

EFECTOS DE LAS POLARIZABILIDADES ELECTRONICAS SOBRE LOS CORRIMIENTOS Y ANCHOS DE LINEA DE FONONES ANARMONICOS EN CRISTALES IONICOS.

A. Greco, S.Koval*, R.Migoni**

Instituto de Física Rosario, (CONICET), Facultad de Ingeniería, Universidad de Rosario, Br. 27 de Febrero 210 Bis, 2000 Rosario.

Aplicamos un formalismo perturbativo desarrollado anteriormente para un modelo de capas anarmónico al cálculo de corrimientos y anchos de línea fonónicos en un modelo unidimensional simple de un sólido con iones polarizables. Analizamos estas propiedades para diferentes puntos k de la Zona de Brillouin y también como función de la temperatura para k fijo. Comparamos los resultados para distintos valores de la constante de acoplamiento capa-carozo g con los obtenidos por un modelo de ión rígido ($g \rightarrow \infty$). Mostramos que la polarizabilidad electrónica de los iones conduce a modificaciones significativas de las dependencias en k , como así también, de la relación entre los corrimientos y los anchos de línea. Damos una interpretación de las discrepancias entre la experiencia y la teoría de fonones anarmónicos en el Silicio. Finalmente, mencionamos algunas futuras aplicaciones.

En el estudio de los fonones de la dinámica de la red el modelo de capas juega un importante papel¹. Ahora bien, en los casos donde se requiere un adecuado tratamiento de las anarmonicidades, el estudio de los fonones es una cuestión no trivial. Recientemente, nosotros hemos estudiado el problema^{2,3} y definido un método perturbativo para el estudio de los corrimientos y ancho de línea en el espectro de fonones. Este método es también de utilidad para la evaluación perturbativa de la energía libre. El objetivo de este trabajo es estudiar, usando el mencionado método, los corrimientos y anchos de línea en un modelo simplificado. Esto nos permitirá analizar las diferencias que aparecen con respecto a la teoría perturbativa para el modelo de ion rígido anarmónico⁴.

Para un mayor entendimiento de los resultados y sus perspectivas de aplicación ver Ref.5.

El modelo estudiado está definido por el siguiente potencial:

$$\Phi(u, v) = \sum_i \left[\frac{1}{2} f(v_i - v_{i-1})^2 + \frac{1}{2} g(u_i - v_i)^2 + \frac{f_3}{3!} (v_i - v_{i-1})^3 + \frac{f_4}{4!} (v_i - v_{i-1})^4 \right] \quad (1)$$

u_i y v_i son las coordenadas de carozo y capa respectivamente; f y g son las constantes de fuerza armónicas mientras que f_3 y f_4 son constantes anarmónicas (Fig.1). Este modelo presenta todas las características de un

modelo de capas anarmónico y por otro lado cuando $g \rightarrow \infty$, límite donde la polarizabilidad iónica es despreciable, el modelo tiende a un modelo anarmónico de iones rígidos y por lo tanto todos nuestros resultados tienden a los de este modelo al hacer el mencionado límite.

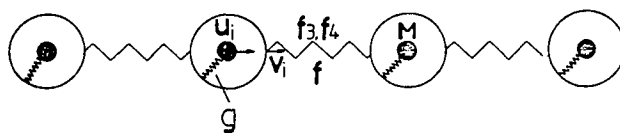


Figura 1: Cadena monoatómica de iones polarizables con constante de acoplamiento capa-carozo g e interacciones capa-capá armónica, cúbica y cuártica f, f_3, f_4 entre primeros vecinos. M es la masa iónica y u_i y v_i son los desplazamientos del carozo y la capa respectivamente.

El potencial (1) puede escribirse en una forma más compacta como:

$$\Phi(u, v) = \frac{1}{2} R_{ij} u^i u^j + T_i^j u^i v_j + \frac{1}{2} S^{ij} v_i v_j + \frac{1}{4!} F_4^{ijkl} v_i v_j v_k v_l + \frac{1}{3!} F_3^{ijkl} v_i v_j v_k, \quad (2)$$

En lo que sigue del trabajo usaremos la notación y resultados de Ref.3.

Usando,

$$\frac{\partial \Phi}{\partial v} = T u + S v + \frac{1}{3!} F_4 v v v + \frac{1}{2!} F_3 v v, \quad (3)$$

*Becario CONICET,
**Investigador CONICET.

$$\frac{\partial \Phi}{\partial v \partial v} = S + \frac{1}{2!} F_4 v v + F_3 v \quad (4)$$

y el vector

$$X = \begin{pmatrix} \dot{u} \\ v \\ \lambda \end{pmatrix} \quad (5)$$

la acción efectiva S' queda:

$$S' = \frac{1}{2} X^\alpha G_{\alpha\beta}^{-1} X^\beta + \eta^* S \eta + \frac{1}{4!} A_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(4)} X^\alpha X^\beta X^\gamma X^\delta + \frac{1}{3!} A_{\alpha\beta\gamma}^{(3)} X^\alpha X^\beta X^\gamma + B_\alpha^{(3)} X^\alpha \eta^* \eta + \frac{1}{2!} B_{\alpha\beta}^{(4)} X^\alpha X^\beta \eta^* \eta \quad (6)$$

donde los únicos elementos de matriz distintos de cero son:

$$A_{2222}^{(4)} = A_{3222}^{(4)} = A_{2322}^{(4)} = A_{2232}^{(4)} = A_{2223}^{(4)} = F_4 \quad (7)$$

$$A_{222}^{(3)} = A_{322}^{(3)} = A_{232}^{(3)} = A_{223}^{(3)} = F_3 \quad (8)$$

$$B_{22}^{(4)} = F_4 \quad (9)$$

$$B_2^{(3)} = F_3 \quad (10)$$

Además de los propagadores $G_{\alpha\beta}$ y S^{-1} (ver Ref.5) tenemos los siguientes vértices:

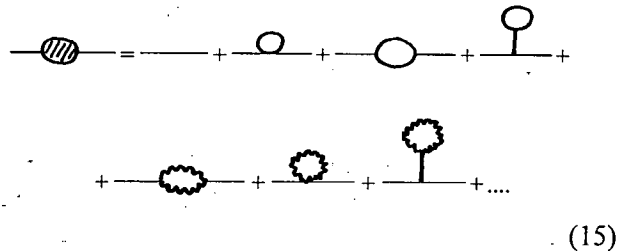
$$(-1) \frac{1}{4!} A_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(4)}: \quad \begin{array}{c} \alpha \quad \delta \\ \backslash \quad / \\ \bullet \\ / \quad \backslash \\ \beta \quad \gamma \end{array} \quad (11)$$

$$(-1) \frac{1}{3!} A_{\alpha\beta\gamma}^{(3)}: \quad \begin{array}{c} \alpha \\ \backslash \\ \bullet \\ / \\ \beta \quad \gamma \end{array} \quad (12)$$

$$(-1) \frac{1}{2!} B_{\alpha\beta}^{(4)}: \quad \begin{array}{c} \alpha \\ \backslash \\ \bullet \\ / \\ \beta \end{array} \quad \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \quad (13)$$

$$(-1) B_\alpha^{(3)}: \quad \alpha \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \quad (14)$$

Hasta segundo orden en teoría de perturbaciones tenemos



$$\quad (15)$$

Tomando los valores de la Tabla 1 para los parámetros y evaluando analíticamente los diagramas de (15) (las expresiones finales de los diagramas pueden encontrarse en Ref. 5, los resultados para el corrimiento y ancho de línea son resumidos en las Figs. 2 y 3.

| M [uma] | f $\left[\frac{\text{eV}}{\text{\AA}^2} \right]$ | f ₃ $\left[\frac{\text{eV}}{\text{\AA}^3} \right]$ | f ₄ $\left[\frac{\text{eV}}{\text{\AA}^4} \right]$ |
|---------|---|--|--|
| 120.5 | 0.15625 | -0.07225 | 0.00625 |

Tabla 1: Parámetros del modelo.

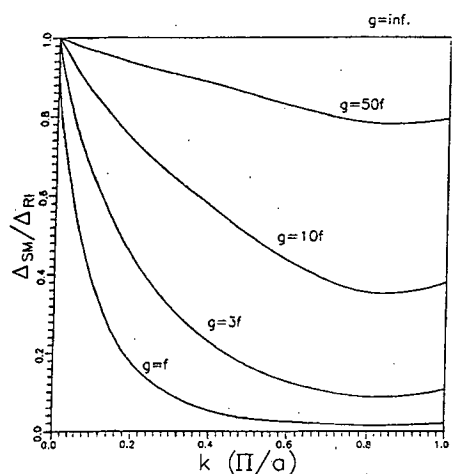


Fig. 2: Corrimiento total del modelo de capas relacionado con el correspondiente al límite de ión rígido ($\Delta_{SM} / \Delta_{RI}$) vs. vector de onda k a lo largo de la zona de Brillouin. Graficamos para distintos valores de g a $T=500^\circ\text{K}$.

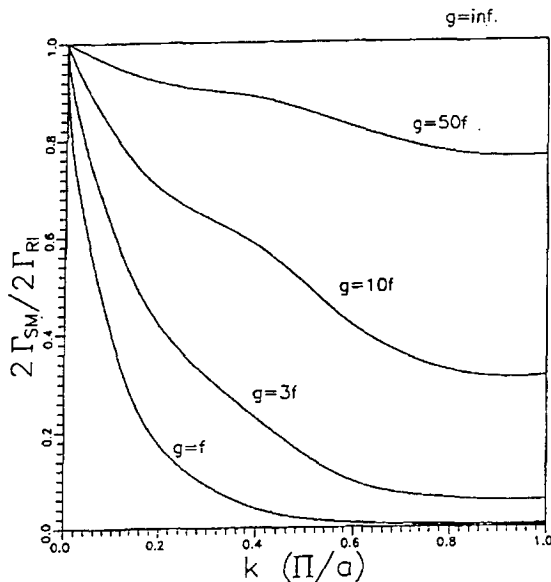


Fig. 3: Ancho de línea del modelo de capas relacionado con el correspondiente al límite de ión rígido ($2\Gamma_{SM} / 2\Gamma_{RI}$) vs. vector de onda k a lo largo de la zona de Brillouin. Graficamos para distintos valores de g a $T= 500^\circ K$.

En estas figuras puede observarse claramente las diferencias cualitativas que aparecen entre los tratamientos perturbativos en modelos de iones rígidos y el equivalente en el modelo de capas. Primero, los parámetros anarmónicos necesarios para explicar un dado corrimiento y ancho de línea fonónico son más grandes para el modelo de capas que para el modelo de ión rígido. Segundo, el modelo de capas da una relación diferente (generalmente más pequeña) entre el ancho de línea y el corrimiento (ver Tabla 2). Tercero, ambas cuestiones son fuertemente dependientes de el vector de onda k .

| | $g=f$ | $g=3f$ | $g=10f$ | $g=50f$ | $g \rightarrow \infty$ |
|---|--------|---------|---------|---------|------------------------|
| $\frac{[\Delta(T) - \Delta(0)]_{SM}}{[\Delta(T) - \Delta(0)]_{RI}}$ | 0.0213 | 0.01071 | 0.3796 | 0.7934 | 1.0000 |
| $\frac{\Gamma_{SM}(T)}{\Gamma_{RI}(T)}$ | 0.0046 | 0.0552 | 0.3101 | 0.7632 | 1.0000 |

Tabla 2: Valores de las relaciones independientes de T $\frac{[\Delta(T) - \Delta(0)]_{SM}}{[\Delta(T) - \Delta(0)]_{RI}}$ y $\frac{\Gamma_{SM}(T)}{\Gamma_{RI}(T)}$ en el borde de zona para distintos valores de la constante de acoplamiento capa-carozo g .

El segundo hecho mencionado nos permite dar una posible interpretación de las discrepancias encontradas por Cowley⁶ en el tratamiento de anarmonicidades en Silicio. Cowley describió las curvas de dispersión armónicas del Silicio usando un modelo de capas. Luego, calculó los corrimientos y anchos de línea del fonón óptico del centro de zona usando la teoría perturbativa usual para el modelo de ión rígido⁴. Cowley reprodujo satisfactoriamente el corrimiento fonónico, pero predijo valores mucho más grandes para el ancho de línea que los encontrados experimentalmente. Nuestros resultados sugieren que esta discrepancia puede ser debida a despreciar el efecto de las polarizabilidades en el tratamiento anarmónico. Como aplicación futura, se intentará resolver este problema planteando un modelo realista tridimensional del Silicio con la teoría aquí desarrollada.

Estamos también interesados en la transición tetragonal-ortorrómbica que ocurre en La_2CuO_4 . Partiendo de un modelo de capas ajustado a la dispersión fonónica⁷, analizaremos el modo blando responsable de la transición estructural siguiendo la teoría perturbativa para el modelo de capas descrita en este trabajo.

REFERENCIAS

1. W.Cochran, Crit. Rev. Solid State Sc. **2**, 1 (1971).
2. A.Dobry and A.Greco, J.Phys. A **23**, 567 (1990).
3. A.Dobry, A.Greco y O.Zandron, Phys. Rev. B **43**, 1084 (1991).
4. A.A.Maradudin y A.E.Fein, Phys. Rev. **128**, 2589 (1962).
5. A.Greco, S.Koval y R.Migoni; J.Phys.: Condens. Matter **4**, 5291 (1992).
6. R. Cowley, J.Physique **26**, 659 (1965).
7. S.Koval, R.Migoni y H.Bonadeo, J.Phys.: Condens. Matter **4**, 4759 (1992).