UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS

GERSON FERREIRA JUNIOR

Ferromagnetismo no regime Hall quântico inteiro via teoria do funcional de densidade

GERSON FERREIRA JUNIOR

Ferromagnetismo no regime Hall quântico inteiro via teoria do funcional de densidade

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo, para obtenção do título de Doutor em Ciências.

Área de concentração: Física Básica

Orientador: Prof. Dr. José Carlos Egues

Versão original

São Carlos 2011 AUTORIZO A REPRODUÇÃO E DIVULGAÇÃO TOTAL OU PARCIAL DESTE TRABALHO, POR QUALQUER MEIO CONVENCIONAL OU ELETRÔNICO, PARA FINS DE ESTUDO E PESQUISA, DESDE QUE CITADA A FONTE.

Ficha catalográfica elaborada pelo Serviço de Biblioteca e Informação IFSC/USP

Ferreira Junior, Gerson

Ferromagnetismo no regime Hall quântico inteiro via teoria do funcional de densidade/ Gerson Ferreira Junior; orientador José Carlos Egues de Menezes – São Carlos, 2011.

137 p.

Tese (Doutorado – Programa de Pós-graduação em Ciências. Área de concentração: Física Básica) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo.

1. Ferromagnetismo de efeito Hall quântico. 2. Teoria do funcional de densidade. 3. Spintrônica. 4. Instabilidades ferromagnéticas. I. Título.

FOLHA DE APROVAÇÃO

Gerson Ferreira Júnior

Tese apresentada ao Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo para obtenção do título de Doutor em Ciências.

Área de Concentração: Física Básica

Aprovado(a) em: 21.06.2011

Comissão Julgadora

Prof(a). Dr(a). José Carlos Egues de Menezes

Instituição: IFSC/USP

Assinatura

Prof(a). Dr(a). Antonio José Roque da Silva

Instituição: IF/USP

Assinatura

Prof(a). Dr(a). Belita Koiller

Instituição: UFRJ

Assinatura &

Prof(a). Dr(a). Ivan Costa da Cunha Lima

Instituição: UERJ

Assinatura

Prof(a). Dr(a). Luiz Nunes de Oliveira

Instituição: IFSC/USP

Assinatura

Agradecimentos

Agradeço . . .

- ... à minha imensa família na figura dos meus pais [Gerson e Marisa], avós [João† e Nina, Gumercindo† e Albina†], e irmãs [Fernanda, Fabiana e Flávia] pela educação, incentivo e amizades incondicionais. Sobretudo pela paciência e apoio emocional (*e financeiro*) necessários nesta longa carreira.
- ... aos meus sobrinhos [André, Felipe, Ana Laura, Ana Luíza, Rodrigo e Gustavo] por me manterem jovem e imaturo (Fundamental! Alguém discorda!?). Por serem desastrados, briguent As, e palhaços!
- ... aos demais membros da minha família. Cunhados [Humberto, Carlão, e Piscula]; tios [Osmar e Marines, Mauro e Carmem, Jerson† e Ana Maria, Gumercindo† e Helenice]; primos e tantos outros;
- ... aos meus grandes amigos, eternos, inseparáveis, incondicionais, indispensáveis! Impossível ordenar e medo de esquecer alguém na lista! Povo do colegial [Matheus (Rato), Ivan, Piccin, João, Fúlvio, Ana Paula, Binho, Carol, Stefan, Taísa, Bisto, Fábio, Piru, Cremonesi]. JBs da Itautec [Marcelo, Renato, Marião, Matheus, Gilberto, Rogério, Lú]. Aussi, ceux qui m'ont aidé avec le Français [Luciano, Lívia]. Amizades mais recentes e mesmo assim marcantes [Mari, Dhay, Iasmin, Lucilda, Ana].
- ... toda minha turma da universidade, lista imensa. Agradeço a todos na figura da Mariana, por todos estes anos ao meu lado, incentivos e contribuições inestimáveis para minha formação profissional e pessoal.
- ... friends from abroad, but always nearby [Joe, Ben, Liz, Sergio, Ucko, Hari, Stefano, Vladimir].
- ... aos que passaram pela república Åsgard em especial por anos e histórias inesquecíveis [Ivan, Hugoooooo, Lucas, Magnus, Matheus (Rato), Leo, Rodrigo, Alexandre, Rafael (SPA), Thiago, Dênis].
- ... a todos os professores que contribuiram para minha formação com suas aulas, discussões e amizade [Guilherme, Esmerindo, Klaus, Luiz Nunes, Ivan C. Lima, Valter, Djalma, Jabá, Alcaraz, Dudu, Totó, Gonzalo, Attílio, Reginaldo, Magon, Yuri].
- ... professors Michael Leuenberger, Daniel Loss, and Bill Coish, for the good times, ideas and discussions during my scientific visits to Orlando, Basel and Montreal.
- ... a todos os funcionários do IFSC pelo auxílio e amizade [Cris, Sonia, Victor, Ricardo, Italo, Sílvio, Luciano (+ ScInfor), Beth, Edvane, Antenor, Seu Zé, Gilmar, etc.].
- ... ao meu orientador J. Carlos Egues pelos 9 anos de companheirismo, estudos, discussões, *happy-hours*, por me amadurecer como cientista e me apresentar para o mundo (principalmente Suíça, é claro...).
- ... aos demais membros do nosso grupo de pesquisa [Henrique, Fabrício, Poliana, Marco, Sammarco, Penha, Schiavo, Leo, Fu, Udson]. Em especial ao Henrique por ter me co-orientado no início da minha formação.

Caro Jr.

Este não é um frio E/2 e
sim um abraço físico ou bio-físico por inteiro.

O meu desejo é:
Que você tenha felicidades elevado a enésima potência;
Que o bom vetor indique seu objetivo com clareza;
Que você não desista no primeiro tropeço;
Que as operações fundamentais lhe sejam úteis;
Que você faça a ilusão vir a tona num grande empuxo e
saia gritando Eureka;
Que você faça que a cada tristeza corresponda
uma alegria maior e em sentido contrário.

Que DEUS te proteja.

EMERRE. 14/02/2002

"If you know a thing, it is simple; if it is not simple, you don't know it."

(escrito na contracapa do primeiro livro que usei na início da minha pesquisa)

Resumo

FERREIRA, G J. Ferromagnetismo no regime Hall quântico inteiro via teoria do funcional de densidade. 2011. 137p. Tese (Doutorado) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, 2011.

O efeito Hall quântico surge em gases de elétrons bidimensionais (2DEG) na presença de altos campos magnéticos B. O campo magnético quantiza o movimento planar dos elétrons em órbitas ciclotrônicas caracterizadas pelos níveis de Landau. Neste regime a resistividade transversal (ou Hall) ρ_{xy} em função de ${\bf B}$ exibe platôs em submúltiplos inteiros de e^2/h , i.e., $\rho_{xy} = \nu^{-1}e^2/h$, sendo ν o fator de preenchimento dos níveis de Landau. Por sua vez, a resistividade longitudinal ρ_{xx} apresenta picos nas transições entre platôs de ρ_{xy} . Em primeira instância, ρ_{xx} é uma medida indireta da densidade de estados no nível de Fermi $g(\varepsilon_F)$, e os picos dos mesmos indicam cruzamentos do nível de Fermi ε_F com niveis de Landau. Assim, o diagrama de densidade de elétrons n_{2D} e **B** dos picos de $\rho_{xx} \sim g(\varepsilon_F)$ fornece um mapa topológico da estrutura eletrônica do sistema. Em sistemas de duas subbandas, $\rho_{xx}(n_{2D}, B)$ exibe estruturas em forma de anel devido a cruzamentos de níveis de Landau de subbandas distintas [experimentos do grupo do Prof. Jiang (UCLA)]. Estes cruzamentos podem ainda levar a instabilidades ferromagnéticas. Investigamos estas instabilidades usando a teoria do funcional da densidade (DFT) para o cálculo da estrutura eletrônica, e o modelo de Ando (formalismo de Kubo) para o cálculo de ρ_{xx} e ρ_{xy} . Para temperaturas mais altas (340 mK) obtemos as estruturas em forma de anel em ρ_{xx} . Para temperaturas mais baixas (70 mK), observamos uma quebra dos anéis devido a transições de fase ferromagnéticas. Variando-se o ângulo θ de B com relação ao 2DEG observa-se o encolhimento do anel. Nossos resultados mostram que o ângulo de colapso total do anel depende de uma competição entre o termo de troca da interação de Coulomb (princípio de Pauli) e cruzamentos evitados devido ao ângulo θ finito. As transições de fase exibem ainda o fenômeno de histerese. Na região de instabilidade ferromagnética obtemos diferentes soluções variando ${f B}$ de forma crescente ou decrescente. Estas soluções possuem energias total diferentes, de forma que representam estados fundamental e excitado de muitos corpos. Esta observação, juntamente com resultados anteriores do grupo [Freire & Egues (2007)], representam as primeiras realizações teóricas da previsão da possibilidade de estados excitados como mínimos locais do funcional de energia do estado fundamental [Perdew & Levy (1985)]. O modelo aqui proposto fornece excelente acordo com os experimentos considerados. Adicionalmente, a observação sistemática e experimentalmente verificada dos estados excitados valida as previsões de Perdew & Levy. Aplicamos ainda estas mesmas ideias no cálculo da estrutura eletrônica e condutância de fios quânticos na presença de campos magnéticos, mostrando que cruzamentos de modos transversais também exibem instabilidades ferromagnéticas observadas em experimentos recentes [Dissertação de Mestrado de Filipe Sammarco, IFSC/USP], fortalecendo a validade do modelo apresentado nesta tese.

Palavras-chave: Ferromagnetismo de efeito Hall quântico. Teoria do funcional da densidade. Spintrônica. Instabilidades ferromagnéticas.

Abstract

FERREIRA, G J. Quantum Hall ferromagnetism via density functional theory. 2011. 137p. Tese (Doutorado) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, 2011.

The quantum Hall effect arises in two dimensional electron gases (2DEG) under high magnetic fields B. The magnetic field quantizes the planar motion of the electrons into cyclotron orbits given by the Landau levels. In this regime the transversal (Hall) resistivity ρ_{xy} shows plateaus as a function of **B** at integer sub-multiples of e^2/h , i.e., $\rho_{xy} = \nu^{-1}e^2/h$, where ν is the filling factor of the Landau levels. The longitudinal resistivity ρ_{xx} shows peaks at the transition between the plateaus of ρ_{xy} . In principle, ρ_{xx} is an indirect measure of the density of states at the Fermi level $g(\varepsilon_F)$, so that the peaks indicate when the Fermi level ε_F crosses a Landau level. Therefore, a density-B-field diagram n_{2D} -B of the $\rho_{xx} \sim g(\varepsilon_F)$ peaks shows a topological map of the electronic structure of the system. In two-subband systems, $\rho_{xx}(n_{2D}, B)$ shows ringlike structures due to crossings of spin-split Landau levels from distinct subbands [experiments from the group of Prof. Jiang (UCLA)] that could lead to ferromagnetic instabilities. We study these instabilities using the density functional theory (DFT) to calculate the electronic structure, and Ando's model (Kubo formalism) for ρ_{xx} and ρ_{xy} . At higher temperatures (340 mK) we also obtain the ringlike structures in ρ_{xx} . At lower temperatures (70 mK) we see broken rings due to quantum Hall ferromagnetic phase transitions. Tilting B by θ with respect to the 2DEG normal we find that the ring structure shrinks. Our results show that the angle of full collapse depends on a competition between the exchange term from the Coulomb interaction (Pauli principle) and the anticrossing of Landau levels due to the finite angle θ . Additionally, at the instabilities we observe hysteresis. Sweeping the B field up or down near these regions we obtain two different solutions with distinct total energies, corresponding to the ground state and an excited state of the many-body system. This result, together with previous results of our group [Freire & Egues (2007)], are the first realizations of the theoretical prediction of the possibility of excited states as local minima of the ground state energy functional [Perdew & Levy (1985)]. The model proposed here shows an excellent agreement with the experiments. Additionally, the systematic and experimentally verified observation of excited states corroborates the predictions of Perdew & Levy. Similar ideas as presented here when applied to the electronic structure and conductance of quantum wires with an in-plane magnetic field show ferromagnetic instabilities at crossings of the wire transverse modes [Master Thesis of Filipe Sammarco, IFSC/USP], also with excellent experimental agreement. This strengthen the range of validity of the model proposed in this Thesis.

Keywords: Quantum Hall ferromagnetism. Density functional theory. Spintronics. Ferromagnetic instabilities.

Sumário

| 1 | Intr | rodução | 0 | 17 |
|---|------|---------|---|----|
| | 1.1 | O efeit | to Hall quântico | 18 |
| | 1.2 | Ferron | nagnetismo de efeito Hall quântico | 20 |
| | 1.3 | Teoria | do funcional da densidade | 21 |
| | 1.4 | DFT 8 | & estados excitados | 23 |
| | 1.5 | Conte | údo da tese e resumo dos resultados | 24 |
| | 1.6 | Projet | os em andamento | 27 |
| 2 | Fun | damen | atos e ferramentas | 33 |
| | 2.1 | Estrut | ura eletrônica | 33 |
| | 2.2 | Efeito | Hall quântico | 38 |
| | | 2.2.1 | Efeito Hall quântico inteiro | 41 |
| | | 2.2.2 | Alargamento dos níveis de Landau | 42 |
| | | 2.2.3 | Resposta linear, formalismo de Kubo | 45 |
| | | 2.2.4 | Argumento de Prange | 48 |
| | | 2.2.5 | Modelo para os coeficientes de magnetotransporte | 50 |
| | 2.3 | Métod | os numéricos | 51 |
| | | 2.3.1 | Discretização uniforme | 53 |
| | | 2.3.2 | Discretização não-uniforme | 54 |
| 3 | Teo | ria do | funcional da densidade | 57 |
| | 3.1 | Teorer | nas de Hohenberg & Kohn | 59 |
| | 3.2 | Métod | o da busca restrita (constrained search) | 62 |
| | 3.3 | Equaç | ões de Kohn & Sham | 64 |
| | 3.4 | Genera | alização CSDFT: spin, campo magnético e temperatura | 69 |
| | 3.5 | Funcio | onais de troca e correlação | 74 |
| | 3.6 | Consti | rução de funcionais aproximados | 75 |
| | 3.7 | Estado | os excitados e a DFT | 80 |
| | 3.8 | Topolo | ogia da densidade de estados e a resistividade longitudinal | 85 |
| 4 | Fer | romagı | netismo no regime de efeito Hall quântico inteiro | 87 |
| | 4.1 | Estrut | uras em forma de anel em $\rho_{xx}(n_{2D}, B)$ | 88 |

| | 4.1.1 Modelo simples e aspectos gerais | 89 |
|--------|---|-----|
| 4.2 | Quebra dos anéis e as transições de fase | 92 |
| | 4.2.1 Modelo interagente: DFT e LSDA | 93 |
| 4.3 | Estados excitados e histerese via DFT | 96 |
| | 4.3.1 Sistema de uma subbanda | 96 |
| | 4.3.2 Estruturas em forma de anel | 98 |
| | 4.3.3 Estados excitados e histerese | 99 |
| 4.4 | Campo magnético inclinado | 100 |
| 4.5 | Conclusões | 102 |
| Referê | ncias | 106 |
| Apênd | ice A Efeito Hall clássico | 121 |
| Apênd | ice B Relação de Einstein para a condutividade | 123 |
| Apênd | ice C Troca & correlação e os determinantes de Slater | 127 |
| Apênd | ice D Cálculo da densidade de estados | 131 |

1 Introdução

A física de semicondutores destaca-se de outras áreas de pesquisa pelo interesse comercial por aplicações tecnológicas. Uma das apostas promissoras para o futuro de tais aplicações é a *spintrônica* (1). Nesta, procuram-se dispositivos que atuem manipulando *spin* (seja eletrônico ou nuclear), em contraste com a eletrônica atual onde a carga eletrônica é a grandeza fundamental. Espera-se que os dispositivos *spintrônicos* sejam mais eficientes, uma vez que, em geral, a manipulação do *spin* é mais rápida e exige menos energia.

Atualmente, a spintrônica de materiais metálicos vem dominando as aplicações comerciais, e.g., (i) cabeça de leitura de discos-rígidos modernos [IBM SpinAps*] inicialmente fundamentada na magnetorresistência gigante [GMR, do inglês giant magnetoresistance; prêmio Nobel a Albert Fert (2) e Peter Gruenberg (3) em 2007]; e propostas recentes: (ii) MRAM, magnetoresistive random access memory (4); e (iii) racetrack memory (5).

Já a *spintrônica* em materiais semicondutores ainda é uma promessa, e permanece como importante área de pesquisa. O interesse comercial nestes materiais vem do desejo de integrar os novos dispositivos junto a processadores e memórias usuais, baseados em silício.

Do ponto de vista de física básica, tais pesquisas podem ainda revelar novos fenômenos interessantes. Neste contexto, as principais motivações vêm das propostas do transistor de spin de Datta & Das (6); e de portas lógicas compostas por qubits em pontos quânticos proposta por Loss & DiVincenzo (7). Estas propostas enfrentam problemas em comum que representam questões interessantes de física básica e podem ser estudadas de forma independente(8, 9), e.g., relaxação de spin devido a acoplamento spin-órbita, interação hiperfina, impurezas magnéticas, etc; injeção de corrente spin-polarizada de metais para semicondutores; detecção do estado de spin de um elétron aprisionado em pontos quânticos; acoplamento e espalhamento por fônons; interação com luz, laser; efeitos de muitos corpos como ferromagnetismo, sistemas fortemente correlacionados; etc.

Nesta tese investigamos instabilidades ferromagnéticas em gases de elétrons quase-bidimensionais (2DEG, do inglês two dimensional electron gas) no regime de efeito Hall

_

^{*} http://www.almaden.ibm.com/spinaps/

quântico inteiro. Nesta introdução apresento superficialmente (i) as características do regime de efeito Hall quântico e modelos teóricos para os coeficientes de magnetotransporte; (ii) as instabilidades ferromagnéticas no regime Hall quântico; e (iii) teoria do funcional da densidade, usada para o cálculo da estrutura eletrônica do sistema interagente. Na sequência, apresento o conteúdo e organização da tese, estabelecendo a conexão entre os tópicos citados, discutindo os resultados principais e conclusões obtidas.

1.1 O efeito Hall quântico

O regime de efeito Hall quântico estabelece-se em gases de elétrons quase-bidimensionais (2DEG, do inglês two dimensional electron qas) na presença de um alto campo magnético transversal B_{\perp} (10, 11). Neste, o movimento planar dos elétrons é quantizado pelo confinamento magnético em órbitas de Landau, cuja estrutura eletrônica é caracterizada por níveis de Landau (12), i.e., estados igualmente espaçados por $\hbar\omega_c\propto B_{\perp}$ e degenerescência macroscópica $eB_{\perp}/h \sim 10^{11}~{\rm cm}^{-2}$ (para $B_{\perp}=1~{\rm T}$). Este regime é caracterizado em medidas de magnetotransporte com quatro terminais. A baixos campos magnéticos o regime clássico prevalece: a resistividade Hall (ou transversal) é $\rho_{xy} \propto B_{\perp}/n_{2D}$, sendo n_{2D} a densidade bidimensional de portadores de carga; e a resistividade longitudinal ρ_{xx} exibe oscilações de Shubnikov-de Haas. Para campos mais altos a quantização de Landau leva ao regime quântico: ρ_{xy} apresenta platôs em em submúltiplos inteiros de h/e^2 , i.e., $\rho_{xy} = h/\nu e^2$, sendo ν um número inteiro; e os vales das oscilações de Shubnikov-de Haas chegam a $\rho_{xx} = 0$, apresentando picos para campos referentes a transições entre platôs e ρ_{xy} (10, 11). Os platôs em ρ_{xy} refletem a quantização da estrutura eletrônica em níveis de Landau, sendo que o submúltiplo inteiro ν , fator de preenchimento, indica o número de níveis de Landau ocupados.

Os fundamentos teóricos descrevendo o efeito Hall quântico já haviam sido estabelecidos em 1975 por Ando, Matsumoto e Uemura (13). Porém, neste artigo os autores investigam características do efeito Hall em sistemas de elétrons bidimensionais de forma abrangente, não fornecendo uma previsão definitiva da quantização de ρ_{xy} . Apenas em 1980 Klaus von Klitzing (10, 11) e colaboradores observam experimentalmente a quantização exata dos platôs. Esta descoberta rendeu o prêmio Nobel a Klaus von Klitzing em 1985.

A alta precisão obtida na quantização dos platôs foi inesperada. Os resultados não dependem das características das amostras, i.e., geometria, dimensões, e imperfeições do

material (impurezas, bordas, etc.). Atualmente os platôs de resistividade são usados como padrão universal de referência para resistência, $h/e^2 = 25.812,807\,557~\Omega$, e constante de estrutura fina $\alpha = e^2/\hbar c = 1/137,035\,999\,679$.

Tal precisão é explicada segundo diferentes modelos (14, 15). No modelo de Laughlin publicado em 1981 (16), a quantização é consequência da invariância de calibre da equação de Schrödinger. Esta invariância sobrevive mesmo na presença de pequenas perturbações, como desordem e impurezas, preservando a quantização. Já no modelo de Prange (17), também de 1981, a localização de elétrons devido a desordem tem o papel principal. Neste modelo os estados localizados não contribuem para a corrente, porém, na região dos platôs estados estendidos são impulsionados por um campo elétrico efetivo criado pelos elétrons localizados, compensando exatamente a perda de corrente devido a localização. Finalmente, na formulação de estados de borda (18–20), cada extremo da amostra transporta elétrons em direções opostas, de forma que, devido a separação espacial entre as duas contribuições, o espalhamento de elétrons de uma direção para outra é suprimido, mesmo na preseça de impurezas. Todas estas descrições são unificadas pelo modelo de invariantes topológicos (21), neste, demonstra-se que quando o potencial químico encontra-se no gap entre níveis de Landau (i.e., região dos platos em ρ_{xy}), os coeficientes de magnetotransporte podem ser escritos na forma de invariantes topológicos, i.e., não dependem das condições de contorno.

Os modelos citados acima descrevem os platôs da resistividade Hall ρ_{xy} , porém não fornecem uma descrição completa da transição entre platôs de ρ_{xy} e os picos em ρ_{xx} associados. Na Ref. (22) os autores descrevem os coeficientes de magnetotransporte segundo um modelo fenomenológico motivado pelos argumentos de Prange (17). Neste, utiliza-se as expressões derivadas por Ando (13, 23) via formalismo de Kubo para descrever os componentes do tensor de condutividade σ_{xx} e σ_{xy} (inverso do tensor de resistividade), substituindo a densidade de estados total $g(\varepsilon)$ por uma densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon)$ que descreve os estados estendidos da amostra, de forma a considerar a compensação da corrente descrita por Prange. As duas densidades de estados são descritas por distribuições gaussianas. No caso da $g(\varepsilon)$, sabe-se que o alargamento devido a espalhamento por impurezas gera a distribuição gaussiana (23–27). No caso de espalhadores de curto alcance, Ando mostrou via aproximação auto-consistente de Born (23) que o alargamento depende da mobilidade μ_e dos elétrons, $\Gamma \propto \sqrt{B/\mu_e}^{\dagger \dagger}$. Já a densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon)$ é tratada fenomenologicamente por uma distribuição gaussiana com largura $\Gamma_{ext} < \Gamma$, e justificada a posteriori em comparação com experimentos. Ambas são normalizadas para eB_{\perp}/h , tal que $g(\varepsilon)$ reproduz a densidade total de elétrons no nível de Landau, enquanto que a normalização de $g_{ext}(\varepsilon)$ reproduz o argumento de Prange que diz que na presença de

[†] Apesar da aproximação de curto alcance nem sempre ser válida, a expressão de Ando fornece um valor razoável para o alargamento. Em última instância, Γ é entendido como um parâmetro livre no modelo.

[‡] Medidas recentes mostram que a mobilidade varia de forma não trivial com a densidade de elétrons do gás bidimensional (28).

altos campos magnéticos, os elétrons estendidos transportam uma corrente equivalente a que seria transportada se todos os elétrons contribuíssem (17).

1.2 Ferromagnetismo de efeito Hall quântico

Quando níveis de Landau se cruzam próximos ao nível de Fermi a baixas temperaturas, estabelece-se uma competição pela minimização da energia total, envolvendo a interação de Coulomb e energias cinética e Zeeman. Tal competição é mediada pelo princípio de Pauli, i.e., pelo termo de troca da interação de Coulomb.

Podemos entender esta competição considerando o ponto de cruzamento de dois níveis com números quânticos orbitais distintos. Caso os dois níveis tenham *spins* opostos, antisimetriza-se o termo de *spin* da função de onda, permitindo que haja sobreposição do termo orbital de diferentes elétrons, aumentando a energia de repulsão Coulombiana $\propto |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{-1}$. Já no caso *spin*-polarizado, o termo orbital da função de onda é antisimetrizado, minimizando a superposição orbital e reduzindo a repulsão Coulombiana. Esta é a fenomenologia geral do princípio de Pauli.

No caso do ferromagnetismo de efeito Hall quântico, considera-se usualmente o cruzamento de dois níveis de Landau. Estes níveis podem ser descritos como pseudo-spins, por se tratarem de sistemas efetivos de dois níveis. Define-se o pseudo-spin como $|\sigma\rangle = |jns\rangle$, sendo j, n, s os números quânticos referentes a subbanda, nível de Landau e spin, de forma que o estado completo do elétron é dado por $|\sigma, k_y\rangle$, sendo que o vetor de onda k_y descreve o centro da órbita de Landau no plano do 2DEG§. O princípio de Pauli descrito acima pode ser imediatamente aplicado a estes estados. Aqui a energia total é minimizada polarizando-se o pseudo-spin σ e anti-simetrizando a componente orbital livre k_y , de forma a maximizar a distância média entre elétrons no plano, reduzindo a repulsão Coulombiana $\propto |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{-1}$. Como o número quântico polarizado é o pseudo-spin, dá-se o nome de ferromagnetismo de pseudo-spin. Na Ref. (29), Jungwirth & MacDonald usam a teoria de Hartree-Fock para classificar as instabilidades ferromagnéticas no regime de efeito Hall quântico segundo o pseudo-spin dos níveis envolvidos nos cruzamentos.

Experimentalmente, o cruzamento de níveis de Landau pode ser induzido por diferentes métodos. (i) Inclinando-se o campo magnético com relação ao eixo normal do 2DEG (30–32). Tanto a separação dos níveis de Landau quanto a degenerescência e fator de

 $[\]S$ Aqui consideramos o calibre de Landau, c.f. (12, 29). As mesmas ideias aplicam-se a quaisquer calibres.

preenchimento dependem apenas da componente transversal $B_{\perp} = B \cos \theta$ do campo magnético, enquanto que a separação Zeeman depende da intensidade total do campo $|\mathbf{B}|$. Assim, variando-se o ângulo θ , induz-se cruzamentos de níveis de Landau de spins opostos e mesma subbanda. (ii) Introduzindo-se dopantes magnéticos, os quais interagem com elétrons de condução via acoplamento s-d (33–35) dando origem a um termo Zeeman efetivo na presença de campo magnético externo. Tal efeito pode ser visto como um fator giromagnético efetivo, induzindo o cruzamento de níveis de Landau de spins opostos e mesmo índice de Landau e subbanda. (iii) Considerando-se sistemas com duas subbandas ocupadas (36–45), nos quais cada subbanda possui uma sequência de níveis de Landau, tal que aumentando-se a densidade de cargas ocorrem cruzamentos de níveis de Landau de subbandas distintas, tanto de mesmo spin quanto de spins opostos.

Nos experimentos citados acima, observam-se as instabilidades ferromagnéticas nas medidas de magnetotransporte, ρ_{xx} e ρ_{xy} . Nos casos referenciados por (i) e (ii) no parágrafo acima, a instabilidade é vista como um pico de ρ_{xx} se comportando de forma anômala: dependência com a temperatura e histerese para campo magnético crescente ou decrescente. Nos sistemas de duas subbandas, item (iii), costuma-se mostrar um mapa em escala de cores de ρ_{xx} no plano de densidade e campo magnético. Os picos de ρ_{xx} neste mapa têm a mesma topologia da densidade de estados do 2DEG, fornecendo uma medida indireta da estrutura eletrônica. Observa-se, na região de instabilidade ferromagnética, que o pico de ρ_{xx} referente a região de cruzamento de níveis de Landau é suprimido a baixas temperaturas, indicando a transição de fase.

As instabilidades observadas nas referências citadas correspondem aos diferentes casos previstos na classificação Hartree-Fock de Jungwirth e MacDonald (29). Porém, apesar do modelo Hartree-Fock ser capaz de prever a possibilidade de instabilidades ferromagnéticas, em princípio o modelo não prediz se a instabilidade de fato ocorrerá, e portanto não fornece quantitativamente o comportamento dos coeficientes de magnetotransporte.

1.3 Teoria do funcional da densidade

A teoria do funcional da densidade (DFT, do inglês density functional theory) é fundamentada nos teoremas de Hohenberg & Kohn (46) e na formulação de Kohn & Sham (47), publicados em 1964 e 1965. Os teoremas de Hohenberg-Kohn dizem que (i) todo observável pode, a princípio, ser escrito como um funcional da densidade do estado

fundamental; e (ii) o funcional de energia do sistema obedece um princípio variacional para a densidade, tal que a densidade do estado fundamental retorna o mínimo global de energia do funcional. A formulação de Kohn-Sham mapeia o sistema de muitos corpos interagentes em uma equação de Schrödinger de uma única partícula sujeita a um potencial efetivo, definido pelo funcional de energia e princípio variacional de Hohenberg-Kohn. A solução das equações de Kohn-Sham fornecem a densidade e energia total do estado fundamental do sistema interagente. Em 1985, Perdew & Levy (48) mostraram ainda que o funcional de energia do estado fundamental pode conter mínimos locais, correspondentes a estados excitados do sistema, de forma que as soluções de Kohn-Sham podem também retornar estes estados como solução.

A formulação da DFT assume que o funcional de energia é conhecido exatamente, porém, na prática, o funcional de densidade referente aos termos de energia cinética e de interação Coulombiana de muitos corpos não são conhecidos exatamente. Tais termos possuem contribuições parciais conhecidas: energia cinética não-interagente e energia de Hartree (campo médio). As correções são atribuídas ao funcional de troca e correlação (XC, do inglês eXchange and Correlation) e constituem o potencial efetivo das equações de Kohn-Sham. Boas aproximações para este funcional é o que torna a DFT uma ferramenta teórica confiável e importante.

O mais simples funcional de troca e correlação é obtido na aproximação da densidade local (LDA, do inglês local density approximation), ou sua generalização dependente de spin LSDA (local spin density approximation). Nestes, o termo de troca é obtido analiticamente da integral de Fock considerando-se um sistema uniforme (ondas planas) com densidade equivalente a densidade local no ponto **r** do sistema interagente (47). Já o termo de correlação, mesmo nesta aproximação mais simples, requer aproximações mais drásticas. Funcionais mais bem estabelecidos, e.g., (49, 50) usam propriedades exatas [e.g. limites conhecidos de baixa e alta densidade, e extremos de polarização de spin; propriedades de escala; resultados de Monte Carlo quântico (51, 52); ...] para obter limites conhecidos e propor funcionais aproximados por interpolações simples.

Indo além das aproximações locais, os funcionais semi-locais [e.g., GGA (generalized gradient approximation), c.f. (53)] usam os gradientes locais da densidade a fim de obter uma descrição mais precisa das interações de muitos-corpos. Tais correções nem sempre são significativas (54). Ambas aproximações, locais e semi-locais, falham ao descrever uma propriedade muito importante conhecida como descontinuidade da derivada (55) (i.e., derivada funcional da energia total com relação à densidade). Em sistemas atômicos, esta propriedade diz respeito à diferença entre a energia de ionização I e a afinidade eletrônica A dos átomos e moléculas. Nestes sistemas a descontinuidade da derivada é dada pela diferença $A - I \neq 0$, mas as derivadas dos funcionais citados são contínuas. Em semicondutores, esta propriedade é relacionada ao gap entre bandas de valência e

condução (15, 55).

A princípio, funcionais orbitais (54, 56) apresentam a descontinuidade da derivada e representam um grande avanço na precisão da DFT. Porém, o custo computacional é extremamente elevado. Usualmente, utilizam-se funcionais híbridos (57), no qual o termo de troca é descrito como uma combinação sistemática da integral de Fock (funcional de troca exata, em inglês: exact exchange) e aproximações locais ou semi-locais incluindo o termo de correlação. Funcionais orbitais completos podem ser obtidos descrevendo-se a correlação de forma perturbativa (15, 58), mas raramente são usados devido a complexidade e custo computacional. Nas Refs. (59–61), Proetto e colaboradores mostram que tais funcionais descrevem de forma precisa uma transição de fase na ocupação da segunda subbanda em poços quânticos de GaAs.

1.4 DFT & estados excitados

Na formulação de Kohn-Sham, supõe-se que o estado fundamental do sistema interagente referente ao potencial $V(\mathbf{r})$ seja KS-representável (KS-representable, ou non-interacting V-representable). Ou seja, existe um potencial efetivo $V_{KS}(\mathbf{r})$ cujo estado fundamental das equações de Kohn-Sham retorna a densidade e energia total do estado fundamental do sistema interagente. A solução das equações de Kohn-Sham na formulação usual para o estado fundamental deve ser obtida autoconsistentemente, construindo-se a densidade como a soma dos orbitais de Kohn-Sham segundo a distribuição de Fermi-Dirac para estado fundamental com um único potencial químico (princípio aufbau).

Em 1985, Perdew & Levy (48) mostraram que o funcional de energia do estado fundamental pode também retornar estados excitados, mínimos locais, como solução das equações de Kohn-Sham. Em particular, os autores demonstram que mínimos locais do funcional de energia podem ser acessados autoconsistentemente se a densidade for calculada segundo o princípio aufbau. Esta condição indica que os mínimos locais representam estados excitados KS-representáveis, mais detalhes na Seção 3.7. Nem todo estado excitado será KS-representável, estes não podem ser acessados autoconsistentemente se a densidade segue o princípio aufbau. Apesar de demonstrar tal possibilidade, os autores não encontraram um sistema modelo que apresentasse estas soluções.

Nesta tese mostramos que tais mínimos locais são obtidos próximo aos cruzamentos

 $[\]P$ Esta suposição, ansatz, é demonstrada apenas para redes discretas (62).

de níveis de Landau, nos quais observa-se a instabilidade ferromagnética. A primeira observação destas soluções foi feita por nosso grupo [Freire & Egues (35), c.f., (63)].

1.5 Conteúdo da tese e resumo dos resultados

Nesta tese investigamos, via DFT, fenômenos relacionados às instabilidades ferromagnéticas no regime de efeito Hall quântico referentes a cruzamentos de níveis de Landau de subbandas distintas. Resultados experimentais recentes obtidos pelo grupo do prof. Jiang da UCLA, Refs. (36–40), exibem características interessantes destas instabilidades nas medidas de ρ_{xx} . Estes resultados experimentais são usados como referência nesta tese.

Consideramos como sistema modelo um 2DEG formado em um poço quântico largo de GaAs com duas subbandas relevantes. A Figura 1.1 ilustra o sistema modelo e estrutura eletrônica para elétrons não-interagentes. No intervalo de densidade e campo magnético investigados, o potencial químico atravessa regiões de cruzamento de níveis de Landau destas subbandas. Para cada região de cruzamentos, quatro níveis de Landau se cruzam, c.f. destaque na Fig. 1.1(c), definindo uma estrutura fechada delimitada pelos quatro pontos de cruzamentos. Cada estrutura é discriminada pelo fator de preenchimento ν da região central, no destaque da Fig. 1.1(c) temos $\nu=4$.

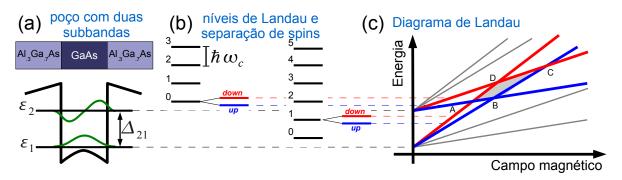


Figura 1.1 – (a) Sistema modelo: poço quântico de GaAs com duas subbandas relevantes no intervalo de densidade e campo magnético investigados. (b) Séries de níveis de Landau provenientes de cada subbanda e separação Zeeman ilustrada apenas em dois níveis por simplicidade. (c) Diagrama de Landau, energia contra campo magnético, destacando os cruzamentos de dois pares de níveis de Landau referentes ao fator de preenchimento ν = 4, pontos A,B,C e D.

Fenomenologicamente, podemos interpretar ρ_{xx} a baixas temperaturas como a densidade de estados no nível de Fermi $g(\varepsilon_F)$. Ambas grandezas representam um mapa topológico do diagrama de Landau, i.e., a estrutura de cruzamentos do diagrama de Landau é conformalmente transformada, via $g(\varepsilon_F)$, em estruturas de cruzamento no diagrama de

 ρ_{xx} no plano de densidade e campo magnético. No caso de duas subbandas, o digrama de ρ_{xx} apresenta estruturas em forma de anel, Fig. 1.2.

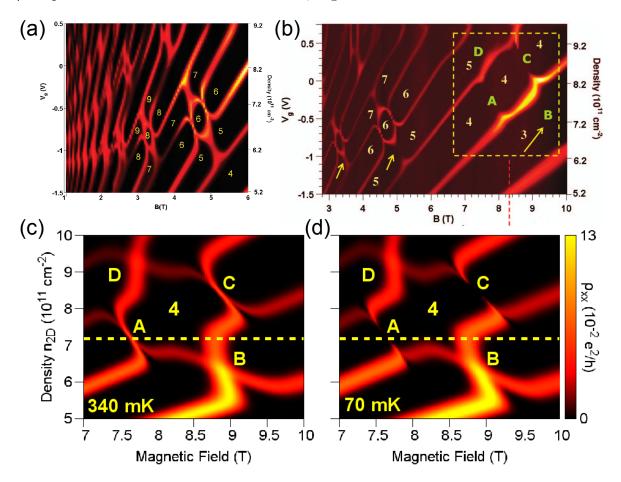


Figura 1.2 – (a) e (b) Medidas experimentais de ρ_{xx} no diagrama de densidade e campo magnético a T=340 mK e T=70 mK, Figuras extraídas das Refs. (36, 37). Regiões claras indicam os picos de ρ_{xx} . (c) e (d) Resultado obtido nesta tese para o cálculo de ρ_{xx} referente ao sistema experimental dos quadros (a) e (b). As estruturas em forma de anel (ringlike structures) em ρ_{xx} apresentam um mapa topológico dos cruzamentos destacados na Fig. 1.1(c). A quebra dos cruzamentos – A, B, C e D no experimento, mas apenas A e C no modelo atual – indicam as transições de fase ferromagnéticas. Os números indicam os fatores de preenchimento.

Experimentalmente, a temperaturas mais altas, T=340 mK, os aneis aparecem de forma completa em ρ_{xx} , Fig. 1.2(a), caracterizando a estrutura fechada dos cruzamentos de níveis de Landau da Fig. 1.1(c). Porém, a temperaturas mais baixas, T=70 mK na Fig. 1.2(b), a estrutura dos aneis se quebra nas regiões de instabilidades ferromagnéticas A, B, C e D. Esta estrutura quebrada pode ser vista inicialmente como uma abertura dos cruzamentos da Fig. 1.1(c).

Para investigar a física deste regime de instabilidades ferromagnéticas, usamos a DFT para calcular a estrutura eletrônica do sistema interagente na aproximação LSDA. A comparação com as medidas experimentais de ρ_{xx} pode ser feita diretamente através da densidade de estados $g(\varepsilon_F)$, descrita por um alargamento gaussiano (23) centrado nos autoestados da DFT. Para melhor comparação, usamo o modelo fenomenológico descrito

anteriormente, no qual os coeficientes de magnetotransporte são relacionados com uma densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon_F)$. Enfatizo aqui que as três grandezas, ρ_{xx} , $g(\varepsilon_F)$ e $g_{ext}(\varepsilon_F)$, apresentam a mesma topologia no diagrama de densidade de campo magnético.

No cálculo DFT a densidade de estados é considerada uma distribuição gaussiana centrada nos níveis de Landau e com largura $\Gamma \propto \sqrt{B/\mu_e}$, sendo μ_e a mobilidade dos elétrons. O alargamento gaussiano é dado pelo modelo espalhadores de curto alcance (24). No cálculo dos coeficientes de magnetotransporte usamos uma largura reduzida $\Gamma_{ext} < \Gamma$ para o alargamento, a fim de distinguir os estados localizados e estendidos seguindo os argumentos de Prange (17), c.f. Ref. (22).

Nossos principais resultados foram publicados nas referências abaixo (64–66):

- "Ringlike structures in the density–magnetic-field ρ_{xx} diagram of two-subband quantum Hall systems", G.J. Ferreira, H.J.P. Freire, J.C. Egues, Phys. Stat. Sol. (c) 3, 4364-4367 (2006);
- "Collapse of ρ_{xx} Ringlike Structures in 2DEGs Under Tilted Magnetic Fields", G.J. Ferreira, J.C. Egues, J. Supercond. Nov. Magn. 23, 19 (2010);
- "Many-body effects on the ρ_{xx} ringlike structures in two-subband wells", G.J. Ferreira, H.J.P. Freire, J.C. Egues, Phys. Rev. Lett. **104**, 066803 (2010).

Inicialmente, Ref. (64), discriminamos as contribuições dos termos de Hartree e de troca (correlação é praticamente irrelevante) para as estruturas em forma de anel a temperaturas mais altas T=340 mK. O termo de Hartree contribui majoritariamente para separação das subbandas, definindo a posição central dos aneis no diagrama de ρ_{xx} . Já o termo de troca, via princípio de Pauli, induz uma separação de spin tipo Zeeman efetiva, definindo o tamanho ("raio") do anel no diagrama. Na segunda publicação (65), investigamos, segundo modelo não-interagente, o acoplamento perturbativo entre níveis de Landau devido à inclinação do campo magnético com relação ao eixo normal do 2DEG. Os resultados mostraram o encolhimento e colapso da estrutura do anel com aumento do ângulo, em acordo qualitativo com os resultados experimentais da Ref. (39).

Finalmente, na Ref. (66), investigamos as instabilidades ferromagnéticas a baixas temperaturas, observando a quebra das estruturas em forma de anel, Figs. 1.2(c) e (d). Nossos resultados mostram a transição de fase ferromagnética próximo às regiões de cruzamentos A e C, em acordo quantitativo com o experimento, Figs. 1.2(a) e (b). Já os cruzamentos B e D não se quebram em nosso modelo. Estes também representam instabilidades ferromagnéticas segundo as previsões Hartree-Fock da Ref. (29) e se quebram nas medidas experimentais, Fig. 1.2(b). Esta característica representa uma limitação da aproximação LSDA para a interação de troca e correlação na DFT. Nesta mesma

publicação, investigamos também os efeitos da interação de Coulomb para o caso de campo inclinado. Na Ref. (65) havíamos obtido acordo qualitativo com o experimento para o colapso dos aneis. Observamos que o efeito dos termos de interação é gerar uma competição entre o colapso do anel, gerado pela aproximação de níveis de Landau, e o princípio de Pauli que tenta manter os estados afastados. A competição atrasa do encolhimento, deslocando o ângulo de colapso para valores maiores, retornando acordo quantitativo excelente com o experimento da Ref. (39).

No decorrer da tese apresento resultados ainda não publicados referente à histerese nas regiões de cruzamentos destes sistemas. A histerese ocorre quando variamos o campo magnético de forma crescente e decrescente próximo a região de instabilidade ferromagnética. Via interação de troca, o princípio de Pauli procura manter apenas um estado de (pseudo-)spin ocupado próximo ao potencial químico, minimizando a energia de Coulomb. Quando o potencial químico se aproxima do cruzamento, o estado vazio que se aproxima é "repelido", mantendo apenas o estado original ocupado. Os estados repelido e ocupado, dependem de se o potencial químico se aproxima do cruzamento pela esquerda ou pela direita no eixo de campo magnético. Esta fenomenologia leva à histerese. Assim, na região de instabilidades, obtemos duas soluções com energias distintas para um mesmo campo magnético. Estas representam os estados excitados KS-representáveis previstos, mas não obtidos, por Perdew & Levy (48). Os primeiros estados excitados KS-representáveis observados em cálculos autoconsistentes pertencem ao nosso grupo de pesquisa [Freire & Egues, PRL 2007, Ref. (35)], e recebeu destaque na revisão sobre tópicos interessantes da DFT feita por Perdew em 2009 (63). Infelizmente a histerese obtida em nossos calculos no sistema de duas subbandas é pequena demais para ser observada experimentalmente.

1.6 Projetos em andamento

Os resultados obtidos neste projeto de Doutorado nos permitiram ainda explorar outros tópicos que constituem trabalhos ainda em andamento e não compõem o corpo principal da tese. Apresento brevemente os mais relevantes nesta Introdução.

• Funcional de troca exata para regime de efeito Hall quântico.

A aproximação LSDA para o funcional de troca e correlação da DFT não é capaz de

 $[\]parallel$ De fato, o grupo de UCLA nos reportou em conversa privada que não observam histerese em suas medidas.

descrever as transições de fase referente a instabilidades ferromagnéticas em cruzamentos de níveis de Landau de mesmo *spin*, cruzamentos B e D na Fig. 1.2. Para compreender esta limitação da LSDA, procuro abaixo ilustrar a ideia de um funcional exato.

Tanto o funcional de troca, quanto a energia cinética interagente, são funcionais orbitais. Estes podem ser escritos em termos de operadores de campo, funções de onda, determinantes de Slater, ou orbitais mono-eletrônicos, porém, sem aproximações, não podem ser escritos como funcionais explícitos da densidade. Em particular, o termo de troca é dado pela integral de Fock. Ao mesmo tempo, os teoremas fundamentais da DFT (47) dizem que todo observável, inclusive tais funcionais, pode, a priori, ser escrito como funcionais da densidade do estado fundamental. No caso da interação de troca e energia cinética, os funcionais dependem implicitamente da densidade através da função de onda.

Um funcional exato $F_X[n(\mathbf{r})]$ deve proceder da seguinte forma idealizada: dada uma densidade $n(\mathbf{r})$, o funcional deve ser capaz de identificar a função de onda de muitos corpos $|\psi_0[n(\mathbf{r})]\rangle$ que retorna a menor energia para aquela densidade, assumindo a dependência funcional desta função de onda, i.e., $F_X[n(\mathbf{r})] \equiv F_X[\psi_0[n(\mathbf{r})]]$. Ou seja, a própria dependência funcional da densidade depende da densidade considerada. De certa forma podemos dizer que, por esta dependência funcional implícita, o funcional "sabe" detalhes sobre o autoestado do sistema.

No caso de funcionais explícitos da densidade, como a LDA, a dependência funcional é fixa, ou seja, o funcional sempre assume a dependência implícita dada pela onda plana. O funcional não é capaz de distinguir regiões de cruzamento. Na LSDA, o funcional depende das duas componentes de *spin* independentemente, e ainda que de forma limitada, apresenta uma dependência funcional satisfatória para regiões de cruzamento de autoestados de *spins* opostos. De forma geral, estes funcionais são satisfatórios na grande maioria dos casos onde a variação da densidade é suave. Porém aqui, a distinção entre os níveis de Landau ocupados é fundamental.

Em colaboração com o Prof. Dr. Cesar Proetto [Centro Atómico Bariloche and Instituto Balseiro, Bariloche, Argentina], desenvolvemos um funcional de troca exata otimizado para tratar as instabilidades ferromagnéticas no regime Hall quântico, considerando os orbitais de Kohn-Sham autoconsistentes a campo magnético finito, seguindo a formulação OEP [optmized effective potential (54, 56)]. Em primeira instância, com este funcional esperamos obter as transições de fase referentes às instabilidades B e D da Fig. 1.2, e aprimorar o acordo quantitativo de outros resultados. O projeto foi proposto devido ao excelente resultado obtido por Proetto e colaboradores no estudo de transições de fase a campo magnético nulo em sistemas semelhantes ao estudado nesta tese, Refs. (59–61). No momento da escrita desta tese, o projeto encontra-se em fase final de implementação numérica.

• Polarização dinâmica nuclear (DNP) e ressonância magnética nuclear detectada via resistividade (RDNMR).

A ressonância magnética nuclear detectada via resistividade (RDNMR, resistively detected nuclear magneto-resonance), é uma técnica usada para detectar a polarização nuclear em sistemas mesoscópicos (38, 40, 67, 68). O acoplamento hiperfino entre o spin dos elétrons de condução e spin nucleares em semicondutores é dado majoritariamente pelo termo de contato de Fermi (69) $V_{HF} = A\mathbf{I} \cdot \mathbf{S}$. A constante de acoplamento A depende do material estudado, e os termos \mathbf{I} e \mathbf{S} são os operadores de spin nuclear e eletrônico. Podemos decompor o produto escalar em termos referentes a dinâmica do sistema $I^{\pm}S^{\mp}$ e termos de campo médio $I_Z\langle S_Z\rangle$ e $\langle I_Z\rangle S_Z$. O termo dinâmico diz que o processo de relaxação via acoplamento hiperfino requer transferência de momento angular entre o elétron e núcleo. Já no estado estacionário os termos de campo médio dominam. O termo $I_Z\langle S_Z\rangle$ atua no sistema nuclear, gerando um campo magnético efetivo dependente da polarização média do sistema eletrônico, desviando (Knight shift) a frequência de ressonância magnética. O segundo termo $\langle I_Z\rangle S_Z$ gera um campo magnético efetivo no sistema eletrônico devido a polarização média nuclear (Overhauser shift).

Para a RDNMR, apenas o deslocamento Overhauser é relevante. Dado que o potencial químico do sistema encontra-se entre níveis de Landau de *spins* opostos e na região de estados localizados da densidade de estados, a resistividade pode ser descrita pelo processo de transporte ativado(11), $\rho_{xx} \propto \exp[-\Delta/2k_BT]$, sendo Δ a separação entre os níveis de Landau considerados. O acoplamento hiperfino contribui para a separação Δ com $A\langle I_Z\rangle S_Z$, tornando ρ_{xx} sensível a variações na polarização nuclear média $\langle I_Z\rangle$.

A polarização nuclear pode ser alterada por dois processos. (i) aplicando-se um campo de radio-frequência em ressonância com o sistema de spin nuclear, induz transições aleatórias, anulando a polarização média $\langle I_Z \rangle \to 0$. (ii) Mantendo o sistema de spins eletrônicos fora do equilíbrio através pulsos de luz circularmente polarizada, ou injeção de corrente spin polarizada (70). No segundo caso, o processo de relaxação ao equilíbrio do sistema eletrônico transfere o momento de spin desbalanceado dos elétrons para o núcleo via termo dinâmico do acoplamento hiperfino $I^{\pm}S^{\mp}$, processo de "flip-flop". Neste caso polariza-se dinamicamente o sistema nuclear (DNP), $\langle I_Z \rangle \neq 0$.

Nos dois casos, o processo de relaxação ao valor de equilíbrio de $\langle I_Z \rangle$ pode ser obtido observando-se a evolução temporal da resistividade. Usualmente a relaxação segue um processo exponencial, $\langle I_Z \rangle = I_Z^{EQ} + (I_Z^0 - I_Z^{EQ}) \exp[-t/T_1]$, sendo $1/T_1$ a taxa de relaxação. Para tempos curtos a resistividade também pode ser escrita na forma $\rho_{xx} \propto \exp[-t/T_1]$ e o valor de $1/T_1$ pode ser obtido ajustando-se uma exponencial à medida de ρ_{xx} em função do tempo.

Nos experimentos do grupo de UCLA, Refs. (38, 40), os autores observaram regiões

no diagrama de ρ_{xx} no qual a taxa de relaxação $1/T_1$ segue qualitativamente a lei de Korringa (69), Fig. 4 da Ref. (40). Porém, em outras regiões $1/T_1$ não obedece nem mesmo qualitativamente a lei de Korringa, Fig. 3 da Ref. (38) e demais resultados da Ref. (40).

Em colaboração com o Prof. Dr. Bill Coish [$McGill\ University,\ Montreal,\ Candada$], investigamos os processos de DNP e taxa de relaxação $1/T_1$ devido ao acoplamento hiperfino para estes sistemas. O modelo desenvolvido será aplicado ainda para outros sistemas recentes que apresentam resultados não-triviais (71). Para calcular a DNP, consideramos uma corrente intensa aplicada no sistema (voltagem finita) e processos de relaxação segundo acoplamento hiperfino assistido por fônons. Este projeto encontra-se em fase de implementação numérica.

• Instabilidades ferromagnéticas em fios quânticos.

Este projeto foi desenvolvido, em colaboração, nos projetos de Mestrado de Filipe Sammarco (72) e Udson C. Mendes (73). Consideramos fios quânticos nas geometrias (i) split-gate em 2DEG (Sammarco); e (ii) em sistemas cilíndricos tipo core-shell (Mendes). Medidas da condutância G nestes sistemas exibem platôs em múltiplos inteiros N de e^2/h , $G = Ne^2/h$, sendo N o número de modos transversais ocupados (74, 75). Na presença de campo magnético ao longo do fio, induzem-se cruzamentos de modos transversais. Na geometria split-gate, instabilidades ferromagnéticas surgem como platôs anômalos nas regiões de cruzamentos (76, 77). Estas são referenciadas como 0.7 analogs, em analogia com o platô anômalo observado a campo nulo, anomalia 0.7 (0.7 anomally, $G = 0.7 \times 2e^2/h$) (75, 78–80). Aplicamos neste sistema o modelo DFT para instabilidades ferromagnéticas apresentadas nesta tese, obtendo concordância quantitativa com os resultados experimentais, 0.7 analogs, para geometria split-gate [Sammarco, Ferreira, Egues, a ser submetido].

Já a anomalia 0.7 observada na ausência de campo magnético desde 1991 (75, 78–80) é um desafio teórico ainda sem solução definitiva. Há apenas um único consenso nestas medidas: o surgimento do platô anômalo é um fenômeno de muitos corpos dependente de *spin*. Aplicando-se um campo magnético o platô desloca-se continuamente de 0.7 para 0.5, caracterizando o desdobramento de *spin*. Mais de um modelo obtém sucesso *parcial* na descrição da anomalia 0.7: (i) impureza Kondo (81–84); (ii) liquido de Luttinger incoerente (85–88); (iii) polarização espontânea e interação de troca (89, 90).

Investigamos também esta anomalia 0.7 via DFT nestas colaborações com Sammarco e Mendes. Iniciamos o cálculo autoconsistente com campo magnético finito e reduzimos a intensidade do campo adiabaticamente até zero. No caso da geometria *split-gate* observamos que uma separação de *spins* efetiva sobrevive a campo nulo devido a interação de troca, correspondendo a um estado excitado, mínimo local do funcional de energia. Acreditamos que este estado excitado esteja relacionado com a anomalia 0.7 (modelo de polarização espontânea), em nossos cálculos obtemos um platô em 0.5, porém é sabido que o funcional

utilizado (91, 92) superestima a interação de troca. Já no caso da geometria cilíndrica coreshell não observamos esta polarização remanescente. No momento procuramos unificar as implementações de Sammarco e Mendes, a fim de comparar sistematicamente os resultados e investigar os efeitos da geometria e conservação de momento angular nesta polarização remanescente.

• Resistência diferencial negativa em grafeno

Este projeto desenvolvo em colaboração com os Profs. Drs. Michael Leuenberger (University of Central Florida, Florida, USA) e Daniel Loss (University of Basel, Switzerland) [Ferreira, Leuenberger, Loss, Egues, a ser submetido]. Neste, estudamos o transporte de elétrons através de nanofitas de grafeno com bordas do tipo armchair (93, 94) sujeita a um potencial externo periódico [super-rede (95, 96)] na direção de transporte. Calculamos a corrente através deste sistema pelo formalismo de Landauer, usando a técnica da matriz de transferência para obter o coeficiente de transmissão (74).

Os resultados mostram que é possível obter resistência diferencial negativa (NDR, negative differential resistance) nestas nanofitas em diferentes regimes. (i) Para barreiras largas, o acomplamento entre diferentes camadas da super-rede é exponencialmente suprimido, e a estrutura eletrônica pode ser descrita como cones de Dirac quantizados e modulados pelo potencial da super-rede. Neste caso o coeficiente de transporte calculado é próximo de uma visão semi-clássica: suprimido se o elétron atravessa regiões de gapem qualquer camada da super-rede, e quase unitário caso contrário. Com o aumento da voltagem, gaps de diferentes camadas se cruzam, levando a uma alternância entre transmissão finita e suprimida, gerando a NDR. (ii) Para barreiras mais finas o acoplamento é finito e a estrutura eletrônica a voltagem nula apresenta as minibandas. Estas são formadas pela hibridização de estados ressonantes, e possuem coeficiente de transmissão alto. A baixas voltagens as minibandas se quebram em estados ressonantes individuais, escada de Wannier-Stark (Wannier-Stark ladder). Como estes estados acoplam apenas camadas consecutivas das super-rede, o coeficiente de transmissão é drasticamente suprimido na transição entre minibandas e escadas de Wannier-Stark. Na corrente esta transmissão aparece como um pico a baixas voltagens ($\sim 10 \text{ mV}$), e consequentemente NDR. (iii) Para voltagens maiores, degraus de diferentes escadas de Wannier-Stark se cruzam e hibridizam, gerando um pico de transmissão através do sistema. Para cada cruzamento observamos um pico na corrente. Estes picos e NDR exibidos nestes resultados não-interagente indicam que o sistema proposto devem apresentar física semelhante a de super-redes de semicondutores (97–100), porém com vantagens tecnológicas, e.g., (i) devido a alta mobilidade dos portadores de carga, a densidade de corrente no grafeno é muito maior que em nas estruturas equivalentes em semicondutores, possibilitando a redução do tamanho de dispositivos; (ii) Dispositivos feitos de nanofitas de grafeno podem ser construídos na superfície de materiais, facilitando a absorção e emissão de luz ou laser. Esperamos que

este trabalho inicial estimule mais pesquisas referentes aos efeitos de fônons, impurezas, interação de Coulomb, etc, assim sim como novos experimentos e dispositivos.

2 Fundamentos e ferramentas

Nesta tese desenvolvemos um modelo teórico para ferromagnetismo no regime de efeito Hall quântico inteiro, incorporando os efeitos da interação de Coulomb entre os elétrons através da teoria do funcional da densidade (DFT, do inglês density functional theory). Neste capítulo, começo apresentando a estrutura eletrônica não-interagente de um sistema de elétrons quase-bidimensional, introduzindo o conceito de níveis de Landau. Em seguida discutimos os fenômenos de magnetotransporte de baixo campo (i.e., efeito Hall clássico e oscilações de Shubnikov—de-Haas), contextualizando o problema. Finalmente, descrevemos o regime de efeito Hall quântico inteiro e os ingredientes fundamentais do modelo desenvolvido: (i) alargamento dos níveis de Landau e a distinção entre estados localizados e estendidos; (ii) argumento de Prange para a formação dos platôs; e o (iii) modelo de Ando para os coeficientes de magnetotransporte. Posteriormente, introduzimos formalmente a teoria do funcional da densidade (DFT, density functional theory) e suas peculiaridades. Por fim apresentamos algumas características importantes dos métodos numéricos utilizados.

Na Seção 3, na qual discutimos a DFT, chamamos desde já a atenção para a discussão sobre os resultados de Perdew & Levy (48), no qual os autores demonstram que a formulação da DFT para estado fundamental também pode retornar estados excitados como extremos locais do funcional de densidade. Estes estão diretamente relacionados com as instabilidades ferromagnéticas estudadas nesta tese.

2.1 Estrutura eletrônica

Antes de iniciar discussões específicas sobre o modelo desenvolvido para estudar o ferromagnetismo no regime de efeito Hall quântico, devemos introduzir aspectos básicos do

Hamiltoniano e estrutura eletrônica do sistema bidimensional de elétrons neste regime. Os resultados apresentados nesta seção inicial serão usados em todas as discussões posteriores do modelo.

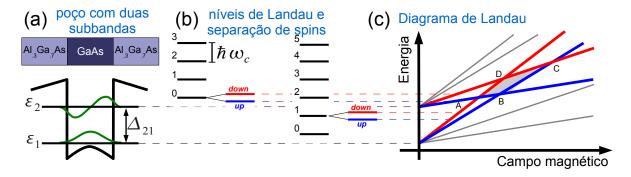


Figura 2.1 – (a) Diagrama de uma heteroestrutura semicondutora confinando os elétrons no poço de potencial com duas subbandas. (b) Na presença de campo magnético B finito cada subbanda dá origem a uma série de níveis de Landau separados por $\hbar\omega_c\propto B$. (c) A dispersão da energia com B é linear e ocorrem cruzamentos de níveis de Landau provenientes de subbandas distintas. A região demarcada pelos pontos A, B, C e D marcam os os cruzamentos referentes a estrutura em forma de anel com $\nu=4$.

De maneira geral, consideramos um sistema quase-bidimensional de elétrons no plano xy, onde o confinamento na direção \hat{z} é dado por um poço quântico formado em heteorestruturas semicondutoras. A Figura 2.1(a) mostra esquematicamente este confinamento em um poço de GaAs e barreiras laterais de $Al_xGa_{1-x}As$, sendo x=0.3 a concentração de alumínio. No plano xy consideramos inicialmente o sistema infinito e ideal, i.e., potencial constante, sem impurezas e defeitos.

Com as considerações dadas acima, o Hamiltoniano não-interagente para os elétrons da banda de condução na aproximação da função envelope é

$$H = \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} + V(z) + \frac{1}{2}g\mu_B \mathbf{B} \cdot \vec{\sigma}, \qquad (2.1)$$

sendo $\mathbf{p} = (p_x, p_y, p_z)$ o operador de momentum cinético, $\mathbf{A} = (A_x, A_y, A_z)$ o potencial vetor referente ao campo magnético $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$, m é a massa efetiva dos elétrons (e.g., $= 0.067m_0$ para GaAs), g é o fator giromagnético efetivo (= -0.44 para GaAs), μ_B é o magnetron de Bohr, $\vec{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ são as matrizes de Pauli representado o grau de liberdade de spin dos elétrons, e V(z) é o potencial confinante da heteroestrutura semicondutora, tipicamente um potencial quadrado ou parabólico.

Consideremos agora que o campo magnético é uniforme e faz um ângulo θ com a normal do 2DEG, direção \hat{z} , $\mathbf{B} = B\cos\theta \hat{z} + B\sin\theta \hat{y}$. No calibre de Landau, escrevemos o potencial vetor referente a este campo como $\mathbf{A} = zB\sin\theta \hat{x} + xB\cos\theta \hat{y}$. A forma do termo de Zeeman em H não depende do calibre, sendo que podemos sempre escrevê-lo como

$$\frac{1}{2}g\mu_B \mathbf{B} \cdot \vec{\sigma} = \frac{1}{2}g\mu_B B(\cos\theta\sigma_z + \sin\theta\sigma_y) = \frac{1}{2}g\mu_B B\sigma_\theta, \tag{2.2}$$

e usar a base de $\sigma_{\theta}|\sigma\rangle = \sigma|\sigma\rangle$ [sendo $\sigma = \pm 1$ ou $\{\uparrow,\downarrow\}$] para descrever o spin dos elétrons.

No calibre de Landau, o momentum p_y satisfaz $[H, p_y] = 0$, portanto podemos usar a base de momento angular na direção \hat{y} , i.e. $p_y \to \hbar k_y$. O termo de energia cinética que originará as orbitas de Landau fica

$$\frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} = \frac{p_x^2}{2m} + \frac{m\omega_c^2}{2}(x - x_0)^2 + \frac{p_z^2}{2m} + \frac{m\omega_p^2}{2}z^2 + \omega_p z p_x,$$
 (2.3)

sendo $\omega_c = eB \cos \theta/m$ a frequência cíclotron no plano xy, $\omega_p = eB \sin \theta/m$ a frequência de cíclotron fora do plano, $x_0 = -k_y \ell^2$ o centro das órbitas de Landau, e $\ell = \sqrt{\hbar/eB}$ é o comprimento magnético.

Por simplicidade, separamos o Hamiltoniano H em três componentes $H=H_z+H_{\parallel}+\delta H,$ sendo

$$H_z = \frac{p_z^2}{2m} + \frac{m\omega_p^2}{2}z^2 + V(z) + \frac{1}{2}g\mu_B B\sigma, \qquad (2.4)$$

$$H_{\parallel} = \frac{p_x^2}{2m} + \frac{m\omega_c^2}{2}(x - x_0)^2, \tag{2.5}$$

$$\delta H = \omega_p z p_x, \tag{2.6}$$

sendo que o primeiro termo H_z contém o confinamento estrutural, o termo H_{\parallel} diz respeito ao confinamento magnético que dará origem aos níveis de Landau, e δH é um acoplamento entre os graus de liberdade do plano xy com a direção \hat{z} . Adiantamos que nesta tese estamos interessados em ângulos pequenos $0 \le \theta \le 10^{\circ}$, e o termo $\delta H \propto \sin \theta$ pode ser tratado perturbativamente. Assim, consideramos o Hamiltoniano $H_0 = H_z + H_{\parallel}$ para definir a base de autoestados a ser usada, de forma que podemos separar o sistema em contribuições do plano xy e da direção \hat{z} desacopladas.

Na Seção 3 introduziremos a teoria do funcional da densidade (DFT) formalmente. Por ora basta termos em mente que, na formulação final do problema, o potencial $V(z) \rightarrow V_{KS}^{\sigma_{\theta}}(z)$ conterá contribuições da interação Coulombiana entre os elétrons [mais detalhes no final desta Seção]. Assim, o Hamiltoniano H_z deve ser resolvido autoconsistentemente através de técnicas numéricas [Seção 2.3]. Simbolicamente, aqui escrevemos as soluções de H_z como

$$H_z|j,\sigma\rangle = \varepsilon_j^{\sigma}|j,\sigma\rangle,$$
 (2.7)

$$\langle z|j,\sigma\rangle = \varphi_j^{\sigma}(z)|\sigma\rangle,$$
 (2.8)

sendo j o índice referente às possíveis subbandas do confinamento estrutural, Fig. 2.1(a), ε_j^{σ} é a energia do autoestado e $\varphi_j^{\sigma}(z)$ o orbital correspondente.

O termo planar corresponde ao Hamiltoniano de um oscilador harmônico centrado em x_0 , e portanto possui solução analítica

$$H_{\parallel}|n, k_y\rangle = \varepsilon_n^{LL}|n, k_y\rangle = (n + 1/2)\hbar\omega_c|n, k_y\rangle,$$
 (2.9)

$$\langle x, y | n, k_y \rangle = \frac{e^{ik_y y}}{\sqrt{L_y}} \chi_n(\bar{x}), \quad \chi_n(\bar{x}) = \frac{e^{-\bar{x}/2} H_n(\bar{x})}{\sqrt{\ell 2^n \sqrt{\pi} n!}}, \tag{2.10}$$

sendo $\bar{x} = (x - x_0)/\ell$; $\varepsilon_n^{LL} = (n + 1/2)\hbar\omega_c$ são os níveis de Landau com índice inteiro positivo $n = 0, 1, 2, \ldots$, e $H_n(\bar{x})$ são os polinômios de Hermite de ordem n.

A energia e orbital do Hamiltoniano $H_0 = H_z + H_{\parallel}$ são escritas como

$$\varepsilon_{j,n}^{\sigma} = \varepsilon_{j}^{\sigma} + \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega_{c},$$
(2.11)

$$\psi_{j,n,x_0}^{\sigma}(x,y,z) = \frac{e^{-ix_0y/\ell^2}}{\sqrt{L_y}} \chi_n(\bar{x}) \varphi_j^{\sigma}(z). \tag{2.12}$$

Aqui indexamos o autoestado por x_0 (= $-k_y\ell^2$) ao invés de k_y , pois ambas as representações são equivalentes e a interpretação de x_0 como centro da órbita de Landau é mais interessante para as discussões que se seguem.

A Figura 2.1(b) exibe esquematicamente os níveis de Landau para diferentes subbandas. No gráfico da energia contra o campo magnético, Fig. 2.1(c), o espectro de energia de cada nível de Landau é linear com o campo magnético neste modelo não-interagente. Nesta tese estamos interessados nos cruzamentos de níveis de Landau provenientes de subbandas distintas, como os destacados na Fig. 2.1(c).

É importante notar que, neste sistema ideal, o espectro de energias não depende do centro da órbita $x_0 = -k_y \ell^2$ devido a simetria de invariância translacional no plano xy. A degenerescência de cada nível de Landau pode ser obtida descrevendo-se o plano com condições de contorno periódicas, períodos L_x e L_y , tal que k_y é quantizado em múltiplos de $2\pi/L_y$, e portanto $x_0 \to i2\pi\ell^2/L_y$, sendo i um número inteiro. Como x_0 é restrito a

uma célula do sistema periódico, temos

$$0 \le x_0 \le L_x \to 0 \le i \frac{2\pi\ell^2}{L_y} \le L_x \to 0 \le i \le L_x L_y \frac{eB}{h}, \tag{2.13}$$

portanto a degenerescência por unidade de área é $d_{LL}=eB/h~(\sim 10^{11}~{\rm cm}^{-2}~{\rm para}~B=1~{\rm T}).$

Na presença de impurezas e defeitos, esta degenerescência é quebrada [Seção 2.2.2], tendo como efeito o alargamento da densidade de estados dos níveis de Landau. Esta característica é fundamental para se compreender o efeito Hall quântico inteiro como veremos na Seção 2.2. Por ora defino apenas a densidade de estados de cada nível de Landau por $g(\varepsilon - \varepsilon_{j,n}^{\sigma})$. Na Seção 2.2.2 veremos que $g(\varepsilon)$ é dada por uma distribuição gaussiana com alargamento Γ caracterizado pela mobilidade eletrônica μ_e .

Nesta tese tratamos a interações de Coulomb entre elétrons de condução através da teoria do funcional da densidade [Capítulo 3], na qual o Hamiltoniano de muitos corpos é mapeado em uma equação de Schrödinger efetiva (equação de Kohn-Sham) sujeita a um potencial efetivo $V_{KS}^{\sigma}(\mathbf{r})$. Este potencial efetivo é dado pelo potencial confinante da heteroestrutura V(z) e dos termos da interação Coulombiana, i.e., potencial de Hartree $V_H[n(\mathbf{r})]$ e de troca & correlação $V_{XC}^{\sigma}[n_{\sigma}(\mathbf{r})]$. Estes últimos são funcionais da densidade de elétrons $n(\mathbf{r})$ e suas componentes para cada $spin \ n_{\sigma}(\mathbf{r})$, tal que $n(\mathbf{r}) = n_{\uparrow}(\mathbf{r}) + n_{\downarrow}(\mathbf{r})$.

Para calcular as densidades $n_{\sigma}(\mathbf{r})$, consideramos que em larga escala a distribuição de impurezas é uniforme, de forma que a homogeneidade das densidades no plano do 2DEG (plano xy) é pouco alterada. Desta forma podemos considerar que as impurezas agem apenas alargando a densidade de estados $g(\varepsilon)$, conservando a simetria de invariância translacional do no plano xy. Assim, as densidades são obtidas tomando uma média no plano xy, i.e., $n_{\sigma}(z) = \frac{1}{A} \int n_{\sigma}(\mathbf{r}) dx dy$. Em termos da densidade de estados $g(\varepsilon)$ escrevemos

$$n_{\sigma}(z) = \sum_{j,n} |\varphi_{j}^{\sigma}(z)|^{2} \int g(\varepsilon - \varepsilon_{j,n}^{\sigma}) f(\varepsilon) d\varepsilon, \qquad (2.14)$$

$$n_{\sigma}(z) = \sum_{p,q} \left[\sum_{n} \left| \sum_{j} C_{j,n}^{p,q} \varphi_{j}^{\sigma}(z) \right|^{2} \right] \int g(\varepsilon - \tilde{\varepsilon}_{p,q}^{\sigma}) f(\varepsilon) d\varepsilon, \tag{2.15}$$

sendo que a primeira expressão é válida para campo perpendicular ao 2DEG $[\theta=0]$, enquanto na segunda expressão consideramos o tratamento perturbativo do termo δH para campo inclinado $[\theta\lesssim 10^\circ]$. Nas duas expressões $f(\varepsilon)=\{1+\exp[\beta(\varepsilon-\mu)]\}^{-1}$ é a distribuição de Fermi-Dirac com potencial químico μ e temperatura T. No caso de campo inclinado $\tilde{\varepsilon}_{p,q}^{\sigma}$ são as energias de $H=H_0+\delta H$, sendo que os índices (p,q) são usados para distinguir dos números quânticos (j,n) de H_0 . $C_{j,n}^{p,q}$ são os coeficientes da combinação linear da expansão dos orbitais $\tilde{\psi}_{p,q,x_0}^{\sigma}(\mathbf{r})$ em termos da base $\psi_{j,n,x_0}^{\sigma}(\mathbf{r})$,

$$\tilde{\psi}_{p,q,x_0}^{\sigma}(\mathbf{r}) = \sum_{j,n} C_{j,n}^{p,q} \, \psi_{j,n,x_0}^{\sigma}(\mathbf{r}). \tag{2.16}$$

Os coeficientes $C_{j,n}^{p,q}$ são obtidos diagonalizando-se numericamente o Hamiltoniano $H = H_0 + \delta H$, trucando-se a base de H_0 para níveis de Landau com energia maiores que $\mu + k_B T$.

2.2 Efeito Hall quântico

O regime de efeito Hall quântico ocorre a altos campos magnéticos e mobilidade μ_e razoavelmente alta, tal que a separação dos níveis de Landau $\hbar\omega_c \propto B$ seja maior que o alargamento $\Gamma \equiv \Gamma(\mu_e)$ dos mesmos, i.e. $\hbar\omega_c > \Gamma$. No regime de baixos campos magnéticos predomina o efeito Hall clássico. Amostras com mobilidade extremamente altas exibem ainda o efeito Hall quântico fracionário. Nesta seção começamos discutindo o regime de baixo campo a fim de contextualizar e introduzir conceitos e grandezas relevantes, para em seguida discutir o efeito Hall quântico inteiro e apresentar o modelo teórico usado nesta tese.

Efeito Hall clássico

Considere um sistema de elétrons bidimensional no plano xy, na presença de um campo magnético perpendicular $\mathbf{B} = B\hat{z}$. Devido a força de Lorentz, um campo elétrico aplicado na direção \hat{x} gera correntes tanto na direção \hat{x} quanto na \hat{y} , Fig. 2.2(a). Os coeficientes de magnetotransporte, condutividade $\boldsymbol{\sigma}$ e resistividade $\boldsymbol{\rho}$, devem ser descritos como tensores (detalhes no Apêndice A),

$$\rho = \begin{pmatrix} \sigma_D^{-1} & \frac{-B}{en_{2D}} \\ \frac{B}{en_{2D}} & \sigma_D^{-1} \end{pmatrix},$$
(2.17)

sendo $\sigma_D=e\mu_e n_{2D}$ a condutividade de Drude, n_{2D} a densidade de elétrons, e μ_e a mobilidade dos elétrons.

O movimento dos elétrons na direção \hat{y} desloca os elétrons para um dos extremos da amostra, gerando um desbalanço de carga, e consequentemente um campo elétrico na

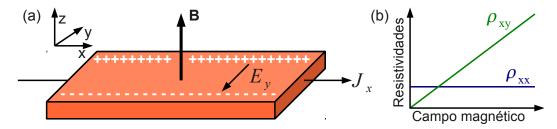


Figura 2.2 – (a) Diagrama de uma barra Hall mostrando o efeito Hall clássico. Ao aplicar uma corrente J_x através do gás de elétrons bidimensional na presença de um campo perpendicular $\mathbf{B} = B\hat{z}$, estabelece-se um campo transverso E_y devido ao acúmulo de cargas de sinais opostos nos extremos da amostra. (b) Neste regime clássico, a resistividade longitudinal é constante, $\rho_{xx} = [en_{2D}\mu_e]^{-1}$, e a transversal é proporcional ao campo B aplicado, $\rho_{xy} = B/en_{2D}$.

direção \hat{y} , Fig. 2.2(a). Medindo-se as diferenças de potencial nas direções longitudinal V_x e transversal V_y , obtêm-se as resistências $R_{xx} = V_x/I_x = [en_{2D}\mu]^{-1}$ e $R_{yx} = V_y/I_x = B/en_{2D}$. Em duas dimensões definem-se as resistividades como $\rho_{xx} = (L_y/L_x)R_{xx}$ e $\rho_{yx} = (L_y/L_x)R_{yx}^*$. O efeito Hall clássico (101) é caracterizado pela dependência linear de ρ_{yx} com o campo magnético, Fig. 2.2(b).

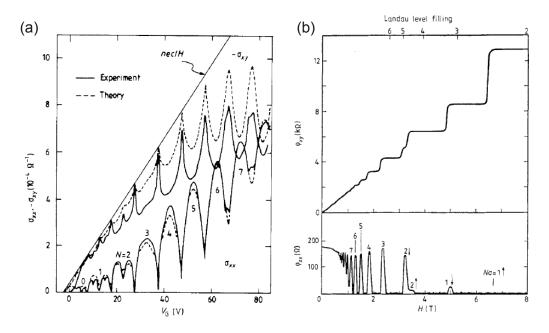


Figura 2.3 – Figuras extraídas da Ref. (102). (a) Oscilações de Shubnikov-de Haas nas condutividades σ_{xx} e σ_{xy} como função da voltagem (equivalente a densidade) em silício a campo magnético $B=9.8~\mathrm{T}$ e temperatura $T=1.6~\mathrm{K}$. (b) Resistividades ρ_{xx} e ρ_{xy} exibindo o efeito Hall quântico inteiro em GaAs a $T=50~\mathrm{mK}$. Para baixos campos as resistividades retornam para o regime clássico, i.e., $\rho_{xy} \propto B$ e $\rho_{xx}=$ constante. Note que nos dois quadros [em (b), apenas para campo magnético até cerca de 1 T] as oscilações de Shubnikov-de Haas em ρ_{xx} e σ_{xx} não chegam a zero. O efeito Hall quântico inteiro aparece quando ρ_{xx} atinge zero [campo maior que 1 T em (b)] e os platôs se formam em ρ_{xy} .

^{*} Note que as resistências e resistividades coincidem em amostras quadradas, $L_x = L_y$.

Oscilações de Shubnikov-de Haas

Nas oscilações de Shubnikov-de Haas a baixo campo magnético, Fig. 2.3, é a resistividade ρ_{xx} que apresenta o caráter oscilatório. Podemos entender superficialmente estas oscilações pela quantização do espectro de energia em órbitas de Landau. Para mais detalhes consulte a Ref. (103). Para campos magnéticos maiores a descrição dada nesta seção leva aos picos de ρ_{xx} do efeito Hall quântico inteiro descritos posteriormente.

A Figura 2.4(a) exibe o espectro de energia dos níveis de Landau linear com o campo magnético, Eq. (2.11). Para um dado campo magnético, e.g., B_1 , a densidade de estados é dada por distribuições Delta-Dirac centradas sobre cada nível de Landau ε_n , linhas azul escuras nas Figs. 2.4(c) e (d). No quadro (b) e linhas tracejadas em (c) e (d) mostramos a densidade de estados a B=0 para comparação. A presença de impurezas e defeitos na amostra quebra a degenerescência dos níveis de Landau, alargando os níveis em distribuições gaussianas, regiões azul claras nas Figs. 2.4(c) e (d). Por ora desconsideraremos a distinção entre estados localizados e estendidos, estes serão discutidos adiante, Seção 2.2.2.

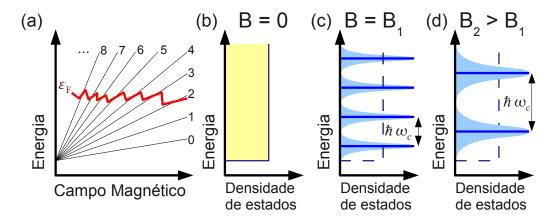


Figura 2.4 – (a) Diagrama dos níveis de Landau mostrando a dependência linear com o campo magnético para $0 \le n \le 8$, e nível de Fermi ε_F . (b) Densidade de estados de um sistema bidimensional de elétrons a B=0. (c) Na presença de campos magnéticos a densidade de estados se quantiza em níveis de Landau espaçados por $\hbar\omega_c \propto B$ (linhas azul escuras), assim, (d) o espaçamento dos níveis aumenta com B. As distribuições gaussianas (azul claro) em (c) e (d) representam o alargamento $\Gamma \propto \sqrt{B}$ dos níveis devido a impurezas e defeitos na amostra.

Com o aumento do campo magnético, o nível de Fermi ε_F atravessa os níveis de Landau, mantendo a densidade total constante, Fig. 2.4(a). Quando ε_F encontra-se entre níveis de Landau, há pouco espaço de fase para espalhamento, pois a densidade de estados é baixa, e a taxa de espalhamento τ_m^{-1} diminui. Já quando ε_F esta perto do centro dos níveis de Landau, τ_m^{-1} aumenta. Lembrando que podemos escrever condutividade longitudinal como [veja o Apêndice A],

$$\sigma_{xx} = \sigma_D \frac{1}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} = \frac{e n_{2D}}{B} \left(\frac{\omega_c \tau_m}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} \right), \tag{2.18}$$

as oscilações em τ_m^{-1} levam a oscilações em σ_{xx} e ρ_{xx} .

Podemos ainda associar a condutividade σ_{xx} com a densidade de estados da amostra através da relação de Einstein (veja Apêndice B e Seção 3.8),

$$\sigma_{xx} = e^2 Dg(\varepsilon_F), \tag{2.19}$$

$$\rho_{xx} \propto g(\varepsilon_F),$$
(2.20)

sendo D a constante de difusão o material e $g(\varepsilon_F)$ a densidade de estados calculada no nível de Fermi. Assim, as oscilações em σ_{xx} e ρ_{xx} refletem as oscilações da densidade de estados devido a quantização de Landau. Note que no regime de baixos campos magnéticos as oscilações em ρ_{xx} não chegam a zero, consequência da superposição da densidade de estados dos níveis de Landau.

A distribuição gaussiana para $g(\varepsilon_F)$ apresentada na Fig. 2.4 é válida apenas no limite de altos campos magnéticos, quando não há sobreposição de distribuições de níveis de Landau. No limite de baixos campos, esta densidade de estados não é precisa, mas a descrição acima fornece uma ideia qualitativa do fenômeno.

Para campos maiores, os níveis de Landau separam-se completamente, ρ_{xx} chega a zero e surgem os platôs em ρ_{xy} , caracterizando o efeito Hall quântico inteiro, Fig. 2.3(b) para campo $\gtrsim 1$ T.

2.2.1 Efeito Hall quântico inteiro

O efeito Hall quântico inteiro é caracterizado pela formação dos platôs na resistividade transversal (ou resistividade Hall) ρ_{xy} , Fig. 2.3(b). Juntamente com o surgimento dos platôs, a resistividade longitudinal ρ_{xx} vai a zero, indicando que a separação entre os níveis de Landau é maior que o alargamento dos níveis, i.e., $\hbar\omega_c \gtrsim \Gamma$.

No contexto das oscilações de Shubnikov-de Haas a baixo campo, não discutimos a distinção entre estados localizados e estendidos. Para descrever a formação dos platôs no regime de efeito Hall quântico inteiro, esta distinção entre estados localizados e estendidos

é fundamental.

Nas seções seguintes apresentamos o modelo usado para o efeito Hall quântico inteiro em etapas. Primeiro, discutimos o modelo de Ando (24) para o alargamento dos níveis de Landau devido a impurezas e defeitos na amostra, introduzindo a distinção entre estados localizados e estendidos. Em seguida apresentamos o argumento de Prange (17) para a formação dos platôs em ρ_{xy} , no qual a distinção apresentada no modelo de Ando é fundamental. Finalmente, discutimos um modelo efetivo para os coeficientes de magnetotransporte no regime de resposta linear baseado nos argumentos apresentados.

2.2.2 Alargamento dos níveis de Landau

Num sistema ideal (sem impurezas e defeitos), a densidade de estados $g(\varepsilon)$ de um sistema bidimensional de elétrons na presença de um campo magnético transversal é dada por distribuições delta-Dirac centrada nos níveis de Landau $\varepsilon_{j,n}^{\sigma} = \varepsilon_{j}^{\sigma} + (n+1/2)\hbar\omega_{c}$,

$$g(\varepsilon) = \frac{eB}{h} \sum_{j,n,\sigma} \delta(\varepsilon - \varepsilon_{j,n}^{\sigma}), \tag{2.21}$$

sendo eB/h ($\sim 10^{11}~\rm cm^{-2}$ para $B=1~\rm T$) a degenerescência dos níveis de Landau por unidade de área. A degenerescência ocorre por que o campo magnético confina os elétrons em órbitas de Landau com comprimento magnético $\ell=\sqrt{\hbar/eB}$ centradas em qualquer lugar no plano xy. Em outras palavras, a degenerescência é consequência da simetria de invariância translacional no plano xy. Na presença de impurezas e defeitos, esta invariância é violada, quebrando a degenerescência dos níveis de Landau e, consequentemente, alargando a densidade de estados.

Aqui, discutimos o modelo numérico perturbativo usado por Ando (24), pois este apresenta tanto a forma de $g(\varepsilon)$ quando a distinção entre estados localizados e estendidos. Nesta seção discutimos o modelo superficialmente, priorizando as ideias e resultados, no Apêndice D apresentamos mais detalhes.

Considere o Hamiltoniano do sistema bidimensional de elétrons dado por $H = H_0 + V(x, y)$, sendo H_0 o Hamiltoniano do sistema ideal na presença de um campo magnético perpendicular $\mathbf{B} = B\hat{z}$, e V(x, y) um potencial referente a distorções aleatórias locais no plano xy representando os defeitos e impurezas da amostra. Aqui consideraremos o caso de espalhadores de curto alcance, no qual as impurezas são descritas por potenciais tipo

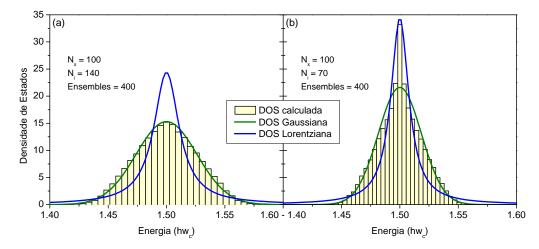


Figura 2.5 – Histograma de energias obtidas para um sistema com largura $L=100\ell$ e N_i impurezas distribuídas aleatoriamente em 400 arranjos distintos. Em (a) $N_i = 140$ e em (b) $N_i = 70$. A densidade de estados é obtida normalizando-se o histograma para a degenerescência dos níveis de Landau eB/h. As linhas cheias representam ajustes gaussiano e lorentziano para os histogramas. Para maiores densidades de impurezas [quadro (a)] a curva gaussiana ajusta melhor a distribuições obtida. Para densidades menores [quadro (b)] as duas distribuições apresentam divergências do resultado numérico.

delta-Dirac com posições (x_i, y_i) e sinais aleatórios. No calibre de Landau o potencial vetor é $\mathbf{A} = xB\hat{y}$, e podemos escrever H_0 e V(x,y) como

$$H_0 = \frac{p_x^2}{2m} + \frac{m\omega_c^2}{2}(x - x_0)^2, \tag{2.22}$$

$$H_0 = \frac{p_x^2}{2m} + \frac{m\omega_c^2}{2}(x - x_0)^2,$$

$$V(x, y) = \pm V_0 \sum_i \delta(x - x_i)\delta(y - y_i),$$
(2.22)

sendo $\omega_c = eB/m$ a frequência de cíclotron, $x_0 = -\ell^2 k_y$ o centro da órbita e k_y o momento na direção \hat{y} .

As soluções de H_0 são centradas em x_0 com extensão da ordem de ℓ , assim, elétrons sentem apenas os efeitos de impurezas neste intervalo. Podemos aproximar o potencial aleatório por um potencial periódico com comprimento $L \gg \ell$, com uma distribuições aleatória de impurezas dentro da cela unitária.

O método utilizado para o cálculo da densidade de estados consiste em expandir o Hamiltoniano H na base de H_0 e obter os níveis de energia corrigidos para diversas distribuições de impurezas. Coletando as energias referentes a estas diversas distribuições, calcula-se um histograma destas energias. As distribuições obtida no histograma são, a menos da norma, as densidades de estados.

A Figura 2.5 apresenta as densidades de estados para duas configurações distintas. Em (a) a densidade de impurezas é maior que em (b). Para densidades de impureza maiores, a distribuição obtida é bem ajustada por uma gaussiana como esperado. Para

densidades de impurezas menores, a distribuição é melhor ajustada por uma gaussiana longe da região central, e por uma lorentziana no centro. Neste caso há uma mistura de estados pouco perturbados pelas impurezas (região central) com minibandas de impurezas, estados localizados (regiões laterais).

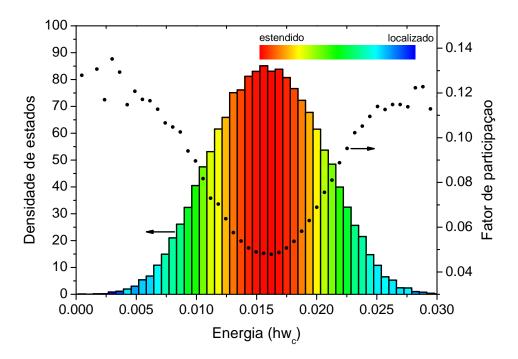


Figura 2.6 – Densidade de estados calculada via histograma de energias de diversas distribuições de impurezas e fator de participação α distinguindo regiões de estados localizados e estendidos. De forma geral, a região central da gaussiana corresponde a estados estendidos, enquanto que as regiões laterais são dominadas por estados localizados.

Além da forma da distribuição, outro fator importante é a distinção entre estados localizados e estendidos. Neste modelo numérico, podemos distinguir qualitativamente entre estes dois casos através do fator de participação α ,

$$\alpha = \sum_{n} |a_n|^4, \tag{2.24}$$

sendo a_n o coeficiente da expansão da função de onda perturbada na base de H_0 , i.e. $\psi(x,y) = \sum_n a_n \varphi_n(x,y)$. Lembrando que as soluções $\varphi_n(x,y)$ de H_0 são localizadas numa região da ordem de ℓ , um estado localizado é caracterizado por $a_n = \delta_{n,i}$, sendo i um estado qualquer, enquanto um estado estendido é caracterizado por $a_n = 1/\sqrt{N}$, sendo N o número total de elementos da base. Assim, valores pequenos de α refletem estados estendidos, $\alpha \to 1/N$, enquanto valores maiores correspondem a estados localizados, $\alpha \to 1$.

A Figura 2.6 mostra o fator de participação juntamente com a distribuição gaussiana

calculada segundo o modelo apresentado. Como esperado, a região central da distribuição é dominada por estados estendidos. Já as regiões laterais hibridizam com bandas de impurezas, localizando os elétrons. Note que não há uma fronteira bem definida entre estados localizados e estendidos, Fig. 2.7(a), sendo que esta definição é tratada apenas qualitativamente.

Ando obteve também uma expressão para a largura Γ da distribuição gaussiana através da aproximação auto-consistente de Born para o caso de espalhadores de curto alcance (104),

$$\Gamma = \frac{e\hbar}{m} \sqrt{\frac{2B}{\pi \mu}},\tag{2.25}$$

sendo μ a mobilidade dos elétrons medida a baixo campo. Na prática, a aproximação de espalhadores de curto alcance não é realista, e portanto desvios desta largura são esperados. Porém, esta expressão ainda é útil como guia para a ordem de grandeza do alargamento e caracterização qualitativa do fenômeno com relação ao campo magnético e mobilidade (ou grau de defeitos na amostra). Nesta tese consideramos $\Gamma = \Gamma_0 \sqrt{B}$, tratando Γ_0 como um parâmetro livre, mas com valores próximos ao retornado pela Eq. 2.25.

Seguindo as discussões apresentadas acima, escrevemos a forma final da densidade de estados usada nesta tese,

$$g(\varepsilon) = \frac{eB}{h} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \Gamma} \exp\left[-\frac{(\varepsilon - \varepsilon_{j,n}^{\sigma})^2}{2\Gamma^2}\right], \qquad (2.26)$$

sendo que $\varepsilon_{j,n}^{\sigma}$ é a energia referente a um nível de Landau do sistema não perturbado.

2.2.3 Resposta linear, formalismo de Kubo

Nesta seção demonstraremos a quantização da condutância transversal em múltiplos inteiros de e^2/h seguindo a descrição de Ando (23) via formalismo de Kubo (105).

No formalismo de Kubo, a condutividade transversal no regime de efeito Hall quântico é dada por

$$\sigma_{xy} = -\frac{en}{B} + \Delta\sigma_{xy},\tag{2.27}$$

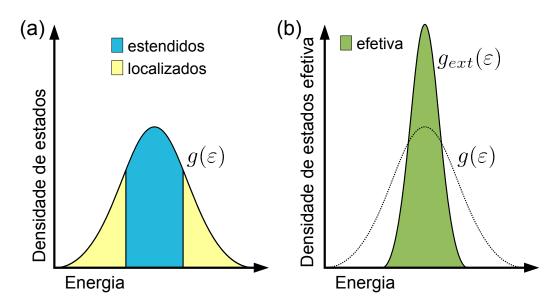


Figura 2.7 – Devido a espalhamento por impurezas, a densidade de estados $g(\varepsilon)$ de cada nível de Landau apresenta um alargamento gaussiano (a) e linha tracejada em (b). No quadro (a) definimos uma fronteira explícita entre estados localizados e estendidos (mobility edge). Esta fronteira não é bem definida na prática, mas ajuda a compreender as interpretações do efeito Hall quântico inteiro discutidas no texto. (b) No modelo fenomenológico motivado pelos argumentos de Prange utiliza-se uma densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon)$ também com formato gaussiano, mas largura menor.

sendo n a densidade bidimensional de elétrons na amostra, e a correção $\Delta \sigma_{xy}$ devido a espalhamento por impurezas e defeitos é dada por

$$\Delta \sigma_{xy} = \sum_{\alpha} \Delta \sigma_{xy}^{\alpha}, \tag{2.28}$$

$$\Delta \sigma_{xy}^{\alpha} = \frac{e^2 \hbar}{iA} \sum_{\beta} \frac{f(\varepsilon_{\alpha})}{(\varepsilon_{\alpha} - \varepsilon_{\beta} + i0)^2} \left[\langle \alpha | \dot{X} | \beta \rangle \langle \beta | \dot{Y} | \alpha \rangle - \langle \alpha | \dot{Y} | \beta \rangle \langle \beta | \dot{X} | \alpha \rangle \right], \quad (2.29)$$

sendo $|\alpha\rangle$ os autoestados (localizados ou estendidos) de energias ε_{α} na presença de impurezas, e $\dot{X}=(i/\hbar)[H,X]$ e $\dot{Y}=(i/\hbar)[H,Y]$ os operadores velocidade do centro de massa do sistema (X,Y). Para mais detalhes sobre esta expressão consulte as Refs. (23, 102). Nestas expressões cada nível de Landau pode ser considerado independentemente. No que se segue consideramos apenas um nível de Landau, generalizando para ν níveis de Landau no final da Seção.

Podemos separar a somatória na Eq. (2.28) em conjuntos de estados localizados $\{L\}$ e estendidos $\{E\}$,

$$\Delta \sigma_{xy} = \sum_{\alpha \in \{L\}} \Delta \sigma_{xy}^{\alpha} + \sum_{\alpha \in \{E\}} \Delta \sigma_{xy}^{\alpha}. \tag{2.30}$$

Usando a equação de Heisenberg para \dot{X} e \dot{Y} e a relação de comutação $[X,Y]=i\ell^2$, a contribuição dos estados α localizados é

$$\sum_{\alpha \in \{L\}} \Delta \sigma_{xy}^{\alpha} = \frac{en_L}{B},\tag{2.31}$$

sendo n_L a densidade de elétrons localizados, tal que a densidade total é obtida somandose n_L com a densidade de elétrons estendidos n_E , i.e., $n = n_L + n_E$. Substituindo as Eqs. (2.30) e (2.31) na Eq. (2.27), nota-se que neste ponto já é evidente que σ_{xy} depende apenas da ocupação dos estados estendidos,

$$\sigma_{xy} = -\frac{en_E}{B} + \sum_{\alpha \in \{E\}} \Delta \sigma_{xy}^{\alpha}.$$
 (2.32)

Na região de estados localizados de menor energia, região amarela à esquerda na Fig. 2.7(a), não há estados estendidos ocupados e $\sigma_{xy} = 0$. Já na região de estados localizados de maior energia, região amarela à direita, todos os estados estendidos estão ocupados e σ_{xy} não depende da ocupação dos estados localizados, formando o platô de σ_{xy} . Para calcular o valor de σ_{xy} na região de platôs precisamos obter uma expressão para a somatória na Eq. (2.32).

Quando o nível de Landau esta totalmente preenchido [equivalente a tomar $f(\varepsilon_{\alpha}) = 1$ na Eq. (2.29)], vemos que $\Delta \sigma_{xy} = 0$. Para obter este resultado basta observar que para $f(\varepsilon_{\alpha}) = 1$ as somas em α e β são equivalentes e os termos entre colchetes se cancelam. Nesta situação temos $\sigma_{xy} = -en^T/B$, sendo n^T a densidade referente a um nível de Landau totalmente ocupado. Como σ_{xy} depende apenas da ocupação dos estados estendidos, Eq. (2.32), quando todos os estados estendidos estão ocupados obtemos

$$\sum_{\alpha \in \{E\}}^{todos} \Delta \sigma_{xy}^{\alpha} = -\frac{en_L^T}{B}, \qquad (2.33)$$

sendo n_L^T a densidade referente a ocupação de todos os estados localizados.

Assim, a contribuição de cada nível de Landau para o platô é $\sigma_{xy} = -en^T/B$. A densidade referente a um nível de Landau totalmente ocupado é $n^T = n_E^T + n_L^T = eB/h$. Assim, para ν níveis de Landau ocupados

$$\sigma_{xy} = \nu \frac{e^2}{h}, \quad e \quad \rho_{xy} = \frac{1}{\nu} \frac{h}{e^2}.$$
 (2.34)

No que se segue derivo novamente, e de forma semelhante, estas expressões segundo as ideias de Prange.

2.2.4 Argumento de Prange

Prange estudou sistematicamente o comportamento dos elétrons no plano xy na presença de um campo magnético transverso $\mathbf{B} = B\hat{z}$ e impurezas ou defeitos na amostra (17). Seus resultados estão sucintamente descritos no abstract do artigo:

"A state localized on the impurity exists and carries no current. However, the remaining mobile electrons passing near the impurity carry an extra dissipationless Hall current exactly compensating the loss of current by the localized electron."

Aqui apresento uma formulação simplificada (23, 102) dos resultados de Prange.

Considerando-se que o sistema bidimensional de elétrons está sujeito a um potencial de impurezas V(x,y) e a um campo elétrico constante $\mathbf{E} = E_x \hat{x}$, calculamos a densidade de corrente transversal $j_y = -e\dot{y}/A = \frac{-ie}{A\hbar}[H,y]$. O valor esperado de j_y à temperatura nula é

$$\langle j_y \rangle = \frac{-e\ell^2}{A\hbar} \sum_{\alpha \in \{E\}}^{\text{ocupados}} \left(\langle \alpha | \frac{\partial}{\partial x} V(x, y) | \alpha \rangle + eE_x \right) = \frac{-1}{AB} \sum_{\alpha \in \{E, L\}}^{\text{ocupados}} \left(V_\alpha' + eE_x \right), \quad (2.35)$$

sendo A a área do sistema, B a componente transversal do campo magnético, e $|\alpha\rangle$ os autoestados perturbados pela presença de espalhadores. A soma em α é realizada sobre os estados estendidos $\{E\}$ e localizados $\{L\}$ ocupados.

O ponto fundamental da argumentação de Prange consiste em notarmos que estados localizados não contribuem para a corrente. Assim, as correntes calculadas com diferentes números de estados localizados ocupados, N_L e N_L' , devem ser iguais, desde que os estados estendidos sejam os mesmos. Subtraindo as duas correntes, obtemos a seguinte regra de soma,

$$\sum_{\alpha \in \{L\}}^{N_L} V_L' - \sum_{\alpha \in \{L\}}^{N_L'} V_L' = -eE_x(N_L - N_L') \to \sum_{\alpha \in \{L\}}^{N_L} V_L' = -eE_xN_L, \tag{2.36}$$

sendo que a segunda parte da equação acima é obtida, sem perda de generalidade, para $N'_L = 0$. Com isso, vemos claramente que a corrente depende apenas da ocupação dos estados estendidos N_E ,

$$\langle j_y \rangle = \frac{-1}{AB} \left(\sum_{\alpha \in \{E\}}^{\text{ocupados}} V_{\alpha}' + eN_E E_x \right).$$
 (2.37)

Neste ponto já é possível notar a formação de platôs. Uso a Fig. 2.7(a) como referência no que se segue. Na região de estados localizados de menor energia (região amarela à esquerda), o número de estados estendidos ocupados é $N_E = 0$, e portanto $j_y = 0$. Já na região de estados localizados de maior energia (região amarela à direita), todos os estados estendidos já estão ocupados e a corrente não muda com a variação da ocupação de estados localizados, formando o platô.

Falta agora obter o valor da corrente e condutividade na região do platô. Para isso, consideramos um nível de Landau completamente preenchido ($N_E = N_E^T$ e $N_L = N_L^T$, sendo que T se refere a "todos"), obtendo a seguinte regra de soma,

$$\sum_{\alpha \in \{L,E\}}^{\text{todos}} V_{\alpha}' = \frac{1}{2\pi\ell^2} \int d\mathbf{r} \frac{\partial}{\partial x} V(x,y) = 0 \to \langle j_y \rangle = -\frac{e}{AB} (N_E^T + N_L^T) E_x. \tag{2.38}$$

Como $\langle j_y \rangle$ não depende do número de estados localizados ocupados, as duas expressões para $\langle j_y \rangle$, Eqs. (2.37) e (2.38), são válidas na região do platô. Comparando as expressões obtemos para toda região do platô,

$$\sum_{\alpha \in \{E\}}^{\text{todos}} V_{\alpha}' = e N_L^T E_x \to \langle j_y \rangle = \frac{-e}{AB} (N_E^T + N_L^T) E_x = -\frac{e^2}{h} E_x, \tag{2.39}$$

onde usamos $N_L^T + N_E^T = AeB/h$.

Assim, a contribuição de cada nível de Landau para a condutividade σ_{xy} do platô é e^2/h . Para ν níveis de Landau ocupados obtemos o resultado desejado,

$$\langle j_y \rangle = \frac{-\nu e^2}{h} E_x \to \sigma_{xy} = \nu \frac{e^2}{h}, \quad e \quad \rho_{xy} = \frac{1}{\nu} \frac{h}{e^2}.$$
 (2.40)

2.2.5 Modelo para os coeficientes de magnetotransporte

No modelo de Prange apresentado acima, considera-se a existência de estados estendidos e localizados na densidade de estados alargada. Porém, a distinção é superficial, uma vez que não há uma fronteira bem definida entre estes dois casos, Fig. 2.7. Para incorporar os resultados de Prange no cálculo dos coeficientes de transporte, consideramos um modelo fenomenológico, Ref. (22), descrito abaixo.

De acordo com os resultados de Prange, os estados localizados não contribuem para a corrente, porém, efetivamente impulsionam os elétrons em estados estendidos de forma a compensar exatamente a perda de corrente pela localização. Desta forma, uma vez que todos os estados estendidos de um certo nível de Landau estão ocupados, a contribuição destes para a corrente é igual a uma corrente fictícia, na qual o nível de Landau é completamente preenchido e possui apenas estados estendidos. Vimos também nos resultados de Ando (23) que os estados estendidos concentram-se na região central da distribuição da densidade de estados de cada nível de Landau. Assim, descreve-se o efeito Hall quântico inteiro utilizando uma densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon)$ no cálculo de transporte, centrada na energia do nível de Landau não-perturbado e com alargamento menor que a densidade de estados real,

$$g_{ext}(\varepsilon) = \frac{eB}{h} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \Gamma_{ext}} \exp\left[-\frac{(\varepsilon - \varepsilon_{j,n}^{\sigma})^2}{2\Gamma_{ext}^2}\right], \tag{2.41}$$

sendo $\Gamma_{ext} < \Gamma$ o alargamento efetivo dos estados estendidos, Fig. 2.7(b).

Esta densidade de estados estendidos $g_{ext}(\varepsilon)$ deve ser entendida como uma contribuição efetiva, devido ao aumento da velocidade, dos estados estendidos para o transporte. Note que assim como a densidade de estados real, a norma desta distribuição é eB/h, mas $\Gamma_{ext} < \Gamma$, de forma quando todos os estados estendidos estão ocupados esta formulação diz efetivamente o transporte se dá como se todos os elétrons contribuíssem para a corrente, mimicando fenomenologicamente os argumentos de Prange.

Os coeficientes de magnetotransporte efetivos são obtidos substituindo esta densidade de estados efetiva na fórmula obtida por Ando (23),

$$\sigma_{xx} = \frac{2\pi e^2}{\hbar} \sum_{j,n,\sigma} \left(n + \frac{1}{2} \right) \int d\varepsilon \left(-\frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \right) \left[\ell^2 \Gamma_{ext} g_{ext}(\varepsilon) \right]^2, \tag{2.42}$$

$$\sigma_{xy} = \frac{e}{B} \sum_{i.n.\sigma} \int d\varepsilon f(\varepsilon) g_{ext}(\varepsilon) = \frac{e n_{ext}}{B},$$
(2.43)

sendo n_{ext} a densidade efetiva de elétrons que contribui para o transporte segundo o modelo fenomenológico, este simula os efeitos do termo $\Delta \sigma_{xy}$ da formulação de Ando. Estas equações podem ainda serem reescritas na forma

$$\sigma_{xx} = \frac{e^2}{\pi^2 \hbar} \sum_{i,n,\sigma} \left(n + \frac{1}{2} \right) \int d\varepsilon \left(-\frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \right) \exp \left[-\left(\frac{\varepsilon_{j,n,\sigma} - \varepsilon_F}{\Gamma_{ext}} \right)^2 \right], \tag{2.44}$$

$$\sigma_{xy} = \frac{en_{ext}}{B}. (2.45)$$

Note que nas expressões acima, além de satisfazerem os argumentos de Prange, no limite $\Gamma_{ext} = \Gamma \rightarrow n_{ext} = n_{2D}$ recuperamos o resultado o efeito Hall clássico para σ_{xy} em baixos campos, sendo n_{2D} a densidade total de elétrons no plano. As oscilações de Shubnikov de-Haas também surgem neste limite, ainda que qualitativamente, quando as distribuições gaussianas de cada nível de Landau se superpõem.

É importante ressaltar aqui que o cálculo da estrutura eletrônica e potencial químico deve ser feito considerando-se a densidade de estados total $g(\varepsilon)$ com alargamento Γ , e apenas o cálculo dos coeficientes de magnetotransporte usam o alargamento fenomenológico Γ_{ext} .

2.3 Métodos numéricos

Utilizamos o método de diferenças finitas em uma dimensão (106–108) para resolver as equações autoconsistentes de Kohn & Sham e Poisson,

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \varphi(z)}{\partial z^2} + V(z)\varphi(z) = \varepsilon \varphi(z), \qquad (2.46)$$

$$\frac{\partial^2 V_H(z)}{\partial z^2} = \frac{4\pi e}{\epsilon} \rho(z). \qquad (2.47)$$

$$\frac{\partial^2 V_H(z)}{\partial z^2} = \frac{4\pi e}{\epsilon} \rho(z). \tag{2.47}$$

Para o tratamento numérico, considere que na equação de Kohn & Sham V(z) é um potencial qualquer e ε e $\varphi(z)$ são o espectro de energia e orbitais a serem obtidos. Na equação de Poisson, $V_H(z)$ é o potencial de Hartree, $\rho(z)$ é a densidade de cargas no sistema e ϵ é a constante dielétrica estática do material.

O método consiste em substituir as derivadas por aproximações discretas, obtendo um sistema linear de equações, que podem ser escritas em forma matricial. Finalmente, para resolver as equações matriciais utilizamos algoritmos de código aberto e alto desempenho, e.g., LAPACK (109).

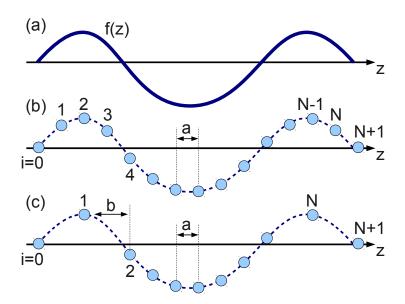


Figura 2.8 – Esquema ilustrativo do processo de discretização considerando uma grade unidimensional. Em (a) tracamos uma função contínua f(z). Em (b) discretizamos uniformemente o eixo z, tal que $z_i = ia$, $0 \le i \le N+1$ é um inteiro que define os pontos na reta, e a o passo de discretização. (c) Ilustração do caso não-uniforme com dois passos distintos a e b.

A seguir apresento primeiro o caso mais simples, discretização uniforme (106, 107), no qual o espaçamento da grade linear é sempre o mesmo. Na sequência generalizo os resultados para o caso não-uniforme (108), permitindo uma grade linear de espaçamento variável. O modelo não-uniforme permite que escolhamos uma discretização mais precisa apenas em regiões do sistema onde é mais necessário, minimizando o custo computacional (memória e tempo de execução).

2.3.1 Discretização uniforme

Consideramos o eixo z discretizado com espaçamento uniforme, tal que $z \to z_i = ia$, sendo a o passo de discretização uniforme e $0 \le i \le N+1$ um número inteiro que define os pontos na reta, Fig. 2.8. Assim, uma função qualquer f(z) passa a ser descrita pelo índice $i, f(z) \to f(z_i) \equiv f_i$.

Para obter uma aproximação para a segunda derivada, consideramos as expansões em séries de Taylor das funções f(z + a) e f(z - a),

$$f(z+a) = f(z) + \frac{\partial f(z)}{\partial z} \frac{a}{1!} + \frac{\partial^2 f(z)}{\partial z^2} \frac{a^2}{2!} + \frac{\partial^3 f(z)}{\partial z^3} \frac{a^3}{3!} + \cdots, \qquad (2.48)$$

$$f(z-a) = f(z) - \frac{\partial f(z)}{\partial z} \frac{a}{1!} + \frac{\partial^2 f(z)}{\partial z^2} \frac{a^2}{2!} - \frac{\partial^3 f(z)}{\partial z^3} \frac{a^3}{3!} + \cdots$$
 (2.49)

Desprezando termos de ordem maior que 2, podemos resolver estas equações para a derivada segunda. Já na forma discreta, o resultado é a segunda derivada discreta na forma simétrica

$$\frac{\partial^2 f_i}{\partial z^2} = \frac{f_{i-1} - 2f_i + f_{i+1}}{a^2}. (2.50)$$

Apesar desta dedução da aproximação da segunda derivada ser trivial, ainda é útil para esclarecer o procedimento no caso não-uniforme descrito mais adiante.

Com esta expressão, podemos reescrever as equações de Kohn & Sham e de Poisson na forma discreta.

$$\beta_i \varphi_i - \varphi_{i-1} - \varphi_{i+1} = \lambda \varphi_i, \tag{2.51}$$

$$V_{H,i-1} - 2V_{H,i} + V_{H,i-1} = \tilde{\rho}_i, \tag{2.52}$$

sendo que $\beta_i = \left[2 + \frac{2ma^2}{\hbar^2}V(z_i)\right]$ descreve o potencial, e $\lambda = \frac{2ma^2}{\hbar^2}\varepsilon$ os autovalores da equação de Kohn & Sham. Na equação de Poisson, $V_{H,i} = V_H(z_i)$ é o potencial de Hartree, e $\tilde{\rho}_i = \frac{4\pi e a^2}{\epsilon} \rho(z_i)$ descreve a densidade de carga.

Consideramos como condições de contorno que o sistema esta contido num poço infinito, tal que as funções de onda vão a zero nos extremos, e que o zero do potencial de Hartree também resida nos pontos extremos, i=0 e i=N+1, i.e., $\varphi_0=\varphi_{N+1}=0$, e $V_{H,0}=V_{H,N+1}=0$. Nestas condições as equações discretas são escritas como equações

matriciais na forma tridiagonal,

$$\begin{bmatrix} \beta_1 & -1 & 0 & \cdots & 0 \\ -1 & \beta_2 & -1 & \cdots & 0 \\ 0 & -1 & \beta_3 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & 0 & -1 & \beta_N \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varphi_1 \\ \varphi_2 \\ \varphi_3 \\ \vdots \\ \varphi_N \end{bmatrix} = \lambda \begin{bmatrix} \varphi_1 \\ \varphi_2 \\ \varphi_3 \\ \vdots \\ \varphi_N \end{bmatrix}, \qquad (2.53)$$

e

$$\begin{bmatrix} -2 & 1 & 0 & \cdots & 0 \\ 1 & -2 & 1 & \cdots & 0 \\ 0 & 1 & -2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & 0 & 1 & -2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} V_{H,1} \\ V_{H,2} \\ V_{H,3} \\ \vdots \\ V_{H,N} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tilde{\rho}_1 \\ \tilde{\rho}_2 \\ \tilde{\rho}_3 \\ \vdots \\ \tilde{\rho}_N \end{bmatrix}.$$
 (2.54)

Assim, a equação de Kohn & Sham obtém a forma de uma equação matricial finita de autovalores e autovetores, simbolicamente: $M\varphi = \lambda \varphi$. E a equação de Poisson tem a forma de um sistema linear de equações, simbolicamente: $PV_H = \tilde{\rho}$, ou $V_H = P^{-1}\tilde{\rho}$. A biblioteca numérica Lapack (109) possui algoritmos de código aberto eficientes para resolver as duas equações matriciais.

2.3.2 Discretização não-uniforme

Neste caso, consideramos que a grade unidimensional possui passo de discretização variável. A Figura 2.8(c) mostra um exemplo de grade com dois tipos de passos. Aqui, ainda podemos descrever o eixo z em termos de um índice $i, z \to z_i$ e escrever as funções na forma discreta, $f(z) \to f(z_i) \equiv f_i$. Porém, devemos descrever o passo com mais cuidado, sendo o passo do ponto i para o ponto i+1 dado por $a_i^>$, e o passo de i para i-1 como $a_i^<$. Claramente, $a_i^< \equiv a_{i-1}^>$ e $a_i^> = a_{i+1}^<$, porém consideramos mais simples descrever os passos tendo o ponto i como referência.

Para obter a nova aproximação para a segunda derivada discreta com passo nãouniforme, escrevemos as expansões em série de Taylor de uma função f(z) qualquer considerando o passo para frente $a_i^>$ e para trás $a_i^<$. Diretamente na forma discreta, obtemos

$$f_{i+1} = f_i + \frac{\partial f_i}{\partial z} \frac{a_i^{>}}{1!} + \frac{\partial^2 f_i}{\partial z^2} \frac{(a_i^{>})^2}{2!} + \frac{\partial^3 f_i}{\partial z^3} \frac{(a_i^{>})^3}{3!} + \cdots,$$
 (2.55)

$$f_{i-1} = f_i - \frac{\partial f_i}{\partial z} \frac{a_i^{<}}{1!} + \frac{\partial^2 f_i}{\partial z^2} \frac{(a_i^{<})^2}{2!} - \frac{\partial^3 f_i}{\partial z^3} \frac{(a_i^{<})^3}{3!} + \cdots$$
 (2.56)

Desta vez não é possível resolver para a segunda derivada apenas desprezando os termos de ordem maior que 2. Além disso, devemos substituir as derivadas de primeira ordem por versões discretas,

$$\frac{\partial f_i}{\partial z} = \frac{f_{i+1} - f_i}{a_i^>},\tag{2.57}$$

$$\frac{\partial f_i}{\partial z} = \frac{f_i - f_{i-1}}{a_i^{<}},\tag{2.58}$$

sendo que a primeira forma, derivada "para frente", deve ser usada na expansão "para trás", Eq. (2.56), e a segunda forma "para trás" na expansão "para frente", Eq. (2.55). Finalmente, isolando a segunda derivada obtemos,

$$\frac{\partial^2 f_i}{\partial z^2} = \frac{2}{a_i^{<}(a_i^{>} + a_i^{<})} f_{i-1} - \frac{2}{a_i^{>}a_i^{<}} f_i + \frac{2}{a_i^{>}(a_i^{>} + a_i^{<})} f_{i+1}. \tag{2.59}$$

Com esta expressão e as mesmas condições de contorno do caso uniforme, as equações de Kohn & Sham e de Poisson assumem formas do tipo $H\varphi = \varepsilon \varphi$ e $PV_H = \tilde{\rho}$, mas com elementos definidos de forma diferente. Definindo $s_i^2 = (a_i^> + a_i^<)/2$ como a média dos passos, segue abaixo os componentes na forma de elementos de matriz:

$$H_{i,j} = \begin{cases} \frac{-\hbar^2}{2m} \frac{1}{a_i^{>} s_i^{2}}, & j = i+1, \\ \frac{-\hbar^2}{2m} \frac{1}{a_i^{<} s_i^{2}}, & j = i-1, \\ V_i - H_{i,i+1} - H_{i,i-1}, & j = i, \\ 0, & \text{qualquer outro elemento,} \end{cases}$$
 (2.60)

$$P_{i,j} = \begin{cases} \frac{1}{a_i^{>} s_i^2}, & j = i+1, \\ \frac{1}{a_i^{<} s_i^2}, & j = i-1, \\ -P_{i,i+1} - P_{i,i-1}, & j = i, \\ 0, & \text{qualquer outro elemento,} \end{cases}$$
 (2.61)

sendo que o orbital φ_i , potencial de Hartree $V_{H,i}$ e densidade de carga (e prefatores) $\tilde{\rho}_i = \frac{4\pi e}{\epsilon} \rho_i$ são definidos como vetores coluna.

Note que nessa forma as matrizes não são simétricas (ou hermitianas), i.e. $H_{i,i+1} \neq H_{i+1,i}$ e equivalente para $P_{i,j}$. Definindo uma matriz diagonal S, tal que os elementos são dados por $S_{i,i} = s_i = \sqrt{(a_i^> + a_i^<)/2}$, a transformação abaixo simetriza as matrizes (108),

$$(SHS^{-1})(S\varphi) = \varepsilon(S\varphi), \tag{2.62}$$

$$(SPS^{-1})(SV_H) = S\tilde{\rho}, \tag{2.63}$$

assim, as equações mantém as formas usuais, porém simétricas, simplificando a solução numérica.

É importante ressaltar que a perda de simetria na passagem do caso uniforme para o não-uniforme é uma questão numérica, e não física. Usando passos de discretização semelhantes nos dois casos, observa-se uma pequena perda de precisão (menor que $10^{-3}\%$) nos autovalores e na ortogonalidade dos autovetores. Porém, a discretização não-uniforme nos permite reduzir o passo na região do poço, onde os elétrons são confinados, aumentando a precisão final com um custo computacional reduzido.

3 Teoria do funcional da densidade

Seja no contexto de átomos, moléculas, nanoestruturas ou sólidos, o problema de muitos corpos interagentes na mecânica quântica é um desafio interessante, tanto do ponto de vista teórico, quanto numérico. Mesmo no caso de átomos e moléculas, soluções analíticas são conhecidas apenas para sistemas hidrogenóides. Numericamente é possível obter soluções para sistemas de poucos corpos, geralmente poucas dezenas de partículas. Para sistemas mais complexos, aproximações são necessárias.

A primeira e mais direta aproximação é o desacoplamento dos sistemas nuclear e eletrônico, seguindo o modelo de Born & Oppenheimer de 1927 (110). Em 1928, Hartree (111) propôs o consagrado modelo de campo médio para a interação de Coulomb entre os elétrons, no qual cada elétron esta sujeito a um campo efetivo devido a distribuição de carga dos outros elétrons. Esta aproximação permite separar o problema de N elétrons interagentes em uma equação efetiva. Posteriormente, em 1930, Slater (112) e Fock (113) observam que o modelo de Hartree não considera a antissimetrização da função de onda, devido ao princípio de exclusão de Pauli, e complementam o modelo de Hartree introduzindo a interação de troca, hoje este modelo é conhecido como Hartree-Fock. Os efeitos da interação de troca demonstraram-se extremamente importantes para a descrição de diversos sistemas, inclusive para a estabilidade de sólidos de tamanho finito, uma vez que o termo de Hartree é sempre repulsivo, enquanto o de Fock é atrativo. Infelizmente o termo de troca torna o problema de muitos corpos mais complicado que a aproximação de Hartree, sendo que o Hamiltoniano de N elétrons interagentes passa a ser descrito por Nequações acopladas. Apesar de mais complicado que o modelo de Hartree, o modelo de Hartree-Fock ainda representa uma grande simplificação do problema de muitos corpos. Ainda hoje este modelo é amplamente usado em sistemas onde a interação de troca é importante.

Finalmente, em 1964–1965 a teoria do funcional da densidade (DFT, do inglês density functional theory) muda radicalmente a formulação do problema de muitos corpos. O fundamento mais importante da DFT é descrição do sistema de muitos corpos através de um único parâmetro: a densidade total do estado fundamental do sistema de muitos corpos; substituindo a formulação anterior dada pela função de onda do sistema de muitos

corpos*. A DFT foi formalmente proposta nos artigos seminais de Hohenberg & Kohn de 1964 (46) e de Kohn & Sham de 1965 (47), rendendo o prêmio Nobel a Kohn em 1998. Porém, funcionais da densidade já haviam sido usados anteriormente para simplificar o problema de muitos corpos na mecânica quântica, e.g., modelo de Thomas-Fermi de 1927 (114, 115) e modelo de Hartree de 1928 (111).

No artigo de 1964, Hohenberg & Kohn demonstram os dois teoremas fundamentais da DFT. (I) O primeiro teorema diz que todos os operadores podem ser escritos *a priori* como funcionais da densidade do estado fundamental do sistema de muitos corpos; em particular os termos de energia cinética e interação Coulombiana. (II) No segundo teorema os autores demonstram que a densidade do estado fundamental minimiza a energia total do sistema de muitos corpos, generalizando o princípio variacional de Rayleigh-Ritz. Estes dois teoremas são exatos. Infelizmente, a forma funcional dos operadores nem sempre é conhecida.

Em 1965, Kohn & Sham propuseram um método para obter a densidade do estado fundamental do sistema de muitos corpos através de uma equação efetiva, na qual a interação entre os elétrons é substituída por um potencial efetivo definido pela forma funcional do operador de Coulomb. No mesmo artigo os autores introduzem ainda a primeira aproximação funcional para o operador da interação Coulombiana: a aproximação da densidade local (LDA, do inglês local density approximation). Esta formulação contém o termo de Hartree e introduz correções devido ao princípio de Pauli no termo efetivo, conhecido como funcional de troca e correlação. A equação efetiva de Kohn & Sham é tão simples quanto a proposta por Hartree, porém permite a priori a descrição exata do sistema de muitos corpos. Deste ponto em diante, grande parte dos esforços voltam-se para a construção de funcionais de troca e correlação cada vez mais realísticos.

Apesar da formulação inicial da DFT ter sido feita para sistemas simples, generalizações bem estabelecidas são conhecidas para, e.g., sistemas na presença de campo magnético finito (116–119), temperatura finita (120), sistemas dependentes do tempo (121).

Nas seções seguintes discutimos peculiaridades da DFT relevantes para as discussões apresentadas nesta tese. Inicio apresentando os teoremas de Hohenberg & Kohn (46) na sua forma original, seguido da generalização constrained search feita por Levy (122, 123) e Lieb (124). Esta generalização será relevante na discussão sobre a existência de estados excitados como mínimos locais do funcional de energia do estado fundamental (48), Seção 3.7. Apresentamos também a generalização da DFT para sistemas dependentes de spin e na presença de campos magnéticos. Discutimos os funcionais de troca e correlação e a construção de aproximações para os mesmos.

^{*} Note que a função de onda de muitos corpos é uma função das coordenadas de cada partícula, $\psi \equiv \psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \dots)$, já a densidade é função de apenas um único conjunto de coordenadas, $n \equiv n(\mathbf{r})$.

Importante enfatizar a discussão da Seção 3.7, na qual discutimos a existência de estados excitados descritos como mínimos locais no funcional de energia do estado fundamental. Este resultado obtido por Perdew & Levy em 1985 (48) é fundamental para os estudos das instabilidades ferromagnéticas estudadas nesta tese.

3.1 Teoremas de Hohenberg & Kohn

No artigo de 1964, Hohenberg & Kohn (46) demostraram que os operadores de energia cinética e interação Coulombiana de um sistema de muitos corpos podem ser mapeados em funcionais universais da densidade, em contraste com a descrição usual em termos da função de onda de muitos corpos. O artigo apresenta dois teoremas, definindo a base da DFT. No primeiro teorema, os autores demonstram que a densidade do estado fundamental define univocamente o Hamiltoniano e, consequentemente, que qualquer operador pode ser escrito como um funcional da densidade. O segundo teorema diz que a energia total, na forma funcional, segue um principio variacional para a densidade, tal que a densidade do estado fundamental retorna o mínimo global do funcional de energia. No que se segue, apresentamos os dois teoremas na sua forma original, para depois contrastar com a formulação constrained search de Levy (122, 123), sendo que esta resolve problemas de representabilidade que serão apresentados no texto.

I - Densidade como variável básica

Na mecânica quântica, um sistema é completamente descrito pelo seu Hamiltoniano de muitos corpos $\hat{H} = \hat{T} + \hat{U} + \hat{V}$,

$$\hat{T} = \frac{\hbar^2}{2m} \int \nabla \hat{\psi}^*(\mathbf{r}) \cdot \nabla \hat{\psi}(\mathbf{r}) d\mathbf{r},$$

$$\hat{U} = \frac{e^2}{2} \int \int \hat{\psi}^*(\mathbf{r}) \hat{\psi}^*(\mathbf{r}') \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \hat{\psi}(\mathbf{r}') \hat{\psi}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} d\mathbf{r}',$$

$$\hat{V} = \int \hat{\psi}^*(\mathbf{r}) V(\mathbf{r}) \hat{\psi}(\mathbf{r}) d\mathbf{r},$$
(3.1)

sendo \hat{T} , \hat{U} and \hat{V} os operadores de energia cinética, interação de Coulomb, e potencial externo[†]. Aqui, $\hat{\psi}(\mathbf{r})$ e $\hat{\psi}^*(\mathbf{r})$ são os operadores de campo fermiônicos. Note que uma vez que os operadores de energia cinética e de interação Coulombiana dependem unicamente dos operadores de campo, o sistema quântico é univocamente definido pelo potencial externo $V(\mathbf{r})$.

Supondo que $|\varphi_0\rangle$ e $|\varphi_0'\rangle$ sejam, respectivamente, os estados fundamentais referente aos potenciais $V(\mathbf{r})$ e $V'(\mathbf{r})$, de forma que ambos retornem a mesma densidade para o estado fundamental $n_0(\mathbf{r}) = \langle \varphi_0 | \psi^*(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{r}) | \varphi_0 \rangle = \langle \varphi_0' | \psi^*(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{r}) | \varphi_0' \rangle$. Os potenciais definem também os Hamiltonianos \hat{H} e $\hat{H}' = \hat{H} + \hat{V}' - \hat{V}$, assim como os funcionais de energia total $E = \langle \varphi_0 | \hat{H} | \varphi_0 \rangle$ e $E' = \langle \varphi_0' | \hat{H}' | \varphi_0' \rangle$. De acordo com o princípio variacional de Rayleigh-Ritz, o estado fundamental retorna o mínimo de energia de seu Hamiltoniano. Segue então a desigualdade $\langle \varphi_0' | \hat{H}' | \varphi_0' \rangle < \langle \varphi_0 | \hat{H}' | \varphi_0 \rangle$, e uma equivalente para \hat{H} . Reescrevendo-se as desigualdades observa-se uma inconsistência,

$$E' < E + \int [V'(\mathbf{r}) - V(\mathbf{r})] n_0(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \qquad (3.2)$$

$$E' > E + \int [V'(\mathbf{r}) - V(\mathbf{r})] n_0(\mathbf{r}) d\mathbf{r}.$$
 (3.3)

O desacordo entre as desigualdades indica que a suposição inicial é absurda, concluindo-se que a dada densidade do estado fundamental $n_0(\mathbf{r})$ define univocamente o potencial externo $V(\mathbf{r})$. Portanto, o potencial externo é um funcional da densidade do estado fundamental, $V(\mathbf{r}) \equiv V[n_0(\mathbf{r})]$.

Uma vez que $V[n_0(\mathbf{r})]$ define o Hamiltoniano, o próprio Hamiltoniano e seus autoestados são também funcionais da densidade do estado fundamental, $\hat{H} \equiv \hat{H}[n_0(\mathbf{r})]$ e $|\varphi_k\rangle \equiv |\varphi_k[n_0(\mathbf{r})]\rangle$. Finalmente, como os autoestados carregam toda a informação sobre o sistema, qualquer observável pode ser escrito *a priori* como um funcional da densidade do estado fundamental $n_0(\mathbf{r})$.

II - Princípio variacional para a densidade

Entenda $|\varphi\rangle$ como o estado fundamental de um certo Hamiltoniano qualquer $\hat{H}' = \hat{T} + \hat{U} + \hat{V}'$, e $n(\mathbf{r})$ a densidade do estado fundamental retornada por este autoestado. Apesar de não ser possível escrever $|\varphi\rangle$ como um funcional explícito de $n(\mathbf{r})$, podemos

[†] Aqui "externo" refere-se a outras contribuições eletrostáticas, além das dos corpos tratados pelo Hamiltoniano. Tais contribuições podem incluir os núcleos atômicos, elétrons de camadas mais profundas, campos elétricos e magnéticos, acoplamento hiperfino, spin-órbita, etc.

assumir a relação funcional $|\varphi\rangle \equiv |\varphi[n(\mathbf{r})]\rangle$, e definir um funcional da densidade para as energias cinética e de interação Coulombiana,

$$F[n(\mathbf{r})] = \langle \varphi[n(\mathbf{r})] | \hat{T} + \hat{U} | \varphi[n(\mathbf{r})] \rangle. \tag{3.4}$$

Este funcional $F[n(\mathbf{r})]$ é dito **universal** pois depende apenas da densidade $n(\mathbf{r})$ e não do potencial externo \hat{V}' .

Considerando agora um Hamiltoniano $\hat{H} = \hat{T} + \hat{U} + \hat{V}$, segue a energia total como um funcional da densidade,

$$E[n(\mathbf{r})] = \langle \varphi[n(\mathbf{r})] | \hat{H} | \varphi[n(\mathbf{r})] \rangle = \int V(\mathbf{r}) n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + F[n(\mathbf{r})]. \tag{3.5}$$

Retornemos momentaneamente a formulação usual da energia total definida pelos autoestados, $E[\varphi] = \langle \varphi | \hat{H} | \varphi \rangle$. Neste contexto, o princípio variacional de Rayleigh-Ritz diz que a função de onda do estado fundamental φ_0 retorna a mínima energia do sistema, i.e., $E[\varphi_0] \leq E[\varphi], \forall \varphi$.

Consideremos as densidades do estado fundamental de \hat{H} , $n_0(\mathbf{r}) = \langle \varphi_0 | \psi^*(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{r}) | \varphi_0 \rangle$ e de um segundo Hamiltoniano qualquer \hat{H}' , $n(\mathbf{r}) = \langle \varphi | \psi^*(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{r}) | \varphi \rangle$. Partindo da desigualdade dada pelo princípio variacional de Rayleigh-Ritz, $E[\varphi_0] \leq E[\varphi]$, e da relação funcional $|\varphi\rangle \equiv |\varphi[n(\mathbf{r})]\rangle$, segue imediatamente o princípio variacional para a densidade,

$$E[n_0(\mathbf{r})] \le E[n(\mathbf{r})]. \tag{3.6}$$

Sobre os teoremas de Hohenberg & Kohn

Os dois teoremas apresentados constituem a base da DFT. O primeiro teorema demonstra uma relação biunívoca entre a densidade do estado fundamental $n_0(\mathbf{r})$ e o potencial externo $V(\mathbf{r})$. Consequentemente vale uma relação biunívoca entre $n_0(\mathbf{r})$ e qualquer autoestado de muitos corpos do sistema $|\varphi[n_0(\mathbf{r})]\rangle$,

$$n_0(\mathbf{r}) \leftrightarrow V(\mathbf{r}) \leftrightarrow \hat{H} \leftrightarrow |\varphi[n_0(\mathbf{r})]\rangle.$$
 (3.7)

O segundo teorema define o princípio variacional para a densidade. Porém, requer densidades **V-representáveis**, ou seja: as densidades $n_0(\mathbf{r})$ e $n(\mathbf{r})$ devem estar associadas a autoestados $|\varphi\rangle$ que são necessariamente estados fundamentais de algum potencial $V'(\mathbf{r})$,

não necessariamente $V(\mathbf{r})$. No artigo original os autores afirmam não ser possível provar que todas as possíveis densidades são V-representáveis, mas assumem que densidades relevantes para a teoria são.

No que se segue, apresentamos a reformulação do segundo teorema de Hohenberg & Kohn feita por Levy (122, 123). Nesta generalização do segundo teorema, o problema da V-representabilidade é resolvido definindo-se o funcional $F[n(\mathbf{r})]$ pelo método de busca restrita (constrained search method). Mais adiante, veremos que um segundo problema de representabilidade surge no mapeamento do sistema de muitos corpos no Hamiltoniano efetivo de Kohn & Sham (47), esta questão é chamada de "V-representabilidade não-interagente".

3.2 Método da busca restrita (constrained search)

Como descrito na seção anterior, a formulação original do segundo teorema de Hohenberg & Kohn define o funcional universal $F[n(\mathbf{r})]$ apenas para densidades $n(\mathbf{r})$ que sejam V-representáveis, ou seja, que estão associadas ao estado fundamental de um potencial $V(\mathbf{r})$ arbitrário. Esta limitação é um problema para o método variacional. No processo de minimização, as equações de Euler requerem variações infinitesimais da densidade e do funcional de energia. Se a variação infinitesimal $\delta n(\mathbf{r})$ leva a uma densidade não-V-representável, o funcional $F[n(\mathbf{r}) + \delta n(\mathbf{r})]$ não é bem definido. A questão foi resolvida por Levy (122, 123) e Lieb (124) através do "método da busca restrita" ‡ (constrained search method).

A ideia do método da busca restrita é dividir o processo de minimização da energia em duas etapas. Na primeira etapa, para uma densidade arbitrária e fixa $\tilde{n}(\mathbf{r})$, varre-se o subespaço de funções de quadrado-integrável que retornam aquela densidade $\{\varphi_{\tilde{n}}^{\alpha}\}$, sendo que α é um índice usado para distinguir os elementos do grupo. Na segunda etapa procura-se a densidade que minimiza a energia total. Abaixo, discutimos o método em mais detalhes.

Primeira etapa: Dada uma densidade arbitrária $\tilde{n}(\mathbf{r})$ (integrável, $\int \tilde{n}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \text{inteiro}$), existe um conjunto de funções antissimétricas de quadrado-integrável $\{\varphi_{\tilde{n}}^{\alpha}\}$ que retorna esta densidade, $\tilde{n}(\mathbf{r}) = \langle \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} | \psi^*(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{r}) | \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} \rangle$, $\forall \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} \in \{\varphi_{\tilde{n}}^{\alpha}\}$. Define-se, então, o mínimo de energia restrito a densidade $\tilde{n}(\mathbf{r})$ como

 $^{^{\}ddagger}$ Tradução livre.

$$E[\tilde{n}(\mathbf{r})] = \min_{\alpha} \langle \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} | \hat{H} | \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} \rangle = \int V(\mathbf{r}) \tilde{n}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + F[\tilde{n}(\mathbf{r})], \tag{3.8}$$

sendo

$$F[\tilde{n}(\mathbf{r})] = \min_{\alpha} \langle \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} | \hat{T} + \hat{U} | \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} \rangle. \tag{3.9}$$

Note que o termo do potencial $V(\mathbf{r})$ depende explicitamente da densidade, que é mantida fixa nessa etapa, e portanto não participa deste processo de minimização. Aqui, o funcional universal $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ é definido no subconjunto de funções antissimétricas de quadrado-integrável $\{\varphi_{\tilde{n}}^{\alpha}\}$ que retornam a densidade $\tilde{n}(\mathbf{r})$, desvinculado de qualquer potencial externo. Assim, o funcional $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ torna-se bem definido para qualquer densidade integrável, dita **N-representável**, i.e., $\int \tilde{n}(\mathbf{r})d\mathbf{r} = N = \text{inteiro}$. Como o espaço de Hilbert é definido apenas para funções de quadrado-integrável, restrição a funções N-representáveis não é um problema para o método variacional e equações de Euler, resolvendo o problema da **V-representabilidade**.

Segunda etapa: Dado que o funcional $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ é conhecido *a priori*, busca-se a densidade que minimiza a energia total do sistema,

$$E_0 = E[n_0(\mathbf{r})] = \min_{\tilde{n}} E[\tilde{n}(\mathbf{r})] = \min_{\tilde{n}} \left\{ \int V(\mathbf{r})\tilde{n}(\mathbf{r})d\mathbf{r} + F[\tilde{n}(\mathbf{r})] \right\},$$
(3.10)

sendo que $n_0(\mathbf{r})$ é a densidade do estado fundamental do sistema, retornada pelo processo de minimização nesta segunda etapa.

Esta equação ilustra a simplificação do problema de muitos corpos que a DFT provê, pois caso a forma exata do funcional universal de $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ seja conhecida a busca pelo estado fundamental é feita através da densidade, que é função de apenas um conjunto de coordenadas, $n \equiv n(\mathbf{r})$. Em comparação, o método variacional de Rayleight-Ritz pode ser reescrito como

$$E_0 = E[\varphi_0(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)] = \min_{\tilde{\varphi}} \langle \tilde{\varphi}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) | \hat{H} | \tilde{\varphi}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) \rangle. \tag{3.11}$$

Ou seja, na metodologia usual da mecânica quântica a minimização é feita através de uma função de N conjuntos de coordenadas, a função de onda de muitos corpos $\tilde{\varphi}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)$.

Entretanto, o processo de minimização da primeira etapa da constrained search também envolve N conjuntos de coordenadas. Portanto a simplificação fornecida pela DFT só é real se a forma exata do funcional universal de $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ for conhecida, ou se boas aproximações para $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ forem usadas. Na prática não se conhece tal forma funcional exata de $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ e aproximações são necessárias.

Na próxima seção discutimos as equações de Kohn & Sham (47), que fornecem um procedimento autoconsistente para minimização do funcional de energia $E[n(\mathbf{r})]$. No artigo de 1965, Kohn & Sham já introduzem naturalmente a primeira aproximação para $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$, a aproximação da densidade local (LDA, do inglês local density approximation). Apresentamos também na próxima seção a questão da V-representabilidade não-interagente, que questiona a própria formulação de Kohn & Sham. Mais adiante discutimos aproximações para $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$.

3.3 Equações de Kohn & Sham

O procedimento formulado por Kohn & Sham em 1965 (47) fornece um sistema de equações autoconsistentes, cuja solução retorna a densidade que minimiza o funcional de energia $E[n(\mathbf{r})]$. O método também é conhecido como ansatz de Kohn & Sham, pois não é possível demostrar que, para qualquer sistema, o potencial efetivo não-interagente $V_{\rm KS}(\mathbf{r})$ retorna a densidade do estado fundamental do sistema real de muitos corpos. Esta impossibilidade constitui o problema conhecido como "V-representabilidade não-interagente". Nesta seção apresentamos a formulação usual de Kohn & Sham para a DFT e a V-representabilidade não-interagente. Aproximações para o funcional $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$, inclusive a aproximação da densidade local introduzida já no artigo de 1965 (47), serão discutidas mais adiante.

Para obter as equações de Kohn & Sham, primeiramente decompomos o funcional de energia $E[\tilde{n}(\mathbf{r})] = V[\tilde{n}(\mathbf{r})] + F[\tilde{n}(\mathbf{r})] = V[\tilde{n}(\mathbf{r})] + T[\tilde{n}(\mathbf{r})] + U[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ na forma

$$E[\tilde{n}(\mathbf{r})] = V[\tilde{n}(\mathbf{r})] + T_S[\tilde{n}(\mathbf{r})] + U_H[\tilde{n}(\mathbf{r})] + E_{XC}[\tilde{n}(\mathbf{r})], \tag{3.12}$$

sendo que $T_S[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ é o funcional de energia cinética não-interagente, $U_H[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ é funcional de energia de Hartree e $E_{XC}[\tilde{n}(\mathbf{r})] = F[\tilde{n}(\mathbf{r})] - T_S[\tilde{n}(\mathbf{r})] - U_H[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ é o funcional de energia de troca e correlação (XC, do inglês exchange and correlation).

Os funcionais de energia do potencial externo e de Hartree são funcionais explícitos da densidade, e portanto separados da definição de $E_{\rm XC}$ para simplificar o procedimento variacional,

$$V[\tilde{n}(\mathbf{r})] = \int V(\mathbf{r})n(\mathbf{r})d\mathbf{r}, \qquad (3.13)$$

$$U_H[\tilde{n}(\mathbf{r})] = \frac{e^2}{2} \int \int \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')}{|(r) - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r} d\mathbf{r}'. \tag{3.14}$$

O termo de energia cinética não-interagente $T_S[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ também é excluído da definição de E_{XC} para simplificar o problema. A definição de $T_S[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ ficará mais clara a seguir, durante a dedução das equações de Kohn & Sham.

Dedução das equações de Kohn & Sham

As equações originais de Kohn & Sham são obtidas comparando-se as equações de Euler-Lagrange obtidas nos processos de minimização do sistema interagente em questão e um sistema auxiliar não-interagente. Comecemos pelo sistema interagente.

Dada uma variação infinitesimal da densidade $\delta n(\mathbf{r})$ com número de partículas fixo, tal que $\int \delta n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = 0$, a condição de minimização do funcional de energia $E[n(\mathbf{r})]$ é dada pela equação de Euler-Lagrange,

$$\int \delta n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \left\{ \frac{\delta T_S[n(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})} + V(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r}) + \frac{\delta E_{XC}[n(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})} - \mu \right\} = 0, \quad (3.15)$$

sendo que o multiplicador de Lagrange μ é a posteriori identificado como o potencial químico do sistema. Nesta equação $\delta/\delta n(\mathbf{r})$ representa a derivada funcional e $V_H(\mathbf{r})$ é o potencial de Hartree,

$$V_H(\mathbf{r}) = \frac{\delta U_H[n(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})} = e^2 \int \frac{n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}'.$$
 (3.16)

Como não conhecemos as formas funcionais dos termos de energia cinética $T_S[n(\mathbf{r})]$ e de troca e correlação $E_{XC}[n(\mathbf{r})]$, não há como proceder além da Eq. (3.15). Neste ponto passamos a analisar o processo de minimização da energia de um sistema não-interagente.

Dado um sistema não-interagente qualquer, representado por um potencial $V_S(\mathbf{r})$, escrevemos seu funcional de energia total como $E_S[n(\mathbf{r})] = V_S[n(\mathbf{r})] + T_S[n(\mathbf{r})]$. Minimizando a energia com relação a densidade, obtemos a seguinte equação de Euler-Lagrange,

$$\int \delta n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \left\{ \frac{\delta T_S[n(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})} + V_S(\mathbf{r}) - \mu_S \right\} = 0.$$
 (3.17)

Sendo μ_S multiplicador de Lagrange do sistema não-interagente. O teorema de Koopmans para DFT discutido adiante mostra que $\mu_S = \mu$. Adicionalmente, sabemos que a minimização da energia do funcional não-interagente pela função de onda resulta na equação de Schrödinger não-interagente,

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2\varphi_S^j(\mathbf{r}) + V_S(\mathbf{r})\varphi_S^j(\mathbf{r}) = \varepsilon_S^j\varphi_S^j(\mathbf{r}). \tag{3.18}$$

O ansatz de Kohn & Sham é definir um sistema auxiliar não-interagente, cujo potencial efetivo $V_{KS}(\mathbf{r})$ é obtido comparando-se as equações de Euler-Lagrange dos sistemas interagente e não-interagente, Eqs. (3.15) e (3.17), tal que

$$V_{KS}(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r}) + V_{XC}(\mathbf{r}), \tag{3.19}$$

$$V_{XC}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_{XC}[n(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})}.$$
(3.20)

Sendo que o funcional auxiliar de energia é $E_{KS}[n(\mathbf{r})] = V[n(\mathbf{r})] + U_H[n(\mathbf{r})] + E_{XC}[n(\mathbf{r})] + T_S[n(\mathbf{r})].$

No ansatz de Kohn & Sham, toma-se $V_{XC}(\mathbf{r})$, definido pela Eq. (3.20), como uma função simples da variável \mathbf{r} , e não como um funcional da densidade ou de funções de onda. Ou seja: dada uma densidade $n(\mathbf{r})$, calcula-se $V_{XC}(\mathbf{r})$ segundo a Eq. (3.20). O resultado é uma função simples de \mathbf{r} . Em seguida, dado $V_{XC}(\mathbf{r})$, a minimização do funcional de energia efetivo $E_{KS}[n(\mathbf{r})]$ pela função de onda resulta em uma equação de Schrödinger para $V_{KS}(\mathbf{r})$,

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2\varphi_{KS}^j(\mathbf{r}) + V_{KS}(\mathbf{r})\varphi_{KS}^j(\mathbf{r}) = \varepsilon_{KS}^j\varphi_{KS}^j(\mathbf{r}). \tag{3.21}$$

Aqui $\varphi_{KS}^{j}(\mathbf{r})$ e ε_{KS}^{j} são os orbitais e autoestados monoeletrônicos de Kohn & Sham e j representa os números quânticos associados às soluções da equação, tal que a densidade do estado fundamental é obtida somando-se sobre os orbitais ocupados,

$$n_0(\mathbf{r}) = \sum_{\{j | \varepsilon_{KS}^j \le \mu\}} |\varphi_{KS}^j(\mathbf{r})|^2.$$
 (3.22)

A energia total do sistema auxiliar é

$$E_{KS}[n_0(\mathbf{r})] = T_S[n(\mathbf{r})] + \int V_{KS}(\mathbf{r})n(\mathbf{r})d\mathbf{r} = \sum_{\{j|\varepsilon_{KS}^j \le \mu\}} \varepsilon_{KS}^j.$$
 (3.23)

Isolando-se $T_S[n(\mathbf{r})]$ na equação acima e substituindo na Eq. (3.12) obtemos a energia total do estado fundamental do sistema interagente:

$$E[n_0(\mathbf{r})] = \sum_{\{j \mid \varepsilon_{KS}^j \le \mu\}} \varepsilon_{KS}^j + E_{XC}[n_0(\mathbf{r})] - U_H[n_0(\mathbf{r})] - \int V_{XC}(\mathbf{r})n(\mathbf{r})d\mathbf{r}$$
(3.24)

V-representabilidade não-interagente

Infelizmente, não há prova formal que o mapeamento do sistema de muitos corpos nas equações de Kohn & Sham leve **sempre** a densidade do estado fundamental do sistema interagente. Este questionamento é conhecido como o problema da V-representabilidade não-interagente, ou seja, questiona-se se é sempre possível representar a densidade do estado fundamental do sistema interagente através de um potencial efetivo não-interagente.

Apesar de (ainda) não haver uma resposta definitiva, é possível demonstrar a V-representabilidade não-interagente para alguns sistemas, e.g., rede quadrada discreta (62). Mas para a grande maioria dos casos, apenas assume-se que a V-representabilidade não-interagente seja verdadeira.

Significado dos autovalores e autovetores de Kohn & Sham

Neste ponto é importante recordar o primeiro teorema de Hohenberg & Kohn (46). Neste, os autores demonstram que todo observável é a priori um funcional da densidade do estado fundamental. Portanto, a DFT é a priori capaz de fornecer resultados exatos para qualquer observável. Entretanto, na prática nem sempre conhecemos a forma funcional dos observáveis (e.g., coeficientes de transporte). Conhecemos sim, os observáveis como função de autoestados do sistema [e.g., formula de Landauer para a corrente e condutividade é escrita em termos das autoenergias do sistema (74)]. Porém, para usar os autoestados de Kohn & Sham neste contexto, precisamos verificar se estes correspondem aos autoestados reais do sistema.

Por construção, a formulação de Kohn & Sham da DFT fornece a priori resultados

exatos para a densidade do estado fundamental $n_0(\mathbf{r})$ e energia total $E[n_0(\mathbf{r})]$. Entretanto, apesar das equações de Kohn & Sham corresponderem a uma equação de Schrödinger efetiva, os autovalores da equação aparecem como multiplicadores de Lagrange referentes ao processo de minimização da energia, sujeito ao vínculo de número de partículas constante. Os autovetores correspondentes são auxiliares para a construção da densidade do estado fundamental. Em geral, nenhuma destas quantidades possui realidade física referente às energias e orbitais das quase-partículas reais (do sistema interagente). Assim, um determinante de Slater construído a partir de autovetores de Kohn & Sham não é, em princípio, uma boa aproximação para a função de onda de muitos corpos do sistema interagente. Apesar desta limitação, algumas propriedades exatas podem ser extraídas das equações de Kohn & Sham.

Teorema de Koopmans na DFT

O teorema de Koopmans, no contexto da teoria de Hartree-Fock, diz que todas as autoenergias obtidas das equações de Hartree-Fock correspondem a energias de ionização dos elétrons. O mesmo $\mathbf{n}\mathbf{\tilde{a}o}$ vale para a DFT. Porém, demonstra-se que o maior autovalor ocupado de Kohn & Sham corresponde ao nível de Fermi ε_F do sistema de muitos corpos (escolhendo o zero de energia em $\mathbf{r} \to \infty$, a energia de ionização é igual a $-\varepsilon_F$). Esta propriedade pode ser compreendida qualitativamente observando-se que para $\mathbf{r} \to \infty$, apenas o orbital de Kohn & Sham correspondente ao nível de Fermi contribui para a densidade nesse limite, uma vez que a extensão do orbital cresce com a energia e o nível de Fermi define o orbital ocupado com maior energia. Assim, para reproduzir a densidade corretamente neste limite, este orbital deve corresponder ao orbital real do sistema interagente, consequentemente seu autovalor corresponde ao nível de Fermi. A demonstração quantitativa é simples e pode ser consultada na Ref. (125).

Densidade de estados

Para as discussões que serão apresentadas nesta tese, uma propriedade importante é a densidade de estados no nível de Fermi, diretamente relacionada com a superfície de Fermi. Infelizmente, não é possível demonstrar formalmente se a superfície de Fermi de Kohn & Sham corresponde ou não a superfície de Fermi do sistema interagente. Comparações das duas superfícies de Fermi para casos particulares mostram qualitativamente que as duas grandezas não são equivalentes (126). Felizmente, argumentos quantitativos, referentes

a aproximações locais e semi-locais para E_{XC} , demonstram que a superfície de Fermi de Kohn & Sham é uma boa aproximação da superfície de Fermi do sistema interagente (127), desde que a aproximação para E_{XC} seja satisfatória para o sistema tratado. Finalmente, como a densidade de estados no nível de Fermi corresponde a contagem do número de estados num volume infinitesimal ao redor da superfície de Fermi, a mesma conclusão segue para a densidade de estados no nível de Fermi.

3.4 Generalização CSDFT: *spin*, campo magnético e temperatura

Nas seções anteriores discutimos a DFT na sua forma usual, na qual a variável fundamental é a densidade de carga $n(\mathbf{r})$ a temperatura nula. Nesta seção discutimos generalizações da DFT usual, incorporando o spin dos elétrons (116–119), efeitos orbitais do campo magnético (118, 119) (e.g., níveis de Landau), e temperatura finita (120). Usamos como base a formulação de Vignale & Rasolt (119): current- and spin-density functional theory (CSDFT). Esta já incorpora os efeitos de spin e campo magnético, considerando a generalização para temperaturas finitas de Mermin (120).

CSDFT

Na CSDFT utilizam-se como variáveis fundamentais as densidades de carga, $n_{\sigma}(\mathbf{r})$, e de corrente paramagnética, $\mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})$, de cada componente de $spin \ \sigma = \{\uparrow, \downarrow\}$. Lembrando que na presença de campo magnético a densidade de corrente física, i.e. que satisfaz a equação de continuidade, é

$$\mathbf{j}_{\sigma}(\mathbf{r}) = \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r}) + \frac{e}{m} n_{\sigma}(\mathbf{r}) \mathbf{A}(\mathbf{r}), \tag{3.25}$$

sendo $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ o potencial vetor referente ao campo magnético $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r})$, e $\mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{-i\hbar}{2m} [\psi(\mathbf{r})^{\dagger} \vec{\nabla} \psi(\mathbf{r}) - \mathrm{c.c.}]$.

A demonstração de que estas variáveis, $n_{\sigma}(\mathbf{r})$ e $\mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})$, determinam univocamente o sistema, segue diretamente da generalização do primeiro teorema de Hohenberg & Kohn.

Aqui apresentamos apenas algumas características da demonstração da CSDFT, para maiores detalhes consulte a Ref. (119).

Considere o Hamiltoniano do sistema na presença de um campo magnético externo

$$H = \hat{T}_0 + \hat{U} + \sum_{\sigma} \int \hat{n}_{\sigma}(\mathbf{r}) V_{\sigma}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + e \sum_{\sigma} \int \hat{\mathbf{j}}_{p,\sigma}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}_{\sigma}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + \frac{e^2}{2m} \sum_{\sigma} \int \hat{n}_{\sigma}(\mathbf{r}) \mathbf{A}_{\sigma}^2(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (3.26)$$

sendo que \hat{U} é os operador da interação de Coulomb, e \hat{T}_0 é o operador de energia cinética de campo magnético nulo, lembrando que o operador de energia cinética canônico deve incorporar os termos que contém o potencial vetor $\mathbf{A}(\mathbf{r})^\S$. Supondo agora dois conjuntos distintos de potenciais $\{V_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{A}_{\sigma}(\mathbf{r})\}$ e $\{V'_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{A}'_{\sigma}(\mathbf{r})\}$ que retornem as mesmas densidades do estado fundamental $n_{\sigma}^0(\mathbf{r})$ e $\mathbf{j}_{p,\sigma}^0(\mathbf{r})$, com funções de onda distintas $|\psi\rangle$ e $|\psi'\rangle$. De forma equivalente ao primeiro teorema de Hohenberg & Kohn, obtemos a inequação

$$E = \langle \psi | H | \psi \rangle < \langle \psi' | H | \psi' \rangle = E' +$$

$$+ \sum_{\sigma} \int n_{\sigma}^{0}(\mathbf{r}) [V_{\sigma}(\mathbf{r}) - V_{\sigma}'(\mathbf{r})] d\mathbf{r} +$$

$$+ e \sum_{\sigma} \int \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r}) \cdot [\mathbf{A}_{\sigma}(\mathbf{r}) - \mathbf{A}_{\sigma}'(\mathbf{r})] d\mathbf{r} +$$

$$+ \frac{e^{2}}{2m} \sum_{\sigma} \int n_{\sigma}(\mathbf{r}) [\mathbf{A}_{\sigma}^{2}(\mathbf{r}) - \mathbf{A}_{\sigma}'^{2}(\mathbf{r})] d\mathbf{r}, \quad (3.27)$$

e uma inequação semelhante trocando as variáveis com e sem linha. Finalmente obtendo a inconsistência

$$E + E' < E + E',$$
 (3.28)

demonstrando por reductio ad absurdum que as variáveis $n_{\sigma}(\mathbf{r})$ e $\mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})$ definem univocamente o sistema. Assim, as funções de onda e qualquer observável podem a priori ser escritos como funcionais das densidades de carga e de corrente para cada spin, i.e. $|\psi\rangle \equiv |\psi[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})]\rangle$.

Para simplificar a notação, o símbolo σ nas dependências funcionais da densidade e corrente indica que o funcional depende das duas componentes de *spin* envolvidas,

[§] O índice de *spin* no potencial vetor $\mathbf{A}_{\sigma}(\mathbf{r})$ é introduzido por questões matemáticas discutidas no artigo original (119). No final da derivação da CSDFT recupera-se o caso físico $\mathbf{A}_{\uparrow}(\mathbf{r}) = \mathbf{A}_{\downarrow}(\mathbf{r}) = \mathbf{A}(\mathbf{r})$.

e.g., $|\psi[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})]\rangle \equiv |\psi[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\uparrow}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\downarrow}(\mathbf{r})]\rangle$. O mesmo vale para os funcionais definidos abaixo.

A generalização do princípio variacional de Hohenberg & Kohn também é imediata, sendo que o funcional universal F passa a ser definido como

$$F[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})] = T_S[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})] + V_H[n(\mathbf{r})] + E_{XC}[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})], \tag{3.29}$$

sendo T_S o funcional de energia cinética não-interagente a campo magnético nulo, V_H o funcional de Hartree, e E_{XC} o funcional de troca e correlação generalizado.

As equações de Kohn & Sham generalizadas são

$$\left\{ \frac{[\mathbf{p} + e\mathbf{A}_{KS}^{\sigma}(\mathbf{r})]^2}{2m} + \frac{e^2}{2m} \left[A^2(\mathbf{r}) - A_{KS}^{\sigma 2}(\mathbf{r}) \right] + v_{KS}^{\sigma}(\mathbf{r}) \right\} \psi_i^{\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{i,\sigma} \psi_i^{\sigma}(\mathbf{r}), \tag{3.30}$$

sendo $v_{KS}^{\sigma}(\mathbf{r}) = v_{\sigma}(\mathbf{r}) + v_{H}(\mathbf{r}) + v_{xc}^{\sigma}(\mathbf{r})$ os potenciais externo, de Hartree e de troca & correlação, $\mathbf{A}_{KS}^{\sigma}(\mathbf{r}) = \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r})$ os potenciais vetores externo e de troca & correlação. As definições dos termos de troca & correlação são

$$v_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_{XC}[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})]}{\delta n_{\sigma}(\mathbf{r})},$$
 (3.31)

$$v_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_{XC}[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})]}{\delta n_{\sigma}(\mathbf{r})}, \qquad (3.31)$$

$$e\mathbf{A}_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_{XC}[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})]}{\delta \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})}. \qquad (3.32)$$

Por fim, a energia total do estado fundamental generalizada é

$$E_{0} = \sum_{\sigma} \sum_{i} \varepsilon_{i,\sigma} - \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) v_{H}(\mathbf{r}) - \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} n_{\sigma}(\mathbf{r}) v_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r}) - e \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r}) + E_{XC}[n_{\sigma}(\mathbf{r}), \mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})]. \quad (3.33)$$

Em sistemas semicondutores [e.g., pontos quânticos (128)] o potencial vetor de troca & correlação \mathbf{A}_{XC}^{σ} é pequeno e pode ser desprezado (15, 128). Assim, as equações de Kohn & Sham e energia total se simplificam, tomando a forma de uma equação de Schrödinger efetiva na presença de um campo magnético externo,

$$\left\{ \frac{[\mathbf{p} + e\mathbf{A}(\mathbf{r})]^2}{2m} + v_{KS}^{\sigma}(\mathbf{r}) \right\} \psi_i^{\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{i,\sigma} \psi_i^{\sigma}(\mathbf{r}), \tag{3.34}$$

$$E_0 = \sum_{\sigma} \sum_{i} \varepsilon_{i,\sigma} - \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) v_H(\mathbf{r}) - \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} n_{\sigma}(\mathbf{r}) v_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r}) + E_{XC}[n_{\sigma}(\mathbf{r})].$$
(3.35)

Note que nesta forma final das equações, na aproximação $\mathbf{A}_{XC} = 0$, o funcional E_{XC} não depende de corrente paramagnética $\mathbf{j}_{p,\sigma}(\mathbf{r})$.

Temperatura finita: ensembles canônico e grão-canônico

A formulação da DFT para temperaturas finitas foi primeiramente desenvolvida em 1965 por David Mermin (120), logo após a publicação dos teoremas fundamentais por Hohenberg & Kohn (46). Discussões mais detalhadas da generalização para temperaturas finitas podem ser encontradas nas Refs. (15, 129).

Na generalização de Mermin, trata-se o problema de muitos corpos no **ensemble grão-canônico**, tal que a temperatura $^{\P}\beta^{-1}$ e o potencial químico μ são fixos. A grandeza a ser minimizada é o potencial grão-canônico $\Omega[n(\mathbf{r})]$, definido em última instância como

$$\Omega[n(\mathbf{r})] = \int [v(\mathbf{r}) - \mu] n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + F_{\Theta}[n(\mathbf{r})] = V_{\mu}[n(\mathbf{r})] + F_{\Theta}[n(\mathbf{r})], \qquad (3.36)$$

$$F_{\Theta}[n(\mathbf{r})] = \min_{\hat{\rho}} \left\{ \operatorname{Tr} \hat{\rho} \left(\hat{T} + \hat{U} + \frac{1}{\beta} \ln \hat{\rho} \right) \right\} = T[n(\mathbf{r})] + U[n(\mathbf{r})] - \Theta S[n(\mathbf{r})], \quad (3.37)$$

sendo $\hat{\rho}$ a matriz de densidade, β o inverso da temperatura, e $F[n(\mathbf{r})]$ a generalização do funcional universal de Hohenberg & Kohn (46) na formulação de busca restrita de Levy (122, 123). Aqui, o funcional $F[n(\mathbf{r})]$ é decomposto em termos de energia cinética $T[n(\mathbf{r})]$, potencial de Coulomb $U[n(\mathbf{r})]$ e entropia $S[n(\mathbf{r})]$.

Em última instância, esta formulação recupera as equações de Kohn & Sham. Sendo que as únicas diferenças estão (i) na dependência explícita da temperatura no termo de troca e correlação $E_{XC} \equiv E_{XC}[n(\mathbf{r}); \Theta]$, e (ii) na construção da densidade de carga segundo o princípio aufbau,

[¶] Nesta seção uso os símbolos $\beta^{-1} = k_B \Theta$ ou Θ para a temperatura a fim de evitar confusão com o operador de energia cinética \hat{T} .

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{k} |\varphi_k(\mathbf{r})|^2 f(\varepsilon_k), \tag{3.38}$$

sendo k um conjunto de números quânticos apropriado, $\varphi_k(\mathbf{r})$ e ε_k os orbitais e energias de Kohn & Sham, e $f(\varepsilon_k) = \{\exp[\beta(\varepsilon_k - \mu)] + 1\}^{-1}$ a distribuição de Fermi-Dirac.

De forma equivalente, pode-se formular a DFT para temperaturas finitas no **ensemble** canônico, temperatura e número de partículas fixos, minimizando-se a energia livre de Helmholtz $A[n(\mathbf{r})]$ (15, 125, 129),

$$A[n(\mathbf{r})] = \int v(\mathbf{r})n(\mathbf{r})d\mathbf{r} + F_{\Theta}[n(\mathbf{r})] = V[n(\mathbf{r})] + F_{\Theta}[n(\mathbf{r})], \qquad (3.39)$$

$$F_{\Theta}[n(\mathbf{r})] = \min_{\hat{\rho}} \left\{ \operatorname{Tr} \hat{\rho} \left(\hat{T} + \hat{U} + \frac{1}{\beta} \ln \hat{\rho} \right) \right\} = T[n(\mathbf{r})] + U[n(\mathbf{r})] - \Theta S[n(\mathbf{r})]. \tag{3.40}$$

Note que estas expressões são quase idênticas às do ensemble grão-canônico, distinguindo-se apenas pela ausência do potencial químico. Novamente, esta formulação leva às equações de Kohn & Sham, com um termo de troca e correlação dependente da temperatura, e densidade construída segundo o princípio aufbau.

Separando-se as contribuições interagentes das não-interagentes, redefinimos o potencial grão-canônico e a energia livre de Helmholtz

$$\Omega[n(\mathbf{r})] = T_S[n(\mathbf{r})] + U_H[n(\mathbf{r})] + V_{\mu}[n(\mathbf{r})] - \Theta S_S[n(\mathbf{r})] + E_{XC}[n(\mathbf{r}), \Theta], \tag{3.41}$$

$$A[n(\mathbf{r})] = T_S[n(\mathbf{r})] + U_H[n(\mathbf{r})] + V[n(\mathbf{r})] - \Theta S_S[n(\mathbf{r})] + E_{XC}[n(\mathbf{r}), \Theta], \tag{3.42}$$

o índice μ no termo do potencial externo de $\Omega[n(\mathbf{r})]$ é usado para distinguir do termo equivalente em $A[n(\mathbf{r})]$, c.f. Eqs. (3.36) e (3.39). O termo de entropia não-interagente $S_S[n(\mathbf{r})]$, usando $f_k \equiv f(\varepsilon_k)$, é dado por

$$S_S = -k_B \sum_k f_k \ln f_k + (1 - f_k) \ln(1 - f_k). \tag{3.43}$$

Nesta tese estamos interessados no regime de baixas temperaturas, tal que $\tau = \Theta/\Theta_F \le 10^{-3}$, sendo Θ_F a temperatura de Fermi. Para baixas temperaturas, as correções para a energia de troca e correlação (125, 130–132) escalam com τ^2 e podem ser seguramente desprezadas. Assim, recuperamos a formulação usual da DFT, incorporando a temperatura apenas no calulo da densidade segundo o princípio aufbau.

Combinando CSDFT e temperatura finita

As duas generalizações podem ser imediatamente combinadas (119). Dadas as aproximações discutidas acima (i.e., $A_{XC} = 0$ e $E_{XC}[n(\mathbf{r}), \Theta] \approx E_{XC}[n(\mathbf{r})]$), definimos a formulação da DFT a ser usada nesta tese através das seguintes equações,

$$\left\{ \frac{[\mathbf{p} + e\mathbf{A}(\mathbf{r})]^2}{2m} + v_{KS}^{\sigma}(\mathbf{r}) \right\} \psi_k^{\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{k,\sigma} \psi_k^{\sigma}(\mathbf{r}), \tag{3.44}$$

$$E = \sum_{k,\sigma} \varepsilon_{k,\sigma} f_{k,\sigma} - \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) v_H(\mathbf{r}) - \sum_{\sigma} \int d\mathbf{r} n_{\sigma}(\mathbf{r}) v_{XC}^{\sigma}(\mathbf{r}) + E_{XC}[n_{\sigma}(\mathbf{r})] - TS_S, \quad (3.45)$$

$$n_{\sigma}(\mathbf{r}) = \sum_{k,\sigma} |\psi_k^{\sigma}(\mathbf{r})|^2 f_{k,\sigma}, \tag{3.46}$$

sendo que na primeira linha temos as equações de Kohn & Sham na presença de um campo magnético $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r})$. Na segunda linha redefinimos a energia total, considerando a entropia não-interagente S_S e a ocupação térmica dos estados dada pela distribuição de Fermi-Dirac $f_{k,\sigma} = \{\exp[\beta(\varepsilon_{k,\sigma} - \mu)] + 1\}^{-1}$ para uma certa temperatura $\beta^{-1} = k_B T$ e potencial químico μ . A última linha representa o cálculo da densidade de cargas segundo o princípio aufbau. Em todas as equações k representa um conjunto de números quânticos apropriado e σ o spin eletrônico. As equações são as mesmas para os ensembles canônico e grão-canônico, sendo que distinção é feita mantendo-se a densidade ou potencial químico fixos no processo autoconsistente.

3.5 Funcionais de troca e correlação

Como vimos anteriormente, a DFT, segundo os teoremas de Hohenberg & Kohn, provê uma descrição exata para a densidade e energia do sistema de muitos corpos interagentes através de funcionais da densidade. Posteriormente, a formulação de Kohn & Sham define um método autoconsistente para minimizar a energia do sistema e encontrar a densidade do estado fundamental. Todo este procedimento pode ser considerado exato, caso o funcionais da densidade sejam conhecidos $(F[n(\mathbf{r})])$ nos teoremas de Hohenberg & Kohn, ou equivalentemente $E_{XC}[n(\mathbf{r})]$ na formulação de Kohn & Sham). Na prática, tais

 $[\]parallel$ Aqui volto a usar T para definir a temperatura.

funcionais não são conhecidos e aproximações são necessárias.

O funcional de troca e correlação $E_{XC}[n(\mathbf{r})]$ é definido como

$$E_{XC}[n(\mathbf{r})] = T[n(\mathbf{r})] - T_S[n(\mathbf{r})] + U[n(\mathbf{r})] - U_H[n(\mathbf{r})], \tag{3.47}$$

sendo $U[n(\mathbf{r})]$ a energia de Coulomb completa, $U_H[n(\mathbf{r})]$ o termo de Hartree referente a interação de Coulomb direta, $T[n(\mathbf{r})]$ a energia cinética interagente, e $T_S[n(\mathbf{r})]$ a energia cinética não-interagente. A diferença entre $T[n(\mathbf{r})]$ e $T_S[n(\mathbf{r})]$ esta na decomposição da densidade em funções antissimétricas ou produto simples de orbitais monoeletrônicos.

Podemos ainda decompor o funcional $E_{XC}[n(\mathbf{r})]$ em termos de funcionais de troca $E_X[n(\mathbf{r})]$ e de correlação $E_C[n(\mathbf{r})]$, i.e., $E_{XC}[n(\mathbf{r})] = E_X[n(\mathbf{r})] + E_C[n(\mathbf{r})]$. O termo de troca possui contribuições apenas da energia de Coulomb devido a antisimetrização da função de onda, sendo que a forma funcional orbital é dada pela integral de Fock. O termo de correlação corresponde a diferença entre os funcionais de energia cinética interagente e não-interagente, e a termos extras da interação de Coulomb.

No Apêndice C interpretamos os termos do funcional através das diferentes contribuições dos determinantes de Slater. Esta descrição é meramente ilustrativa, ajudando a esclarecer a diferença entre os diferentes termos.

3.6 Construção de funcionais aproximados

Como discutimos anteriormente, o sucesso da DFT depende da aproximação usada para o funcional de troca e correlação $E_{XC}[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})]$. Nesta seção, começamos descrevendo como os funcionais de troca são obtidos a partir da expressão da energia de troca definida no método Hartree-Fock, i.e. a integral de Fock. Mostramos o resultado obtido na aproximação da densidade de spin local (LSDA, do inglês local spin density approximation) e discutimos generalizações, e.g. GGA (generalized gradient approximation) e OEP (optimized effective potential). Na sequência discutimos os métodos utilizados para obter expressões para o funcional de correlação.

Definimos como funcional de troca $E_X[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})]$ as expressões obtidas a partir de aproximações sobre a integral de Fock,

$$E_X = -\frac{e^2}{2} \sum_{\sigma} \sum_{i,j} \int \int \frac{\varphi_{i,\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{j,\sigma}^*(\mathbf{r}') \varphi_{j,\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{i,\sigma}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r} d\mathbf{r}', \qquad (3.48)$$

sendo $\varphi_{i,\sigma}(\mathbf{r})$ os orbitais eletrônicos (ou orbitais de Kohn & Sham no contexto da DFT), e a soma sobre os autoestados i, j de cada $spin \sigma$ corre sobre os estados ocupados.

Todas as outras contribuições da interação de Coulomb e da energia cinética interagente serão incorporadas no termo de correlação $E_C[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})]$. Confira no Apêndice C uma ilustração qualitativa das diferentes contribuições para troca e correlação.

Aproximação da densidade de spin local (LSDA):

Nesta aproximação, assume-se que a densidade varia lentamente através de um volume infinitesimal, de forma que a energia de troca, Eq. (3.48), pode ser aproximada pela energia do sistema homogêneo modulada pela densidade local, i.e.,

$$E_X[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})] = \sum_{\sigma} \int n_{\sigma}(\mathbf{r}) \varepsilon_X^{\sigma}[n_{\sigma}(\mathbf{r})] d\mathbf{r}, \qquad (3.49)$$

sendo $\varepsilon_X^{\sigma}[n_{\sigma}(\mathbf{r})]$ o funcional de troca do sistema homogêneo, por partícula com spin σ .

O funcional de troca homogêneo é obtido substituindo os orbitais por ondas planas na integral de Fock, i.e., $\varphi_{i,\sigma}(\mathbf{r}) \to \varphi_{\mathbf{k},\sigma}(\mathbf{r}) = V^{-1/2} \exp[-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}]|\sigma\rangle$, sendo $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$ os vetores de onda. O resultado obtido nesta aproximação é

$$\varepsilon_X^{\sigma}[n_{\sigma}(\mathbf{r})] = -\frac{3e^2}{4\epsilon} \left(\frac{6}{\pi} n_{\sigma}(\mathbf{r})\right)^{1/3} \to \left\{ = -\frac{3}{4} \left(\frac{6}{\pi} n_{\sigma}(\mathbf{r})\right)^{1/3} \right\}, \tag{3.50}$$

entre chaves apresentamos o resultado em unidades atômicas, como é comumente reportado na literatura.

Tomando a derivada funcional de $E_X[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})]$, obtemos o potencial de troca $v_x^{\sigma}(\mathbf{r})$,

$$v_x^{\sigma}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_X[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})]}{\delta n_{\sigma}(\mathbf{r})} = -\frac{e^2}{\epsilon} \left(\frac{6}{\pi} n_{\sigma}(\mathbf{r})\right)^{1/3} \to \left\{ = -\left(\frac{6}{\pi} n_{\sigma}(\mathbf{r})\right)^{1/3} \right\}, \quad (3.51)$$

novamente, entre chaves apresentamos a expressão em unidades atômicas.

Aproximações para o termo de correlação na LSDA

Como estabelecido acima, definimos o termo de troca através da integral de Fock, Eq. (3.48), incorporando todas as outras contribuições de muitos corpos no termo de correlação (c.f. exemplo ilustrativo no Apêndice C). Infelizmente, mesmo no contexto da aproximação local, o termo de correlação não possui uma expressão exata e outras aproximações são necessárias.

As aproximações atuam sobre o termo $\varepsilon_C[n_{\uparrow}, n_{\downarrow}]$ buscando expressões exatas em certos limites através de métodos perturbativos. Utilizam-se como variáveis fundamentais o parâmetro de densidade r_s e a polarização de $spin \zeta$, definidos para um sistema tridimensional como

$$r_s = \left[\frac{3}{4\pi(n_{\uparrow} + n_{\downarrow})}\right]^{1/3}, \tag{3.52}$$

$$\zeta = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}}, \tag{3.53}$$

$$\varepsilon_C(r_s, \zeta) \equiv \varepsilon_C[n_{\uparrow}(\mathbf{r}), n_{\downarrow}(\mathbf{r})].$$
 (3.54)

Note que neste caso tridimensional r_s foi definido como o raio de uma esfera de volume igual ao inverso da densidade $(n_{\uparrow} + n_{\downarrow})^{-1}$. No caso bidimensional, define-se r_s como o raio de uma circunferência de área igual ao inverso da densidade bidimensional, $r_s = [\pi(n_{\uparrow} + n_{\downarrow})]^{-1/2}$. As outras definições seguem independentemente da dimensionalidade da densidade.

No caso do gás de elétrons homogêneo, são conhecidos os limites de baixa polarização ζ , alta densidade (r_s pequeno), e baixa densidade (r_s grande), respectivamente dados por

$$\varepsilon_C(r_s,\zeta) = \varepsilon_C(r_s,0) + \frac{1}{2}\alpha_c(r_s)\zeta^2 + \cdots,$$
 (3.55)

$$\varepsilon_C(r_s,\zeta) = c_0(\zeta) \ln r_s - c_1(\zeta) + c_2(\zeta) r_s \ln r_s - c_3(\zeta) r_s + \cdots,$$
 (3.56)

$$\varepsilon_C(r_s,\zeta) = \frac{-d_0(\zeta)}{r_s^p} + \frac{d_1(\zeta)}{r_s^{2p-1/2}} + \cdots$$
 (3.57)

Os parâmetros desconhecidos nestas expansões devem ser obtidos comparando-se estes resultados com outros métodos, e.g., random phase approximation (RPA) ou Monte Carlo quântico (51, 52). Historicamente, a primeira aproximação foi proposta por Wigner, interpolando os limites de baixa e alta densidades no caso de polarização nula $\zeta=0$, obtendo

$$\varepsilon_C(r_s, 0) = \frac{-0.44e}{r_s + 0.78}$$
 (unidades atômicas). (3.58)

Nesta tese, utilizamos as aproximações proposta por Vosko, Wilk & Nussair (VWN) (50) e por Perdew & Wang (PW92) (49). Ambas usam a interpolação proposta em VWN,

$$\varepsilon_C(r_s,\zeta) = \varepsilon_C(r_s,0) + \alpha_c(r_s) \frac{f(\zeta)}{f''(0)} (1-\zeta^4) + [\varepsilon_C(r_s,1) - \varepsilon_C(r_s,0)] f(\zeta) \zeta^4, \tag{3.59}$$

$$f(\zeta) = \frac{(1+\zeta)^{4/3} + (1-\zeta)^{4/3} - 2}{2^{4/3} - 2},$$
(3.60)

sendo que as diferentes aproximações tratam de formas distintas os termos $\varepsilon_C(r_s, 0)$, $\varepsilon_C(r_s, 1)$ e $\alpha_c(r_s)$. No funcional PW92 estas três quantidades são descritas como funções do tipo,

$$G(r_s) = -2A(1 + \alpha_1 r_s) \ln \left[1 + \frac{1}{2A(\beta_1 r_s^{1/2} + \beta_2 r_s + \beta_3 r_s^{3/2} + \beta_4 r_s^{p+1})} \right].$$
 (3.61)

Sendo que ajusta-se os parâmetros minimizando-se o desvio com relação aos resultados de Monte Carlo quântico (52). Para mais detalhes sobre os parâmetros, confira a Ref. (49).

Além da aproximação local

Costuma-se representar os avanços dos funcionais de troca e correlação através de uma analogia com a escada de Jacó, como imaginada por Perdew (63, 133), ligando o mundo imperfeito (mundo de Hartree) com o paraíso de precisão absoluta, Fig. 3.1. Nesta escada, o primeiro degrau representa as aproximações locais, cujo principal fundamento é assumir que a densidade varia tão lentamente, que podemos considerar que localmente os elétrons se comportam como em um sistema uniforme.

No segundo degrau temos os funcionais semi-locais, nos quais considera-se variações locais da densidade através das diversas derivadas locais da densidade. Pertencem a esta categoria as aproximações da expansão em gradientes (GEA, do inglês gradient-expansion approximations) e aproximação de gradientes generalizados (GGA, do inglês generalizados gradient approximations). Nesta tese não discutiremos detalhes destas aproximações semi-locais, pois estas não apresentam melhorias significativas em comparação com a LSDA.

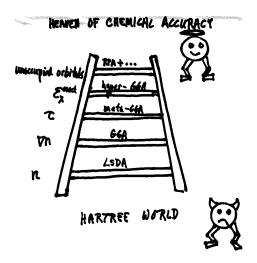


Figura 3.1 – Ilustração da escada de Jacó no contexto da DFT, extraída da Ref. (63). A escada representa a evolução dos funcionais, definindo o modelo de Hartree como a aproximação mais mundana, e o *paraíso de precisão absoluta* como o topo desconhecido da escada.

Antes de continuar, lembremos da construção do funcional LSDA de correlação apresentado anteriormente. Tal processo envolve fundamentalmente: limites conhecidos do termo de correlação, e ajuste comparado com resultados numéricos de Monte Carlo quântico. De forma mais geral, o processo de construção de funcionais deve tentar satisfazer o maior número possível de propriedades exatas, relação de escalonamento de *spin* para o termo de troca; preservação da consistência em tamanho; limite de Lieb-Oxford; etc.

As aproximações locais (LSDA) e semi-locais (GGA), satisfazem as propriedades citadas acima. Entretanto, estas aproximações não satisfazem outras propriedades, como: correção de auto-interação; e descontinuidade da derivada. A correção de auto-interação é mais importante no limite de baixas densidades: no limite de um único elétron não há mais interações, então o termo de Hartree deve cancelar exatamente o termo de troca e correlação.

Já a **descontinuidade da derivada** funcional da energia tem maior relevância para o assunto desta tese. No contexto atômico e molecular (poucos elétrons), esta propriedade diz respeito a variação da energia quando o número de elétrons varia em torno de um número inteiro. Sejam $n^{\pm}(\mathbf{r}) = n(\mathbf{r}) \pm \eta(\mathbf{r})$ variações infinitesimais ($\int \eta(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \eta \ll 1$) em torno da densidade $n(\mathbf{r})$ que representa um número inteiro de elétrons,

$$\lim_{\eta \to 0} \left\{ \left. \frac{\delta E[n(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})} \right|_{n^{+}(\mathbf{r})} - \left. \frac{\delta E[n(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})} \right|_{n^{-}(\mathbf{r})} \right\} = \Delta = I - A, \tag{3.62}$$

sendo I = E[N-1] - E[N] e A = E[N] - E[N+1] as energias de ionização e afinidade eletrônicas. A descontinuidade da derivada $\Delta = \Delta_{KS} + \Delta_{XC}$ possui contribuições do termo de energia cinética não interagente Δ_{KS} e do termo de troca e correlação Δ_{XC} . Porém, funcionais locais e semi-locais são geralmente funcionais analíticos da densidade, portanto

sua derivada é contínua e $\Delta_{XC} = 0$.

Em sistemas atômicos e moleculares, esta falha dos funcionais locais gera resultados ruins para as energias de ionização e afinidade. Em semicondutores, esta limitação subestima o gap da estrutura de bandas (15, 55).

Descontinuidade da derivada em 2DEGs com duas subbandas ocupadas

Mais recentemente, Proetto e colaboradores (59–61) estudaram os efeitos de troca e correlação em um sistema de elétrons quasi-bidimensional a campo magnético nulo. Eles demonstraram que, próximo a ocupação da segunda subbanda do poço confinante, ocorre uma transição de fase diretamente relacionada à descontinuidade da derivada. Os autores obtiveram sucesso na descrição desta transição de fase através de funcionais orbitais tipo OEP (optimized effective potential). Para o termo de troca considera-se a forma exata da integral de Fock (exact exchange), usando teoria de perturbação de primeira ordem para calcular as derivadas funcionais. Já o termo de correlação é obtido através da teoria de perturbação de Görling-Levy até segunda ordem (15, 58).

O sistema estudado por Proetto e colaboradores é muito semelhante ao usado como referência nesta tese. Assim, dado o sucesso obtido a campo magnético nulo, iniciamos um trabalho em colaboração com Proetto para desenvolver um funcional orbital baseado em exact exchange para campo magnético finito. Acreditamos que as transições de fase ferromagnéticas que estudamos nesta tese são diretamente influenciadas pela descontinuidade da derivada. Assim, este novo funcional deve melhorar os resultados apresentados nesta tese. Mais detalhes serão discutidos ao apresentarmos os resultados obtidos. Esta colaboração com Proetto ainda esta em andamento e os resultados não serão apresentados aqui.

3.7 Estados excitados e a DFT

Em 1985, Perdew & Levy publicaram uma discussão sobre a possibilidade de obter estados excitados no contexto da DFT usual (48). O questionamento é interessante, pois os teoremas fundamentais da DFT garantem que a densidade do estado fundamental retorna

o mínimo do funcional de energia daquele sistema, mas nada fala sobre estados excitados.

Até recentemente, esta possibilidade de obter estados excitados da formulação da DFT para estado fundamental (constrained search) não havia sido observada. A primeira publicação exibindo esta característica pertence ao nosso grupo de pesquisas, Freire & Egues (PRL 2007) (35). Este trabalho chamou a atenção de Perdew e colaboradores no artigo recente onde discutem questões fundamentais da DFT (63). No capítulo de resultados desta tese, mostramos que nos sistemas estudados aqui também é possível observar os estados excitados.

No que se segue procuro esclarecer os pontos fundamentais deste trabalho de Perdew & Levy, omitindo questões secundárias como as representabilidades e definições sobre variações da densidade. Para maiores detalhes consulte o trabalho original (48).

Limite inferior para energia do estado excitado

Este argumento segue imediatamente da definição do funcional universal obtida pelo método constrained search apresentado anteriormente, Seção 3.2. Nesta formulação, o funcional de energia foi definido como

$$E[\tilde{n}(\mathbf{r})] = \int v(\mathbf{r})\tilde{n}(\mathbf{r})d\mathbf{r} + F[\tilde{n}(\mathbf{r})], \qquad (3.63)$$

$$F[\tilde{n}(\mathbf{r})] = \min_{\alpha} \langle \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} | \hat{T} + \hat{U} | \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} \rangle, \tag{3.64}$$

sendo que o funcional universal $F[\tilde{n}(\mathbf{r})]$ busca o estado $|\varphi_{\tilde{n}}^{\alpha}\rangle$ que minimiza a energia cinética \hat{T} e de interação Coulombiana \hat{U} , sujeito ao vínculo $\langle \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} | \hat{n} | \varphi_{\tilde{n}}^{\alpha} \rangle = \tilde{n}(\mathbf{r})$.

Considere uma densidade $n_i(\mathbf{r})$ referente a um estado excitado $|\varphi_i\rangle$ do Hamiltoniano \hat{H} , com energia $E_i = \langle \varphi_i | \hat{H} | \varphi_i \rangle$. Por construção $|\varphi_i\rangle$ pertence ao conjunto de estados usado na busca definida pelo funcional universal $F[n_i(\mathbf{r})]$. Portanto segue a desigualdade

$$E_i \ge \min_{\alpha} \langle \varphi_{n_i}^{\alpha} | \hat{H} | \varphi_{n_i}^{\alpha} \rangle = E[n_i(\mathbf{r})],$$
 (3.65)

definindo o funcional de energia como o limite inferior para a energia de um estado excitado com densidade $\tilde{n}(\mathbf{r})$. Note que a igualdade vale apenas se o estado $|\varphi_i\rangle$ retornar o mínimo na busca definida pelo funcional universal $F[n_i(\mathbf{r})]$.

Extremos do funcional de energia

Considere variações infinitesimais da densidade $\delta n(\mathbf{r}) = \epsilon f(\mathbf{r})$, tal que ϵ seja um infinitesimal, $|f(\mathbf{r})|/n(\mathbf{r})$ seja finita em todo espaço, e $\int \delta n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = 0$. Nestas condições vale a expansão do funcional em série de Taylor,

$$E[n(\mathbf{r}) + \delta n(\mathbf{r})] = E[n(\mathbf{r})] + \int d\mathbf{r} \frac{\delta E}{\delta n(\mathbf{r})} \delta n(\mathbf{r}) + \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \frac{\delta^2 E}{\delta n(\mathbf{r}) \delta n(\mathbf{r}')} \delta n(\mathbf{r}) \delta n(\mathbf{r}') + \cdots$$
(3.66)

Se a densidade $\tilde{n}(\mathbf{r})$ é solução da equação de Euler-Lagrange,

$$\frac{\delta E}{\delta n(\mathbf{r})}\Big|_{n(\mathbf{r})=\tilde{n}(\mathbf{r})} = \text{constante},$$
 (3.67)

as variações da energia são claramente da ordem de ϵ^2 , constituindo um extremo do funcional como esperado.

Na Eq. (3.67), a densidade do estado fundamental retorna como *constante* o potencial químico do sistema. Outras soluções retornam diferentes constantes, sem interpretação física imediata.

Equações de Kohn & Sham e estados excitados

As equações de Kohn & Sham são obtidas no processo de minimização da energia sujeito ao vínculo de número de partículas ou potencial químico fixo, c.f. Seções 3.3 e 3.4, satisfazendo a equação de Euler-Lagrange, Eq. 3.67. Neste ponto estabelecemos a primeira conclusão do artigo de Perdew & Levy (48):

I. (i) Todo extremo do funcional de energia do estado fundamental $E[n(\mathbf{r})]$ corresponde a um autoestado do sistema interagente. Porém, (ii) nem todo autoestado corresponde a um extremo do funcional.

A primeira parte (i) desta conclusão enfatizada no quadro acima segue imediatamente das Eqs. (3.66) e (3.67). Já a negação descrita na segunda parte (ii) é mais delicada. Usarei o exemplo discutido no artigo de Perdew & Levy (48) para esclarecer estes pontos.

Considere um sistema atômico composto por dois elétrons não-interagentes sujeitos ao potencial $v(\mathbf{r}) = -1/r$. O funcional de energia do estado funcional pode ser obtido usando a relação $\psi(\mathbf{r}) = \sqrt{n(\mathbf{r})}$, válida apenas para o estado fundamental, pois seu orbital é real e positivo, obtendo

$$E_v[n(\mathbf{r})] = \int d\mathbf{r} n^{1/2}(\mathbf{r}) \left(-\frac{1}{2}\nabla^2\right) n^{1/2}(\mathbf{r}) - \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r})/r.$$
 (3.68)

Como estamos considerando um sistema não-interagente, a equação de Kohn & Sham é idêntica a equação de Schrödinger,

$$\left(-\frac{1}{2}\nabla^2 - \frac{1}{r}\right)\psi(\mathbf{r}) = \varepsilon\psi(\mathbf{r}). \tag{3.69}$$

As soluções desta equação são os orbitais atômicos: 1s, 2s, 2p, 3s, etc. Neste exemplo consideraremos os seguintes autoestados de dois elétrons: 1s², 1s¹2s¹ e 2s². Na Fig. 3.2 estas soluções estão marcadas por cruzes.

Para analisar o funcional $E_v[n(\mathbf{r})]$, parametriza-se a densidade por uma variável contínua y, de forma que os valores y = 0, 1/2 e 1 correspondem à densidade dos estados considerados $1s^2$, $1s^12s^1$ e $2s^2$, respectivamente, c.f. Fig. 3.2. No artigo os autores consideram duas parametrizações, sendo que apenas a convencional satisfaz os critérios de validade da expansão em série de Taylor usada na Eq. (3.66). Aqui discutimos apenas este caso por simplicidade.

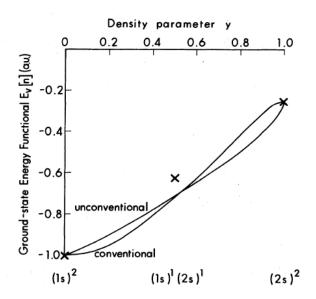


Figura 3.2 – Figura extraída da Ref. (48). Soluções não-interagentes de um sistema atômico com dois elétrons: $1s^2$, $1s^12s^1$ e $2s^2$, marcadas por cruzes. As linhas continuas correspondem ao funcional de energia calculado sobre duas parametrizações da densidade (variável y define a parametrização). Aqui consideramos apenas a parametrização convencional.

Primeiramente, note que, na Fig. 3.2, o funcional de energia satisfaz a desigualdade da Eq. (3.65), estabelecendo o limite inferior para a energia dos autoestados. Neste exemplo os autoestados $1s^2$ e $2s^2$ satisfazem a igualdade da Eq. (3.65), ou seja as funções de onda referentes a estes estados retornam o mínimo na constrained search para suas respectivas densidades. Uma vez que estes estados pertencem a curva do funcional de energia $E_v[n(\mathbf{r})]$ e são soluções de Kohn & Sham, e consequentemente de Euler-Lagrange, a densidade associada a estes estados correspondem a extremos do funcional. Estes exemplos correspondem a primeira parte da primeira conclusão destacada no início desta discussão.

Já o estado $1s^12s^1$ não satisfaz a igualdade na desigualdade (3.65). Ou seja, a função de onda associada a constrained search para a densidade referente a este estado não é solução de Kohn & Sham e Euler-Lagrange. Neste caso o termo linear na expansão em série de Taylor do funcional $E_v[n(\mathbf{r})]$ não é nulo, e esta densidade não retorna um extremo do funcional. Este exemplo corresponde a segunda parte da primeira conclusão.

Desta discussão estabelecemos a segunda conclusão de Perdew & Levy,

II. A condição necessária e suficiente para que um autoestado do sistema seja extremo do funcional de energia é que sua função de onda retorne a menor energia na *constrained search* referente a sua própria densidade.

As conclusões I e II destacadas acima são verdadeiras para qualquer autoestado do sistema. No que se segue nos restringiremos a autoestados que sejam non-interacting V-representable, ou seja, estados cuja densidade pode ser descrita pelo estado fundamental de algum potencial não-interagente efetivo. No caso simples da Fig. 3.2, apenas o mínimo global, estado fundamental, é um exemplo trivial do que discutiremos a seguir.

Tais soluções non-interacting V-representable são obtidas como soluções das equações de Kohn & Sham cujas densidades são calculadas seguindo a distribuição de Fermi-Dirac do estado fundamental, ou seja, segundo o princípio aufbau. Nesta formulação o potencial efetivo é construído com base no funcional universal referente à constrained search. Por construção a solução pertence a curva do funcional $E_v[n(\mathbf{r})]$ e satisfaz a condição descrita na conclusão II.

Chegamos finalmente a última conclusão,

III. Toda solução autonsistente de Kohn & Sham, que satisfaz a distribuição de Fermi-Dirac para o estado fundamental com potencial químico único, retorna a densidade e energia de um autoestado do sistema interagente correspondente a um extremo local do funcional de energia.

É importante notar que o estado $2s^2$ do exemplo da Fig. 3.2 é extremo do funcional de energia e satisfaz a condição expressa na conclusão II. Porém, este estado não é non-

interacting V-representable e, portanto, não constitui um exemplo referente a conclusão III. Em contrapartida, o estado fundamental (1s² no exemplo) sempre satisfaz as três conclusões.

Apesar da conclusão **III** ser verdadeira, Perdew & Levy não encontraram um exemplo onde ela fosse satisfeita. Veremos nos resultados apresentados nesta tese, que estados excitados condizentes com a conclusão **III** são obtidos próximo a cruzamentos de níveis de Landau. A primeira observação destes estados foi feita por Freire & Egues em 2004 [PRL publicado em 2007, Ref. (35)], e reconhecida por Perdew na Ref. (63).

3.8 Topologia da densidade de estados e a resistividade longitudinal

No contexto da DFT, não há garantias de que os autoestados de Kohn & Sham sejam uma boa aproximação dos autoestados reais do sistema interagente, pois estes são apenas auxiliares na construção da densidade e energia total. Porém, esta identificação frequentemente mostra bons resultados.

Em nosso modelo pudemos escrever os coeficientes de magnetotransporte [Seção 2.2.5, Eqs. (2.42) até (2.45)] em termos da densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon)$. Sendo que $g_{ext}(\varepsilon)$ é uma redefinição fenomenológica da densidade de estados total do sistema $g(\varepsilon)$. Vimos ainda que, Seção 3.3, a densidade de estados calculada no nível de Fermi $g(\varepsilon_F)$ é uma propriedade que depende apenas da precisão do funcional de troca e correlação utilizado.

No que se segue, argumento que podemos entender a resistividade longitudinal ρ_{xx} como uma medida qualitativa de $g(\varepsilon_F)$, permitindo uma comparação entre o cálculo DFT e as medidas experimentais.

Em nosso modelo, as equações do modelo de Ando, Eqs. (2.42) até (2.45), relacionam os coeficientes de magneto transporte com a densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon)$. A baixas temperaturas, a contribuição de cada nível de Landau é

$$\sigma_{xx} = \frac{2\pi e^2}{\hbar} \left(n + \frac{1}{2} \right) \left[\ell^2 \Gamma_{ext} g_{ext}(\varepsilon_F) \right]^2, \tag{3.70}$$

Já a condutividade transversal apresenta os platôs típicos do efeito Hall quântico e, portanto, é sempre diferente de zero, $\sigma_{xy} = e n_{ext}/B$, sendo n_{ext} a densidade de carga

efetiva calculada com a densidade de estados $g_{ext}(\varepsilon)$ [veja Seção 2.2.2].

As resistividades longitudinal e transversal são obtidas invertendo-se o tensor de condutividade,

$$\rho_{xx} = \frac{\sigma_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2}, \quad e \quad \rho_{xy} = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2}.$$
(3.71)

Note que quando $|\varepsilon_F - \varepsilon_n| \gtrsim \Gamma_{ext}$, $g_{ext}(\varepsilon_F) = 0 \to \sigma_{xx} = 0$ e as resistividades são: $\rho_{xy} = \sigma_{xy}^{-1} = B/en_{ext} \neq 0$ e $\rho_{xx} = 0$. No caso oposto, assumindo-se que tipicamente $\sigma_{xy} \gg \sigma_{xx}$, as resistividades são: $\rho_{xy} \sim \sigma_{xy}^{-1} = B/en_{ext} \neq 0$ e $\rho_{xx} \sim \sigma_{xx}/\sigma_{xy}^2 \propto [g_{ext}(\varepsilon_F)]^2$. Assim, de forma geral podemos escrever

$$\rho_{xy} = \frac{B}{en_{ext}} \neq 0, \tag{3.72}$$

$$\rho_{xx} \propto [g_{ext}(\varepsilon_F)]^2. \tag{3.73}$$

Portanto, medidas da resistividade longitudinal ρ_{xx} revelam a topologia da densidade de estados efetiva $g_{ext}(\varepsilon_F)$ no nível de Fermi. Sendo que por topologia, nos referimos ao fato de ambas, $g_{ext}(\varepsilon_F)$ e ρ_{xx} , serem finitas ou nulas sobre as mesmas condições. Da mesma forma, $g_{ext}(\varepsilon_F)$ e $g(\varepsilon_F)$ possuem a mesma topologia. Portanto $g(\varepsilon_F)$ tem a mesma topologia que ρ_{xx} .

Como vimos na discussão sobre DFT, a precisão de $g(\varepsilon_F)$ calculada através dos autoestados de Kohn & Sham depende exclusivamente da precisão do funcional de troca e correlação utilizado. Assim, comparando-se a topologia da $g(\varepsilon_F)$ calculada com ρ_{xx} medida experimentalmente, podemos testar a precisão de funcionais.

4 Ferromagnetismo no regime de efeito Hall quântico inteiro

A proposta desta tese de doutorado é o estudo das instabilidades ferromagnéticas no regime de efeito Hall quântico via DFT. Como motivação inicial, nos referimos aos experimentos recentes do grupo do prof. Jiang (UCLA), Refs. (36–40), e aos trabalhos iniciais de Freire & Egues (35).

Experimentalmente, apresentada em escala de cores em um mapa de densidade bidimensional de elétrons n_{2D} e campo magnético B, a resistividade longitudinal ρ_{xx} exibe estruturas em forma de anel em sistemas com duas subbandas ocupadas. Estas estruturas representam os cruzamentos de níveis de Landau de diferentes spins e subbandas, c.f. Figs. 4.1 e 4.2. Assim, em baixas temperaturas estas medidas revelam detalhes da densidade de estados eletrônica no nível de Fermi, i.e., $\rho_{xx} \sim [g(\varepsilon_F)]^2$, c.f. Seção 3.3. Próximo aos cruzamentos de níveis de Landau, as estruturas podem aparecer de forma completa ou como anéis quebrados, como consequência de transições de fase ferromagnéticas. O modelo Hartree-Fock de Jungwirth & MacDonald (29) prevê e classifica instabilidades ferromagnéticas no regime Hall quântico de acordo com diferentes cruzamentos de níveis de Landau. Tal formulação, apesar de poderosa, superestima os efeitos da interação de troca, apresentando apenas resultados qualitativos, c.f. Refs. (35, 134). Portanto, nosso interesse na formulação via DFT é em desenvolver um modelo quantitativo que possa ser comparado a experimentos.

Além das instabilidades ferromagnéticas, este sistema nos permite ainda estudar os funcionais de troca e correlação utilizados, através da comparação das medidas de ρ_{xx} com o cálculo da densidade de estados no nível de Fermi $g(\varepsilon_F)$.

Nesta tese, usamos as medidas do grupo de UCLA como referência para comparação com nossos resultados, Refs. (36–40). Porém, estudos experimentais referentes a estas regiões de instabilidade ferromagnética são desenvolvidos pelo menos desde 2001, Ref. (41). Além destes, outros experimentos semelhantes são sempre mantidos em perspectiva (42–45). Sendo que nosso modelo teórico (35, 64–66) é, no momento, o único capaz de reproduzir

quantitativamente características observadas nestes experimentos (33, 36–40).

No capítulo anterior discutimos algumas ferramentas e fundamentos referentes a estes estudos de maneira geral. Neste capítulo apresentamos e discutimos os resultados obtidos [na Tabela 4.1 apresendo os parâmetros utilizados]. Apesar do sucesso do nosso modelo, ainda existem algumas questões em aberto, tanto referente às interações eletrônicas estudadas, quanto a novos fenômenos que nos interessaram no decorrer dos estudos. Tais questões serão apresentadas como considerações finais junto às conclusões, Seção 4.5.

Parte dos resultados apresentados aqui já foram publicados, c.f. Refs. (64–66); utilizo algumas das figuras destas publicações no decorrer desta tese.

| Parâmetro | Referência | Valor |
|-------------------------------------|---------------------------|--|
| Massa efetiva | bulk GaAs | $m = 0.067m_0$ |
| Fator giromagnético | bulk GaAs | g = -0.44 |
| Constante dielétrica | bulk GaAs | $\epsilon = 12.85$ |
| Largura do poço quântico | Ref. (36) | 240 Å |
| Profundidade do poço | CBO: 60% | 228 meV |
| Alargamento dos níveis de Landau | para $T = 340 \text{ mK}$ | $\Gamma = 0.150\sqrt{B} \text{ meV/T}^{1/2}$ |
| (cálculo da estrutura eletrônica) | para $T = 70 \text{ mK}$ | $\Gamma = 0.110\sqrt{B} \text{ meV/T}^{1/2}$ |
| Alargamento efetivo | ambas temperaturas | $\Gamma_{ext} = 0.110 \text{ meV}$ |
| (coeficientes de magnetotransporte) | | |
| Campo magnético | Ref. (36) | $3 \le B \le 10 \text{ T}$ |
| Densidade eletrônica | Ref. (36) | $5 \le n_{2D} \le 10 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ |

Tabela 4.1 – Parâmetros utilizados no modelo apresentado nesta tese.

4.1 Estruturas em forma de anel em $\rho_{xx}(n_{2D}, B)$

No final do ano de 2005, e começo de 2006, dois artigos experimentais nos chamaram a atenção, Refs. (36, 43). Ambos medem as resistividades longitudinal e transversal no regime Hall quântico em poços quânticos com duas subbandas ocupadas. Nestes sistemas, cada subbanda leva a um conjunto de níveis de Landau, que se cruzam com o aumento do campo magnético, Fig. 4.1. Os experimentos mostraram que a resistividade longitudinal ρ_{xx} , vista em um diagrama de densidade e campo magnético, exibe estruturas em forma de anel referentes aos cruzamentos de níveis de Landau, Fig. 4.2. Porém, não estava claro neste sistema, o papel dos estados ferromagnéticos descritos por Jungwirth & MacDonald

(29). Neste ponto passamos a utilizar estes experimentos como uma referência para nossos cálculos teóricos, a fim de investigar os efeitos das interações eletrônicas e os estados ferromagnéticos em sistemas de duas subbandas.

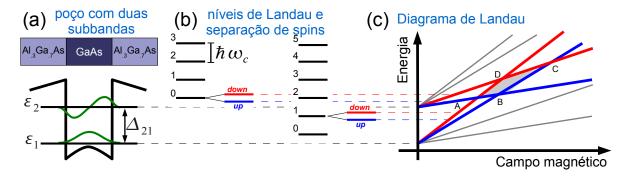


Figura 4.1 – Equivalente a Fig. 2.1. (a) Diagrama de uma heteroestrutura semicondutora confinando os elétrons no poço de potencial com duas subbandas. (b) Na presença de campo magnético B finito cada subbanda dá origem a uma série de níveis de Landau separados por $\hbar\omega_c \propto B$. (c) A dispersão da energia com B é linear e ocorrem cruzamentos de níveis de Landau provenientes de subbandas distintas. Os níveis de Landau destacados correspondem ao cruzamento referente ao anel de fator de preenchimento $\nu = 4$.

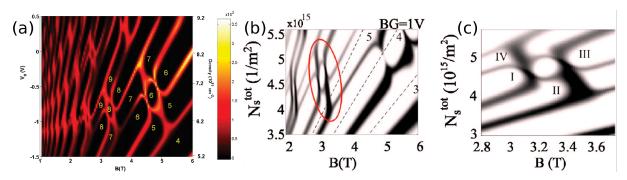


Figura 4.2 – Medidas experimentais da resistividade longitudinal ρ_{xx} apresentada em escalas de cores no diagrama de campo-magnético B e densidade n_{2D} , i.e., $\rho_{xx} \equiv \rho_{xx}(n_{2d}, B)$. (a) Figura extraída da Ref. (36), onde os elétrons são confinados em um poço quadrado de GaAs. (b) e (c) Figuras extraídas da Ref. (43), neste caso o confinamento é parabólico em uma liga de $Al_xGa_{1-x}As$.

4.1.1 Modelo simples e aspectos gerais

Lembremos inicialmente que as medidas da resistividade longitudinal ρ_{xx} a baixas temperaturas estão diretamente relacionadas com a topologia da densidade de estados efetiva no nível de Fermi $g_{ext}(\varepsilon_F)$ [Seções 2.2.5 e 3.8], sendo $\rho_{xx} = \sigma_{xx}/(\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2) \propto [g_{ext}(\varepsilon_F)]^2$ calculada invertendo-se o tensor de condutividade. Assim, tanto $g_{ext}(\varepsilon_F)$ quanto

 ρ_{xx} apresentam picos quando o nível de Fermi encontra-se próximo a um nível de Landau. Como $g_{ext}(\varepsilon_F)$ é uma redefinição fenomenológica da densidade de estados real do sistema $g(\varepsilon_F)$ [Seção 3.8], esta também tem a mesma topologia de ρ_{xx} , nos permitindo interpretar as medidas de ρ_{xx} como uma transformação conforme do diagrama de Landau.

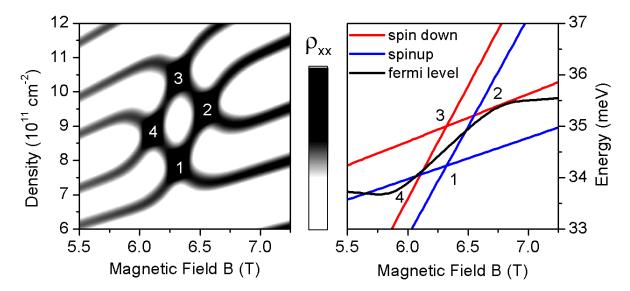


Figura 4.3 – Densidade de estados efetiva no nível de Fermi $g_{ext}(\varepsilon_F)$ (esquerda) referente aos níveis de Landau do modelo não-interagente (direita). A densidade de estados é apresentada em escalas de cinzas como função do campo magnético e densidade n_{2D} . As regiões escuras representam os picos de $g_{ext}(\varepsilon_F)$, ocorrendo sempre que o nível de Fermi esta próximo de um dos níveis de Landau. Os números nos dois quadros indicam a correspondência entre os cruzamentos de níveis de Landau e a estrutura em forma de anel observadas no diagrama da densidade de estados.

Sistema não-interagente efetivo

Considerando-se o modelo não-interagente por simplicidade, a estrutura eletrônica é dada por

$$\varepsilon_{j,n}^{\sigma} = \varepsilon_j + \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega_c + \frac{1}{2}g\mu_B\sigma B,$$
 (4.1)

$$g_{ext}(\varepsilon_F) = \sum_{j,n,\sigma} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \Gamma_{ext}} \exp\left[-\frac{(\varepsilon_F - \varepsilon_{j,n}^{\sigma})^2}{2\Gamma_{ext}^2}\right]. \tag{4.2}$$

sendo que nesta formulação não-interagente a separação das subbandas $\Delta_{21} = \varepsilon_2 - \varepsilon_1$ e fator giromagnético efetivo q são tratados como parâmetros livres.

A separação das subbandas define a posição central do anel no diagrama de densidade e campo magnético. Por exemplo, o ponto central do anel de $\nu=4$ pode ser obtida analisando os cruzamentos 1 ou 3, igualando-se as energias $\varepsilon_{1,1}^{\sigma}=\varepsilon_{2,0}^{\sigma}$, obtendo $\hbar\omega_{c}=\hbar eB/m=\Delta_{21}$.

Já o tamanho do anel depende da separação Zeeman entre os estados, ajustado pelo fator giromagnético efetivo. Para obter anéis com posição e tamanho próximos aos da Ref. (36), usamos $\Delta_{21} = 15 \text{ meV}$, e g = -2.

Na Fig. 4.3 a densidade de estados (quadro a esquerda), referente aos níveis de Landau não-interagentes (quadro a direita), exibe a estrutura em forma de anel observada nas medidas de ρ_{xx} , Fig. 4.2. O nível de Fermi no quadro da direita foi calculado para uma densidade $n_{2D} = 8.5 \times 10^{11}$ cm⁻². Nesta figura é fácil observar a correspondência (números marcados nas figuras) entre os cruzamentos de níveis de Landau e o anel em ρ_{xx} .

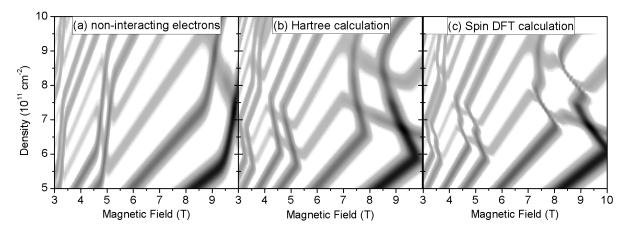


Figura 4.4 – Comparação entre o cálculo da resistividade longitudinal ρ_{xx} segundo os modelos (a) nãointeragente com valores efetivos para a separação das subbandas $\Delta_{21} = 15$ meV e fator giromagnético g = -2; (b) apenas Hartree (SDFT sem troca e correlação), com valor efetivo apenas para g = -2; (c) SDFT+LSDA sem valores efetivos.

Modelo de Hartree

A interação de Hartree corresponde ao termo repulsivo da interação de Coulomb. Como a interação cresce com a proximidade dos elétrons, a tendência desta interação é uniformizar a distribuição eletrônica no poço quântico, expelindo elétrons da região central para as laterais. Como efeito, esta interação reduz a separação das subbandas. Fisicamente, a redução da separação das subbandas facilita a ocupação do nível mais energético, no qual a distribuição eletrônica é mais extensa, aumentando a distância média entre elétrons e reduzindo a energia de Coulomb.

No ciclo autoconsistente a separação das subbandas ajusta-se naturalmente a valores próximos a $\Delta_{21} \sim 15$ meV, variando pouco com o campo magnético. Na Figura 4.4(b) exibimos o resultado obtido neste caso, usando um fator giromagnético efetivo g=-2 como no caso não-interagente para ajustar o tamanho do anel. Enfatizo que neste caso a posição dos anéis é determinada pela interação de Hartree, sem parâmetros ajustados. Em

comparação com Fig. 4.2(a), vemos que nosso resultado ajusta com boa precisão a posição e tamanho dos anéis, em particular o anel de $\nu = 6$.

Modelo DFT+LSDA

Os resultados da Fig. 4.4, intervalo de B=0 a 6 T, devem ser comparados com a medida experimental na Fig. 4.2(a). Vemos que o modelo DFT+LSDA é capaz de descrever as estruturas em forma de anel, inclusive posição e tamanho, sem parâmetros efetivos. Nestes resultados o termo de Hartree contribui majoritariamente para a separação das subbandas e consequentemente posição do anel, enquanto que o termo de troca gera um efeito Zeeman efetivo via princípio de Pauli, contribuindo para o tamanho do anel no diagrama.

Devido ao termo de troca, a energia da repulsão Coulombiana é minimizada polarizandose o (pseudo-)spin do 2DEG. Tendo apenas um nível de Landau ocupado próximo ao potencial químico, antisimetriza-se os orbitais referentes aos graus de liberdade planares, maximizando a distância média entre elétrons no plano, e consequentemente reduzindo a energia de Coulomb. Na região interna da estrutura em forma de anel, o nível de Fermi encontra-se próximo ao gap entre os cruzamentos 1 e 3, Fig. 4.3, tal que a polarização de (pseudo-)spin afasta os cruzamentos, efetivamente aumentando a separação de spinspróximo ao nível de Fermi. Neste caso obtemos anéis de tamanhos adequados usando o fator giromagnético de bluk para GaAs, g = -0.44.

4.2 Quebra dos anéis e as transições de fase

A medida de ρ_{xx} exibida na Fig. 4.2(a) foi obtida no que definiremos como alta temperatura, T = 340 mK, e apresenta as estruturas em forma de anel de forma completa. Já a temperaturas mais baixas, T = 70 mK, a mesma amostra exibe estruturas quebradas, Fig. 4.5(a), c.f. pontos A,B,C,D. Compare com nosso cálculo de alta temperatura na Fig. 4.4(c), onde os anéis aparecem sem quebras.

No artigo experimental, os autores interpretam esta quebra através de "cruzamentos evitados" (anticrossings) entre os níveis de Landau, c.f. diagrama na parte inferior da

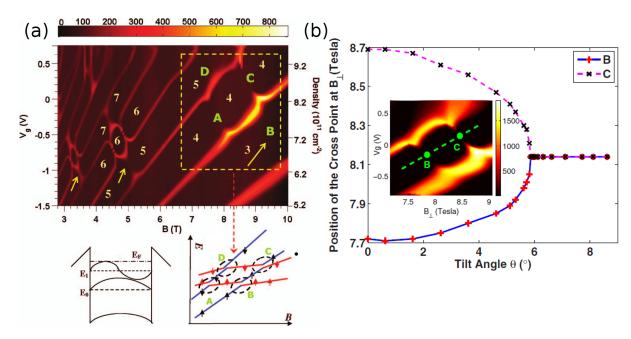


Figura 4.5 – (a) Figura extraída da Ref. (37): medida de de ρ_{xx} a temperatura T=70 mK, comparar com medida feita a T=340 mK na Fig. 4.2(a). Nesta figura vemos que a baixas temperaturas as estruturas em forma de anel se "quebram". (b) Figura extraída da Ref. (39): evolução dos pontos de cruzamento B e C com o aumento do ângulo θ do campo magnético com a normal do 2DEG.

Fig. 4.5(a), mas não fornecem uma origem física para o *anticrossing*. Estas regiões onde o anel se quebra referem-se exatamente às regiões de instabilidades ferromagnéticas descritas no modelo Hartree-Fock de Jungwirth & MacDonald.

Apesar desta visão de anticrossings descrever razoavelmente o experimento, nosso modelo DFT mostra que, próximo aos cruzamentos de níveis de Landau, observa-se na verdade transições de fase ferromagnéticas. Estas exibem mudanças descontínuas na estrutura eletrônica, e consequentemente na resistividade e polarização de spin, enquanto que um modelo de anticrossings exibiria mudanças suaves.

4.2.1 Modelo interagente: DFT e LSDA

O anel apresentado na Fig. 4.6(b), calculado via DFT+LSDA, é uma ampliação do resultado apresentado na Fig. 4.4(c), correspondente ao experimento feito a T=340 mK, Fig. 4.2(a). Neste caso vemos que os quatro cruzamentos de níveis de Landau (pontos A,B,C,D) exibem picos de resistividade bem definidos, delimitando os contornos do anel.

A temperaturas mais baixas, T = 70 mK, nosso cálculo mostra que os pontos A e

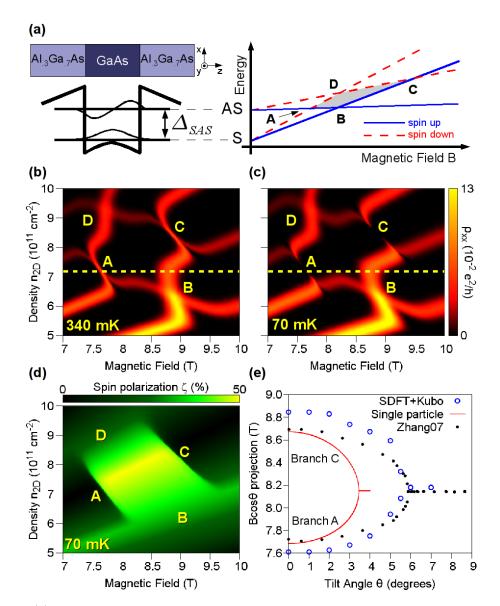


Figura 4.6 – (a) Ilustração do sistema de duas subbandas estudado e cruzamentos de níveis de Landau relevantes. (b) e (c) Resistividades longitudinal ρ_{xx} calculadas a T=340 e 70 mK respectivamente. A linha tracejada destaca a densidade 7.3×10^{11} cm⁻² referenciada na Fig. 4.7. (d) Polarização de *spin* calculada a T=70 mK. (e) Posição dos pontos A e C como função do ângulo de inclinação do campo magnético exibindo o colapso do anel. Em (e) os pontos pretos foram extraídos da Ref. (39).

C se quebram, Fig. 4.6(c). O experimento, Fig. 4.5(a), apresenta quebras também nos pontos B e D. Todas as quebras representam transições de fase referentes às instabilidades ferromagnéticas nas regiões de cruzamentos de níveis de Landau, sendo que a falta das quebras em B e D se deve a limitações do funcional de troca e correlação usado (LSDA).

Para compreender a diferença entre os resultados a baixa e alta temperaturas, apresentamos na Fig. 4.7 os níveis de Landau calculados via DFT+LSDA próximos a região deste anel. O quadro (a) mostra as curvas de ρ_{xx} , destacando que a baixas temperaturas o pico indicado pela seta (ponto A) é suprimido. Nos quadros (b) e (c) comparamos os níveis de Landau e potenciais químicos calculados a 340 e 70 mK, respectivamente, e densidade

 $7.3 \times 10^{11}~{\rm cm^{-2}}$. Nesta densidade, o potencial químico atravessa a região de cruzamento de níveis de Landau referente ao ponto A.

Primeiramente, note que a $T=340~\rm mK$, Fig. 4.7(b), o cruzamento ocorre de forma suave, gerando o pico de resistividade associado a região de estados estendidos no centro dos níveis de Landau. Já a temperatura mais baixa, $T=70~\rm mK$, quadro (c), os níveis de Landau cruzando próximos ao potencial químico se rearranjam descontinuamente, de forma que o potencial químico salta através das regiões de estados estendidos, suprimindo o pico de resistividade.

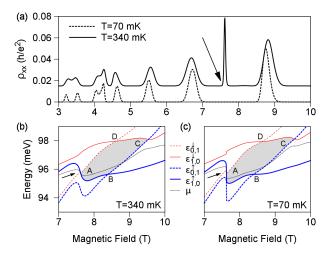


Figura 4.7 – (a) Resistividade longitudinal ρ_{xx} calculada (DFT+LSDA) para densidade $n_{2D} = 7.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ e temperaturas T = 70 e 340 mK. (b) e (c) Níveis de Landau próximos ao fator de preenchimento $\nu = 4$. A baixas temperaturas o rearranjo descontínuo dos níveis de Landau e potencial químico suprime o pico de resistividade, indicado por setas na figura.

No processo de transição próximo às regiões de instabilidade, há uma mudança no estado fundamental do sistema. Na Figura 4.7(c) a estrutura eletrônica mostra a transição de fase próximo ao ponto A. Para campos abaixo e acima de cada cruzamento, os estados fundamentais são pseudo-spin polarizados, ou seja, apenas um nível de Landau possui ocupação finita próximo ao potencial químico. Quando o potencial químico se aproxima do cruzamento, há uma tendência de ocupação parcial dos dois níveis de Landau envolvidos. Esta ocupação parcial não é energeticamente favorável, pois ocupando estados com (pseudo)-spin distintos, os elétrons podem ocupar órbitas iguais no plano, reduzindo a distância média entre elétrons, e aumentando a energia de repulsão Coulombiana $\propto |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{-1}$. Como efeito, a medida que o potencial químico se aproxima do cruzamento, o termo de troca gera uma separação Zeeman efetiva, afastando os estados e mantendo o sistema (pseudo-)spin polarizado. A transição de fase ocorre abruptamente de forma a evitar a ocupação parcial dos níveis envolvidos.

Veremos na próxima seção que estas transições de fase estão diretamente relacionadas com a previsão de estados excitados como mínimos locais do funcional de energia (48). Discutimos esta questão na próxima seção.

4.3 Estados excitados e histerese via DFT

Como vimos na Seção 3, a descrição usual da DFT garante que o mínimo global do funcional de energia retorna a densidade do estado fundamental do sistema. Porém, na Ref. (48), c.f. Seção 3.7, Perdew & Levy discutem a existência de estados excitados na formulação usual da DFT.

O principal resultado da discussão de Perdew & Levy diz que: toda solução das equações de Kohn-Sham, cuja densidade é construída seguindo a distribuição de Fermi-Dirac com um único potencial químico, corresponde a um extremo do funcional de energia. Tais extremos correspondem ao mínimo global e possíveis estados excitados.

No artigo, os autores não apresentam um sistema interagente que exibisse tais estados excitados. Nosso grupo de pesquisa foi o primeiro a obter estas soluções, c.f. Refs. (35, 63), motivando o desenvolvimento deste projeto de Doutorado. No que se segue discuto brevemente os resultados obtidos por Freire & Egues, Ref. (35), mostrando que a transição de fase observada por eles é equivalente às discutidas anteriormente nas estruturas em forma de anel. Em seguida discuto os estados excitados referentes aos resultados apresentados nesta tese.

4.3.1 Sistema de uma subbanda

O sistema estudado por Freire & Egues, Ref. (35), é composto por um poço quântico de CdTe, com barreiras magnéticas de $Cd_{1-x}Mn_x$ Te. Mesmo com apenas uma subbanda ocupada, cruzamentos de níveis de Landau são induzidos com o aumento do campo magnético devido a interação sp-d, entre os elétrons de condução e a camada magnética do Manganês (spin 5/2). No artigo, os autores observam transições de fase do tipo ferromagnetismo de efeito Hall quântico, correspondente ao primeiro ramo da previsão de instabilidades ferromagnéticas do modelo Hartree-Fock, Ref. (29).

Na Figura 4.8 reproduzimos os resultados obtidos por Freire & Egues, e estendemos o cálculo para exibir o mapa de ρ_{xx} no diagrama de densidade e campo magnético. As curvas em destaque no quadro (a) correspondem a densidade discutida por Freire & Egues. Em (b) e (c) vemos a estrutura eletrônica e polarização de *spin* para esta mesma densidade.

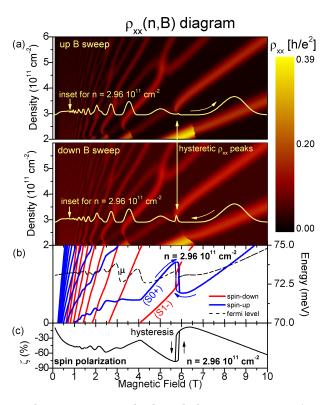


Figura 4.8 – (a) Diagrama de ρ_{xx} no mapa de densidade e campo-magnético para campo magnético crescente (acima) e decrescente (abaixo). Os traços de ρ_{xx} em destaque correspondem a densidade usada por Freire & Egues na Ref. (35). (b) Diagrama de níveis de Landau e (c) polarização de *spin* para esta mesma densidade. Aqui ρ_{xx} exibe estrutura em forma de X, correspondente ao cruzamento de dois níveis de Landau. As setas indicam quebras em tais estruturas, equivalente às quebras dos anéis apresentadas na Fig. 4.6.

Neste caso de uma subbanda, observa-se apenas cruzamentos de níveis de Landau de *spins* opostos, gerando estruturas em forma de X em ρ_{xx} .

Na região de baixas densidades, vemos que os pontos de cruzamento exibem estruturas quebradas, semelhantes às quebras dos anéis exibidas anteriormente. De fato, os cruzamentos referentes aos anéis e estas estruturas em forma de X correspondem a diferentes ramos das instabilidades ferromagnéticas previstas na Ref. (29).

Os estados excitados são observados nestas instabilidades. Como podemos ver na Fig. 4.8, o cálculo feito com campo crescente e decrescente apresentam histerese, exibindo diferentes intensidades para os picos de ρ_{xx} na região do cruzamento [quadro (a), picos indicados pelas setas]. No diagrama de Landau [quadro (b)], vemos as diferentes evoluções dos níveis de Landau. Tal efeito também é visto na polarização de *spin* no quadro (c).

Na região de histerese o cálculo DFT retorna duas densidade e energias diferentes para um mesmo campo magnético, dependendo apenas da condição inicial do processo autoconsistente, sendo que a solução de maior energia corresponde a um estado excitado do sistema segundo a argumentação de Perdew e Levy (48) discutida na Seção 3.7. A condição inicial é a densidade obtida no ciclo autoconsistente anterior: campo menor no

caso de campo crescente e oposto caso contrário.

No que se segue apresento resultados semelhantes para as estruturas em forma de anel e discuto de forma geral os estados excitados obtidos, e fenômenos de histerese.

4.3.2 Estruturas em forma de anel

Os cruzamentos de níveis de Landau provenientes de subbandas diferentes correspondem ao segundo ramo de instabilidades ferromagnéticas previsto no modelo Hartree-Fock (29).

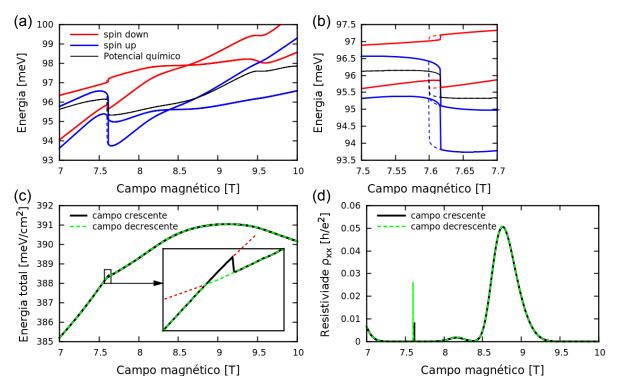


Figura 4.9 – (a) Níveis de Landau referentes ao anel de fator de preenchimento $\nu=4$ calculados para campo magnético crescente (linhas cheias) e decrescente (linhas tracejadas). (b) Detalhe da instabilidade ferromagnética nos níveis de Landau do quadro (a). (c) Energia total para campo crescente e decrescente destacando o cruzamento de diferentes estados fundamentais. As linhas vermelhas tracejadas são guias para os olhos. (d) Resistividade ρ_{xx} para campo crescente e decrescente. O pico próximo a $B\sim7.6$ T exibe a histerese, mas a variação é muito sutil para ser detectada no experimento.

Na região de instabilidade ferromagnética, o cruzamento dos níveis de Landau equivale ao cruzamento de estados de muitos corpos com características distintas, c.f. Fig. 4.9. Para campos abaixo do ponto de cruzamento, os elétrons ocupam apenas níveis de Landau da primeira subbanda e possuem polarização de *spin* nula. Após o cruzamento, o sistema

passa a ter uma polarização de *spin* finita, ocupando um nível de Landau de *spin up* da segunda subbanda e repelindo o estado de *spin down* da primeira subbanda. Próximo aos cruzamentos estes dois estados são quase-degenerados, gerando a competição entre minimizar a energia total polarizando-se o pseudo-*spin* (subbanda) ou reduzir a interação de Coulomb pela polarização de *spin*.

No ciclo autoconsistente, a solução obtida depende da condição inicial (densidade de carga do passo anterior em campo magnético), caracterizando a histerese. Na Fig. 4.9(b) mostramos o cálculo da energia total para campo crescente e decrescente, as linhas vermelhas tracejadas são guias para auxiliar a visualização do cruzamento de dois estados. Para campo crescente, a condição inicial na região de instabilidade é mais próxima do estado fundamental pseudo-spin polarizado. O sistema fica preso neste extremo local na região de instabilidade. Para campo decrescente o processo inverso ocorre, a densidade inicial provém de uma solução spin-polarizada e é mais próxima do estado fundamental equivalente.

A histerese se manifesta na resistividade ρ_{xx} no comportamento do pico ($B \sim 7.6 \text{ T}$) referente aos cruzamentos envolvidos, Fig. 4.9. Porém, no mapa de densidade e campo magnético esta diferença é pouco visível, mudando apenas ligeiramente o comprimento do "bico" da estrutura quebrada do anel próximos aos cruzamentos A e C na Fig. 4.6(c).

4.3.3 Estados excitados e histerese

Tanto nos cruzamentos de níveis de Landau de uma subbanda, Ref. (35), quanto nos cruzamentos das estruturas em forma de anel, obtemos duas soluções com energias diferentes na região de instabilidade ferromagnética, Fig. 4.9. A solução obtida depende apenas da densidade usada no incio do ciclo autoconsistente, tal que o sistema converge para o mínimo local mas próximo.

Esta previsão de estados excitados na DFT usual feita por Perdew & Levy [c.f. Seção 3.7 e Ref. (48)] é pouco conhecida na comunidade científica, pois não há um critério prático para saber se o funcional apresentará mínimos locais para um sistema qualquer. Considerando os resultados apresentados nesta tese, vemos que tal condição é satisfeita nas proximidades de cruzamentos, de forma que o sistema pode ficar preso no estado excitado devido a semelhança da densidade inicial do ciclo autoconsistente com a solução do estado excitado. Esta observação ainda não é uma "receita" que diga que tipos de sistemas físicos

apresentarão extremos locais no funcional de energia, mas fornece um direção sobre onde procurá-los.

4.4 Campo magnético inclinado

Nos resultados apresentados anteriormente, consideramos o campo magnético transversal ao 2DEG ($\theta=0$). Inclinando-se o campo de um ângulo θ com relação a normal do plano, experimentalmente observou-se que a estrutura em forma de anel encolhe com o aumento do ângulo e colapsa totalmente em um ângulo crítico $\theta_c \approx 6^{\circ}$ (39). A Fig. 4.5(b) sumariza o principal resultado experimental obtido na Ref. (39). Esta exibe a componente transversal do campo magnético dos pontos B & C (veja *inset*) como função do ângulo θ .

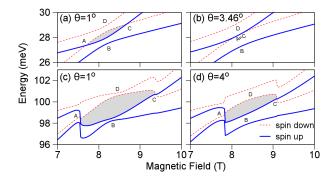


Figura 4.10 – Cruzamentos de níveis de Landau próximos ao fator de preenchimento $\nu=4$. Em (a) e (b) consideramos o sistema não-interagente. Em (c) e (d) vemos os resultados do modelo DFT. Os ângulos do campo magnético com relação a normal do 2DEG estão indicados na Figura.

Em nosso modelo, a inclinação do campo dá origem a dois termos perturbativos no Hamiltoniano. Um dos termos, $\propto (\omega_p z)^2$, é trivial e incluído exatamente na componente H_z do Hamiltoniano [c.f. Seção 2.1, Eqs. (2.6)]. Já o segundo termo acopla as componentes $x \in z$,

$$\delta H = \omega_p z p_x,\tag{4.3}$$

lembrando que $\omega_p = (eB/m)\sin(\theta)$. Como estamos interessados em baixos valores de θ ($\lesssim 6^{\circ}$), podemos tratar este termo perturbativamente (12).

O cálculo do sistema não-interagente fornece resultados qualitativos simplificados, que nos ajuda a compreender o efeito deste termo na estrutura eletrônica. δH acopla estados de mesmo spin, e níveis de Landau consecutivos, n e $n \pm 1$, evitando o cruzamento dos níveis.

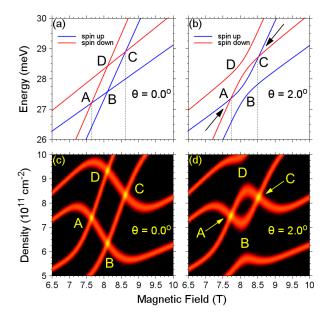


Figura 4.11 – (a) e (b) Estrutura eletrônica do modelo não-interagente mostrando o efeito do campo magnético inclinado nos cruzamentos de níveis de Landau. (c) e (d) Resistividades longitudinais correspondentes aos quadros (a) e (b) mostrando o colapso do anel: aproximação dos pontos A e C com aumento do ângulo θ.

Os cruzamentos evitados são exibidos na Fig. 4.10(a), pontos B e D. Com o aumento do ângulo, a intensidade do acoplamento se intensifica, aumentando a separação dos estados acoplados. Nesta dinâmica, os pontos A e C se aproximam e eventualmente se tocam, Fig. 4.10(b). Na Figura 4.11 vemos que os cruzamentos evitados na estrutura eletrônica se manifestam em ρ_{xx} encolhendo o anel. O anel colapsa totalmente quando os pontos B e D se tocam. Neste modelo não-interagente, o ângulo de colapso $\theta_c = 3.46^{\circ}$ é menor que o valor experimental $\approx 6^{\circ}$, mas o fenômeno já é bem descrito qualitativamente.

Na Figura 4.6(e), mostramos a evolução do colapso do anel como função do ângulo. Os pontos pretos representam os dados da Ref. (39), equivalente a Fig. 4.5(b). As linhas vermelhas representam o resultado do modelo não-interagente discutido acima. Note a correspondência qualitativa com o resultado experimental. Os círculos azuis correspondem ao modelo DFT que será discutido a seguir.

No modelo não-interagente vimos que o efeito da inclinação do campo é gerar um cruzamento evitado. Em última instância, tal efeito aproxima níveis de Landau de *spins* opostos, veja redução da região interna dos cruzamentos nas Figs. 4.10 e 4.11. Esta contribuição do campo inclinado compete com o termo de troca no modelo interagente (DFT). Assim como no caso de $\theta=0$, na região central do anel a energia total é minimizada pelo sistema *spin*-polarizado. Com o aumento do ângulo, a contribuição do termo de troca para a separação Zeeman efetiva aumenta, de forma que a competição entre o encolhimento e troca faz com que o ângulo crítico de colapso desloque-se para ângulos maiores, bastante próximo do valor experimental $\theta_c \approx 6^\circ$, Fig. 4.6(e). Neste caso as correções devido à

interação de Coulomb são quantitativas, uma vez que a descrição não-interagente já fornecia uma descrição qualitativa do experimento.

4.5 Conclusões

Apresentamos nesta tese um modelo baseado na teoria do funcional da densidade (DFT) para investigar as instabilidades ferromagnéticas no regime de efeito Hall quântico. Usamos como referência experimental os resultados obtidos pelo grupo do Prof. Jiang da UCLA (36–40). Nestes experimentos, os autores medem os coeficientes de magnetotransporte ρ_{xx} e ρ_{xy} variando a densidade bidimensional de elétrons n_{2D} e campo magnético **B** aplicado, de forma que o diagrama de ρ_{xx} no plano n_{2D} -B exibe as estruturas em forma de anel referentes a cruzamentos de níveis de Landau de diferentes subbandas, Figs. 4.1-4.4. O modelo Hartree-Fock da Ref. (29) prevê qualitativamente a possibilidade de instabilidades ferromagnéticas nestas regiões de cruzamento, mas não fornece uma previsão para o comportamento quantitativo das resistividades. Usando a DFT para o cálculo da estrutura eletrônica, e determinando os coeficientes de magnetotransporte via um modelo fenomenológico baseado na formulação de Ando (23) (formalismo de Kubo) e argumentos de Prange (17), obtemos quantitativamente o comportamento de ρ_{xx} nas regiões de instabilidade, observando os efeitos da transições de fase ferromagnéticas nesta medida. Observamos ainda o fenômeno de histerese nestas regiões de instabilidade, i.e., diferentes resultados para estrutura eletrônica e ρ_{xx} varrendo o campo magnético de forma crescente ou decrescente. Interessantemente, estas soluções correspondem ao estado fundamental e um estado excitado do sistema de muitos corpos, representando uma realização dos estudos de Perdew & Levy (48) sobre estados excitados na DFT como mínimos locais do funcional de energia do estado fundamental.

Os resultados discutidos nesta tese correspondem a diferentes aspectos dos experimentos do grupo de UCLA. A temperaturas mais altas, T=340 mK, as medidas (36) mostram anéis bem definidos no diagrama de ρ_{xx} . Vimos que ρ_{xx} pode ser compreendido como uma transformação conforme do diagrama de Landau, de forma que a estrutura em forma de anel é bem representada pelo diagrama de níveis de Landau de um sistema não-interagente, usando um valor efetivo para o fator giromagnético g=-2 (43). O valor de g define o tamanho do anel no diagrama. No sistema interagente, modelado via DFT, obtivemos (64) acordo quantitativo com o experimento usando o valor natural g=-0,44 para GaAs (bulk). Neste caso o tamanho do anel é dado por um aumento

4.5. Conclusões 103

efetivo da separação Zeeman devido a interação de troca. Esta minimiza a interação de Coulomb repelindo estados de (pseudo-)spin opostos devido ao princípio de Pauli, i.e., ocupando apenas um (pseudo-)spin os orbitais referentes ao plano do 2DEG devem ser antisimetrizados, aumentando a distância média entre elétrons e reduzindo a repulsão de Coulomb $\propto |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{-1}$.

A temperaturas mais baixas, T=70 mK, foram observadas experimentalmente (37) quebras nas regiões de cruzamentos de níveis de Landau das estruturas em forma de anel. Em nosso modelo DFT observamos (66) que estas quebras são uma evidêndia direta das instabilidades ferromagnéticas. O fenômeno por trás destas quebras é novamente o princípio de Pauli agindo de forma equivalente à separação Zeeman efetiva do parágrafo anterior. Na região de instabilidade, dois níveis com diferentes (pseudo-)spin se aproximam, mas via termo de troca a energia total é minimizada efetivamente repelindo-se um dos níveis. Com aumento do campo magnético os dois estados invertem-se abruptamente de forma que antes e depois do cruzamento apenas um (pseudo-)spin é ocupado. Com esta variação abrupta dos níveis de energia, o potencial químico também salta a região de estados estendidos dos níveis de Landau, suprimindo ρ_{xx} nesta região de instabilidade, levando ao anel quebrado no digrama de ρ_{xx} .

Vimos ainda que variando-se o ângulo θ entre o campo magnético e o 2DEG, produz-se um acoplamento entre as componentes do plano e direção perpendicular de forma a encolher a estrutura em forma de anel. Experimentalmente (39) observou-se o encolhimento e colapso do anel a $\theta_c \approx 6^{\circ}$. Em nosso modelo não-interagente (65) com fator giromagnético efetivo g=-2 obtivemos acordo qualitativo com ângulo de colapso $\theta_c=3.46^{\circ}$. Porém, no processo de encolhimento vimos que níveis de (pseudo-)spin distintos se aproximam. No modelo DFT (66), novamente via princípio de Pauli, surge uma competição entre o encolhimento do anel devido ao ângulo e a separação Zeeman efetiva dada pelo termo de troca. Esta competição desloca o ângulo de colapso para $\theta \approx 6^{\circ}$, em excelente acordo com o experimento.

Nossos resultados revelam ainda características interessantes da DFT:

Primeiro, vimos que nosso modelo apresenta quebras em ρ_{xx} apenas em cruzamentos de níveis com spins opostos, enquanto que o experimento mostra quebras em todos os cruzamentos e o modelo Hartree-Fock prevê instabilidades ferromagnéticas nos mesmos. Entendemos esta característica como uma limitação de funcionais de troca e correlação locais (LSDA) ou semi-locais (GGA). Estes funcionais não apresentam a propriedade conhecida como $descontinuidade\ da\ derivada\ (derivada\ funcional\ da\ energia\ total\ com\ relação\ a densidade). Em sistemas atômicos esta propriedade diz respeito a variação não-analítica da energia total com relação ao número de elétrons (energias de ionização e afinidade eletrônica). Nos sistemas mesoscópicos estudados aqui, a variação não-analítica$

da energia deve ocorrer no processo de ocupação de novos estados (59–61). Os excelentes resultados obtidos por Proetto e colaboradores (59–61) a campo nulo nos motivaram a iniciar uma colaboração para o desenvolvimento de um novo funcional otimizado (OEP, optimized effective potential) para as instabilidades ferromagnéticas. Este projeto encontrase em fase final de implementação numérica e não apresentamos detalhes nesta tese.

Segundo, a histerese observada em nossos resultados numéricos reflete a previsão de Perdew & Levy (48) de estados excitados na formulação usual DFT para estado fundamental. A previsão de Perdew & Levy não é trivial, pois a formulação usual da DFT é feita de forma que o funcional de energia retorne como mínimo global a energia e densidade estado fundamental do sistema interagente, mas nada diz sobre estados excitados. O resultado de Perdew & Levy mais relevante para esta tese diz que o funcional de energia do estado fundamental pode conter mínimos locais referentes a estados excitados que podem ser obtidos como soluções autoconsistentes das equações de Kohn & Sham com a densidade calculada segundo princípio aufbau, i.e., distribuição de Fermi-Dirac com um único potencial químico. Apesar desta previsão, este resultado de Perdew & Levy é pouco conhecido na comunidade científica, pois até pouco tempo tais estados excitados ainda não haviam sido observados. Os resultados do nosso grupo de pesquisa representam as primeiras observações destes estados (35, 64–66) [c.f. Ref. (63)].

O sucesso do projeto inicial nos levou a outros projetos brevemente apresentados na Introdução, Seção 1.6. Em particular, nos projetos de Mestrado dos estudantes Filipe Sammarco (72) e Udson C. Mendes (73) estudamos instabilidades ferromagnéticas em fios quânticos na presença de campo magnético aplicado ao longo do fio. Consideramos duas geometrias: (i) split-gate em um 2DEG no projeto de Sammarco; (ii) fio quântico cilíndrico tipo core-shell no projeto de Mendes. Nos dois casos observamos transições de fase ferromagnéticas em cruzamentos de modos transversais usando formulação DFT equivalente a apresentada nesta tese. Os resultados de Sammarco mostram excelente acordo com medidas de condutância em fios quânticos de GaAs (76, 77). Ainda não há experimentos para comparar com os resultados de Mendes. Artigos referentes a estes projetos estão sendo escritos no momento, para mais detalhes consulte as Dissertações de Mestrado dois dois autores, Refs. (72, 73).

Os resultados obtidos pelo modelo proposto nesta tese mostram excelente acordo com os experimentos do grupo de UCLA. Isto corrobora a posteriori a validade do modelo fenomenológico para os coeficientes de magnetotransporte e o cálculo da estrutura eletrônica via DFT. Porém, o modelo fenomenológico é secundário, fazendo apenas a ligação entre o cálculo DFT e as medidas experimentais de ρ_{xx} . Por sua vez, o cálculo da estrutura eletrônica via DFT apresentado aqui revela características interessantes do próprio formalismo da DFT. Em primeira instância, a DFT mostra seu poder de predição descrevendo quantitativamente as transições de fase observadas nas medidas de

4.5. Conclusões 105

 ρ_{xx} . Adicionalmente, observamos que as transições de fase nas regiões de cruzamentos de estados de mesmo spin não é descrita por aproximações locais (LSDA, GGA), pois estas aproximações não descrevem corretamente a propriedade conhecida como descontinuidade da derivada. O ciclo de histerese obtido nas regiões de instabilidade revelam ainda os estados excitados preditos por Perdew & Levy em 1985 como mínimos locais do funcional de energia do estado fundamental $E[n(\mathbf{r})]$. Estes mínimos locais são surpreendentes, pois $E[n(\mathbf{r})]$ é formulado na DFT para retornar a densidade e energia do estado fundamental como mínimo global, sem nenhuma referência a outros extremos. Os resultados apresentados nesta tese (64–66), e trabalhos anteriores do nosso grupo (35), indicam situações onde é possível obter tais estados excitados. Neste contexto, as observações de instabilidades ferromagnéticas nos trabalhos de Sammarco e Mendes em fios quânticos fortalecem a validade destas observações.

Referências 107

Referências

- 1 AWSCHALOM, D. D.; FLATTÉ, M. E.; SAMARTH, N. Spintronics. Scientific American, v. 286, n. 6, p. 66–73, 2002.
- 2 BAIBICH, M. N.; BROTO, J. M.; FERT, A.; DAU, F. N. van; PETROFF, F.; EITENNE, P.; CREUZET, G.; FRIEDERICH, A.; CHAZELAS, J. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, v. 61, n. 21, p. 2472–2475, 1988.
- 3 BINASCH, G.; GRÜNBERG, P.; SAURENBACH, F.; ZINN, W. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review B*, v. 39, n. 7, p. 4828–4830, 1989.
- 4 ÅKERMAN, J. Toward a universal memory. Science, v. 308, n. 5721, p. 508–510, 2005.
- 5 PARKIN, S.; HAYASHI, M.; THOMAS, L. Magnetic domain-wall racetrack memory. *Science*, American Association for the Advancement of Science, v. 320, n. 5873, p. 190, 2008. ISSN 0036-8075.
- 6 DATTA, S.; DAS, B. Electronic analog of the electrooptic modulator. *Applied Physics Letters*, v. 56, n. 7, p. 665–667, 1990.
- 7 LOSS, D.; DIVINCENZO, D. Quantum computation with quantum dots. *Physical Review A*, v. 57, n. 1, p. 120, 1998.
- 8 ZUTIC, I.; FABIAN, J.; SARMA, S. D. Spintronics: Fundamentals and applications. *Review of Modern Physics*, v. 76, n. 2, p. 323–410, 2004.
- 9 ZAK, R. A.; RÖTHLISBERGER, B.; CHESI, S.; LOSS, D. Quantum computing with electron spins in quantum dots. *Rivista del Nuovo Cimento*, v. 33, n. 7, p. 345–399, 2010.

108 Referências

10 KLITZING, K. von; DORDA, G.; PEPPER, M. New method for high-accuracy determination of the fine-structure constant based on quantized Hall resistance. *Physical Review Letters*, v. 45, n. 6, p. 494–497, 1980.

- 11 KLITZING, K. von. The quantized Hall effect. Review of Modern Physics, v. 58, n. 3, p. 519–531, 1986.
- 12 BASTARD, G. Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures. Les Ulis Cedex: Les Editions de Physique, 1988. (Monographies de physique).
- 13 ANDO, T.; MATSUMOTO, Y.; UEMURA, Y. Theory of Hall-effect in a 2-dimensional electron-system. *Journal of the Physical Society of Japan*, v. 39, n. 2, p. 279–288, 1975.
- 14 CHAKRABORTY, T.; PIETILÄINEN, P. The quantum Hall effects: integral and fractional. 2. ed. Berlin: Springer-Verlag, 1995. (Springer Series in Solid-State Sciences, v. 85).
- 15 GIULIANI, G. F.; VIGNALE, G. Quantum theory of the electron liquid. Cambridge, New York: Cambridge University Press, 2005.
- 16 LAUGHLIN, R. B. Quantized Hall conductivity in two dimensions. *Physical Review B*, v. 10, n. 10, p. 5632–5633, 1981.
- 17 PRANGE, R. E. Quantized Hall resistance and the measurement of the fine-structure constant. *Physical Review B*, v. 23, n. 9, p. 4802–4805, 1981.
- 18 HALPERIN, B. Quantized Hall conductance, current-carrying edge states, and the existence of extended states in a two-dimensional disordered potential. *Physical Review B*, v. 25, n. 4, p. 2185, 1982.
- 19 HALPERIN, B. I. The quantized Hall-effect. *Scientific American*, v. 52, n. 4, p. 40–48, 1986.
- 20 BÜTTIKER, M. Absence of backscattering in the quantum Hall effect in multiprobe conductors. *Physical Review B*, v. 38, n. 14, p. 9375, 1988.
- 21 NIU, Q.; THOULESS, D. J.; WU, Y. S. Quantized Hall conductance as a topological invariant. *Physical Review B*, v. 31, n. 6, p. 3372, 1985.

22 BURGT, M. van der; KARAVOLAS, V. C.; PEETERS, F. M.; SINGLETON, J.; NICHOLAS, R. J.; HERLACH, F.; HARRIS, J. J.; HOVE, M. van; BORGHS, G. Magnetotransport in a pseudomorphic GaAs/Ga0.8In0.2As/Ga0.75Al0.25As heterostructure with a Si delta-doping layer. *Physical Review B*, v. 52, n. 16, p. 12218–12231, 1995.

- 23 ANDO, T.; FOWLER, A. B.; STERN, F. Eletronic properties of two-dimensional systems. *Review of Modern Physics*, v. 54, n. 2, p. 437, 1982.
- 24 ANDO, T. Electron localization in a two-dimensional system in strong magnetic fields. I. Case of short-range scatterers. *Journal of the Physical Society of Japan*, v. 52, n. 5, p. 1740, 1983.
- 25 ANDO, T. Electron localization in a two-dimensional system in strong magnetic fields. III. Impurity-concentration dependence and level-mixing effects. *Journal of the Physical Society of Japan*, v. 53, n. 9, p. 3126, 1984.
- 26 ANDO, T. Electron localization in a two-dimensional system in strong magnetic fields. II. Long-range scatterers and response functions. *Journal of the Physical Society of Japan*, v. 53, n. 9, p. 3101, 1984.
- 27 GERHARDTS, R. R. Cumulant approach to the two-dimensional magneto-conductivity problem. *Surface Sciences*, v. 58, n. 1, p. 227–234, 1976.
- 28 ELLENBERGER, C. Electron transport through nanostructures on parabolic quantum wells. Ph.D. thesis Swiss Federal Institute of Technology, Zurich, 2006.
- 29 JUNGWIRTH, T.; MACDONALD, A. H. Pseudospin anisotropy classification of quantum Hall ferromagnets. *Physical Review B*, v. 63, n. 3, p. 035305, 2000.
- 30 DE POORTERE, E. P.; TUTUC, E.; PAPADAKIS, S. J.; SHAYEGAN, M. Resistance spikes at transitions between quantum Hall ferromagnets. *Science*, v. 290, n. 5496, p. 1546–1549, 2000.
- 31 DE POORTERE, E. P.; TUTUC, E.; SHKOLNIKOV, Y. P.; VAKILI, K.; SHAYE-GAN, M.; PALM, E.; MURPHY, T. Quantum Hall effect in AlAs 2D electron systems. *International Journal of Modern Physics B*, v. 16, n. 20-22, p. 2917–2922, 2002.
- 32 DE POORTERE, E. P.; TUTUC, E.; SHAYEGAN, M. Critical resistance in the AlAs quantum Hall ferromagnet. *Physical Review Letters*, v. 91, n. 21, p. 216802, 2003.

33 JAROSZYŃSKI, J.; ANDREARCZYK, T.; KARCZEWSKI, G.; WRÓBEL, J.; WOJTOWICZ, T.; PAPIS, E.; KAMIŃSKA, E.; PIOTROWSKA, A.; POPOVIĆ, D.; DIETL, T. Ising quantum Hall ferromagnet in magnetically doped quantum wells. *Physical Review Letters*, v. 89, n. 26, p. 266802, 2002.

- 34 JAROSZYNSKI, J.; ANDREARCZYK, T.; KARCZEWSKI, G.; WRÓBEL, J.; WOJTOWICZ, T.; PAPIS, E.; KAMINSKA, E.; PIOTROWSKA, A.; POPOVIC, D.; DIETL, T. Quantum Hall ferromagnetism in II-VI based alloys. *Physica Status Solidi (b)*, v. 241, n. 3, p. 712–717, 2004.
- 35 FREIRE, H. J. P.; EGUES, J. C. Hysteretic resistance spikes in quantum Hall ferromagnets without domains. *Physical Review Letters*, v. 99, n. 2, p. 026801, 2007.
- 36 ZHANG, X. C.; FAULHABER, D. R.; JIANG, H. W. Multiple phases with the same quantized Hall conductance in a two-subband system. *Physical Review Letters*, v. 95, n. 21, p. 216801, 2005.
- 37 ZHANG, X. C.; MARTIN, I.; JIANG, H. W. Landau level anticrossing manifestations in the phase-diagram topology of a two-subband system. *Physical Review B*, v. 74, n. 7, p. 073301, 2006.
- 38 ZHANG, X. C.; SCOTT, G. S.; JIANG, H. W. NMR probing spin excitations in the ring-like structure of a two-subband system. *Physical Review Letters*, v. 98, n. 24, p. 246802, 2007.
- 39 GUO, G. P.; ZHAO, Y. J.; TU, T.; HAO, X. J.; ZHANG, X. C.; GUO, G. C.; JIANG, H. W. Observation of an in-plane magnetic-field-driven phase transition in a quantum Hall system with SU(4) symmetry. *Physical Review B*, v. 78, n. 23, p. 233305, 2008.
- 40 GUO, G. P.; HAO, X. J.; TU, T.; ZHAO, Y. J.; LIN, Z. R.; CAO, G.; LI, H. O.; ZHOU, C.; GUO, G. C.; JIANG, H. W. Probing a quantum Hall pseudospin ferromagnet by resistively detected nuclear magnetic resonance. *Physical Review B*, v. 81, n. 4, p. 041306(R), 2010.
- 41 MURAKI, K.; SAKU, T.; HIRAYAMA, Y. Charge excitations in easy-axis and easy-plane quantum Hall ferromagnets. *Physical Review Letters*, v. 87, n. 19, p. 196801, 2001.
- 42 HIRAYAMA, Y.; MURAKI, K.; HASHIMOTO, K.; TAKASHINA, K.; SAKU, T. Quantum Hall effects at Landau level crossings. *Physica E*, v. 20, n. 1-2, p. 133, 2003.

43 ELLENBERGER, C.; SIMOVIC, B.; LETURCQ, R.; IHN, T.; ULLOA, S.; ENSSLIN, K.; DRISCOLL, D. C.; GOSSARD, A. C. Two-subband quantum Hall effect in parabolic quantum wells. *Physical Review B*, v. 74, n. 19, p. 195313, 2006.

- 44 KUMADA, N.; IWATA, K.; TAGASHIRA, K.; SHIMODA, Y.; MURAKI, K.; HIRAYAMA, Y.; SAWADA, A. Modulation of bilayer quantum Hall states by tilted-field-induced subband-Landau-level coupling. *Physical Review B*, v. 77, n. 15, p. 155324, 2008.
- 45 DUARTE, C. A.; GUSEV, G. M.; QUIVY, A. A.; LAMAS, T. E.; BAKAROV, A. K.; PORTAL, J. C. Landau-level crossing in two-subband systems in a tilted magnetic field. *Physical Review B*, v. 76, n. 7, p. 075346, 2007.
- 46 HOHENBERG, P.; KOHN, W. Inhomogeneous electron gas. *Physical Review*, v. 136, n. 3B, p. B864–B871, 1964.
- 47 KOHN, W.; SHAM, L. J. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Physical Review*, v. 140, n. 4A, p. A1133, 1965.
- 48 PERDEW, J. P.; LEVY, M. Extrema of the density functional for the energy: Excited states from the ground-state theory. *Physical Review B*, v. 31, n. 10, p. 6264–6272, 1985.
- 49 PERDEW, J. P.; WANG, Y. Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy. *Physical Review B*, v. 45, n. 23, p. 13244–13249, 1992.
- 50 VOSKO, S. H.; WILK, L.; NUSAIR, M. Accurate spin-dependent electron liquid correlation energies for local spin-density calculations a critical analysis. *Canadian Journal of Physics*, v. 58, n. 8, p. 1200–1211, 1980.
- 51 CEPERLEY, D. M. Ground state of the fermion one-component plasma: A monte carlo study in two and three dimensions. *Physical Review B*, v. 18, n. 7, p. 3126–3138, 1978.
- 52 CEPERLEY, D. M.; ALDER, B. J. Ground state of the electron gas by a stochastic method. *Physical Review Letters*, v. 45, n. 7, p. 566–569, 1980.
- 53 PERDEW, J. P.; KURTH, S. A primer in density functional theory. Berlin: Springer, 2003.

54 KUMMEL, S.; KRONIK, L. Orbital-dependent density functionals: Theory and applications. *Review of Modern Physics*, v. 80, n. 1, p. 3, 2008.

- 55 PERDEW, J. P.; LEVY, M. Physical content of the exact Kohn-Sham orbital energies: Band gaps and derivative discontinuities. *Physical Review Letters*, v. 51, n. 20, p. 1884, 1983.
- 56 KUMMEL, S.; PERDEW, J. P. Optmized effective potential made simple: Orbital functionals, orbital shifts, and the exact Kohn-Sham exchange potential. *Physical Review B*, v. 68, n. 3, p. 035103, 2003.
- 57 BECKE, A. D. A new mixing of Hartree-Fock and local density-functional theories. *Journal of Chemical Physics*, v. 98, n. 2, p. 1372, 1993.
- 58 GÖRLING, A.; LEVY, M. Exact Kohn-Sham scheme based on perturbation theory. *Physical Review A*, v. 50, n. 1, p. 196, 1994.
- 59 REBOREDO, F. A.; PROETTO, C. R. Exact-exchange density functional theory for quasi-two-dimensional electron gases. *Physical Review B*, v. 67, n. 11, p. 115325, 2003.
- 60 RIGAMONTI, S.; PROETTO, C. R. Correlation Kohn-Sham potential for quasi-two-dimensional electron gases. *Physical Review B*, v. 73, n. 23, p. 235319, 2006.
- 61 RIGAMONTI, S.; PROETTO, C. R. Signatures of discontinuity in the exchange-correlation energy functional derived from the subband electronic structure of semiconductor quantum wells. *Physical Review Letters*, v. 98, n. 6, p. 066806, 2007.
- 62 KOHN, W. V-Representability and density functional theory. *Physical Review Letters*, v. 51, n. 17, p. 1596–1598, 1983.
- 63 PERDEW, J. P.; RUZSINSZKY, A.; CONSTANTIN, L. A.; SUN, J.; CSONKA, G. I. Some fundamental issues in ground-state density functional theory: A guide for the perplexed. *Journal of Chemical Theory and Computation*, v. 5, n. 4, p. 902, 2009.
- 64 FERREIRA, G. J.; FREIRE, H. J. P.; EGUES, J. C. Ringlike structures in the density-magnetic-field ρ_{xx} diagram of two-subband quantum Hall systems. *Physica Status Solidi* (c), v. 3, n. 12, p. 4364, 2006.

65 FERREIRA, G. J.; EGUES, J. C. Collapse of ρ_{xx} ringlike structures in 2DEGs under tilted magnetic fields. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, v. 23, n. 1, p. 19, 2010.

- 66 FERREIRA, G. J.; FREIRE, H. J. P.; EGUES, J. C. Many-body effects on the ρ_{xx} ringlike structures in two-subband wells. *Physical Review Letters*, v. 104, n. 6, p. 066803, 2010.
- 67 SMET, J. H.; DEUTSCHMANN, R. A.; ERTL, F.; WEGSCHEIDER, W.; ABSTREITER, G.; KLITZING, K. von. Gate-voltage control of spin interactions between electrons and nuclei in a semiconductor. *Nature*, v. 415, n. 6869, p. 281, 2002.
- 68 STERN, O.; FREYTAG, N.; FAY, A.; DIETSCHE, W.; SMET, J. H.; KLITZING, K. von; SCHUH, D.; WEGSCHEIDER, W. NMR study of the electron spin polarization in the fractional quantum Hall effect of a single quantum well: spectroscopic evidence for domain formation. *Physical Review B*, v. 70, n. 7, p. 075318, 2004.
- 69 ABRAGAM, A. Principles of nuclear magnetism. Oxford: Clarendon Press, 1961.
- 70 STRAND, J.; SCHULTZ, B. D.; ISAKOVIC, A. F.; PALMSTROM, C. J.; CROWELL, P. A. Dynamic nuclear polarization by electrical spin injection in ferromagnet-semiconductor heterostructures. *Physical Review Letters*, v. 91, n. 3, p. 036602, 2003.
- 71 DEAN, C. R.; PIOT, B. A.; GERVAIS, G.; PFEIFFER, L. N.; WEST, K. W. Current-induced nuclear-spin activation in a two-dimensional electron gas. *Physical Review B*, v. 80, n. 15, p. 153301, 2009.
- 72 SAMMARCO, F. Magnetocondutância de fios quânticos interagentes. Dissertação (Mestrado) Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos SP, Brasil, 2009.
- 73 MENDES, U. C. Condutância em nanofios magnéticos diluídos. Dissertação (Mestrado) Departamento de Física, Universidade Federal de Goiás, Goiânia GO, Brasil, 2010.
- 74 DATTA, S. Electronic transport in mesoscopic systems. In: AHMED, H.; PEPPER, M.; BROERS, A. (Ed.). Cambridge studies in semiconductor physics and microelectronic engineering. Cambridge, New York: Cambridge University Press, 1995.
- 75 WEES, B. J. van; HOUTEN, H. van; BENNAKKER, C. W. J.; WILLIAMSON, J. G.; KOUWENHOVEN, L. P.; MAREL, D. van der; FOXON, C. T. Quantized conductance

of point contacts in a two-dimensional electron gas. *Physical Review Letters*, v. 60, n. 9, p. 848, 1988.

- 76 GRAHAM, A. C.; THOMAS, K. J.; PEPPER, M.; COOPER, N. R.; SIMMONS, M. Y.; RITCHIE, D. A. Interaction effects at crossings of spin-polarized one-dimensional subbands. *Physical Review Letters*, v. 91, n. 13, p. 136404, 2003.
- 77 GRAHAM, A. C.; THOMAS, K. J.; PEPPER, M.; SIMMONS, M. Y.; RITCHIE, D. A.; BERGGREN, K. F.; JAKSCH, P.; DEBNAROVA, A.; YAKIMENKO, I. I. 0.7 analogue structures and exchange interactions in quantum wires. *Solid State Communications*, v. 131, n. 9-10, p. 591, 2004.
- 78 PATEL, N. K.; NICHOLLS, J. T.; MARTÍN-MORENO, L.; PEPPER, M.; FROST, J. E. F.; RITCHIE, D. A.; JONES, G. A. C. Evolution of half plateaus as a function of electric field in a ballistic quasi-one-dimensional constriction. *Physical Review B*, v. 44, n. 24, p. 13549, 1991.
- 79 THOMAS, K. J.; NICHOLLS, J. T.; SIMMONS, M. Y.; PEPPER, M.; MACE, D. R.; RITCHIE, D. A. Possible spin polarization in a one-dimensional electron gas. *Physical Review Letters*, v. 77, n. 1, p. 135, 1996.
- 80 HOUTEN, H. van; BEENAKKER, C. Quantum point contacts. *Physics Today*, v. 49, n. 7, p. 22, 1996.
- 81 CRONENWETT, S. M. A tunable Kondo effect in quantum dots. *Science*, v. 281, n. 5376, p. 540, 1998.
- 82 CRONENWETT, S. M.; LYNCH, H. J.; GOLDHABER-GORDON, D.; KOUWE-NHOVEN, L. P.; MARCUS, C. M.; HIROSE, K.; WINGREEN, N. S.; UMANSKY, V. Low-temperature fate of the 0.7 structure in a point contact: A Kondo-like correlated state in an open system. *Physical Review Letters*, v. 88, n. 22, p. 226805, 2002.
- 83 MEIR, Y.; HIROSE, K.; WINGREEN, N. S. Kondo model for the "0.7 anomaly" in transport through a quantum point contact. *Physical Review Letters*, v. 89, n. 19, p. 196802, 2002.
- 84 REJEC, T.; MEIR, Y. Magnetic impurity formation in quantum point contacts. *Nature*, v. 442, n. 7105, p. 900, 2006.

85 SCHULZ, H. J.; CUNIBERTI, G.; PIERI, P. Fermi liquids and Luttinger liquids. In: MORANDI, G.; SODANO, P.; TAGLIACOZZO, A.; TOGNETTI, V. (Ed.). Field theories for low-dimensional condensed matter systems. Berlin: Springer-Verlag, 2000. cap. 2.

- 86 BRUUS, H.; FLENSBERG, K. Many-body quantum theory in condensed matter physics. New York: Oxford, University Press, 2004.
- 87 KANE, C. L.; FISHER, M. P. A. Transport in a one-channel Luttinger liquid. *Physical Review Letters*, v. 68, n. 8, p. 1220, 1992.
- 88 FIETE, G. A. Colloquium: The spin-incoherent Luttinger liquid. *Review of Modern Physics*, v. 79, n. 3, p. 801, 2007.
- 89 REILLY, D. J.; BUEHLER, T. M.; O'BRIEN, J. L.; HAMILTON, A. R.; DZURAK, A. S.; CLARK, R. G.; KANE, B. E.; PFEIFFER, L. N.; WEST, K. W. Density-dependent spin polarization in ultra-low-disorder quantum wires. *Physical Review Letters*, v. 89, n. 24, p. 246801, 2002.
- 90 REILLY, D. J. Phenomenological model for the 0.7 conductance feature in quantum wires. *Physical Review B*, v. 72, n. 3, p. 033309, 2005.
- 91 ATTACCALITE, C.; MORONI, S.; GORI-GIORGI, P.; BACHELET, B. Correlation energy and spin polarization in the 2D electron gas. *Physical Review Letters*, v. 88, n. 25, p. 256601, 2002.
- 92 ATTACCALITE, C.; MORONI, S.; GORI-GIORGI, P.; BACHELET, B. Erratum: Correlation energy and spin polarization in the 2D electron gas. *Physical Review Letters*, v. 91, n. 10, p. 109902, 2003.
- 93 KATSNELSON, M. I.; NOVOSELOV, K. S.; GAIM, A. K. Chiral tunneling and the Klein paradox in graphene. *Nature Physics*, v. 2, n. 9, p. 620, 2006.
- 94 CASTRO NETO, A. H.; GUINEA, F.; PERES, N. M. R.; NOVOSELOV, K. S.; GAIM, A. K. The electronic properties of graphene. *Review of Modern Physics*, v. 81, n. 1, p. 109, 2009.
- 95 ESAKI, L.; TSU, R. Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors. *IBM Journal of Research and Development*, v. 14, n. 1, p. 61, 1970.

- 96 TSU, R. Superlattice to nanoelectronics. Amsterdam: Elsevier, 2005.
- 97 YU, P. Y.; CARDONA, M. Fundamentals of semiconductors. Berlin: Springer, 2005.
- 98 MORTAZAWI, A.; KESAN, V. P.; NEIKIRK, D. P.; ITOH, T. A self-oscillating QWITT diode mixer. In: *European microwave conference*, 19. London: IEEE, 1989. (Proceedings...), p. 714.
- 99 SOLLNER, T. C. L. G.; BROWN, E. R.; GOODHUE, W. D.; CORREA, C. A. Harmonic multiplication using resonant tunneling. *Journal of Applied Physics*, v. 64, n. 8, p. 4248, 1988.
- 100 SZE, S. M.; NG, K. K. *Physics of semiconductor devices*. New Jersey: Wiley & Sons, 2007.
- 101 HALL, E. H. On a new action of the magnet on electric currents. *American Journal of Mathematics*, v. 2, n. 3, p. 287, 1879.
- 102 AOKI, H. Quantized Hall effect. Reports on Progress in Physics., v. 50, n. 6, p. 655–730, 1987.
- 103 ADAMS, E. N.; HOLSTEIN, T. D. Quantum theory of the transverse galvanomagnetic phenomena. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, v. 10, n. 4, p. 254, 1959.
- 104 ANDO, T.; UEMURA, Y. Theory of quantum transport in a 2-dimensional electronsystem under magnetic-fields. I. characteristics of level broadening and transport under strong fields. *Journal of the Physical Society of Japan*, v. 36, n. 4, p. 959–967, 1974.
- 105 KUBO, R.; MIYAKE, S. J.; HASHITSUME, N. Quantum theory of galvanometric effect at extremely strong magnetic fields. In: SEITZ, F.; TURNBULL, D. (Ed.). *Solid State Physics*. New York: Academic, 1965. v. 17, p. 269.
- 106 FADDEEVA, D. K.; FADDEEVA, V. N. Computational methods of linear algebra. San Francisco: W. H. Freeman, 1963.
- 107 COONEY, P. J.; KANTER, E. P.; VAGER, Z. Convenient numerical technique for solving the one-dimensional Schrödinger equation for bound states. *American Journal of Physics*, v. 49, n. 1, p. 76–77, 1981.

108 TAN, I. H.; SNIDER, G. L.; CHANG, L. D.; HU, E. L. A self-consistent solution of Schrödinger and Poisson equations using a nonuniform mesh. *Journal of Applied Physics*, v. 68, n. 8, p. 4071, 1990.

- 109 ANDERSON, E.; BAI, Z.; BISCHOF, C.; BLACKFORD, S.; DEMMEL, J.; DONGARRA, J.; DU CROZ, J.; GREENBAUM, A.; HAMMARLING, S.; MCKENNEY, A.; SORENSEN, D. *LAPACK users' guide*. 3rd. ed. Philadelphia, PA: Society for Industrial and Applied Mathematics, 1999. ISBN 0-89871-447-8 (paperback).
- 110 BORN, M.; OPPENHEIMER, R. Zur quantentheorie der molekeln. Annalen der Physik, v. 89, n. 20, p. 457–484, 1927.
- 111 HARTREE, D. The wave mechanics of an atom with a non-Coulomb central field. Part I. Theory and methods. *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, v. 24, n. 1, p. 89–132, 1928.
- 112 SLATER, J. C. Note on Hartree's method. *Physical Review*, v. 35, n. 2, p. 210–211, 1930.
- 113 FOCK, V. Näherungsmethode zur lösung des quantenmechanischen mehrkörperproblems. Zeitschrift für Physik A: Hadrons and Nuclei, v. 61, n. 1, p. 126–148, 1930.
- 114 THOMAS, L. H. The calculation of atomic fields. *Proceedings of the Cambridge Phylosofical Society*, v. 23, n. 5, p. 542–548, 1927.
- 115 FERMI, E. Un metodo statistico per la determinazione di alcune proprieta dell'atomo. *Atti della Accademia Nazionale dei Lincei*, v. 6, n. 1, p. 602–607, 1927.
- 116 BARTH, U. von; HEDIN, L. Local exchange-correlation potential for spin polarized case. *Journal of Physics C*, v. 5, n. 13, p. 1629–1642, 1972.
- 117 RAJAGOPAL, A. K.; CALLAWAY, J. Inhomogeneous electron gas. *Physical Review B*, v. 7, n. 5, p. 1912–1919, 1973.
- 118 VIGNALE, G.; RASOLT, M. Density-functional theory in strong magnetic fields. *Physical Review Letters*, v. 59, n. 20, p. 2360, 1987.

119 VIGNALE, G.; RASOLT, M. Current- and spin-density-functional theory for inhomogeneous electronic systems in strong magnetic fields. *Physical Review B*, v. 37, n. 18, p. 10685, 1988.

- 120 MERMIN, N. D. Thermal properties of the inhomogeneous electron gas. *Physical Review*, v. 137, n. 5A, p. A1441, 1965.
- 121 RUNGE, E.; GROSS, E. K. U. Density-functional theory for time-dependent systems. *Physical Review Letters*, v. 52, n. 12, p. 997–1000, 1984.
- 122 LEVY, M. Universal variational functionals of electron densities, first-order density matrices, and natural spin-orbitals and solution of the v-representability problem. *Proceedings of the National Academy of Sciences USA*, v. 76, n. 12, p. 6062–6065, 1979.
- 123 LEVY, M. Electron densities in search of hamiltonians. *Physical Review A*, v. 26, n. 3, p. 1200–1208, 1982.
- 124 LIEB, E. H. Density functionals for coulomb systems. In: SHIMONY, A.; FESH-BACH, H. (Ed.). *Physics as natural philosophy: essays in honor of Lazlo Tisza on his 75th birthday*. Cambridge: MIT, 1982. p. 111.
- 125 KOHN, W.; VASHISHTA, P. General density functional theory. In: LUNDQVIST, S.; MARCH, N. H. (Ed.). *Theory of the inhomogeneous electron gas.* New York: Plenum, 1983. cap. 2, p. 79–148.
- 126 SCHONHAMMER, K.; GUNNARSSON, O. Difference between the quasiparticle and the Kohn-Sham Fermi surfaces. *Physical Review B*, v. 37, n. 6, p. 3128, 1988.
- 127 MEARNS, D.; KOHN, W. Fermi surface in local-density-functional theory and in gradient expansions. *Physical Review B*, v. 39, n. 15, p. 10669, 1989.
- 128 HELBIG, N.; KURTH, S.; PITTALIS, S.; RÄSÄNEN, E.; GROSS, E. K. U. Exchange-correlation orbital functionals in current-density functional theory: Application to a quantum dot in magnetic fields. *Physical Review B*, v. 77, n. 24, p. 245106, 2008.
- 129 PARR, R. G.; YANG, W. Density-functional theory of atoms and molecules. Oxford: University Press, 1989.

130 GUPTA, U.; RAJAGOPAL, A. K. Exchange-correlation potentials for inhomegeneous electron systems at finite temperatures. *Physical Review A*, v. 22, n. 6, p. 2729, 1980.

- 131 TANAKA, S.; ICHIMARU, S. Spin-dependent correlations and thermodynamic functions for electron liquids at arbitrary degeneracy and spin polarization. *Physical Review B*, v. 39, n. 2, p. 1036, 1989.
- 132 DHARMA-WARDANA, M. W. C.; PERROT, F. Spin-polarized stable phases of the 2D electron fluid at finite temperatures. *Physical Review Letters*, v. 90, n. 13, p. 136601, 2003.
- 133 PERDEW, J.; RUZSINSZKY, A.; TAO, J.; STAROVEROV, V.; SCUSERIA, G.; CSONKA, G. Prescription for the design and selection of density functional approximations: More constraint satisfaction with fewer fits. *The Journal of Chemical Physics*, v. 123, n. 1, p. 062201–1–062201–9, 2005.
- 134 JUNGWIRTH, T.; MACDONALD, A. H. Resistance spikes and domain wall loops in Ising quantum Hall ferromagnets. *Physical Review Letters*, v. 87, n. 21, p. 216801, 2001.
- 135 ASHCROFT, N. W.; MERMIN, N. D. *Solid state physics*. Philadelphia: Saunders College, 1976.

Apêndice A Efeito Hall clássico

No regime Hall clássico, o movimento dos elétrons na presença de campos magnético \mathbf{B} e elétrico \mathbf{E} é governado pela força de Lorentz. Na presença de impurezas espalhadoras, porém, esta descrição só é valida para o movimento entre colisões, sendo que na média, após várias colisões, os elétrons se movem com uma velocidade de arrasto \mathbf{v}_d . A equação de movimento para \mathbf{v}_d na aproximação do tempo de relaxação é

$$m\frac{d\mathbf{v}_d}{dt} \approx m\frac{\mathbf{v}_d}{\tau_m} = e\mathbf{E} + e\mathbf{v}_d \times \mathbf{B},$$
 (A.1)

sendo τ_m^{-1} a taxa de espalhamento.

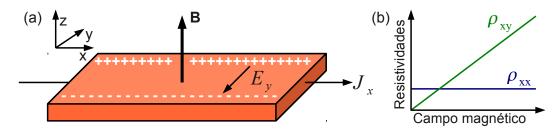


Figura A.1 – (a) Diagrama de uma barra Hall mostrando o efeito Hall clássico. Ao aplicar uma corrente J_x através do gás de elétrons bidimensional na presença de um campo perpendicular $\mathbf{B} = B\hat{z}$, estabelece-se um campo transverso E_y devido ao acumulo de cargas de sinais opostos nos extremos da amostra. (b) Neste regime clássico, a resistividade longitudinal é constante, $\rho_{xx} = [en_{2D}\mu]^{-1}$, e a transversal é proporcional ao campo B aplicado, $\rho_{xy} = B/en_{2D}$.

Considerando-se o movimento dos elétrons no plano xy, com o campo magnético na direção \hat{z} , Fig. A.1(a), a solução para as componentes de \mathbf{v}_d são

$$v_{d,x} = \frac{e\tau_m}{m} \left[-\frac{1}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} E_x + \frac{\omega_c \tau_m}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} E_y \right], \tag{A.2}$$

$$v_{d,y} = \frac{e\tau_m}{m} \left[-\frac{\omega_c \tau_m}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} E_x - \frac{1}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} E_y \right], \tag{A.3}$$

sendo $\omega_c = eB/m$ a frequência ciclotrônica dos elétrons. Note que devido ao campo magnético, uma corrente aplicada na direção \hat{x} , i.e. $E_x \neq 0$ e $E_y = 0$, gera uma velocidade

finita na direção \hat{y} . O acúmulo de cargas nas laterais da amostra gera um campo elétrico na direção \hat{y} , caracterizando o efeito Hall clássico.

A densidade de corrente através do material é dada por $\mathbf{J} = -en_{2D}\mathbf{v}_d$, sendo n_{2D} a densidade bidimensional de elétrons. Substituindo as soluções para as velocidades em \mathbf{J} , obtemos

$$\begin{bmatrix} J_x \\ J_y \end{bmatrix} = \sigma_D \begin{bmatrix} \frac{1}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} & \frac{-\omega_c \tau_m}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} \\ \frac{\omega_c \tau_m}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} & \frac{1}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix}, \tag{A.4}$$

sendo $\sigma_D = e^2 \tau_m n_{2D}/m$ a condutividade de Drude.

Identificando o tensor de condutividade σ pela expressão $\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}$, definimos as componentes,

$$\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_D \frac{1}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} = \frac{e n_{2D}}{B} \left(\frac{\omega_c \tau_m}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} \right), \tag{A.5}$$

$$\sigma_{yx} = -\sigma_{xy} = \sigma_D \frac{\omega_c \tau_m}{1 + \omega_c^2 \tau_m^2} = \frac{e n_{2D}}{B} + \frac{1}{\omega_c \tau_m} \sigma_{xx}. \tag{A.6}$$

No regime clássico, a taxa de espalhamento τ_m^{-1} é alta e o campo magnético é baixo, portanto tomaremos o limite $\omega_c \tau_m \ll 1$. Neste limite, o tensor de resistividade $\rho = \sigma^{-1}$, definido por $\mathbf{E} = \rho \mathbf{J}$, é dado por

$$\boldsymbol{\rho} = \begin{pmatrix} \sigma_D^{-1} & \frac{-B}{en_{2D}} \\ \frac{B}{en_{2D}} & \sigma_D^{-1} \end{pmatrix}. \tag{A.7}$$

Podemos ainda reescrever as componentes como $\rho_{xx} = \rho_{yy} = 1/en_{2D}\mu$ e $\rho_{yx} = -\rho_{xy} = B/en_{2D}$, sendo $\mu = e\tau_m/m$ a mobilidade dos elétrons. Assim, as medidas do efeito Hall clássico, Fig. A.1(b), fornecem a mobilidade e a densidade bidimensional do gás de elétrons.

Apêndice B Relação de Einstein para a condutividade

Nesta seção buscamos relacionar a condutividade longitudinal σ_{xx} com a densidade de estados do material: relação de Einstein para a condutividade (135). Veremos que para campo magnético nulo, a relação de Einstein recupera a condutividade de Drude σ_D , enquanto que para campo finito recuperamos, a menos de prefatores, a expressão obtida por Ando (23) para o regime de efeito Hall quântico inteiro via teoria de perturbação.

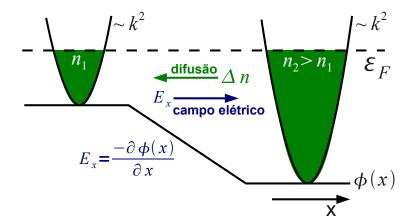


Figura B.1 – Sistema hipotético em equilíbrio térmico (nível de Fermi ε_F único). No diagrama $\phi(x)$ representa a queda de potencial ao longo da direção x, resultando no campo elétrico E_x . As relações de dispersão $\sim k^2$ preenchidas até ε_F exibem a diferença de densidades $\Delta n = n_2 - n_1$ ao longo do sistema. Em equilíbrio térmico, a corrente devido ao campo elétrico (drift) cancela exatamente a corrente devido a diferença de densidades (difusão).

Dado um sistema qualquer, como o da Fig. B.1, a densidade de corrente pode ser escrita como

$$J_x = \sigma E_x - eD \frac{\partial n_{2D}(x)}{\partial x},\tag{B.1}$$

sendo σ a condutividade que queremos obter, E_x o campo elétrico devido a queda de potencial $\phi(x)$, $n_{2D}(x)$ a densidade bidimensional de elétrons transversal a direção da corrente, $D=\frac{1}{2}v_m^2\tau_m$ a constante de difusão, v_m é a velocidade média entre colisões e τ_m o tempo médio entre colisões. O primeiro termo da equação acima representa a

corrente devido a diferença de potencial ao longo da amostra (drift). O segundo termo é a contribuição da difusão, devido à variação da densidade. Em equilíbrio térmico a corrente através do sistema deve ser nula, $J_x = 0$, portanto $\sigma E_x = eDn'_{2D}(x)$, sendo $n'_{2D}(x)$ a derivada da densidade.

Considerando-se que a variação da densidade ocorre devido a queda de potencial $\phi(x)$, temos que $n_{2D}(x) \equiv n_{2D}[e\phi(x)]$. No regime de resposta linear, $\phi(x) \to \text{constante}$, e baixas temperaturas $n'_{2D}(x) \sim eg(\varepsilon_F)E_x$, sendo $g(\varepsilon_F)$ a densidade de estados no nível de Fermi. Com estas considerações obtemos a relação de Einstein para a condutividade

$$\sigma = e^2 D g(\varepsilon_F). \tag{B.2}$$

As aproximações feitas para obter esta equação são razoavelmente gerais. Agora aplicamos a relação de Einstein para um gás de elétrons na ausência de campos magnéticos para demonstrar a validade deste modelo simplificado. Na sequência aplicamos para o regime de efeito Hall quântico inteiro, obtendo a expressão derivada por Ando através do formalismo de Kubo.

Condutividade de Drude

Consideraremos um gás de elétrons bidimensional no regime de resposta linear e baixas temperaturas. Na ausência de campos magnéticos, a densidade de estados é uma constante e a velocidade média entre colisões é aproximadamente a velocidade de Fermi, i.e.,

$$g(\varepsilon_F) = m/\pi\hbar^2,$$
 (B.3)

$$v_F = \frac{\hbar}{m} \sqrt{2\pi n_{2D}}. \tag{B.4}$$

Substituindo estas expressões na relação de Einstein, Eq. (B.2), obtemos a condutividade de Drude

$$\sigma = \sigma_D = \frac{e^2 n_{2D} \tau_m}{m}.$$
 (B.5)

Regime de efeito Hall quântico inteiro

Neste regime a difusão se dá pelo espalhamento de orbitas de Landau devido a impurezas. O processo de espalhamento alarga os níveis de Landau, sendo $\tau_m^{-1} = \Gamma/\hbar$ a taxa de espalhamento, e Γ o alargamento dos níveis. A cada espalhamento os elétrons podem mudar de órbita ciclotrônica, avançando em média $\Delta X = \sqrt{2n+1} \ell$, sendo $\ell = \hbar/eB$ o comprimento magnético das órbitas e n o índice do nível de Landau. A velocidade média entre colisões é dada por $v_m = \Delta X/\tau_m$.

Para a densidade de estados, consideramos o alargamento gaussiano devido a impurezas,

$$g(\varepsilon_F) = \frac{eB}{h} \frac{\exp[-(\varepsilon_F - \varepsilon_n)^2 / 2\Gamma]}{\sqrt{2\pi} \Gamma},$$
 (B.6)

sendo ε_n a energia do nível de Landau de índice n.

Substituindo as expressões acima na relação de Einstein, Eq. (B.2) obtemos

$$\sigma = \frac{(n+1/2)}{2\pi^2 \sqrt{2\pi} \hbar} \exp[-(\varepsilon_F - \varepsilon_n)^2 / 2\Gamma].$$
 (B.7)

Esta expressão concorda qualitativamente com a condutividade longitudinal σ_{xx} obtida por Ando (23).

Apêndice C Troca & correlação e os determinantes de Slater

Para comparar os funcionais de troca e correlação com uma descrição tipo Hartree-Fock, considere uma função de onda de muitos corpos dada pela combinação linear de determinantes de Slater [método conhecido como "interação de configurações" (CI), do inglês configuration interaction]. Para simplificar, consideraremos um sistema de dois elétrons com coordenadas \mathbf{r}_1 e \mathbf{r}_2 e três orbitais $A(\mathbf{r})$, $B(\mathbf{r})$, e $C(\mathbf{r})$, sendo que a função de onda de muitos corpos é dada por

$$\psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = N \left\{ \alpha \begin{vmatrix} A(\mathbf{r}_1) & B(\mathbf{r}_1) \\ A(\mathbf{r}_2) & B(\mathbf{r}_2) \end{vmatrix} + \beta \begin{vmatrix} A(\mathbf{r}_1) & C(\mathbf{r}_1) \\ A(\mathbf{r}_2) & C(\mathbf{r}_2) \end{vmatrix} + \gamma \begin{vmatrix} C(\mathbf{r}_1) & B(\mathbf{r}_1) \\ C(\mathbf{r}_2) & B(\mathbf{r}_2) \end{vmatrix} \right\}, \quad (C.1)$$

sendo N a constante de normalização, e α , β , e γ os coeficientes da combinação linear.

O funcional de energia cinética interagente atua apenas em uma partícula de cada vez, ou seja, termos onde as partículas são trocadas não contribuem. Assim, para este funcional há contribuições de dois tipos:

$$T = -\frac{\hbar^2}{2m} \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \psi^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \left\{ \nabla_1^2 + \nabla_2^2 \right\} \psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = T_S + T_C, \tag{C.2}$$

sendo que T_S contém contribuições que não misturam determinantes de Slater,

$$T_S \propto (|\alpha|^2 + |\beta|^2) \int A^*(\mathbf{r}) \nabla^2 A(\mathbf{r}) d\mathbf{r} +$$

$$(|\alpha|^2 + |\gamma|^2) \int B^*(\mathbf{r}) \nabla^2 B(\mathbf{r}) d\mathbf{r} +$$

$$(|\beta|^2 + |\gamma|^2) \int C^*(\mathbf{r}) \nabla^2 C(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (C.3)$$

e T_C contém as contribuições que misturam os determinantes de Slater,

$$T_C \propto \alpha^* \beta \int B^*(\mathbf{r}) \nabla^2 C(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + \alpha^* \gamma \int A^*(\mathbf{r}) \nabla^2 C(\mathbf{r}) d\mathbf{r} +$$
$$\beta^* \gamma \int A^*(\mathbf{r}) \nabla^2 B(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + \text{c.c.} \quad (C.4)$$

Neste caso T_S é exatamente o resultado esperado para o funcional de energia cinética não-interagente. Portanto apenas o termo de correlação T_C contribui para $E_C[n(\mathbf{r})]$.

Já para o funcional da interação Coulombiana, o operador atua nas duas partículas e podemos identificar três contribuições distintas,

$$U = \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \psi^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \left\{ \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \right\} \psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = U_H + U_F + U_{XC}.$$
 (C.5)

Os termos de Hartree U_H e de troca tipo Fock U_F contém contribuições de elementos que não misturam determinantes de Slater,

$$U_{H} \propto |\alpha|^{2} \int d\mathbf{r}_{1} \int d\mathbf{r}_{2} A^{*}(\mathbf{r}_{1}) B^{*}(\mathbf{r}_{2}) \frac{e^{2}}{|\mathbf{r}_{1} - \mathbf{r}_{2}|} A(\mathbf{r}_{1}) B(\mathbf{r}_{2}) +$$

$$|\beta|^{2} \int d\mathbf{r}_{1} \int d\mathbf{r}_{2} A^{*}(\mathbf{r}_{1}) C^{*}(\mathbf{r}_{2}) \frac{e^{2}}{|\mathbf{r}_{1} - \mathbf{r}_{2}|} A(\mathbf{r}_{1}) C(\mathbf{r}_{2}) +$$

$$|\gamma|^{2} \int d\mathbf{r}_{1} \int d\mathbf{r}_{2} B^{*}(\mathbf{r}_{1}) C^{*}(\mathbf{r}_{2}) \frac{e^{2}}{|\mathbf{r}_{1} - \mathbf{r}_{2}|} B(\mathbf{r}_{1}) C(\mathbf{r}_{2}), \quad (C.6)$$

$$U_F \propto -|\alpha|^2 \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 A^*(\mathbf{r}_1) B^*(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} A(\mathbf{r}_2) B(\mathbf{r}_1) - |\beta|^2 \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 A^*(\mathbf{r}_1) C^*(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} A(\mathbf{r}_2) C(\mathbf{r}_1) - |\gamma|^2 \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 B^*(\mathbf{r}_1) C^*(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} B(\mathbf{r}_2) C(\mathbf{r}_1). \quad (C.7)$$

O terceiro termo da interação de Coulomb, U_{XC} , possui as contribuições que misturam determinantes de Slater. Omitimos a expressão aqui por conter muitos termos.

Dadas estas definições, o funcional de troca é usualmente dado por $E_X = U_F$ e o de correlação por $E_C = T_C + U_{XC}$. No método Hartree-Fock considera-se apenas um determinante de Slater, assim $T_C = 0$ e $U_{XC} = 0$ e portanto $E_C = 0$. Entretanto, como o procedimento de minimização da energia no método Hartree-Fock e na DFT são diferentes

[e.g. as equações de Hartree-Fock são não-locais, enquanto as da DFT são locais], resultados da DFT usando apenas E_X são próximos, mas não equivalentes a Hartree-Fock.

É importante ressaltar que estas definições não são universais, e representam apenas uma maneira de definir e compreender as diversas contribuições do funcional de troca e correlação.

Apêndice D Cálculo da densidade de estados

Ando publicou no começo dos anos 80 três artigos sobre a DOS em 2DEGs no regime de efeito Hall quântico, Refs. (24–26). Nestes trabalhos, Ando considerou dois regimes: (i) para altos campos magnéticos a separação dos níveis de Landau é maior que o alargamento gerado pelas impurezas, tal que pode-se considerar níveis de Landau isolados nos cálculos; (ii) a baixos campos magnéticos a separação entre os níveis de Landau é menor e o acoplamento entre diferentes níveis de Landau devido ao espalhamento pelas impurezas deve ser considerado. No primeiro caso, demonstrou-se que a densidade de estados é uma distribuição gaussiana com os estados estendidos na região central, e estados localizados nas regiões laterais. No segundo caso, Ando estudou a redistribuição dos estados localizados no limite de baixos campos magnéticos.

Todos os cálculos atuais da densidade de estados no regime Hall quântico referem-se a sistemas de uma subbanda. Porém, nos sistemas estudados nesta tese tratamos caso de duas subbandas ocupadas com cruzamentos de níveis de Landau. Aqui, aplicamos o modelo de Ando (24) para o cálculo numérico da densidade de estados aplicado no caso de duas subbandas, próximo ao cruzamento de níveis de Landau. Observamos que próximo dos cruzamentos podemos esperar um desvio da distribuição gaussiana, com uma tendência a formar uma estrutura do tipo "cruzamento-evitado" (anticrossing). Porém, devido a limitações computacionais os resultados são meramente qualitativos e no restante desta tese assumimos que a densidade de estados é dada simplesmente pela distribuições gaussianas do modelo original de Ando, desconsiderando os efeitos dos acoplamentos entre níveis de Landau discutidos aqui.

Descrição do modelo

Uma subbanda:

Consideremos um gás de elétrons bidimensional, projetado no plano xy, sobre ação de um campo magnético perpendicular ao plano $\mathbf{B} = B\hat{z}$ e condições de contorno periódicas no plano, sendo $L \times L$ as dimensões da cela unitária. Utilizando-se o gauge de Landau para o potencial vetor, $\mathbf{A} = xB\hat{y}$, o Hamiltoneano H_0 , energias E_N e funções de onda $\psi_N^X(x,y)$ são:

$$H_0 = \frac{p_x^2}{2m} + \frac{1}{2m} (p_y - exB)^2,$$
 (D.1)

$$E_N = \left(N + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega_c, \tag{D.2}$$

$$\psi_N^X(x,y) = \frac{1}{\sqrt{M}} \sum_m \phi_N^{X-mL}(x,y), \tag{D.3}$$

sendo N o nível de Landau, $\omega_c = eB/m$ a frequência de cíclotron, $X = k_y \ell_0^2$, $\ell_0 = \sqrt{\hbar/eB}$ o comprimento magnético, M o número de celas, $\phi_N^X(x,y)$ é a solução de H_0 para uma cela,

$$\phi_N^X(x,y) = \frac{1}{\sqrt{L}} \chi_N(x-X) e^{-iXy/\ell_0^2},$$

$$\chi_N(x) = \frac{1}{[2^N N! \sqrt{\pi} \ell_0]^{1/2}} H_N(x/\ell_0) e^{-x^2/2\ell_0^2},$$
(D.4)

e $H_N(x)$ são os polinômios de Hermite. Devido as condições periódicas, o vetor de onda $X = k_y \ell_0^2$ assume valores discretos, $[X = j\Delta X \mid 0 \le j \le N_x = L^2/2\pi \ell_0^2 = L^2 eB/h]$ e $\Delta X = 2\pi \ell_0^2/L$, definindo a degenerescência dos níveis de Landau na cela $L \times L$.

Antes de continuar, definimos o $ket\ |N,X\rangle,$ tal que $\langle x,y|N,X\rangle=\psi_N^X(x,y).$

Por simplicidade, consideraremos um perfil de impurezas de curto alcance $V_{cela}(x,y)$ distribuídas aleatoriamente na cela $L \times L$, $V_{cela}(x,y) = \sum_i V_i \delta(x-x_i) \delta(y-y_i)$, e somá-lo para as M celas, definindo o potencial de impurezas periódico,

$$V(x,y) = \sum_{m} \sum_{m'} V_{cela}(x - mL, y - m'L).$$
 (D.5)

Este potencial de impurezas será tratado como uma perturbação sobre o Hamiltoniano H_0 . Assim, definimos o Hamiltoniano do sistema perturbado,

$$H = H_0 + V(x, y), \tag{D.6}$$

$$H = \sum_{NX} |N, X\rangle E_N \langle N, X| + \sum_{NX} \sum_{N'X'} |N, X\rangle \langle N, X| V(x, y) |N', X'\rangle \langle N', X'|, \text{ (D.7)}$$

sendo que a segunda equação esta escrita na base de H_0 .

Passamos agora para o cálculo do elemento de matriz do potencial de impurezas,

$$V_{NX}^{N'X'} = \langle N, X | V(x,y) | N', X' \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \psi_{NX}^*(x,y) V(x,y) \psi_{N'X'}(x,y) dx dy.$$
 (D.8)

Substituindo as expressões de V(x,y) e $\psi_{NX}(x,y)$ definidas anteriormente, obtemos:

$$V_{NX}^{N'X'} = \sum_{m,m'} \sum_{p,p'} \frac{1}{M} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \phi_{NX-pL}^{*}(x,y) V_{cela}(x - mL, y - m'L) \phi_{N'X'-p'L}(x,y) dx dy,$$
(D.9)

lembrando que $\phi_{NX-pL}(x,y)$ é localizada na cela p. Note que as funções no argumento das integrais são localizadas nas celas p, m e p', limitando as somatórias a primeiros vizinhos, simplifica-se a expressão, obtendo-se:

$$V_{NX}^{N'X'} = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \phi_{NX}^{*}(x,y) \left[V_{cela}(x,y) + V_{cela}(x+L,y) + V_{cela}(x-L,y) \right] \phi_{N'X'}(x,y) dxdy +$$

$$+ \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \phi_{NX}^{*}(x,y) \left[V_{cela}(x,y) + V_{cela}(x-L,y) \right] \phi_{N'X'+L}(x,y) dxdy +$$

$$+ \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \phi_{NX}^{*}(x,y) \left[V_{cela}(x,y) + V_{cela}(x+L,y) \right] \phi_{N'X'-L}(x,y) dxdy.$$
(D.10)

Aqui consideramos apenas o caso de impurezas de curto alcance, tal que o potencial $V_{cela}(x,y)$ é uma somatória de distribuições Delta-Dirac, simplificando-se as integrais. Esta consideração é necessária por questões computacionais, pois no caso de duas subbandas o cálculo dos elementos de matriz torna-se uma grande limitação computacional.

Duas subbandas:

A descrição acima segue o modelo 2D original de Ando, onde o sistema é todo projetado na primeira subbanda. Porém, a generalização para duas subbandas é imediata, basta adicionar o indice de subbanda j e componente z das funções de onda nas definições do Hamiltoniano e elementos de matriz,

$$H = \sum_{jNX} |j, N, X\rangle E_{j,N}\langle j, N, X|$$

$$+ \sum_{jNX} \sum_{j'N'X'} |j, N, X\rangle \langle j, N, X| V(x, y, z) |j', N', X'\rangle \langle j', N', X'|, \quad (D.11)$$

$$V_{jNX}^{j'N'X'} = \int \phi_{jNX}^*(\mathbf{r}) \left[V_{cela}(\mathbf{r}) + V_{cela}(x+L,y,z) + V_{cela}(x-L,y,z) \right] \phi_{j'N'X'}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

$$+ \int \phi_{jNX}^*(\mathbf{r}) \left[V_{cela}(\mathbf{r}) + V_{cela}(x-L,y,z) \right] \phi_{j'N'X'+L}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

$$+ \int \phi_{jNX}^*(\mathbf{r}) \left[V_{cela}(\mathbf{r}) + V_{cela}(x+L,y,z) \right] \phi_{j'N'X'-L}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (D.12)$$

Note que neste caso a distruibuição de impurezas é tridimensional, aumentando demasiadamente o número de elementos de matriz a ser calculado e limitando o modelo devido ao alto custo computacional.

Resultados

Uma subbanda: níveis de Landau independentes

A densidade de estados é calculada como o histograma de energias do Hamiltoniano perturbado $H = H_0 + V$. Diagonalizamos H para vários ensembles de impurezas aleatórias, calculando o histograma referente ao conjunto de todas as energias obtidas. Na Fig. D.1 vemos alguns dos resultados obtidos.

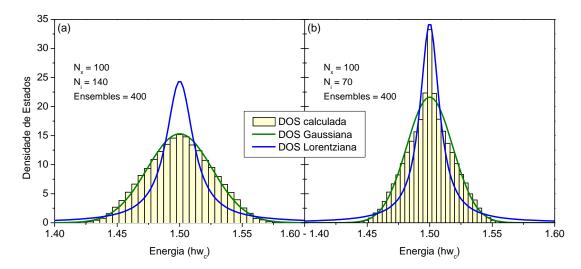


Figura D.1 – Densidade de estados calculada segundo o modelo de Ando (24). Para altas densidades de impurezas [Quadro (a)] a densidade de estados é uma distribuição gaussiana, mas para baixas densidades [Quadro (b)] uma lorentziana ajusta melhor a região central, enquanto a gaussiana ajusta as regiões laterais.

Para densidades de impurezas altas [Fig. D.1(a)], obtemos uma forma Gaussiana bem definida; mas para densidades mais baixas [Fig. D.1(b)], observamos um formato indefinido entre as duas distribuições. Esta distinção ocorre por que a baixas densidades de impurezas a perturbação do sistema é muito pequena e temos a formação de bandas de impurezas nas regiões laterais, e estados pouco perturbados na região central. Para densidades de impurezas maiores as bandas se hibridizam, gerando a distribuição gaussiana.

Calculamos o grau de localização dos estados através do fator de participação,

$$\alpha = \sum_{n} |a_n|^4, \tag{D.13}$$

sendo a_n os coeficientes função de onda perturbada na base de H_0 . Estados localizados são caracterizados por valores maiores de α , enquanto os estendidos mostram valores menores de α . Na Fig. D.2 vemos que os estados estendidos concentram-se na região central da distribuição gaussiana.

Duas subbandas: acoplamento entre níveis de Landau

No caso de duas subbandas consideramos o ponto de cruzamento de níveis de Landau referente a subbandas distintas. A Figura D.3 mostra que o acoplamento entre níveis de Landau modifica a distribuição da densidade de estados gaussiana, indicando uma tendência a evitar o cruzamento.

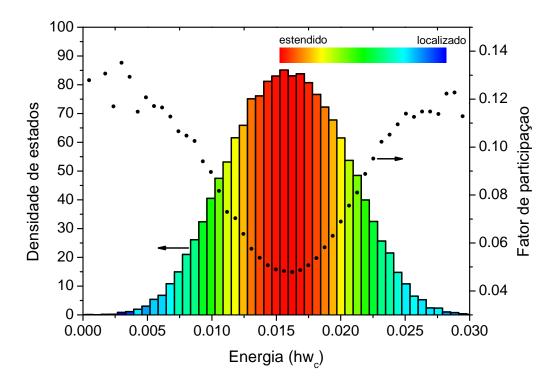


Figura D.2 – Distribuição gaussiana da densidade de estados destacando a distinção entre estados estendidos (região central) e localizados (regiões laterais).

A integral referente a direção z nos elementos de matriz do modelo geram um aumento demasiado do custo computacional do modelo, tal que aproximações extras são necessárias. No resultado apresentado na sequência, substituímos esta integral por valores efetivos que descrevem a intensidade do acoplamento entre os níveis de Landau. Os valores são arbitrários e os resultados devem ser interpretados apenas como uma referência do comportamento esperado neste sistema.

No resultado apresentado na Fig. D.3 a intensidade do acoplamento foi intencionalmente exagerada para exibir com maior clareza o resultado. Porém, de forma geral o acoplamento esperado é pequeno devido a ortogonalidade das funções de onda da primeira e segunda subbandas.

No futuro pretendemos elaborar melhor o modelo descrito aqui a fim de obter resultados mais conclusivos. No momento, nesta tese, consideramos que o acoplamento é desprezível e descrevemos a densidade de estados através das distribuições gaussianas obtidas no caso de níveis de Landau independentes.

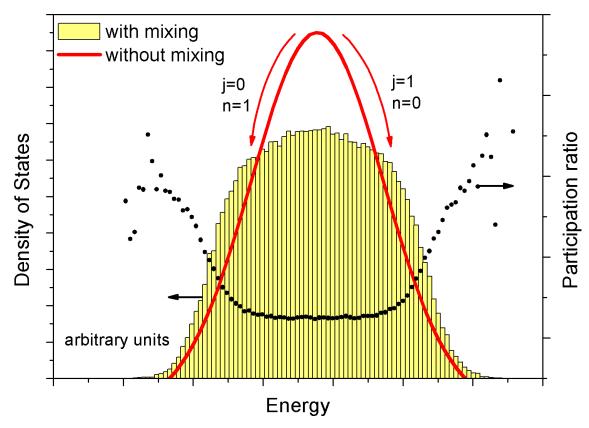


Figura D.3 – Distribuição da densidade de estados no ponto de cruzamento de dois níveis de Landau de subbandas distintas. A curva vermelha mostra a soma de duas distribuições gaussianas referentes a distribuição esperada dos níveis independentes. O histograma em amarelo mostra o resultado obtido considerando-se o acoplamento entre níveis de Landau pelo espalhamento por impurezas de curto alcance.