmônico e a probabilidade de transição por unidade de tempo. As aproximações e técnicas matemáticas empregadas são análogas as usadas por Rezende e White (1973) no cálculo da frequência de relaxação devidos a processos de muitos magnons em antiferromagnetos.

Na tabela 2.3-1 mostra-se a frequência da relaxação obtida por nossa teoria para o espalhamento de n-fonons em altas temperaturas comparada com a frequência de relaxação para o processo de decaimento de um fonon em n-fonons também em altas temperaturas para NaCl. Nesta tabela nota-se que o processo confluyente, como esperávamos, não é desprezível pelo menos até oito fonons.

A tabela 2.3-2 mostra os valores dos parâmetros típicos para NaCl.

Tabela 2.3-1

Nº Fonons	$\Gamma_n(T, \omega)$	$\Gamma'_n(T, \omega)$
4	$6.47.10^6 T^2$	$4.85.10^6 T^2$
6	$1.42.10^{-2} T^4$	$1.54.10^6 T^2$
8	$1.14.10^{-11} T^6$	$2.5.16^{11} T^6$

$\Gamma_n(T, \omega)$  frequência de relaxação para espalhamento de n fonons

$\Gamma'_n(T, \omega)$  frequência de relaxação para o processo de decaimento

Tabela 2.3-2

Valores típicos para NaCl

$\omega = 1.77.10^{14} \text{ seg}^{-1}$  (frequência do laser de  $\text{CO}_2$ )

$\omega_a = 2.10^{13} \text{ seg}^{-1}$

$a = 2.82 \text{ \AA}$

$\omega_f = 3.09.10^{13} \text{ seg}^{-1}$

$B = 2.4.4.10^{11} \text{ dy/cm}^2$

$M_r = 2.3.10^{-23} \text{ gr}$

$M_{<} = 3.82.10^{-23} \text{ gr}$

$M_{>} = 5.89.10^{-23} \text{ gr}$

$\omega_q = 3.85.10^{13} \text{ seg}^{-1}$

### CAPÍTULO III

ESPALHAMENTO DE UMA PARTÍCULA DE LANDAU NA PRESENÇA  
DE UM CAMPO DE LASER

### 3.1 INTRODUÇÃO

O efeito de campos magnéticos no comportamento de sistemas físicos, é importante para um grande número de problemas em astrofísica, física de plasmas e física do estado sólido. Em particular, a estrutura da matéria na presença de campos magnéticos fortes foi exaustivamente estudada por vários autores (Cohen et al (1970), Brandi et al (1976), Kadomtsev (1970), Melo et al (1970), Rau et al (1976)). Mais recentemente Brandi e outros (1978a) estudaram como o espalhamento de uma partícula carregada por um potencial  $V(\vec{r})$  seria afetado pela presença de um campo magnético d.c. forte e homogêneo.

Embora o formalismo desenvolvido por Brandi et al (1978a) foi explicitamente aplicado somente para o caso de espalhamento devido a um potencial coulombiano, sua extensão para o espalhamento por um átomo de hidrogênio foi posteriormente desenvolvida (Brandi (1979)).

Paralelamente ao interesse do comportamento da matéria sob campos magnéticos fortes, existe também grande interesse no comportamento da matéria sob campos intensos de radiação eletromagnética (Seely e Harris (1973), Luzzi e Miranda (1978), Blashkar et al (1977), Bhakar e Chaudhury (1974), Brandi et al (1978b)). Com o advento de lasers intensos submilimétricos é possível obtermos a condição de ressonância ciclotrônica (Lax e Coh (1973), Seely (1974), Lima et al (1979)), na qual a frequência do laser é igual a frequência ciclotrônica do elétron. Consequentemente, é importante também considerarmos como é que mudam as propriedades físicas dos sistemas na presença simultânea de um campo magnético forte e um campo intenso de laser.

Nosso principal objetivo neste capítulo é estender o formalismo de Brandi et al (1978a), considerando o espalhamento de

uma partícula carregada por um potencial coulombiano na presença simultânea de um campo magnético forte, e um campo eletromagnético intenso de laser. O método matemático aqui empregado, é análogo ao usado por Brandi et al (1978a) no problema de espalhamento por um potencial  $V(r)$  na presença de um campo magnético forte. O campo do laser será tratado como uma onda eletromagnética plana na aproximação dipolar.

Na seção 3.2 deste capítulo a amplitude de probabilidade para transições entre diferentes níveis de Landau com absorção ou emissão de  $|v|$  fótons será calculada usando a técnica da função Green. Na seção 3.3 estudaremos as amplitudes de transição para o caso particular de um potencial coulombiano e na seção 3.4 discutiremos os principais resultados e faremos as conclusões dos resultados obtidos.

### 3.2 FORMULAÇÃO

Nesta seção nosso principal objetivo é calcularmos a amplitude de transição para o espalhamento de uma partícula carregada na presença simultânea de um campo magnético homogêneo e um campo intenso de laser. Este último será tratado na aproximação dipolar, isto é vamos considerar que o comprimento de onda da radiação é muito maior que as dimensões lineares do nosso sistema.

Consideremos o campo magnético na direção do eixo  $+Z$ . Desprezando-se a dependência espacial do campo de laser (aproximação dipolar), o vetor potencial do laser e o campo magnético externo podem ser escritos na seguinte forma:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{A}(t) + \frac{1}{2} (\vec{B} \times \vec{r}) \quad (3.2-1)$$



$$\vec{A}(t) = \frac{ce_0}{\omega} (\hat{x} \cos \omega t + \hat{y} \sin \omega t)$$

onde  $\vec{B}$  é o campo magnético externo, e  $\vec{A}(t)$ , representa o campo do laser ou seja uma onda plana polarizada circularmente propagando-se paralela ao eixo Z. A equação de Schrodinger dependente do tempo para nosso problema de espalhamento de uma partícula carregada de massa m é escrito como:

$$i\hbar \dot{\Psi}(\vec{r}, t) = H\Psi(\vec{r}, t) \quad (3.2-2)$$

onde

$$H = \frac{1}{2m} \left( \vec{P} + \frac{e}{2c} (\vec{B} \times \vec{r}) + \frac{e}{c} \vec{A}(t) \right)^2 + V(\vec{r})$$

aqui "e" é a carga da partícula e c a velocidade da luz. Supondo-se que o potencial de interação  $V(\vec{r})$  vai a zero para valores grandes de  $|\vec{r}|$  a equação de Schrodinger assintótica pode ser escrita da seguinte maneira:

$$i\hbar \dot{\Phi}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2m} \left( \vec{P} + \frac{e}{2c} (\vec{B} \times \vec{r}) + \frac{e}{c} \vec{A}(t) \right)^2 \Phi(\vec{r}, t) \quad (3.2-3)$$

As soluções da Eq. (3.2-3) podem ser obtidas a partir das soluções  $\phi_{kns}$  da equação de Schrodinger de uma partícula carregada em um campo magnético uniforme (veja Landau e Lifshitz (1958)). As soluções  $\phi_{kns}$  são chamadas funções de onda de Landau, e a maneira de obtermos as soluções de (3.2-3) é fazermos uso de uma transformação unitária, isto é (Seely (1974), Miranda (1977)):

$$\Phi(\vec{r}, t) = U \phi_{kns}(\vec{r}, t) \quad (3.2-4)$$

onde

$$U(r,t) = e^{ia_1 x/\hbar} e^{ia_2 y/\hbar} e^{ib_1 P_x/\hbar} e^{ib_2 P_y/\hbar} e^{in(t)/\hbar} \quad (3.2-5)$$

e

$$\omega_c = \frac{eB}{mc}$$

$$a_1 = \frac{e\epsilon_0}{2(\omega - \omega_c)} \cos \omega t \quad ; \quad a_2 = \frac{e\epsilon_0}{2(\omega - \omega_c)} \sin \omega t$$

$$b_1 = \frac{-e\epsilon_0}{2m\omega(\omega - \omega_c)} \sin \omega t \quad ; \quad b_2 = \frac{e\epsilon_0}{2m\omega(\omega - \omega_c)} \cos \omega t \quad (3.2-6)$$

Fisicamente a transformação (3.2-4) representa uma translação espacial nas coordenadas  $x$  e  $y$  e uma translação nas coordenadas de momento  $x$  e  $y$ , segundo a qual mudamos de uma representação dependente do campo do laser ( $\phi$ ) para uma representação independente do campo do laser ( $\phi$ ). Considerando-se o Hamiltoniano completo (3.2-2) e fazendo-se uma transformação canônica usando o operador unitário  $U$ , a dependência do campo do laser do primeiro termo de  $H$  é transferida para o termo que descreve o potencial de interação, isto é:

$$\begin{aligned} H \rightarrow \tilde{H} &= U^\dagger (H - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}) U \\ &= H_0 + V(x-b_1, y-b_2, z) \end{aligned} \quad (3.2-7)$$

onde

$$H_0 = \frac{1}{2m} \left( \vec{p} + \frac{e}{2c} \vec{B} \times \vec{r} \right)^2 \quad (3.2-8)$$

define o Hamiltoniano de Landau (Landau e Lifshitz (1958)). Nesta no va representação, a equação de Schrodinger dependente do tempo para nosso problema de espalhamento pode ser escrita na forma:

$$i\hbar\dot{\psi} = \{H_0 + V(x-b_1, y-b_2, Z)\}\psi \quad (3.2-9)$$

onde

$$\psi = U^+ \Psi$$

Quando  $|\vec{r}| \rightarrow \infty$ ,  $V(\vec{r}) \rightarrow 0$  e as soluções assintóticas de (3.2-9) são as bem conhecidas funções de Landau,  $\phi_{kns}(\vec{r}, t)$

$$H_0 \phi_{kns} = E_{kn} \phi_{kns} \quad . \quad (3.2-10)$$

onde

$$E_{kn} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar \omega_c \quad ; \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (3.2-11a)$$

$$\phi_{kns}(r, t) = \frac{e^{ikz}}{\sqrt{2\pi}} \chi_{ns}(\rho) e^{-iE_{knt}/\hbar} \quad (3.2-11b)$$

$$\vec{\rho} = x \hat{x} + y \hat{y}$$

$$\chi_{ns}(\vec{\rho}) = \left(\frac{\gamma}{\pi}\right)^{1/2} e^{i(n-s)\varphi} I_{ns}(\xi) \quad (3.2-11c)$$

$$\xi = \gamma \rho^2 \quad ; \quad \gamma = m\omega_c/2\hbar$$

$$I_{ns}(\xi) = \begin{cases} \frac{s!}{n!}^{1/2} e^{-\xi/2} \xi^{(n-s)} L_s^{n-s}(\xi) , & s < n \\ \frac{n!}{s!}^{1/2} e^{-\xi/2} \xi^{(s-n)/2} L_n^{s-n}(\xi) , & s > n \end{cases} \quad (3.2-11d)$$

Aqui  $s = 0, 1, 2, \dots, L_m(x)$  representa o polinômio associado de Laguerre (Gradshteyn e Ryzhik (1965)),  $n$  é o número quântico principal e  $(n-s)$  é o número quântico azimutal. O número  $s$  tem a interpretação geométrica da distância do centro da órbita de Landau a origem.

Para resolvermos o problema do espalhamento e assim calcular a amplitude de probabilidade, faremos uso da função de Green retardada. A função de Green é obtida da seguinte forma: consideremos a equação de onda

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi = H\psi \quad (3.2-12)$$

A função de onda estacionária

$$\psi_n(r) e^{-iE_n t/\hbar} \quad (3.2-13)$$

é solução da Eq. (3.2-12) sim  $\psi_n(r)$  é eigefunção de  $H$ , isto é

$$H\psi_n(\vec{r}) = E_n \psi_n(\vec{r}) \quad (3.2-14)$$

Como os  $\psi_n(r)$  formam um conjunto completo de funções ortonormais, a função de onda  $\psi(r, t)$  para um tempo inicial  $t'$ , pode ser expandida como:

$$\psi(\vec{r}, t') = \sum_n c_n \psi_n(\vec{r}) e^{-iE_n t'/\hbar} \quad (3.2-15)$$

onde

$$c_n = \int \psi_n^*(\vec{r}) \psi(\vec{r}, t') e^{iE_n t'/\hbar} \quad (3.2-16)$$

substituindo (3.2-16) em (3.2-15) obtemos

$$\psi(\vec{r}, t) = \int \sum_n \psi_n^*(\vec{r}') \psi_n(\vec{r}) e^{-iE_n(t-t')/\hbar} \psi(\vec{r}', t') d^3r' \quad (3.2-17)$$

$$= \int K(\vec{r}', t', \vec{r}, t) \psi(\vec{r}', t') d^3r' \quad (3.2-17)$$

onde o Kernel K é definido como

$$K(\vec{r}, t, \vec{r}', t') = \sum_n \psi_n^*(\vec{r}') \psi_n(\vec{r}) e^{-iE_n(t-t')/\hbar} \quad (3.2-18)$$

Definamos agora a função de Green retardada ou propagador da seguinte forma

$$G(\vec{r}, t, \vec{r}', t') = -i\theta(t-t')K(\vec{r}, t, \vec{r}', t')/\hbar$$

onde

$$\theta(t) = \begin{cases} 1 & , \quad t > 0 \\ 0 & \quad t < 0 \end{cases} \quad (3.2-19)$$

É fácil verificar que o operador (3.2-19) assim definido satisfaz a equação

$$(H - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}) G(\vec{r}, t; \vec{r}', t') = -\delta(\vec{r} - \vec{r}') \delta(t - t') \quad (3.2-20)$$

Este último resultado é muito útil na teoria de espalhamento, já que o conhecimento da função de Green nos permite calcular a solução da equação de Schrodinger. Para entendermos isto consideremos a equação de Schrodinger com um potencial de interação dependente do tempo  $H_1(t)$ , a equação de Schrodinger pode ser escrita na forma

$$(H_0 - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}) \psi(r, t) = -H_1(t) \psi(\vec{r}, t) \quad (3.2-21)$$

Se  $\varphi(r, t)$  é solução da equação homogênea

$$(H_0 - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}) \varphi(\vec{r}, t) = 0 \quad (3.2-22)$$

a solução de (3.2-21) pode ser escrita como

$$\psi(\vec{r}, t) = \varphi(\vec{r}, t) - \int G(r, t; r', t') H_1(t') \psi(r', t') d^3 r' dt' \quad (3.2-23)$$

onde  $G(r, t; r', t')$  é a função de Green que satisfaz a equação (3.2-20), e é fácil verificar que (3.2-23) satisfaz a equação (3.2-21).

Voltando para nosso problema a função de Green para o problema de espalhamento pode ser escrita na forma (para  $t > t'$ )

$$G(\vec{r}, t; \vec{r}', t') = -\frac{i}{2\pi\hbar} \sum_{n', s'=0}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dk' e^{ik'(z-z')} \chi_{n', s'}^*(\vec{\rho}')^* \\ * \chi_{n', s'}(\vec{\rho}) e^{-iE_{k', n'}(t-t')/\hbar} \quad (3.2-24)$$

de tal maneira que a solução para o problema de espalhamento associada com a Eq. (3.2-9) está dada por

$$\begin{aligned}\psi_{k_0 ns} &= \phi_{k_0 ns} - \int d^3\vec{r}' dt' G(\vec{r}, t; \vec{r}', t') V(x' - b_1, y' - b_2, z')^* \\ \psi_{k_0 ns}(\vec{r}', t') &= \\ &= \phi_{k_0 ns} + \frac{i}{2\pi\hbar} \sum_{n', s'=0}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dk' \left[ d^3\vec{r} dt' e^{ik'(z-z')} \chi_{n', s'}^*(\vec{\rho}')^* \right. \\ &= \chi_{n', s'}(\vec{\rho}) V(x' - b_1, y' - b_2, z') e^{-iE_{k', n'}(t-t')/\hbar} \left. \psi_{k_0 ns}(\vec{r}', t') \right] \quad (3.2-25)\end{aligned}$$

onde  $\phi_{k_0 ns}(\vec{r}, t)$  representa a função de onda da partícula incidente de momento  $P_z = \hbar k_0$  no  $n$ -ésimo nível de Landau.

As integrações sobre  $t'$  e  $k'$  em Eq. (3.2-25) podem ser resolvidas quando os fatores que são periódicos no tempo são expandidos em séries de Fourier (Bahakar e Choudhury (1974), Brandi et al (1978b)).

$$V(x' - b_1, y' - b_2, z') = \sum_{\vec{q}} V_q e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}'} e^{-i\vec{q} \cdot \vec{R}(t)} ;$$

$$\vec{R}(t) = (b_1, b_2, 0) \quad (3.2-26a)$$

$$e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}(t)} = \sum_{l=-\infty}^{l=\infty} J_l(q_1 b) e^{il\omega t} e^{-il\omega a q} ;$$

$$b = e\epsilon_0 / m\omega(\omega - \omega_c) \quad (3.2-26b)$$

$$\exp(E_{k_0 n} t' / \hbar) \psi_{k_0 ns}(\vec{r}', t') = \sum_{j=-\infty}^{+\infty} \psi_{k_0 ns}^j(\vec{r}') e^{ij\omega t'} \quad (3.2-26c)$$

Na equação (3.2-26b)  $J_\ell(q_1 b)$  é a função de Bessel de ordem  $\ell$  e  $b$  é o parâmetro de campo. Substituindo-se (3.2-26) em (3.2-25) e integrando-se em  $t'$  e  $k'$ ,  $\psi_{k_0 ns}(\vec{r}, t)$  pode ser escrito na forma:

$$\psi_{k_0 ns}(\vec{r}, t) = \phi_{k_0 ns}(\vec{r}, t) + \frac{im}{\hbar} \sum_{n', s'} \int_{\vec{q}, \ell, \nu} d^3 \vec{r}' * \frac{V_q J_\ell(q_1 b)}{K(\nu)} e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}'} e^{-i\ell \alpha_q} e^{ik(\nu)(z-z')} \chi_{n', s'}^*(\vec{\rho}') \chi_{n, s}(\vec{\rho}) * e^{-iE_{k', n', t}/\hbar} \psi_{k_0 ns}^{\nu-\ell}(\vec{r}') \quad (3.2-27)$$

onde

$$K(\nu) = k_0 \left| 1 + \frac{2m}{\hbar k_0^2} \{ (n-n')\omega_c - \nu\omega \} \right|^{1/2} \quad (3.2-28)$$

Donde podemos escrever

$$\psi_{k_0 ns}(\vec{r}, t) = \phi_{k_0 ns}(\vec{r}, t) + \sum_{n', s', \nu} f_{ns; n', s'}^{k_0, k(\nu)} \phi_{k(\nu) n', s'}(\vec{r}, t) \quad (3.2-29)$$

onde

$$f_{ns; n', s'}^{k_0, k(\nu)} = i \frac{(2\pi)^{1/2} m}{\hbar^2 k(\nu)} \int_{\vec{q}, \ell} d^3 \vec{r}' V_q J_\ell(q_1 b) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}'} * e^{-\ell \alpha_q} e^{-ik(\nu)z'} \chi_{n', s'}^*(\vec{\rho}') \psi_{k_0 ns}^{\nu-\ell}(\vec{r}') \quad (3.2-30)$$

Aqui  $f_{ns; n', s'}^{k_0, k(\nu)}$  é definida como a amplitude de transição do estado inicial ( $k_0 ns$ ) para o estado final ( $k(\nu) n', s'$ ) com absorção ( $\nu < 0$ ) ou emissão ( $\nu > 0$ ) de  $|\nu|$  ftons.



Para resolvermos a amplitude de transição vamos fazer uso da aproximação de Born; esta aproximação é válida no limite de altas energias. Neste limite  $\psi_{k_{0ns}}^{v-l}(\vec{r}')$  pode ser escrita (usando a Eq. (3.2-26c)) na forma:

$$\begin{aligned} \psi_{k_{0ns}}^{v-l}(\vec{r}') &= \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} dt e^{-i(v-l)\omega t} e^{iE_{k_{0n}}t/\hbar} \psi_{k_{0ns}}(\vec{r}', t) \\ &= \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} dt e^{-i(v-l)\omega t} \phi_{k_{0ns}}(\vec{r}') = \delta_{l,v} \phi_{k_{0ns}}(\vec{r}') \end{aligned} \quad (3.2-31)$$

Consequentemente, substituindo a Eq. (3.2-31) na Eq. (3.2-30) a amplitude de espalhamento na aproximação de Born para transição de um elétron com momento  $\hbar k_0$  no n-ésimo nível de Landau para o n'-ésimo nível de Landau como momento  $\hbar k(v)$ , com a absorção ( $v < 0$ ) ou emissão ( $v > 0$ ) de  $|v|$  fótons, pode ser escrita na forma:

$$\begin{aligned} f_{n,n'}^{k_0, k(v)} &= \frac{im}{\hbar^2 k(v)} \sum_{s,s'} \sum_q V_q J_v(q_1 b) e^{-ivq_0} * \\ &* d_{\vec{r}'}^3 e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}'} e^{-iq_0(v)z'} \chi_{n,s}^*(\vec{\rho}') \chi_{n's'}(\vec{\rho}') \end{aligned} \quad (3.2-32)$$

onde  $q_0(v) = k(v) - k_0$  é o momento transferido na direção do campo magnético. Na Eq. (3.2-32) nós incluímos a soma em  $s$  e  $s'$  devido a que cada nível de Landau  $\epsilon_n = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c$  está associado com um conjunto de eige-funções de número quântico principal  $n$ .

### 3.3 ESPALHAMENTO POR UM POTENCIAL COULOMBIANO

Nesta seção nosso principal objetivo é analisar a ampli

tude de transição Eq. (3.2-33) quando o potencial de interação é um potencial coulombiano,  $V(\vec{r}) = Ze^2/r$ . Transformando na Eq. (3.2-32) a soma em  $\vec{q}$  por uma integral, obtemos:

$$f_{n,n'}^{k_o, k(v)} = \frac{4\pi i m Z e^2}{(2\pi)^3 k(v) \hbar^2} \sum_{s,s'=0}^{\infty} \int d^3\vec{q} d^3\vec{r}' \frac{J_v(q_1 b) e^{-i v \alpha_q}}{q_1^2 + q_z^2} \cdot e^{i \vec{q}_1 \cdot \vec{\rho}'} e^{i(q_z - q_o(v))z'} \chi_{n',s}^*(\vec{\rho}') \chi_{n,s}(\vec{\rho}') \quad (3.3-1)$$

Expandindo-se  $\exp(i \vec{q}_1 \cdot \vec{\rho}')$  como  $\sum_{\mu=-\infty}^{+\infty} J_{\mu}(q_1 \rho') e^{-i \mu(\alpha - \alpha_q)}$  onde a diferença  $(\alpha - \alpha_q)$  é o ângulo formado entre  $\vec{q}_1$  e  $\vec{\rho}'$ , e fazendo-se as integrações em (3.2-32) sobre  $Z'$ ,  $q_z$ ,  $\alpha$  e  $\alpha_q$ , obtemos

$$f_{n,n'}^{k_o, k(v)} = \frac{2 i m Z e^2}{\hbar^2 k(v)} \sum_{s,s'=0}^{\infty} \delta_{n',-s',n-s+v} \int dq_1 q_1 \cdot \frac{J_v(q_1 b)}{q_1^2 + q_0^2(v)} \int_0^{\infty} d\xi I_{n',s'}(\xi) I_{ns}(\xi) J_{-v} \frac{q_1 \xi}{\sqrt{\gamma}} \quad (3.3-2)$$

Nesta última integral se substituiu a expressão  $\chi_{ns}(\vec{\rho}')$  pela Eq. (3.2-11c). A integração em  $\xi$  pode ser feita substituindo-se Eq. (3.2.11d) e usando-se a seguinte relação (Gradshteyn e Ryshik - (1965))

$$\int_0^{\infty} dx e^{-x} x^{\mu/2} L_m^{\sigma}(x) L_m^{\mu-\sigma}(x) J_{\mu}(a\sqrt{x}) = (-1)^{m+m'} 2^{-\mu} a^{\mu} e^{-a^2/4} L_m^{\sigma-m'+m}(a^2/4) L_m^{\mu-\sigma+m'-m}(a^2/4) \quad (3.3-3)$$

Usando a Eq. (3.3-3) obtemos a seguinte relação para a amplitude de transição

$$f_{n,n'}^{k_0 k(v)} = \frac{imZe^2}{\hbar^2 k(v)} \sum_{s,s'=0}^{\infty} \delta_{n'-s', n-s+v} \frac{s!n!}{n's!}^{1/2} \cdot$$

$$\cdot (-1)^{n'+s} \theta(n-s) \theta(s'-n') \int_0^{\infty} dx \frac{e^{-x} x^{(n-s+s'-n')/2} J_v(\beta \sqrt{x})}{x+x_0(v)}$$

$$\cdot L_s^{n-n'}(x) L_{n'}^{s-s'}(x) \quad (3.3-4)$$

onde  $x_0 = q_0^2(v)/4$ ,  $\beta = 2\gamma^{1/2} b$  e  $\theta$  é a função definida na Eq. (3.2-19). A expressão  $f_{n,n'}^{k_0, k(v)}$  mostra que a amplitude de transição é um função monótona decrescente do momento transferido, e depende do campo eletromagnético ( $b$ ) e do número de fôtons absorvidos ou emitidos durante o processo de espalhamento. Note que para o caso onde não está presente a radiação do laser ( $b=0$ ), o argumento da função de Bessel é nulo. Neste caso  $J_v(0)$  é diferente de zero unicamente para  $v=0$  e portanto a Eq. (3.3-4) se reduz a expressão obtida por Brandi et al (1979) referente ao espalhamento de um elétron por um potencial coulombiano na presença de um campo magnético forte.

No que segue vamos limitar nosso estudo ao problema da excitação de níveis de Landau ( $n' > n$ ) supondo, para maior clareza, que o estado inicial corresponde ao mínimo nível de Landau ( $n=0$ ). Nestas condições e fazendo uso das funções  $\theta$  e  $\delta$  em (3.3-4) obtemos para  $n=0$  a condição  $s=0$ ,  $n'-s' = v$ . Como  $s' > n'$ , a condição  $n'-s' = v$  é válida somente para  $v < 0$ , isto é  $v = -\lambda$  onde  $\lambda=1,2,3,\dots$ . Ou seja, a excitação de níveis de Landau ( $n' > 0$ ) no processo de espalhamento de uma partícula carregada, na presença de um campo de laser é possível somente com a absorção ( $v < 0$ ) de  $|v|$  fôtons, como

deveríamos esperar. Neste caso a amplitude de espalhamento correspondente pode ser escrita na forma

$$f_{o,n'}^{k,mk(-\lambda)}(\beta, x_o) = (-1)^{n'} \frac{imZe^2}{\hbar^2 k(-v)} \frac{n'!}{(n'+\lambda)!} A_{n',\lambda}(\beta, x_o) \quad (3.3-5)$$

onde  $A_{n',\lambda}(\beta, x_o)$  é definida como

$$A_{n',\lambda}(\beta, x_o) = \int_0^\infty dx \frac{e^{-x} x^{\lambda/2}}{x+x_o(-\lambda)} J_\lambda(\beta\sqrt{x}) L_{n'}^{n'+\lambda}(x) \quad (3.3-6)$$

Como estamos interessados no comportamento ressonante da amplitude de espalhamento (3.3-5) o conhecimento analítico da expressão  $A_{n',\lambda}(\beta, x_o)$  não é essencial. Claramente a Eq. (3.2-6) pode ser resolvida usando a representação em séries das funções Bessel e de Laguerre e integrando-se termo a termo.

### 3.4 DISCUSSÃO

Nesta seção nós discutiremos os resultados obtidos para o espalhamento de uma partícula carregada na presença simultânea de um campo de laser e um campo magnético uniforme por um potencial coulombiano. Especificamente só analisaremos o comportamento ressonante de tais efeitos na excitação de níveis de Landau para a qual a amplitude de transição é dada por Eq. (3.3-5).

Começaremos observando que o momento final da partícula  $k(-\lambda)$ , dado pela Eq. (3.2-28) pode ser escrito na forma

$$\frac{k(-\lambda)}{k_o} = r_1^{-1/2} |r_1 + \lambda r - n'|^{1/2} \quad (3.4-1)$$

onde

$$r_1 = E_0 / \hbar \omega_c \quad \text{e} \quad r = \omega / \omega_c \quad (3.4-1)$$

É claro de (3.3-6) que, analogamente ao caso quando somente o campo magnético está presente (Brandi et al (1978a)), a amplitude de espalhamento é inversamente proporcional ao vetor de onda final da partícula. Como resultado, a Eq. (3.3-5) mostra um comportamento ressonante quando  $k(-\lambda)=0$ . Quando o campo de laser não está presente ocorrem ressonâncias para  $n'=r_1$ . Em nosso caso porém  $k(-\lambda)=0$  para

$$n' = \lambda r + r_1 \quad (3.4-2)$$

O significado desta ressonância é claro. Tal ressonância consiste da excitação do nível de Landau devido a transferência da energia Translacional da partícula e a absorção simultânea de  $\lambda$  fons.

Seja  $n_c$  o nível de Landau atingido em tal transição desde o estado inicial  $n=0$ , isto é:  $n_c = \lambda r + r_1$ .

Suponhamos também que  $r \neq 1$  (o caso  $r=1$  será considerado mais adiante). A Eq. (3.4-1) claramente indica que tais ressonâncias podem agora ocorrer quando  $r_1 < n_c$ , tais ressonâncias não ocorrem quando temos presente somente campo magnético. Ou seja devido a presença do campo do laser, existem outras alternativas para excitação de níveis de Landau.

Outro comportamento interessante de (3.3-5) e (3.3-6) é a presença de máximos da amplitude de excitação quando o parâmetro  $X_0$ , o qual aparece no integrando de (3.3-6), é nulo,  $X_0$  é dado por:

$$X_0 = \{r_1^{1/2} - [r_1 + \lambda r - n']^{1/2}\}^2 \quad (3.4-3)$$

Por outro lado,  $X_0=0$  requer que

$$n' = \lambda r \quad (3.4-4)$$

ou

$$n' = \lambda r + 2r_1.$$

Porém de (3.4-1) e (3.4-3) se tem que  $X_0=0$  se  $k(-\lambda)=k_0$ . A consequência imediata disto é que se  $X_0=0$  a energia translacional inicial é final da partícula deve ser conservada.

Em outras palavras, os máximos na amplitude de excitação correspondem aos processos onde a energia de excitação é proveniente da radiação do laser (absorção de  $\lambda$  ftons). De fato, como  $k(-\lambda)=k_0$  somente a primeira raiz de (3.4-4) tem significado físico. A segunda raiz ( $n'=\lambda r+2r_1$ ) representa um processo onde a conservação de energia é violada. Aqui a primeira raiz ( $n'=\lambda r$ ;  $r \neq 1$ ) descreve um processo onde o potencial de interação não participa do espalhamento.

Suponhamos agora que para certos valores de energia incidente da partícula da frequência do laser e do campo magnético,  $r_1$  seja inteiro. Neste caso, dois tipos de processos  $n'=\lambda r+r_1$  e  $n'=\lambda r$  podem existir (sempre que  $\lambda r$  seja inteiro) com absorção de  $\lambda = (n_0 - r_1)/r$  ftons. Como consequência os níveis de Landau  $n_0 - r_1$  serão seletivamente populados. Como as frequências ciclotrônica e do laser e a energia incidente da partícula são independentemente controláveis, é possível portanto obtermos experimentalmente valores dos parâmetros  $r_1$  e  $r$ .

Finalmente consideremos o caso quando temos a condição de ressonância ciclotrônica, isto é para  $r=1$ . Note-se que  $\beta$  nas

eqs. (3.3-6), pode ser escrito na forma  $\beta = \sqrt{r_2} |r-1|$ , onde  $r_2 = E_L / \hbar \omega_{ce}$ ,  $q q$   
 $E_L = e^2 \epsilon_0^2 / 2 m \omega^2$  é a energia da partícula no campo do laser. Quando  $r = 1$   
 $\beta$  é infinitamente grande, e como consequência a função de Bessel é  
infinitamente pequena exceto para quando  $\lambda$  é igual ao argumento. Is  
to implica que quando a ressonância ciclotrônica é atingida ( $r=1$ ) a  
amplitude de espalhamento para excitação de nível de Landau é muito  
pequena exceto quando o número ( $\lambda$ ) de ftons absorvido durante o pro  
cesso de transição é muito grande, isto é  $\lambda \beta \gg 1$ . Ou seja, na resso  
nância ciclotrônica excitação de níveis de Landau é essencialmen  
te dominada por processos de muitos ftons. Nestas condições ( $r=1$  e  
 $\lambda \gg 1$ ). Vemos que os níveis de Landau excitados são aqueles para os  
quais  $n' \sim \lambda \gg 1$ . Isto é, quando a ressonância ciclotrônica ocorre a  
excitação de níveis de Landau ( $n' \gg 1$ ) vem de processos de excitação  
a passos ( $0 \rightarrow 1 \rightarrow 2 \rightarrow \dots$ ), o qual não depende das características do po  
tencial de espalhamento.

### 3.5 CONCLUSÕES

Neste capítulo nós consideramos o espalhamento de partí  
culas carregadas na presença simultânea de um campo magnético uni  
forme d.c. e um campo de laser circularmente polarizado propagando-se  
paralelo ao campo magnético. Estudamos, em particular, a excitação  
de níveis de Landau no caso de espalhamento por um potencial coulombiano na aproximação de altas energias. Ênfase especial foi dado a  
investigação de efeitos ressonantes na amplitude de espalhamento. -  
Mostramos que a amplitude de excitação pode ter diferentes tipos de  
ressonâncias. Existem processos de ressonância associados com a ener  
gia translacional da partícula e absorção de  $\lambda$  ftons ( $n' = \lambda r + r_1$ ) na  
excitação de níveis de Landau. Existem também ressonâncias para -  
quando  $n' = \lambda r$ , as quais resultam do acoplamento direto do campo do

laser e o oscilador de Landau. Neste caso a excitação não depende dos detalhes do centro de espalhamento (Energia translacional inicial e final da partícula são as mesmas). Discutimos ainda o caso em que a frequência do laser é igual a frequência ciclotrônica. Neste caso mostramos que os processos são dominados pelo mecanismo de excitação de níveis de Landau altos ( $n' \gg 1$ ) devido a absorção de muitos ftons.

Finalmente é importante fazermos notar que a estrutura da amplitude de transição para excitação de níveis de Landau depende fortemente da geometria do campo do laser. Ferrante (1979) calculou a amplitude de transição para o espalhamento de uma partícula carregada por um potencial  $V(\vec{r})$  na presença de um campo magnético e um campo de laser polarizado na direção do campo magnético (eixo Z). Devido a esta geometria o resultado de acoplamento direto entre o campo do laser e o oscilador de Landau, o qual descreve a ressonância ciclotrônica ( $\omega = \omega_c$ ), não aparecem.



## REFERÊNCIAS

- . Akhiezer, A.I., Baryakhtar, V.G. e Peletminskii, S.V. (1968) "Spin Waves" (North-Holland Publishing Company, Amsterdam 1968).
- . Bendow, B., Ying, S.C. e Yukon, S.P. (1973) Phys. Rev. B8, 1679.
- . Bendow, B., Yukon, S.P. e Ying, S.C. (1974) Phys. Rev. B10, 2286.
- . Bhakar, B.S. e Choudhury, B.J. (1974) J. Phys. B7, 1866.
- . Billard, D., Gervois, F. e Piriou, B. (1976) Phys. Stat. Sol. 75, 117.
- . Blashkar, N.D., Jadnszliwer, B. e Bederson, B. (1977) Phys. Rev. Lett. 31, 14.
- . Blombergen, N. e Wong, S. (1954) Phys. Rev. 93, 72.
- . Blombergen, N. (1965) Nonlinear Optics (Benjamin, New York).
- . Born, M. e Huang, K. (1954) Dynamical Theory of Cristal Lattices (Oxford U.P. London (1954)).
- . Brandi, H.S., Koiller, B., Lins de Barros, H.G.P. e Miranda, L.C.M. (1978a) Phys. Rev. A18, 1415.
- . Brandi, H.S., Koiller, B., Lins de Barros, H.G.P., Miranda, L.C.M. e Castro, J.J. (1978b) Phys. Rev. A17, 1900.
- . Brandi, H.S., Santos, R.R. e Miranda, L.C.M. (1976) Lett. Nuovo Cimento 16, 187.
- . Callaway, J. (1964) J. of Mathem. Phys. 5, 783.
- . Callaway, J. (1964) Phys. Rev. 134, A 1655.
- . Cohen, R., Lodenquai, J. e Ruderman, R.M. (1970) Phys. Rev. Lett. 25, 467.
- . Colles, M.J. e Giordmaine, J.A. (1971) Phys. Rev. Lett. 27, 670.

- . Cowley, R.A. (1963) Adv. Phys. 12, 421.
- . Cowley, E.R. e Cowley, R.A. (1965) Proc. R. Soc. A267, 259.
- . Damber, P.G. e Elliot, R.J. (1963) Proc. R. Soc. 273, 222.
- . Damon, R.W. (1953) Rev. Mod. Phys. 25, 239.
- . Deutsch, T.F. (1973) J. Phys. Chem. Solids 34, 2091.
- . DuBois, D.F. e Goldman, N.V. (1965) Phys. Rev. Lett. 14, 544.
- . Ferrante, G., Nuzzo, S. e Zarcone, M. (1979) Submitted to J. Phys. B.
- . Fitipaldi, I.P., Rezende, S.M. e Miranda, L.C.M. (1973) Solid State Commun. 13, 1779.
- . Gradshteyn, I.S. e Ryzhik, I.M. (1965) "Table of Integrals, Series and Products" (New York: Academic Press) p. 979.
- . Ishii, H., Kanamori, J. e Nakumara, T. (1965) Progr. Theor. Phys. 33, 795.
- . Izatt, J.R., Bean, B.L. e Cauch, G.F. (1975) Opt. Commun. 14, 385.
- . Kadomtsev, B.B. (1970) Zh. Eksp. Teor. Fiz. 58, 1765 (1970 Sov. Phys. JETP 31, 945).
- . Keating, P.N. e Rupprecht, G. (1965) Phys. Rev. 138, A866.
- . Landau, L.D. e Lifshitz, E.M. (1958) "Quantum Mechanics" (Oxford: Pergamon Press) p. 424.
- . Lax, B. e Cohn, D.R. (1973) Appl. Phys. Lett. 23, 363.
- . Levinson, I.B. (1973) Sov. Phys. JETP 38, 169.
- . Lima, M.B.S., Lima, C.A.S. e Miranda, L.C.M. (1979) J. Phys. C. (in press).
- . Lifshitz, E.M. (1943a) F. Phys. U.S.S.R. 7, 215.
- . Lifshitz, E.M. (1943b) F. Phys. U.S.S.R. 7, 249.
- . Lifshitz, E.M. (1944) F. Phys. U.S.S.R. 8, 89.
- . Lifshitz, E.M. (1948) Zh. Eksp. Teor. Fiz. 18, 293.
- . Lifshitz, E.M. (1956) Nuovo Cimento (Suppl. 10) 3, 716.

- . Luzzi, R. e Miranda, L.C.M. (1978) Phys. Reports 43, 423.
- . Ludwig, W. "Defects in Solids" (N.B. Hannay, New York, Plenum).
- . Mazur, P., Montroll, E.W. e Potts, R.B. (1956) J. Wash. Acad. Sci. 46, 2.
- . Maradudin, A.A. e Mills, D.L. (1973) Phys. Rev. Lett. 31, 718.
- . Maradudin, A.A. (1969) "Lattice Dynamics" (W.A. Benjamin, New York 1969).
- . McGill, T.C., HeUworth, R.W., Mangir, M. e Winston, H.V. (1973) J. Phys. Chem. Solids 34, 2105.
- . Melo, C.P., Ferreira, R., Brandi, H.S. e Miranda, L.C.M. (1976), Phys. Rev. Lett. 37, 676.
- . Mills, D.L. e Maradudin, A.A. (1973) Phys. Rev. B8, 1617.
- . Mills, D.L. e Maradudin, A.A. (1974) Phys. Rev. B10, 1713.
- . Mitani, Y. e Takeno, S. (1965) Progr. Theor. Phys. 33, 779.
- . Miranda, L.C.M. (1977) Solid State Commun. 22, 103.
- . Montroll, E.W. e Potts, R.B. (1955) Phys. Rev. 100, 525.
- . Montroll, E.W. e Potts, R.B. (1956) Phys. Rev. 162, 72.
- . Montroll, E.W., Maradudin, A.A. e Weiss, G.H. (1963) Proc. Stevens Institute Conf. on Many body Problems (New York: Interscience).
- . Mozer, B., Otnes, K. e Myers, V.W. (1962) Phys. Rev. Lett. 8, 278.
- . Namjoshi, K.V. e Mitra, S.S. (1974) Phys. Rev. B9, 815.
- . Orbach, R. (1966) Phys. Rev. Lett. 16, 15.
- . Rau, A.R.P. e Spruch, L. (1976) Astrophys. J. 207, 671.
- . Rosenstock, H.B. (1973) J. Appl. Phys. 44, 4473.
- . Scheafer, J.C. (1960) J. Phys. Chem. Solids 12, 233.
- . Seely, J.F. (1974) Phys. Rev. A10, 1863.
- . Seely, J.F. e Harris, E.G. (1973) Phys. Rev. A7, 1064.
- . Shul, H. (1954) J. Phys. Chem. Solids 1, 209.

- . Sparks, M. e Sham, L.J. (1972) Solid State Commun. 11, 1451.
- . Sparks, M. e Sham, L.J. (1973a) Phys. Rev. B8, 3037.
- . Sparks, M. e Sham, L.J. (1973b) Phys. Rev. Lett. 31, 714.
- . Sparks, M. e Sham, L.J. (1974) Phys. Rev. B9, 827.
- . Sparks, M. e Chow, H.C. (1974) Phys. Rev. B10, 1699.
- . Sparks, M. (1964) "Ferromagnetic Relaxation Theory" (McGraw Hill, New York, 1964).
- . Sparks, M. (1974) Phys. Rev. B10, 2581.
- . Takeno, S. (1963) Progr. Theor. Phys. 30, 731.
- . Tahir-Kheli, R.A. e Ter Haar, D. (1962a) Phys. Rev. 127, 88.
- . Tahir-Kheli, R.A. e Ter Haar, D. (1962b) Phys. Rev. 127, 95.
- . Wallis, R.F. e Maradudin, A.A. (1962) Phys. Rev. 125, 1277.
- . White, R.M. e Sparks, M. (1963) Phys. Rev. 130, 632.
- . Wolfram, T. e Callaway, J. (1963) Phys. Rev. 130, 2207.