UNIVERSIDADE FEDERAL DE ALAGOAS INSTITUTO DE FÍSICA

VALDEMIR LINO CHAVES FILHO

INSTABILIDADE MODULACIONAL E AUTO-ARMADILHAMENTO EM REDES NÃO LINEARES DE BAIXA DIMENSIONALIDADE

VALDEMIR LINO CHAVES FILHO

INSTABILIDADE MODULACIONAL E AUTO-ARMADILHAMENTO EM REDES NÃO LINEARES DE BAIXA DIMENSIONALIDADE

Tese apresentada ao Instituto de Física da Universidade Federal de Alagoas, como parte dos créditos para a obtenção do título de Doutor em Física da Matéria Condensada.

Orientador: Prof. Marcelo Leite Lyra Co-Orientador: Prof. Rodrigo de Paula Almeida Lima

Maceió 2015

Catalogação na fonte Universidade Federal de Alagoas Biblioteca Central

Bibliotecária Responsável: Janaina Xisto de Barros Lima

C527i Chaves Filho, Valdemir Lino.

Instabilidade modulacional e auto-armadilhamento em redes não lineares de baixa dimensionalidade / Valdemir Lino Chaves Filho. – 2015.

116 f.: il. grafs.

Orientador: Marcelo Leite Lyra

Coorientador: Rodrigo de Paula Almeida Lima.

Tese (doutorado em Física da Matéria Condensada) – Universidade Federal de Alagoas. Instituto de Física. Maceió, 2017.

Bibliografia: f. 66-74. Apêndice: f. 75-82. Anexo: f. 83-116.

1. Instabilidade modulacional. 2. Auto-armadilhamento. 3. Sistemas discretos lineares de baixa dimensionalidade. 4. Elétron-fônon. I. Título.

CDU: 538.935



AGRADECIMENTOS

- Agradeço a todos os professores e professoras que tive no ensino básico, principalmente aos que colaboraram de forma decisiva na minha formação pessoal e profissional.
- Agradeço aos professores do Departamento de Física da Universidade Federal Rural de Pernambuco (UFRPE) e da pós-graduação em Física Aplicada, também da UFRPE, pela formação, exemplos e incentivos.
- Agradeço aos professores da pós-graduação em Física da Matéria Condensada da UFAL
 pela dedicação na condução dos trabalhos dentro e fora de sala de aula. Especialmente,
 ao professor Dr. Marcelo Leite Lyra e ao professor Dr. Rodrigo de Lima P. Almeida,
 pela orientação durante todo curso, pela confiança e pelos incentivos.
- Agradeço aos meus familiares e amigos pelo apoio que sempre me foi dado, mesmo estando distantes.
- Agradeço aos colegas de curso pela convivência respeitosa, cooperativa e produtiva.
- Agradeço aos colegas do Instituto Federal de Alagoas (IFAL) pelo apoio que sempre me foi dado.
- Agradeço à Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (Capes), pelo apoio financeiro parcial neste projeto.
- Agradeço aos servidores administrativos do Instituto de Física da UFAL pelo suporte prestado sempre que necessário.

Resumo

O estudo de ondas dinâmicas em meios não lineares é um tema que está diretamente relacionado com vários fenômenos em óptica, condensados de Bose-Einstein e física da matéria condensada. A resposta de um meio não linear geralmente atua junto com contribuições dispersivas para promover a formação de ondas localizadas estáveis. No entanto, mecanismos físicos distintos entram em jogo dependendo do perfil da onda inicial. Auto-armadilhamento é o principal mecanismo atuando em ondas inicialmente localizadas, enquanto a instabilidade modulacional desencadeia a localização de ondas inicialmente largas. No presente estudo, mostramos que a ação combinada entre esses dois mecanismos físicos atuando sobre os pacotes de onda conduz a dinâmicas de ondas bastante distintas em uma e em duas dimensões. Nós demonstramos que, enquanto ocorre uma transição direta entre ondas estendidas e localizadas em duas dimensões, existe um regime intermediário com dinâmica do tipo caótica em cadeias lineares. Além disso, investigamos a influência da interação elétron-fônon na estabilidade de pacotes de onda eletrônicos em diversos tipos de fulerenos. Nós usamos a equação de Schrödinger não linear efetiva para simular o acoplamento da interação elétronfônon nessas topologias. Através de soluções numéricas da equação não linear dinâmica para um pacote de onda inicialmente uniforme, mostramos que, enquanto o acoplamento não linear crítico acima do qual ele permanece instável decresce continuamente com o tamanho da cadeia linear, ele satura em um valor finito para fulerenos. Também fornecemos argumentos analíticos para fundamentar esses resultados baseados na análise da instabilidade modulacional. Finalmente, estudamos a dinâmica de pacotes de onda de um elétron na topologia do fulereno C_{60} com uma relaxação na não linearidade. Consideramos que a dinâmica eletrônica é governada pela equação não linear discreta de Schrödinger no qual a contribuição não linear obedece a um processo de relação do tipo Debye. Acompanhamos a evolução temporal do pacote de onda e usamos o número de participação associado para avaliar sua extensão espacial. Considerando condições iniciais distintas, caracterizamos a transição delocalização/auto-armadilhamento como função da intensidade não linear e do tempo de relaxação. Mostramos que o diagrama de fase exibe um padrão complexo de pontas que sinalizam um comportamento re-entrante das transições que são fortemente sensíveis às distribuições iniciais do pacote de onda. As re-entrâncias tornam-se menos proeminentes para condições iniciais nas quais os sítios agrupados são espacialmente distribuídos sobre sítios opostos.

Palavras-chave: Instabilidade modulacional, Auto-armadilhamento, Sistemas discretos não lineares de baixa dimensionalidade.

Abstract

Wave dynamics in nonlinear media is a subject directly related to several phenomena in optics, Bose-Einstein condensates and condensed matter physics. The response of a nonlinear medium usually acts together with dispersive contributions to promote the formation of stable localized waves. However, distinct physical mechanisms come into play depending on the initial wave profile. Self-trapping is the main mechanism acting on an initially localized waves, while modulational instability triggers the localization of initially wide waves. In the present study, we show that the interplay between these two physical mechanisms acting on wavepackets leads to quite distinct wave dynamics in one and two dimensional discrete lattices. We demonstrate that, while a direct transition between extended and localized waves takes place in two-dimensions, there is an intermediate regime of chaotic-like dynamics in linear chains. Beyond that, we investigate the influence of electron-lattice interaction on the stability of uniform electronic wavepackets on several types of fullerenes. We use an effective nonlinear Schrodinger equation to mimic the electron-phonon coupling in these topologies. By solving numerically the nonlinear dynamic equation for an initially uniform electronic wavepacket, we show that while the critical nonlinear coupling above which it becomes unstable continuously decreases with the chain size, it saturates on a finite value in large fullerene buckyballs. We also provide analytical arguments to support these findings based on a modulational instability analysis. Finally, we study the one-electron wavepacket dynamics in a C_{60} buckyball topology with a relaxing nonlinearity. The electron dynamics is considered to be governed by a discrete Schrödinger equation on which the nonlinear contribution obeys a Debye-like relaxation process. We follow the temporal evolution of the wavepacket and use the associated participation number to probe its spatial extension. By considering distinct initial conditions, we characterize the delocalization/self-trapping transition as a function of the nonlinear strength and relaxation time. We show that the phase-diagram exhibits a complex pattern of tongues signaling a re-entrant behavior of the transition which is strongly sensitive to the initial wavepacket distribution. The re-entrances become less prominent for initial conditions which are spatially distributed over opposite clusters.

Keywords: Modulational Instability, Self-trapping, Electron-phonon, Nonlinearity, Relaxation

3.1	Acima: evolução de um trem de onda não linear no decorrer da instabilidade modulacional. Abaixo: a evolução do espectro de onda correspondente	29
4.1	Evolução temporal do número de participação normalizado $P(t)/N$ de uma função de onda inicialmente uniforme em uma cadeia linear com $N=L=100$ sítios para três valores representativos do acoplamento não linear. Notase que há um regime oscilatório (batimentos) intermediário entre o regime estável com solução uniforme e o regime de solução fortemente localizada. A transição do regime estável para as soluções-batimentos ocorre próximo de $\chi_{IM}=0.20$, em acordo com a previsão analítica baseada na análise da instabilidade modulacional. Soluções localizadas surgem acima de $\chi_{AA}\simeq 4$.	38
4.2	Estimativa numérica do acoplamento não linear característico da instabilidade modulacional $\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ versus comprimento da cadeia linear. A linha tracejada corresponde à previsão analítica $\chi_{\scriptscriptstyle IM}=2\pi^2/L$	39
4.3	Tempo característico normalizado da instabilidade τ/L^2 de uma função de onda inicialmente uniforme versus $\Delta\chi=(\chi-\chi_{\scriptscriptstyle IM})/\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ obtido para cadeias lineares de tamanhos distintos. A linha tracejada corresponde à previsão baseada na análise da instabilidade modulacional $\tau/L^2=(1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$	39
4.4	Evolução temporal da distribuição de probabilidades da função de onda em uma cadeia linear com $N=100$ sítios para alguns valores representativos do acoplamento não linear acima da transição da instabilidade modulacional. $\chi=0.29$: Logo acima da transição da IM, um padrão bastante regular de batimento ocorre entre o estado uniforme e o localizado. $\chi=1.0$: Os batimentos tornam-se mais complexos com oscilações entre estados localizados distintos. $\chi=3.0$: Como uma parte adicional da IM, oscilações do tipo caóticas entre vários estados localizados são desenvolvidas. $\chi=4.5$: Acima de χ_{AA} uma solução localizada estacionária emerge após um tempo transiente	
	com oscilações do tipo caóticas.	40

4.5	Perfis típicos da norma da função de onda e da fase dos batimentos e dos estados auto-armadilhados que aparecem durante a evolução temporal em diferentes regimes de não linearidades: a) Para $\chi=0.29$, logo acima do limiar de instabilidade modulacional, o pacote de onda desenvolve um único batimento com um perfil suave de fase; b) Para $\chi=1.0$ as oscilações regulares desenvolvem-se com dois batimentos de fases aproximadamente opostas; c) Para $\chi=3.0$ surgem três batimentos, mas as amplitudes e os perfis da fase evoluem irregularmente no tempo; d) Para $\chi=4.5$ o pacote de onda evolui para um estado fortemente localizado exibindo um único pico. O perfil da fase é aleatório exceto nas proximidades o pico do pacote de onda. As amplitudes quadradas são mostradas em unidades arbitrárias para uma melhor visualização.	41
4.6	Algumas órbitas representativas no espaço de fase do número de participação $dP(t)/dt \times P(t)$ obtido em uma cadeia linear com $N=100$ sítios no intervalo $80000 < t < 100000$. $\chi=0,29$: As órbitas fechadas simples sinalizam um padrão de $breathing$ regular da função de onda. $\chi=1,0$: As órbitas tornam-se instáveis mas as oscilações são aproximadamente regulares. $\chi=1,6$: Oscilações do tipo caóticas são desenvolvidas. $\chi=4,5$: As órbitas convergem para um único ponto indicando a localização assintótica da função de onda	42
4.7	Diagrama mostrando o número de participação normalizado mínimo versus χ obtido de uma função de onda inicialmente uniforme, evoluindo em uma cadeia linear com $N=100$ sítios. O único mínimo surgindo para pequenos χ sinaliza o surgimento da instabilidade modulacional. Um padrão caótico separa os regimes de funções de onda uniformes e localizadas	43
4.8	Evolução temporal do número de participação normalizado $P(t)/N$ de uma função de onda inicialmente uniforme em uma rede quadrada com $N=L^2=2500$ sítios para três valores representativos do acoplamento não linear. Notase que há uma transição direta entre o regime estável uniforme e o regime de solução estacionária fortemente localizada. A transição ocorre próximo de $\chi_{IM}=19.7$, em acordo com a previsão analítica baseada na análise da instabilidade modulacional. O tempo característico para a localização decresce com χ à medida que nos afastamos de χ_{IM}	44
4.9	Acoplamento não linear característico da instabilidade modulacional χ_{IM} versus o número de sítios da rede quadrada. O pequeno desvio da previsão analítica (linha tracejada) sinaliza a limitação da aproximação contínua para	
	descrever as dinâmicas em redes discretas pequenas	45

4.10	Tempo característico normalizado da instabilidade τ/N de uma função de onda inicialmente uniforme versus $\Delta\chi=(\chi-\chi_{\scriptscriptstyle IM})/\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ obtido para redes quadradas de tamanhos distintos. A linha tracejada corresponde à previsão baseada na análise da instabilidade modulacional $\tau/N=(1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$	46
4.11	Diagrama mostrando o número de participação mínima normalizada versus χ obtido a partir da evolução temporal de um pacote de onda inicialmente distribuído uniformemente sobre todos os sítios. a) Fita estreita com $N=50\times 5$ sítios. O comportamento é bastante similar ao das cadeias lineares, mostrando regimes com soluções estáveis e uniformes, batimentos regulares, comportamento do tipo caótico e auto-armadilhamento. b) Fitas mais largas com $N=50\times 20$ até $N=50\times 40$. Nesses casos, o regime do tipo caótico é ausente e o regime de batimentos regulares é reduzido até que a geometria de redes quadradas é alcançada	47
4.12	Número de participação normalizado $P(t)/N$ versus tempo t para cadeias lineares com $N=50$ e $\chi=0.3$ e $\chi=0.6$. Em nossos cálculos, consideramos o pacote de onda inicialmente distribuído sobre todos os sítios da cadeia linear. Além disso, o pacote de onda inicial possui $\phi_n=1/N$ onde N é o número total de sítios. Observamos que para $\chi=0.3$, o número de participação é constante durante todos o intervalo de tempo considerado, portanto indicando que o pacote de onda é estável. Para $\chi=0.6$ o número de participação exibe um fortes oscilações, sinalizando a instabilidade do pacote de onda uniforme.	49
4.13	a) Número de participação normalizado $P(t)/N$ versus o tempo t para cadeias lineares com tamanhos distintos e grau de não linearidade $\chi=0.45$. Observamos que para $N=40$, tal acoplamento não linear é suficiente para manter a estabilidade do pacote de onda. No entanto, para $N=50$, o estado uniforme torna-se instável e o número de participação desenvolve oscilações, sinalizando um padrão de batimentos. b) Demonstramos que o valor χ_c que separa o estado estável para a fase instável decresce com $1/N$. As barras de erro são menores que o tamanho dos símbolos	50
4.14	Representação esquemática de dois fulerenos, denominados $C60$ e $C180$	51
	Função de participação normalizada $P(t)/N$ versus o tempo t para $\chi=7.0$ e $\chi=7.5$. Consideramos aqui o pacote de onda uniformemente distribuído sobre todos os sítios do $C60$. Podemos observar que $\chi=7.0$ o pacote de onda permanece estável ocupando todo o fulereno. Para $\chi=7.5$, observamos que o pacote de onda localiza-se sobre uma pequena fração de sítios, sinalizando o fenômeno de auto-focalização	51

4.16	Intensidade da não linearidade crítica separando o estado uniforme estável e a fase auto-focalizada como uma função do número de sítios nos fulerenos. O valor crítico χ_c necessário para promover a transição representa uma fraca dependência com o tamanho para os fulerenos	52
4.17	(a) Ilustração de um pacote de onda inicial distribuído uniformemente sobre os sítios de um hexágono. (b-c) Algumas evoluções temporais representativas do número de participação para (b) $\chi=6.5$ e $\tau=0.22,0.45,1.5$; e (c) $\chi=7.5$ e $\tau=0.22,0.45,1.5$. Observamos uma sequência alternada de localização e auto-armadilhamento tanto em função de χ quanto de τ	57
4.18	Diagrama de fase mostrando os regimes auto-armadilhado (regiões pretas) e delocalizado (regiões brancas) no espaço de parâmetros bidimensional (τ,χ) . Esses cálculos foram realizados para o caso no qual o pacote de onda inicial está uniformemente distribuído sobre os sítios de um hexágono	57
4.19	(a) Ilustração de um pacote de onda inicial distribuído uniformemente sobre os sítios de um pentágono. (b-c) Algumas evoluções temporais representativas do número de participação para (b) $\chi=6.1$ e $\tau=0.30,0.61,1.82;$ e (c) $\chi=7.0$ e $\tau=0.30,0.61,1.82.$ Observamos também uma sequência alternada de localização e auto-armadilhamento tanto em função de χ quanto de τ	58
4.20	Diagrama de fase com relação ao espaço de parâmetros bidimensional τ, χ . A região em preto indica o regime auto-armadilhado enquanto a região em branco o regime delocalizado. Esses cálculos foram realizados para o caso no qual o pacote de onda inicial está uniformemente distribuído sobre os sítios de um pentágono	58
4.21	Ilustrações de quatro condições iniciais distintas com o pacote de onda uniformemente distribuído sobre os sítios de (a) um pentágono estendido, (b) de dois pentágonos opostos, (c) de um hexágono estendido e (d) de dois hexágonos opostos	59
4.22	Os diagramas de fase com os parâmetros de espaço bidimensionais τ,χ . Os cálculos foram realizados considerando quatro tipos distintos de condições iniciais: (a) pentágono estendido, (b) dois pentágonos opostos, (c) hexágono estendido e (d) dois hexágonos opostos. É importante notar que as re-entrâncias estão ausentes quando a condição inicial do pacote de onda está distribuído	~
	em um conjunto de sítios opostos	59

Sumário

1	Inti	roduçã	0	13
2 Equação não linear de Schrödinger				18
	2.1	Equaç	ção Não-Linear de Schrödinger com aproximação adiabática	22
	2.2	Equaç	ção Não-Linear de Schrödinger sem aproximação adiabática	24
3	Inst	tabilid	ade Modulacional	27
	3.1	Temp	o Característico	31
4	Inst	tabilid	ade Modulacional e Auto-armadilhamento em redes discretas	35
	4.1	Cadei	as Lineares e Redes Quadradas	35
		4.1.1	Cadeia Linear	37
		4.1.2	Rede Quadrada	44
	4.2	Instab	oilidade modulacional na família de fulerenos	48
		4.2.1	Resultados	48
	4.3	Efeito	da relaxação da não-linearidade no Fulereno C_{60}	53
		4.3.1	Modelo e Formalismo	54
		4.3.2	Resultados e Discussões	55
5	Cor	nclusão		62
\mathbf{R}_{0}	eferê	ncias		66
$\mathbf{A}_{]}$	pênd	ices		75
${f A}$	Dec	lução (da ENLS com a aproximação adiabática	75

Sumário		12
В	Dedução da ENLS sem a aproximação adiabática	80
\mathbf{A}_{1}	nexos	83
\mathbf{A}	Artigo: Stability of uniform electronic wavepackets in chains and fullerenes	- 83
В	Artigo: Interplay between modulational instability and self-trapping of wavepackets in nonlinear discrete lattices	f 93
\mathbf{C}	Artigo: Sensitivity to initial conditions of the self-trapping transition in C_{60} buckyballs with relaxing nonlinearity	1 103

1

Introdução

Quase todos os sistemas conhecidos nas ciências naturais são sistemas não lineares. Um exemplo bem conhecido na física é a mola que, quando seu deslocamento torna-se suficientemente grande, a lei de Hooke deixa de valer e a mola torna-se um oscilador não linear. Um segundo exemplo é o pêndulo simples, que comporta-se linearmente apenas quando o deslocamento angular do pêndulo é pequeno. Existem importantes diferenças qualitativas entre o comportamento de um sistema em seu regime linear ou não linear. Por exemplo, o período de oscilação do pêndulo não depende da amplitude no regime linear enquanto que no regime não linear depende. São diversas áreas em que a não linearidade está presente, tais como, fractais, sistemas complexos, óptica, condensados de Bose-Einstein e supercondutores; apenas para citar algumas.

O surgimento dos computadores ampliou consideravelmente as possibilidades de realização de simulações de sistemas não lineares. Uma das primeiras simulações computacionais em sistemas não lineares foi realizada por Fermi, Pasta e Ulam em 1955 (1). Nesse trabalho, eles investigaram como a energia vibracional se propaga numa cadeia unidimensional de partículas de massa m ligadas por molas ideais, levando em conta forças não lineares. No âmbito da óptica, uma manifestação importante da não linearidade nas fibras ópticas ocorre através dos sólitons ópticos, formados como o resultado da ação combinada entre efeitos dispersivos e não lineares. O termo sóliton refere-se a tipos especiais de ondas planas que podem propagar-se sem distorções por longas distâncias. Sólitons têm sido reportados em muitos ramos da física (2, 3, 4, 5). No contexto de fibras ópticas, os sólitons são de fun-

damental interesse pois possuem aplicações práticas no campo das comunicações por fibras ópticas (6). Um outro sistema no qual a não linearidade desempenha um papel importante é no condensado de Bose-Einstein.

O fenômeno conhecido como condensado de Bose-Einstein (BEC), foi previsto na década de 1920, para sistemas nos quais as partículas obedecem a estatística de Bose e o número total de partículas é conservado. Foi mostrado que existe uma temperatura crítica abaixo da qual uma fração finita de todas as partículas condensam em um mesmo estado quântico. Desde de 1995, o fenômeno BEC tem sido observado utilizando-se diferentes tipos de átomos, confinados em armadilhas magnéticas e resfriados a temperaturas extremamente baixas (7, 8, 9, 10). Do ponto de vista matemático, a dinâmica da função de onda do BEC pode ser descrita por uma equação de campo médio efetiva conhecida como equação de Gross-Pitaevskii (11). Ela é uma equação não linear que leva em conta os efeitos da interação entre as partículas através de um campo médio efetivo. Por causa das similaridades entre a equação de Gross-Pitaevskii na teoria BEC e a equação não linear de Schrödinger em óptica não linear, muitos fenômenos previstos nesta última, são esperados que também ocorram para os BEC, mesmo que a física em questão seja diferente. A descrição teórica completa de um BEC requer uma aproximação quântica de muitos corpos (11). A aproximação de campo médio é comumente usada em sistemas de partículas interagentes para superar o problema de resolver exatamente a equação de Schrödinger para muitos corpos completamente. Além da conveniência de evitar trabalho numérico pesado, teorias de campo médio permitem o entendimento do comportamento de um sistema em termos de um conjunto de parâmetros que tenham um claro significado físico.

A equação não linear de Schrödinger (ENLS), já foi utilizada em várias áreas da física (12, 13, 14, 15, 16). Tem sido mostrado que a equação não linear discreta de Schrödinger (ENLDS) captura o mecanismo da denaturação local de moléculas de DNA (17, 18, 19) e descreve a propagação de pulsos ópticos em guias de ondas acopladas (20, 21) assim como as vibrações em redes anarmônicas (22, 23). Duas áreas que experimentaram avanços significativos com a aplicação da equação não linear discreta de Schrödinger foram a óptica não linear, utilizando-a como modelo para guias de onda acopladas e em condensados de Bose-Einstein (BEC). Uma não linearidade cúbica, também chamada de não linearidade de Kerr, aparece naturalmente

tanto na descrição de condensados de Bose-Einstein quanto na modelagem de uma grande variedade de sistemas ópticos.

No que se refere a óptica não linear, na década de 1980, Jensen sugeriu o uso da ENLDS em sua forma de dímero como modelo para dois guias de onda acopladas (24). Posteriormente, essa estratégia foi adotada para descrever a auto-focalização em matrizes de guias de onda acopladas (20) e, dado o sucesso dessa abordagem, muitos trabalhos posteriores seguiram propondo aplicações em óptica não linear derivadas de propriedades intrínsecas da ENLDS. A partir de 1998, muitos trabalhos experimentais comprovaram previsões teóricas baseadas na ENLDS em guias de onda acopladas, como por exemplo a existência de sólitons espaciais (3) e sólitons discretos propagantes (25).

No contexto do estudo dos condensados de Bose-Einstein, a equação não linear de Schrödinger foi utilizada para, na forma de dímero, modelar dois BECS fracamente acoplados aprisionados em um potencial de duplo poço (15). O progresso dos experimentos em condensados de Bose-Einstein aprisionados em potenciais periódicos (26), possibilitou um desenvolvimento semelhante ao ocorrido em óptica não linear, com a ENLDS sendo proposta como modelo para o referido sistema e diversos fenômenos inspirados em propriedades da dinâmica da ENLDS - como a existência de sólitons/breathers discretos, por exemplo - foram propostos em trabalhos posteriores (27, 28). Alguns desses fenômenos, ainda que sob certas restrições, obtiveram comprovação experimental (29, 30).

Com base no trabalho de Holstein (31), que descreve a propagação de um polaron em um cristal molecular, pode-se demonstrar a equação não linear discreta de Schrödinger (ENLDS). Nesse modelo proposto por Holstein, considera-se uma excitação (o polaron) propagando-se em um cristal unidimensional (a rede) interagindo com as vibrações da rede (os fônons), descritas como osciladores harmônicos. Ao assumir que os fons da rede possuem um pequeno movimento oscilatório em torno do ponto de equilíbrio, torna-se necessário levar em consideração a existência de modos vibracionais da rede, denominados fônons. A interação da função de onda eletrônica com a rede originará um tipo de interação, conhecida como interação elétron-fônon. Esta interação, após exceder um determinado valor crítico, promove uma localização do pacote de onda eletrônico, fenômeno conhecido como auto-armadilhamento

(32, 12, 33, 13, 34). Quando as vibrações moleculares nos sítios da rede atingem o equilíbrio numa escala de tempo muito inferior à escala de evolução do pacote eletrônico, estamos diante da aproximação adiabática do acoplamento elétron-fônon (32). Ao utilizar essa abordagem, diversos trabalhos conseguiram captar fatores importantes da dinâmica elétron-fônon (35, 13, 36, 34) como, por exemplo, que o número de coordenação da rede (número de primeiros vizinhos) é um parâmetro topológico relevante para a transição de auto-armadilhamento (34).

Além disso, uma questão que também tem gerado recentes e interessantes avanços é o papel desempenhado pelo tempo finito da resposta não linear na dinâmica de pacotes onda em redes discretas, ou seja, num contexto em que a aproximação adiabática não é utilizada. Em (37) o problema do auto-armadilhamento eletrônico em uma cadeia com um retardo não adiabático do acoplamento elétron-fônon foi investigado. Foi mostrado que, no regime de curtos retardos, uma não linearidade mais fraca é requerida para promover a transição de auto-armadilhamento quando comparado com o caso de uma resposta instantânea. Também foi demonstrado que para um meio com resposta lenta, o auto-armadilhamento apenas acontece para não linearidades muito intensas. Usando uma lei de relaxação do tipo Debye para a não linearidade, foi mostrado que a relaxação lenta da não linearidade é responsável pela redução do regime delocalizado e pela emergência de um regime complexo de auto-focalização (38).

A competição entre desordem e um tempo de resposta não linear finito foi investigada em (14) e demostrou-se numericamente que o espalhamento sub-difusivo do segundo momento do pacote de onda ocorre quando um tempo de resposta finito na não linearidade é levado em consideração. Tal re-localização foi posteriormente explicada como resultado de uma transferência de energia para modos localizados borda da banda (39). Mais recentemente, foi evidenciado que o processo de relaxação da não linearidade possui um profundo impacto na dinâmica dos pacotes de onda e na formação de estados auto-armadilhados em fulerenos C_{60} (40).

Nessa tese investigamos a instabilidade modulacional de funções de onda quânticas governadas pela equação não linear discreta de Schrödinger em cadeias lineares finitas, em

redes quadradas e na família de fulerenos. Mostramos que, enquanto o acoplamento não linear crítico χ_{IM} , acima do qual a instabilidade modulacional ocorre, permanece finito em redes quadradas, ele decai com 1/L em cadeias lineares (41). Na rede quadrada, ocorre uma transição direta entre o regime de soluções estáveis e o regime de soluções assintoticamente localizadas com distribuições de probabilidade estacionárias. Por outro lado, existe um regime intermediário nas cadeias lineares no qual a dinâmica da função de onda desenvolve padrões complexos de batimentos¹. Calculamos analiticamente as intensidades não lineares críticas para a instabilidade modulacional em ambas as redes, assim como o tempo característico τ que governa o crescimento exponencial das pertubações na vizinhança da transição entre os regimes. Revelamos que a ação conjunta entre a instabilidade modulacional e o fenômeno de auto-armadilhamento é responsável pelas dinâmicas distintas da função de onda nas redes linear e quadrada.

Além do estudo em cadeias lineares e redes quadradas, realizamos ainda um estudo da influência da interação elétron-fônon na estabilidade do pacote de onda eletrônico em diversos tipo de fulerenos, no regime adiabático (42). Pela solução numérica da equação não linear de Schrödinger para um pacote de onda inicialmente distribuído uniformemente sobre os sítios dos fulerenos, e mostramos que a intensidade não linear crítica acima da qual o pacote de onda torna-se instável decresce continuamente para cadeias lineares. Por outro lado, a intensidade não linear crítica satura em um valor finito para fulerenos maiores.

Também investigamos a evolução temporal de pacotes de onda eletrônicos restritos para nos sítios do fulereno C_{60} sob a influência de uma não linearidade de terceira ordem com um tempo de relaxação finito τ (43). Dentro da aproximação tight-binding e incluindo um processo de relaxação do tipo Debye na contribuição não linear, fornecemos um estudo detalhado da transição entre estados delocalizados e estados auto-armadilhados. No regime de fracos acoplamentos não lineares, os estados assimptóticos tornam-se delocalizados independentemente do tempo de relaxação da não linearidade e da condição inicial. Por outro lado, o pacote de onda evolui para o estado estacionário auto-armadilhado para os regimes com fortes não linearidades. Revelamos ainda que, a localização da transição é fortemente dependente da condição inicial assim como do tempo de relaxação da não linearidade.

¹O termo em inglês breathing é mais comum de ser utilizado.

Equação não linear de Schrödinger

A equação não linear de Schrödinger (ENLS) é amplamente utilizada na descrição de ondas dinâmicas em diversos contextos físicos. No cenário da óptica, ela governa a propagação dos pulsos ópticos na matéria na aproximação do envelope variando lentamente, com a não linearidade surgindo a partir da variação no índice de refração do meio devido à susceptibilidade de terceira ordem. A interação entre as contribuições dispersivas e não lineares na equação de onda é responsável por muitos fenômenos físicos, tais como formação de sólitons (44, 45), soluções do tipo batimentos (46) e instabilidade modulacional (47), que têm sido explorados em diversos dispositivos de interesse tecnológico (6).

Um fenômeno importante que surge nos modelos descritos pela equação não linear discreta de Schrödinger (ENLDS) é o auto-armadilhamento, ou self-trapping, do pacote de onda eletrônico. Nesse regime, que se estabelece quando o parâmetro de não linearidade χ supera um valor crítico, um pacote de onda eletrônico inicialmente localizado não evolui mais para a configuração espalhada por todos os sítios, ficando confinado a uma região limitada próxima ao sítio inicial. Temos um fenômeno de localização que é induzido por uma não linearidade.

O estudo da equação não linear discreta de Schrödinger tem uma longa e interessante história, tendo sido "redescoberta" independentemente em campos diversos da Física por diferentes pesquisadores. O primeiro pesquisador a derivar a ENLDS, ainda que em sua forma estacionária, foi Holstein em 1959, em seu modelo do movimento dos polarons em cristais moleculares (31). Em bioquímica, surgiu uma nova motivação para o estudo da ENLDS;

Davydov em 1973, realizou estudos sobre o transporte energético em estruturas α -hélice de proteínas (48). Davydov sugeriu que excitações (vibracionais) de grupos peptídicos 1-amido (oscilações da ligação CO), localizados ao longo da α -hélice, interagem com fônons da própria α -hélice, distorcendo-a; essa nova configuração, entretanto, interage novamente com os grupos excitados, podendo aprisionar a excitação (auto-armadilhamento). Essas excitações propostas por Davydov, ficaram conhecidas como sólitons de Davydov (49, 50). Outra abordagem que conduz a equação não linear discreta de Schrödinger é através equação discreta de Klein-Gordon, que foi utilizada para descrever osciladores anarmônicos acoplados, via expansão multiescala nos limites de oscilações de pequenas amplitudes e fracos acoplamentos inter-sítios (22, 51, 52).

O desenvolvimento da teoria dos modos locais de vibração de moléculas pequenas em físico-química (53), na década de 1980, também chegou a utilizar a equação não linear de Schrödinger. Posteriormente, nos anos de 1990, a ENLDS foi utilizada como modelo em estudos sobre os modos localizados intrínsecos (discrete breathers) em cadeias de osciladores anarmônicos acoplados (54, 55). Mais recentemente, a equação não linear discreta de Schrödinger tem sido aplicada com sucesso em dois novos contextos, que têm atraído bastante atenção: em óptica não linear, como modelo para guias de onda acopladas, e em condensados de Bose-Einstein (BEC).

No que se refere a óptica não linear, na década de 1980, Jensen sugeriu o uso da ENLDS em sua forma de dímero como modelo para dois guias de onda acopladas (24). Posteriormente, essa estratégia foi adotada para descrever a auto-focalização em matrizes de guias de onda acopladas (20) e, dado o sucesso dessa abordagem, muitos trabalhos posteriores seguiram propondo aplicações em óptica não linear derivadas de propriedades intrínsecas da ENLDS. A partir de 1998, muitos trabalhos experimentais comprovaram predições teóricas baseadas na ENLDS em guias de onda acoplados, como por exemplo a existência de sólitons espaciais (3) e sólitons discretos propagantes (25).

No contexto do estudo dos condensados de Bose-Einstein, a equação não linear de Schrödinger foi utilizada para, na forma de dímero, modelar dois BECS fracamente acoplados aprisionados em um potencial de duplo poço (15). O progresso dos experimentos em con-

densados de Bose-Einstein aprisionados em potenciais periódicos (26), possibilitou um desenvolvimento semelhante ao ocorrido em óptica não linear, com a ENLDS sendo proposta como modelo para o referido sistema e diversos fenômenos inspirados em propriedades da dinâmica da ENLDS - como a existência de sólitons/breathers discretos, por exemplo - foram propostos em trabalhos posteriores (27, 28). Alguns desses fenômenos, ainda que sob certas restrições, obtiveram comprovação experimental (29, 56).

A equação não linear de Schrödinger (ENLDS), já foi utilizada em várias áreas da física (12, 13, 14, 15, 16). Demonstramos a ENLDS com base no trabalho de Holstein (31), em que é feita uma análise da propagação de um polaron¹ em um cristal molecular. No modelo proposto por Holstein, considera-se uma excitação propagando-se em um cristal unidimensional interagindo com as vibrações da rede (fônons), descritas como osciladores harmônicos. Para analisarmos os efeitos da interação elétron-fônon, é necessário a modelagem da dinâmica através de equações de evolução quânticas discretas não lineares, utilizaremos neste trabalho, a equação não linear discreta de Schrödinger.

Ao assumir que os íons da rede possuem um pequeno movimento oscilatório em torno do ponto de equilíbrio, torna-se necessário levar em consideração a existência de modos vibracionais da rede, denominados fônons. A interação da função de onda eletrônica com a rede que possui tais modos de vibracionais, dará origem a um tipo de interação, conhecida usualmente como interação elétron-fônon. Esta interação, após exceder um determinado valor crítico, promove uma localização do pacote de onda eletrônico, fenômeno conhecido como auto-armadilhamento (32, 12, 13).

Para encontramos as equações de evolução para o sistema, começamos pelo cálculo do operador hamiltoniano \hat{H} , para um meio cristalino com N sítios, que será escrito da seguinte maneira:

$$\hat{H} = \hat{H}_f + \hat{H}_e + \hat{H}_i \tag{2.0}$$

sendo \hat{H}_f o hamiltoniano devido à vibração da rede, \hat{H}_e o hamiltoniano devido à energia eletrônica e \hat{H}_i o hamiltoniano que considera a interação elétron-fônon.

¹uma quase partícula composta de um elétron revestido de fônons virtuais.

Para o termo \hat{H}_f , podemos considerar que os íons de massa M do sólido, estão distribuídos pelos sítios da rede cristalina e todos eles oscilam em torno do seu ponto de equilíbrio com a mesma frequência ω . Assim, estamos diante de um oscilador harmônico simples, onde o hamiltoniano é dado por:

$$\hat{H}_f = \sum_{j} \left[\frac{1}{2M} \hat{P}_j^2 + \frac{M\omega^2}{2} \hat{X}_j^2 \right]$$
 (2.0)

onde \hat{X}_j é o operador deslocamento do j-ésimo íon em relação a sua posição de equilíbrio, no espaço das posições toma a forma do seu autovalor x_j ; \hat{P}_j é o operador momento angular do j-ésimo sítio da rede, no espaço das posições se torna $-i\hbar \frac{\partial}{\partial X_j}$.

O \hat{H}_e terá dois termos: um devido à energia de formação do átomo j-ésimo e o outro surgirá devido à energia gerada pelo salto do elétron do sítio j para os sítios vizinhos, energia mais conhecida como energia de hopping. Vamos utilizar a simplificação que a rede não possui desordem, então os potenciais locais ε_j 's serão todos iguais à ε e as energias de hopping $V_{j+1,j}$ iguais à V.

$$\hat{H}_e = \sum_{j=1}^{N} \left[\varepsilon \hat{C}_j^{\dagger} \hat{C}_j + V \left(\hat{C}_j^{\dagger} \hat{C}_{j+1} + \hat{C}_j \hat{C}_{j+1}^{\dagger} \right) \right]$$
(2.0)

 \hat{C}_j^{\dagger} é o operador criação e o \hat{C}_j é o operador aniquilação de um elétron no sítio j.

O último termo do hamiltoniano, equação 2, é devido a energia do elétron tentar deformar a vibração do íon, que é a interação elétron-fônon (31).

$$\hat{H}_i = E \sum_{j=1}^N \hat{X}_j \hat{C}_j^{\dagger} \hat{C}_j, \tag{2.0}$$

E representa o termo de acoplamento do pacote de onda com as vibrações da rede.

Agora podemos reescrever o hamiltoniano do sistema, equação 2, recorrendo às equações 2 , 2 e 2 (57):

$$\hat{H} = \frac{1}{2M} \sum_{j=1}^{N} \hat{P}_{j}^{2} + \frac{M\omega^{2}}{2} \sum_{j=1}^{N} \hat{X}_{j}^{2} + \varepsilon \sum_{j=1}^{N} \hat{C}_{j}^{\dagger} \hat{C}_{j} + V \sum_{j=1}^{N} (\hat{C}_{j}^{\dagger} \hat{C}_{j+1} + \hat{C}_{j} \hat{C}_{j+1}^{\dagger}) + E \sum_{j=1}^{N} \hat{X}_{j} \hat{C}_{j}^{\dagger} \hat{C}_{j}. \quad (2.0)$$

Podemos representar um estado neste sistema, como uma superposição de funções de onda localizadas ϕ_i . Portanto, ele pode ser escrito como

$$\psi(\mathbf{r},x_1,\ldots,x_N) = \sum_{j=1}^N a_j(x_1,\ldots,x_N)\phi_j(\mathbf{r}-j\mathbf{a},x_j)$$
(2.1)

$$|\psi\rangle = \sum_{j=1}^{N} a_j(x_1, \dots, x_N)\phi_j$$
 (2.2)

A função de onda $\phi_j(\mathbf{r} - j\mathbf{a}, x_j)$ está localizada no sítio j da rede e \mathbf{a} é um vetor da rede de Bravais dependente de x_j . Já os coeficientes das funções de onda, $a_j(x_1, \dots, x_N)$, que são as amplitudes de probabilidades eletrônicas do j-ésimo sítio, para todo j, dependem de todas as coordenadas internucleares.

2.1 Equação Não-Linear de Schrödinger com aproximação adiabática

A aproximação adiabática, também conhecida como aproximação de Born-Oppenheimer (58), fundamenta-se no fato de que as forças de interação coulombiana entre os elétrons e os íons possuem a mesma ordem de magnitude e, portanto, as variações no momento linear entre os elétrons e os íons também são da mesma ordem. Contudo, a massa dos íons é muito maior que a massa dos elétrons, e portanto os elétrons devem mover-se a uma velocidade muito maior. Desta maneira, pode-se assumir que, para uma determinada configuração espacial dos íons, os elétrons, por sua vez, rapidamente (comparado com os íons) relaxam para uma estado fundamental correspondente.

Iremos considerar que as vibrações da rede (x_j) atingem o equilíbrio mais rapidamente do que a evolução eletrônica, ou seja, faremos uma aproximação adiabática. Com isso, podemos desprezar o termo correspondente a energia cinética da rede e reescrevemos o hamiltoniano da seguinte maneira:

$$\hat{H} = \frac{M\omega^2}{2} \sum_{j=1}^{N} x_j^2 + \varepsilon \sum_{j=1}^{N} \hat{C}_j^{\dagger} \hat{C}_j + V \sum_{j=1}^{N} (\hat{C}_j^{\dagger} \hat{C}_{j+1} + \hat{C}_j \hat{C}_{j+1}^{\dagger}) + E \sum_{j=1}^{N} \hat{X}_j \hat{C}_j^{\dagger} \hat{C}_j$$
(2.2)

Utilizando a equação 2.1 e 2.1 encontraremos $\hat{H}\psi$:

$$\hat{H}\psi = \frac{M\omega^2}{2} \sum_{j} x_j^2 a_j \phi_j + \varepsilon \sum_{j=1}^{N} a_j \phi_j + V \sum_{j} (a_{j+1}\phi_j + a_j \phi_{j+1}) + E \sum_{j} a_j \phi_j$$
 (2.2)

Tomaremos o conjugado da equação 2.1. Logo:

$$\psi^* = \sum_i a_i^* \phi_i^* \tag{2.2}$$

Utilizando a equação 2.1 na equação 2.1 e tomando a integral sobre toda rede:

$$\int \psi^* \hat{H} \psi d\mathbf{r} = \sum_{ij} \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 \left(a_i^* a_j \int \phi_i^* \phi_j d\mathbf{r} \right) + \sum_{ij} \varepsilon \left(a_i^* a_j \int \phi_i^* \phi_j d\mathbf{r} \right) +$$

$$+ \sum_{ij} V a_i^* \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) \int \phi_i^* \phi_j d\mathbf{r} +$$

$$+ \sum_{ij} E x_j a_i^* a_j \int \phi_i^* \phi_j d\mathbf{r}$$

$$(2.1)$$

Considerando as integrais de $overlap^2$ nulas e sendo ψ uma função também normalizada, temos:

$$\int \psi^* \psi d\mathbf{r} = 1 \qquad \Longrightarrow \sum_j |a_j|^2 = 1 \tag{2.2}$$

$$\int \phi_i^* \phi_j d\mathbf{r} = \delta_{ij} \tag{2.3}$$

Podemos assim, a partir da equação 2.2 e equação 2.3, verificar que o termo $\sum_{ij} \varepsilon \left(a_i^* a_j \int \phi_i^* \phi_j d\mathbf{r} \right) \text{ será uma constante. Como as propriedades físicas do potencial não se alteram com a adição de constantes, podemos então fazer o <math>\varepsilon$ ser nulo, sem perda de generalidade.

Reescrevendo a equação 2.1 utilizando as equações 2.2 e 2.3:

$$H_1 \equiv \sum_{j} \left\{ \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 + V \left[a_j^* \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) \right] + E x_j a_j^* a_j \right\}$$
 (2.3)

²Sobreposição das funções de onda.

Na aproximação adiabática, ainda temos que encontrar os x_j que minimizem a energia H_1 (Esse cálculo está detalhado no Apêndice A). Considerando $\hbar = 1$ e $\chi = \frac{E^2}{M\omega^2}$ que é o parâmetro que modula a não linearidade, encontramos finalmente a equação não linear discreta de Schrödinger na forma mais conhecida,

$$i\dot{a}_{i} = V(a_{i+1} + a_{i-1}) - \chi |a_{i}|^{2} a_{i}$$
 (2.3)

A equação não linear discreta de Schrödinger com aproximação adiabática considera que as vibrações da rede alcançam o equilíbrio mais rápido do que a evolução eletrônica. A equação 2.1 é uma equação que possui instabilidade modulacional, pois a evolução temporal da função de onda é muito sensível a valores de χ , fazendo assim com que a função de onda possa atingir tanto configurações localizadas como estendidas (59).

2.2 Equação Não-Linear de Schrödinger sem aproximação adiabática

Nesta seção iremos desenvolver o hamiltoniano completo descrito na equação 2, começaremos encontrando $\hat{H}\psi$, recorreremos a equação 2.1 para isso:

$$\hat{H}\psi = -\frac{\hbar^2}{2M} \sum_j \frac{\partial^2}{\partial x_j^2} a_j \phi_j + \frac{M\omega^2}{2} \sum_j x_j^2 a_j \phi_j + \varepsilon \sum_j a_j \phi_j + V \sum_j (a_{j+1}\phi_j + a_j\phi_{j+1}) + E \sum_j a_j \phi_j$$

$$(2.3)$$

Agora, poderemos encontrar o hamiltoniano na primeira quantização, como sendo:

$$H_{1} \equiv \int \psi^{*} d\mathbf{r} \hat{H} \int \psi d\mathbf{r}$$

$$= \sum_{j,i} -\frac{\hbar^{2}}{2M} \int a_{i}^{*} \phi_{i}^{*} \frac{\partial^{2}}{\partial x_{j}^{2}} a_{j} \phi_{j} d\mathbf{r} + \sum_{j,i} \frac{M\omega^{2}}{2} x_{j}^{2} \left(a_{i}^{*} a_{j} \int \phi_{i}^{*} \phi_{j} d\mathbf{r} \right) +$$

$$+ \sum_{j,i} \varepsilon \left(a_{i}^{*} a_{j} \int \phi_{i}^{*} \phi_{j} d\mathbf{r} \right) + \sum_{j,i} V \left(a_{i}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) \int \phi_{i}^{*} \phi_{j} d\mathbf{r} \right) +$$

$$+ \sum_{j,i} E \left(x_{j} a_{i}^{*} a_{j} \int \phi_{i}^{*} \phi_{j} d\mathbf{r} \right)$$

$$(2.1)$$

Analisando a primeira integral $(\int a_i^* \phi_i^* \frac{\partial^2}{\partial x_j^2} a_j \phi_j d\mathbf{r})$ da equação 2.4 com integração por partes temos:

$$\int a_i^* \phi_i^* \frac{\partial^2}{\partial x_j^2} a_j \phi_j d\mathbf{r} = \int \psi^* \frac{\partial^2}{\partial x_j} \psi d\mathbf{r}$$
(2.2)

$$\int \psi^* \frac{\partial^2 \psi}{\partial x_j} d\mathbf{r} = \psi^* \frac{\partial \psi}{\partial x_j} \Big| - \int \frac{\partial \psi^*}{\partial x_j} \frac{\partial \psi}{\partial x_j} d\mathbf{r}$$
(2.3)

Como as funções ψ e ψ^* diminuem rapidamente nos limites de integração, então o primeiro termo da equação 2.3 é nulo. Então, podemos reescrever a equação 2.4 utilizando também a condição de ortonormalidade descrito nas equações 2.2 e 2.3 da seguinte maneira:

$$H_{1} = \sum_{j} \left[\frac{\hbar^{2}}{2M} \frac{\partial a_{j}^{*}}{\partial x_{j}} \frac{\partial a_{j}}{\partial x_{j}} + \frac{M\omega^{2}}{2} x_{j}^{2} + V a_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) + E x_{j} a_{j}^{*} a_{j} \right]$$
(2.3)

Encontrado o valor médio do hamiltoniano, podemos agora encontrar as equações de movimento através das relações canônicas e o teorema de Ehrenfest (como foi realizado no Apêndice A). Também usaremos as unidades naturais ($\hbar=1$), p_j é o momento dos íons do j-ésimo sítio, que será definido pela equação clássica $p_j=M\dot{x}_j$ (Vide Apêndice B):

$$i\dot{a}_j = V(a_{j+1} + a_{j-1}) + Ex_j a_j$$
 (2.4)

$$\ddot{x}_j = -\omega^2 x_j - \frac{E}{M} |a_j|^2 \tag{2.5}$$

A equação 2.4 descreve a evolução temporal da amplitude de probabilidade eletrônica

do j-ésimo sítio, já a equação 2.5 é a evolução temporal da vibração do j-ésimo sítio da rede. Porém, existe uma interação entre as duas equações e, por essa razão, são chamadas de equações acopladas. O último termo de ambas equações, representa a interação elétron-fônon.

Podemos notar que a equação 2.5 descreve um oscilador harmônico forçado. Para tornar o sistema o mais realista possível, adicionaremos na equação 2.5 um termo de amortecimento $(-\alpha \dot{x}_j)$. Por simplificação, desprezaremos a segunda derivada temporal, método proposto por Kenkre e Wu, pois ultrapassando a aproximação adiabática, o termo não-linear eficaz tem sido demonstrado que obedece a um processo de relaxação de Debye (12).

$$\ddot{x}_{j} = -\omega^{2} x_{j} - \frac{E}{M} |a_{j}|^{2} - \alpha \dot{x}_{j}$$

$$\dot{x}_{j} = \frac{\omega^{2} x_{j}}{\alpha} - \frac{E}{\alpha M} |a_{j}|^{2}$$
(2.5)

fazendo $\tau = \frac{\alpha}{\omega^2}$ e $\chi = \frac{E^2}{M\omega^2}$, podemos reescrever a equação 2.5 da seguinte maneira:

$$\dot{x}_{j} = -\frac{\omega^{2}}{\alpha} \left(x_{j} + \frac{E}{\omega^{2} M} |a_{j}|^{2} \right)$$

$$\dot{x}_{j} = -\frac{1}{\tau} \left(x_{j} + \frac{\chi}{E} |a_{j}|^{2} \right)$$
(2.5)

Utilizaremos o modelo de equação não linear com não linearidade (χ) e retardo (τ), pois esclarece a localização do pacote de onda eletrônico e também consegue descrever o fenômeno de auto-armadilhamento (40, 38) sem considerar que as vibrações da rede atingem o equilíbrio mais rápido do que a evolução eletrônica. Alguns trabalhos mostram que a não linearidade desempenha um papel significativo na dinâmica do pacote de onda eletrônico em estruturas formadas por carbonos (40, 60, 61). Estudos recentes investigaram a interação elétron-fônon no grafeno que pode ser representada como uma não linearidade (62, 63).

Instabilidade Modulacional

Um tema fundamental no estudo da teoria das ondas não lineares é a instabilidade modulacional (IM). Este fenômeno, que é gerado pela ação combinada entre efeitos não lineares e efeitos dispersivos, foi previsto por Bespalov e Talanov (64) para ondas eletromagnéticas em meios não lineares, com uma não linearidade cúbica e também por Benjamin e Feir (65) para ondas em águas profundas. Atualmente, IM é observada em diversas áreas da física, tais como óptica não linear, física de plasma, física da matéria condensada (condensados de Bose-Einstein, fibras ópticas, magnetismo, etc.) (66, 67, 68). Este fenômeno é de grande interesse tanto para a teoria geral de ondas não lineares quanto para aplicações tecnológicas. No caso particular da óptica, o mecanismo de instabilidade modulacional pode ocorrer tanto no domínio espacial (64, 4) quanto no temporal (69), de forma independente. Já a ação combinada, ou seja, na presença simultânea dos efeitos espaciais e temporais no desenvolvimento da IM foi investigada em detalhes em (70). Nas fibras ópticas a dispersão que é observada está associada a dispersão da velocidade de grupo e os efeitos não-lineares do tipo Kerr. A IM têm sido estudada devido a suas importantes aplicações para a dinâmica de feixes ou pulsos luminosos propagando-se através de um meio não linear.

Essa instabilidade destrói a distribuição homogênea das amplitudes das ondas e, tipicamente, resulta na criação de um número de excitações móveis localizadas, conhecidas como batimentos (breathers modes). Tais batimentos, através de processos de interação podem adensar-se em um pequeno número de batimentos estacionários de grande amplitude. Dessa maneira, a instabilidade modulacional de ondas planas é geralmente proposta como cons-

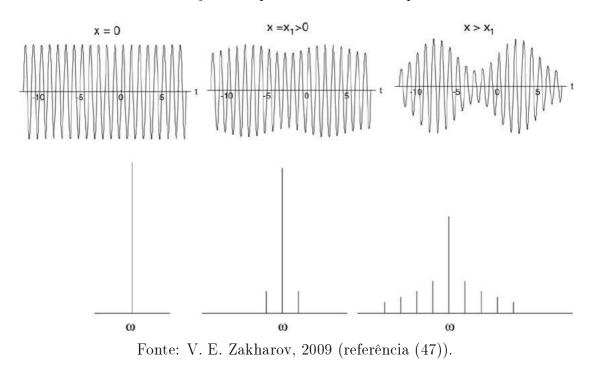
tituindo uma etapa inicial para a localização energética em redes não lineares, incluindo a ENLDS. A ação combinada entre a discretização e a não linearidade também é crucial para a ocorrência da IM, bastante estudada na teoria de meios não lineares (55).

A análise de instabilidade modulacional é geralmente obtida seguindo o seguinte esquema. Em primeiro lugar, precisamos encontrar um estado de equilíbrio da equação em investigação, que é a solução simples e exata para uma onda plana. Em segundo lugar devemos acrescentar uma pequena perturbação no estado de equilíbrio com um número de onda e frequência de perturbação muito menores do que aqueles da onda portadora. A partir daí obtemos a relação de dispersão que é analisada para se obter uma frequência complexa, que nos revela o crescimento da amplitude modulada do pacote de onda. O crescimento das perturbações pode ser tratado em termos da amplificação da fraca modulação imposta à onda harmônica conforme a figura 3.1.

Enquanto num sistema linear sempre podemos efetuar combinações lineares de ondas contra-propagantes $e^{\pm i\kappa j}$ e obtermos ondas estacionárias (CW) na forma de cossenos $\cos(\kappa j + \beta)$, a mesma situação, naturalmente, não é verdade em um sistema não-linear devido à falta de princípio da superposição. No entanto, ainda existem geralmente soluções não lineares estacionárias, apesar de não poder serem escritas como superposições de ondas viajantes contra-propagantes. Tais ondas estacionárias não-lineares foram investigados em detalhe para cadeias gerais de osciladores acoplados (52) (os resultados para a cadeia não linear discreta de Schrödinger estão mais precisamente resumidos em (71)).

Em particular, IM refere-se à estabilidade da solução de uma onda contínua com relação a pequenas perturbações. Uma solução de onda contínua é completamente estável em um meio com dispersão normal. Por outro lado, ela desenvolve uma instabilidade em meios com dispersão anômala, com pequenas perturbações que possuem vetores de onda menores que um valor característico e crescem exponencialmente. A instabilidade modulacional é usualmente vista como um etapa primária para a formação de sólitons. A equação de Schrödinger não linear também descreve as dinâmicas de condensados de Bose-Einstein com a não linearidade sendo originada a partir das interações inter-partículas (11, 72). IM em condensados de Bose-Einstein tem mostrado ser responsável pela defasagem e localização do condensado

Figura 3.1: Acima: evolução de um trem de onda não linear no decorrer da instabilidade modulacional. Abaixo: a evolução do espectro de onda correspondente.



(66, 56, 73, 74, 75, 76, 77, 78).

A equação não linear discreta de Schrödinger 2.1 sob condições periódicas de contorno em uma rede regular com N sítios e número de coordenação z (número de primeiros vizinhos) possui uma solução de onda contínua $\psi_{\scriptscriptstyle CW}=\psi_0 e^{-i\omega t}$, com $\omega=z+\chi/N$ e $\psi_0=1/\sqrt{N}$. A amplitude da onda contínua é devido à normalização da função de onda sobre a rede, para esse tipo de solução. No entanto, tal solução de onda contínua pode ser instável quando são adicionadas pequenas perturbações à amplitude da função de onda original. Um procedimento padrão para investigar analiticamente a estabilidade da solução de onda contínua é a análise da instabilidade modulacional. De acordo com essa análise, perturbações harmônicas com vetores de onda k crescem exponencialmente no tempo se $k < k_{{\scriptscriptstyle IM}},$ onde $k_{{\scriptscriptstyle IM}}$ é o vetor de onda característico que depende da intensidade da não linearidade e da amplitude da solução da onda contínua. Em redes discretas com condições de contorno periódicas, os números de onda permitidos estão no intervalo de $2\pi/L < k < 2\pi/a$, onde a é o espaçamento da rede (que neste trabalho, consideramos unitário) e L é a dimensão lateral (L=N em cadeias lineares e $L = \sqrt{N}$ em redes quadradas). Como a perturbação aleatória adicionada (ruído) possui todas as contribuições harmônicas, ela irá conduzir à instabilidade da solução de onda contínua sempre que $k_{{\scriptscriptstyle IM}}>2\pi/L$. Portanto, o regime de longos comprimentos de onda das perturbações harmônicas finalmente determinam a instabilidade da solução de onda contínua. Esse cálculo também pode ser realizado no caso discreto, o que exige uma abordagem mais específica como realizada em (22, 27). Porém, como vamos tratar apenas dos casos com grandes comprimentos de onda, nos basta a versão contínua. Levando em conta esse contexto, podemos realizar a análise da instabilidade modulacional na versão contínua da equação 2.1, a qual pode ser colocada na forma

$$i\frac{d\psi}{dt} = \nabla^2 \psi + \chi |\psi|^2 \psi, \tag{3.0}$$

da qual o termo linear diagonal foi omitido, pois este não tem qualquer influência na dinâmica da função de onda. A versão contínua da equação não linear de Schrödinger 3 possui como solução de onda contínua $\psi(t) = \psi_0 e^{-i\chi|\psi_0|^2 t}$. No intuito de investigar a sua estabilidade, adicionamos pequenas perturbações à amplitude como

$$\psi(r,t) = [\psi_0 + \delta(r,t)]e^{-i\chi|\psi_0|^2t},\tag{3.0}$$

e acompanhamos a evolução temporal da perturbação $\delta(r,t)$, a qual, no regime linear obedece a relação $|\delta(r,t)| \ll \psi_0$,

$$i\frac{d\delta}{dt} = \nabla^2 \delta + \chi |\psi|^2 (\delta + \delta^*), \tag{3.0}$$

onde δ^* é o complexo conjugado de δ . A equação 3 possui soluções harmônicas na forma

$$\delta(r,t) = Ae^{i(k \cdot r + \Omega t)} + Be^{-i(k \cdot r + \Omega t)}, \tag{3.0}$$

onde k é o número de onda. Ao substituirmos a solução 3 na equação 3, obtemos:

$$-A\Omega e^{i(kx+\Omega t)} + Be^{-i(kx+\Omega t)} = -Ak^2 e^{i(kx+\Omega t)} - Bk^2 e^{-i(kx+\Omega t)}$$
$$+\chi |\psi_0|^2 \left[Ae^{i(kx+\Omega t)} + Be^{-i(kx+\Omega t)} Ae^{-i(kx+\Omega t)} + Be^{i(kx+\Omega t)} \right], \tag{3.0}$$

fornecendo, assim, um conjunto de duas equações homogêneas para A e B

$$-\Omega A = -k^2 A + \chi |\psi_0|^2 A + \chi |\psi_0|^2 B$$

$$\Omega B = -k^2 B + \chi |\psi_0|^2 B + \chi |\psi_0|^2 A.$$
(3.0)

Para que esse sistema de equações possua solução não trivial, seu determinante principal deve ser igual a zero, o que nos leva à relação de dispersão

$$\Omega = \sqrt{k^2(k^2 - 2\chi|\psi_0|^2)}. (3.0)$$

De acordo com a relação de dispersão acima, perturbações harmônicas com grandes comprimentos de onda permanecem estáveis para as quais o valor de Ω é real. Por outro lado, aquelas com $k < k_{IM} = \sqrt{2\chi |\psi_0|^2}$ crescem exponencialmente, ou seja, apresentam valores de Ω imaginários. Como consequência, a solução de onda contínua será instável sempre que $k_{IM} = \sqrt{2\chi/N} > 2\pi/L$, que finalmente, determina a intensidade característica da não linearidade $\chi_{IM} = 2\pi^2 N/L^2$ acima da qual a solução de onda contínua é instável. A generalidade dos argumentos de escala para o conjunto de instabilidades na dinâmica de sistemas não lineares foi apontada em (79). A relação de escalas de tamanho finito para o limiar de instabilidade modulacional também foi reportada também no contexto do modelo de Fermi-Pasta-Ulam (80).

3.1 Tempo Característico

A IM é caracterizada por um crescimento exponencial das pequenas perturbações arbitrárias resultantes do efeito combinado da dispersão e da não linearidade. Como estamos interessados na região onde a instabilidade ocorre, ou seja, no regime em que Ω é imaginário, escrevemos explicitamente tal exigência para a perturbação

$$\delta(x,t) = \delta_0 e^{i(kx + \Omega t)}. (3.0)$$

Como Ω é imaginário, então podemos escrevê-lo assim, $\Omega = i\omega_0$

$$\delta(x,t) = \delta_0 e^{ikx} \cdot e^{ii\omega_0 t} \to \delta_0 e^{ikx} \cdot e^{-\omega_0 t}. \tag{3.0}$$

Sabemos que

$$\delta(x,t) \propto e^{\delta_0 t} \propto e^{t/\tau}$$
 (3.0)

onde τ representa o tempo de crescimento característico da perturbação, na forma $\tau = 1/\omega_0$.

$$\Omega = \sqrt{f(k)} \tag{3.0}$$

Utilizando a equação 3 na equação 3.1

$$\Omega = \sqrt{k^2(k^2 - 2\chi|\psi_0|^2)} \tag{3.0}$$

Estamos interessados nos menores vetores de onda possíveis, ou seja, k_{min} , que ao substituirmos na equação 3.1

$$\Omega = \sqrt{k_{min}^2 (k_{min}^2 - 2\chi |\psi_0|^2)}.$$
(3.0)

Obtemos $\chi_c = \frac{k_{min}^2}{2|\psi_0|^2}$, que é a não linearidade crítica, acima da qual as soluções possam a ser instáveis. Podemos reescrever a equação 3.1 em termos de χ_c , que fica

$$\Omega = \sqrt{2k_{min}^2(\chi_c - \chi)|\psi_0|^2}$$
(3.0)

considerando que utilizaremos valores para a intensidade não linear χ maiores do que a não linearidade crítica χ_c . Podemos ainda usar o termo $\chi = \chi_c + \Delta \chi$ e reescrever a relação de dispersão

$$\Omega = \pm i\sqrt{2|\psi_0|^2 k_{min}^2 \Delta \chi}.$$
(3.0)

Finalmente, obtemos uma expressão para o tempo característico do crescimento das per-

tubações, quando se utiliza uma intensidade não linear superior ao valor da não linearidade crítica, caracterizada por χ_c

$$\tau = \frac{1}{\sqrt{2|\psi_0|^2 k_{min}^2 \Delta \chi}},\tag{3.0}$$

que ao utilizarmos o valor da não linearidade crítica, $\chi_c = \frac{k_{min}^2}{2|\psi_0|^2}$, e realizarmos as devidas simplificações obtemos

$$\tau = \frac{1}{k_{min}^2} \left(\frac{\Delta \chi}{\chi_c}\right)^{-1/2},\tag{3.0}$$

que mede o crescimento da perturbação ao considerarmos a região onde temos os maiores comprimentos de onda possíveis.

A partir desse ponto, iremos discutir separadamente a estabilidade da solução CW em cadeias lineares e em redes quadradas. Nas cadeias lineares N=L, o que conduz a $\chi_{IM}=2\pi^2/L$. Consequentemente, a solução CW é estável para cadeias lineares finitas apenas no regime de não linearidades muito fracas. Acima de χ_{IM} pequenas perturbações crescem exponencialmente com o tempo característico $\tau=1/\Re[\Omega]=(L^2/4\pi^2)[(\chi-\chi_{IM})/\chi_{IM}]^{-1/2}$. No limite termodinâmico, $N\to\infty$, a solução CW é sempre instável para qualquer valor finito de não linearidade. É importante ressaltar que um pacote de onda inicialmente localizado em um único sítio evolui para uma solução auto-armadilhada para intensidades de não linearidades acima do valor característico (33, 35, 81), que é da ordem da largura de banda do problema linear correspondente ($\chi_{AA}\simeq 4$ para cadeias lineares). De tal forma, um regime com uma dinâmica complexa é antecipada para $\chi_{IM}<\chi<\chi_{AA}$, a qual será explorada numericamente no próximo capítulo.

Por outro lado, na rede quadrada $N=L^2$ e nesse caso, a intensidade da não linearidade característica é independente do tamanho da rede para a instabilidade modulacional da solução CW e tem valor $\chi_{IM}=2\pi^2=19{,}739...$ Esse valor é substancialmente maior que que $\chi_{AA}\simeq 8$, contrastando com o caso da cadeia linear. Além disso, quando a intensidade não linearidade torna-se grande o suficiente para promover a instabilidade da solução CW, existe um estado auto-armadilhado e uma transição direta entre esse regimes irá ocorrer.

O tempo característico que governa o crescimento exponencial da perturbação obedece a mesma escala encontrada no caso da cadeia linear.

4

Instabilidade Modulacional e

Auto-armadilhamento em redes discretas

4.1 Cadeias Lineares e Redes Quadradas

Usualmente, a equação de onda apropriada em redes não lineares é a versão discreta da equação não linear de Schrödinger, que consiste em um conjunto de equações diferenciais não lineares acopladas (22, 23, 82, 83, 84, 30, 85, 76, 86). Tem sido mostrado que a ENLDS captura o mecanismo de denaturação local das moléculas de DNA para descrever a propagação de pulsos ópticos em guias de onda acopladas (20, 21), assim como as vibrações de redes anarmônicas (22, 23). Ela também tem sido utilizada para descrever a dinâmica de ondas em BEC em redes ópticas produzidas por feixes de lasers interagentes, formando um padrão de interferência periódico (27, 87, 76). Em física do estado sólido, um forte acoplamento dos elétrons com fônons conduz a uma ENLDS efetiva que governa o pacote de onda eletrônico. Na aproximação adiabática, assume-se que a polarização local nos sítios é muito mais rápida do que a transferência eletrônica entre os sítios (33, 35, 81, 88, 87, 37, 36, 13, 89, 34). Escrevendo $\psi_n(t)$ como a amplitude eletrônica no orbital localizado de Wannier $|n\rangle(|\Psi\rangle(t) = \sum_n \psi_n(t)|n\rangle$), a ENLDS efetiva pode ser colocada na forma

$$i\frac{d\psi_n(t)}{dt} = \sum_m \psi_m(t) + \chi |\psi_n(t)|^2 \psi_n(t), \qquad (4.0)$$

onde o somatório estende-se sobre todos os sítios que são os primeiros vizinhos do sítio n, no caso mais simples de hopping de curto alcance. Aqui, assumiremos que $\hbar = 1$ e a amplitude de hopping como sendo unitária, sem qualquer perda de generalidade. O parâmetro χ representa a intensidade da não linearidade, que por sua vez, cresce com o aumento do acoplamento elétron-fônon. A contribuição não linear efetiva para a equação de onda favorece a localização do pacote de onda, um fenômeno frequentemente denominado autoarmadilhamento. Um pacote de onda inicialmente localizado em um único sítio permanece preso em torno da sua posição inicial sempre que a intensidade da não linearidade está acima de um valor característico $\chi_{\scriptscriptstyle AA}$ o qual é da ordem da largura de banda do sistema linear correspondente ($\chi_{{\scriptscriptstyle AA}} \simeq 2z$, onde z é o número de coordenação da rede) (33, 35, 81, 34). Uma onda inicialmente uniforme também experimenta uma instabilidade modulacional em redes não lineares discretas que pode desencadear a formação de sólitons discretos (22, 84, 85, 86, 5). A emergência de batimentos discretos gerados a partir da instabilidade modulacional tem sido prevista em vários cenários da física, tais como, BEC, excitações vibracionais, pulsos ópticos. Entretanto, a questão relacionada com a fenomenologia associada com as dinâmicas de pacotes de ondas eletrônicas sob a influência de uma não linearidade efetiva devido ao forte acoplamento com os fônons ópticos ainda está em aberto.

Nessa seção, iremos fornecer os resultados numéricos para a evolução temporal de uma função de onda inicialmente uniforme em redes lineares e redes quadradas visando avaliar a precisão da análise da instabilidade modulacional baseada na equação não linear de Schrödinger contínua, assim como revelar o comportamento dinâmico não trivial previsto para ocorrer em cadeias lineares entre a instabilidade modulacional e as transições de autoarmadilhamento. A função de onda inicial será considerada como a superposição de uma onda uniforme de amplitude $\psi_0 = 1/\sqrt{N}$ e uma pequena perturbação com as amplitudes em cada sítio sendo distribuídas aleatoriamente no intervalo $[0,10^{-3}\psi_0]$, com a norma unitária da função de onda resultante sendo reestabelecida após uma normalização própria. O conjunto de equações não lineares discretas 4.1 foram resolvidas numericamente pela aplicação do método de Runge-Kutta (90) de oitava ordem, com um tempo de discretização $\Delta t = 10^{-2}$, o qual foi curto o suficiente para manter a função de onda normalizada com uma precisão de 10^{-6} durante todo o processo de integração.

Para mostrar a evolução temporal da extensão espacial da função de onda, iremos calcular seu número de participação em função do tempo, definido como

$$P(t) = \left[\sum_{n} |\psi_n|^4(t)\right]^{-1} \tag{4.0}$$

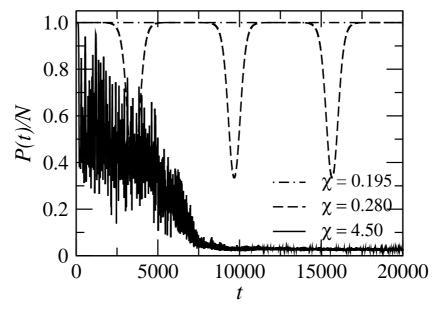
onde a soma estende-se sobre todos os sítios da rede. Para uma função de onda uniforme, o número de participação é igual ao número de sítios da rede, enquanto que P(t) torna-se unitário quando a função de onda é completamente localizada em um único sítio. Portanto, essa quantidade serve como uma medida do número de sítios sobre os quais a função de onda está distribuída, sendo da ordem de seu comprimento de localização para pacotes de onda exponencialmente localizados.

4.1.1 Cadeia Linear

A previsão analítica de $\chi_{IM} << \chi_{AA}$ na cadeia linear mostra a existência de um regime intermediário no qual nem as soluções uniformes nem as soluções auto-armadilhadas são estáveis. Nesta seção, além de mostrar a IM da solução CW e as características de escala temporal da instabilidade modulacional, vamos explorar a dinâmica função de onda no regime intermediário.

Algumas evoluções temporais do número de participação normalizado são retratadas na figura 4.1. Os dados são da evolução temporal em uma cadeia linear fechada com N=L=100 sítios. De acordo com a análise de IM desenvolvida na seção anterior, a solução de onda contínua (CW) se tornará instável para $\chi>\chi_{IM}=2\pi^2/L\simeq 0,197$. De fato, o número de participação normalizado permanece unitário em simulações longas abaixo desse limiar. No entanto, contrastando com a transição direta para o estado auto-armadilhado que ocorre na rede quadrada (que será mostrado na próxima seção), a função de onda desenvolve padrões regulares de batimentos logo acima de χ_{IM} , sinalizada pelas oscilações periódicas do número de participação. Apenas para acoplamentos não lineares maiores que $\chi_{AA}\simeq 4$ é que um estado inicialmente uniforme evolui para um estado localizado. Nesse caso, existe um período transiente no qual as funções de onda exibem uma dinâmica irregular (do tipo

Figura 4.1: Evolução temporal do número de participação normalizado P(t)/N de uma função de onda inicialmente uniforme em uma cadeia linear com N=L=100 sítios para três valores representativos do acoplamento não linear. Nota-se que há um regime oscilatório (batimentos) intermediário entre o regime estável com solução uniforme e o regime de solução fortemente localizada. A transição do regime estável para as soluções-batimentos ocorre próximo de $\chi_{IM}=0.20$, em acordo com a previsão analítica baseada na análise da instabilidade modulacional. Soluções localizadas surgem acima de $\chi_{AA}\simeq 4$.



caótica).

Determinamos numericamente χ_{IM} considerando cadeias lineares de diversos tamanhos. As estimativas numéricas estão na figura 4.2 junto com a previsão via instabilidade modulacional. Embora tenhamos usado uma aproximação de contínua para obter a expressão analítica para χ_{IM} , ela concorda razoavelmente como os dados para cadeias lineares discretas pequenas.

O tempo de instabilidade característico nas proximidades da transição entre os regimes estável e instável, também foi calculado. As estimativas numéricas para τ/L^2 versus $\Delta\chi$ são mostradas na figura 4.3. Dados para cadeias lineares de tamanhos distintos colapsam sobre uma única curva o que confirma o comportamento de escala previsto pela análise de instabilidade modulacional (linhas tracejadas).

Em seguida, investigamos o regime intermediário no qual a instabilidade da solução contínua não conduz a um estado estacionário assimptoticamente localizado. Na figura 4.4 mostramos algumas evoluções temporais representativas da distribuição de probabilidades da

Figura 4.2: Estimativa numérica do acoplamento não linear característico da instabilidade modulacional $\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ versus comprimento da cadeia linear. A linha tracejada corresponde à previsão analítica $\chi_{\scriptscriptstyle IM}=2\pi^2/L$.

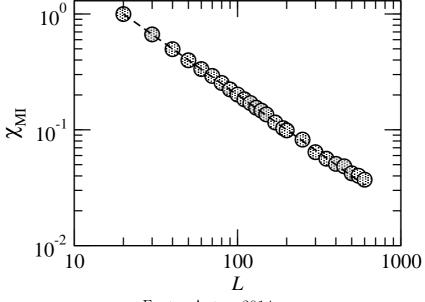
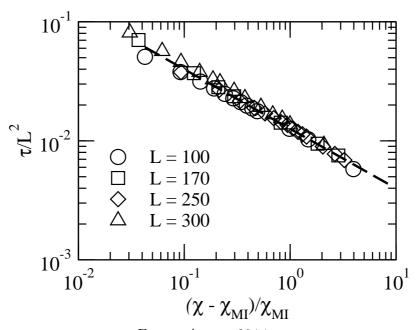


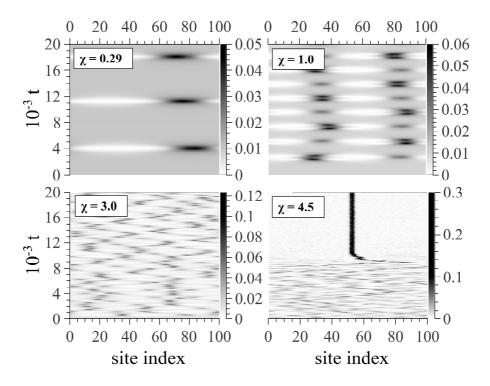
Figura 4.3: Tempo característico normalizado da instabilidade τ/L^2 de uma função de onda inicialmente uniforme versus $\Delta\chi=(\chi-\chi_{\scriptscriptstyle IM})/\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ obtido para cadeias lineares de tamanhos distintos. A linha tracejada corresponde à previsão baseada na análise da instabilidade modulacional $\tau/L^2=(1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$.



Fonte: Autor, 2014.

função de onda sobre cadeias lineares com N=L=100 sítios. Nas proximidades do limiar de transição da IM, as funções de onda desenvolvem um padrão regular de batimentos entre o estado uniforme e o estado localizado em uma região finita. Para uma região mais distante

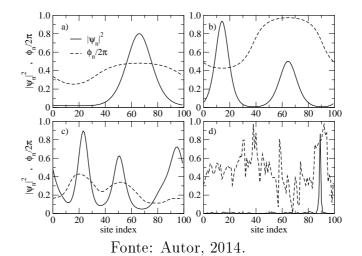
Figura 4.4: Evolução temporal da distribuição de probabilidades da função de onda em uma cadeia linear com N=100 sítios para alguns valores representativos do acoplamento não linear acima da transição da instabilidade modulacional. $\chi=0.29$: Logo acima da transição da IM, um padrão bastante regular de batimento ocorre entre o estado uniforme e o localizado. $\chi=1.0$: Os batimentos tornam-se mais complexos com oscilações entre estados localizados distintos. $\chi=3.0$: Como uma parte adicional da IM, oscilações do tipo caóticas entre vários estados localizados são desenvolvidas. $\chi=4.5$: Acima de χ_{AA} uma solução localizada estacionária emerge após um tempo transiente com oscilações do tipo caóticas.



de χ_{IM} , os padrões de batimentos tornam-se mais complexos, com oscilações entre estados localizados distintos, como mostrado para $\chi=1,0$. As oscilações entre estados localizados distintos tornam-se do tipo caóticas quando se aproximam de χ_{AA} . No caso ilustrativo de $\chi=3,0$, essas oscilações não possuem uma tendência de atingir o comportamento estacionário. Acima do valor χ_{AA} , o estado auto-armadilhado é atingido após o transiente do tipo caótico ser ultrapassado.

A fim de oferecer uma visão mais detalhada da distribuição do pacote de onda em cada um dos regimes identificados acima, nós plotamos na figura 4.5 os perfis da amplitude quadrática $|\psi_n|^2$ e da fase ϕ_n ($\psi_n = |\psi_n|e^{i\phi n}$) em instantes representativos nos quais estados oscilantes e auto-armadilhados estão presentes. Justamente acima do limiar da instabilidade modulacional, o sistema desenvolve oscilações regulares com um envelope de pico único no qual o perfil da fase é suave (figura 4.5-a). Para não linearidades maiores, tal como mos-

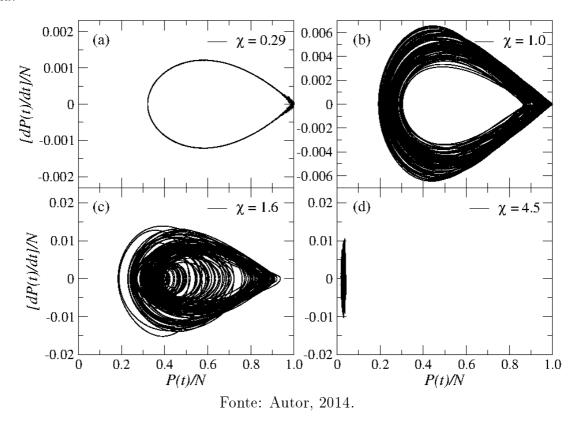
Figura 4.5: Perfis típicos da norma da função de onda e da fase dos batimentos e dos estados auto-armadilhados que aparecem durante a evolução temporal em diferentes regimes de não linearidades: a) Para $\chi=0.29$, logo acima do limiar de instabilidade modulacional, o pacote de onda desenvolve um único batimento com um perfil suave de fase; b) Para $\chi=1.0$ as oscilações regulares desenvolvem-se com dois batimentos de fases aproximadamente opostas; c) Para $\chi=3.0$ surgem três batimentos, mas as amplitudes e os perfis da fase evoluem irregularmente no tempo; d) Para $\chi=4.5$ o pacote de onda evolui para um estado fortemente localizado exibindo um único pico. O perfil da fase é aleatório exceto nas proximidades o pico do pacote de onda. As amplitudes quadradas são mostradas em unidades arbitrárias para uma melhor visualização.



trado na figura 4.5-b, oscilações aproximadamente regulares com o envelope apresentando duas estruturas de pico surgem. Estes apresentam perfis de fase suaves embora praticamente opostos. O número de modos cresce com a não linearidade. Na figura 4.5-c, podemos identificar três modos para $\chi=3.0$. Contudo, a evolução temporal é bastante irregular com os perfis de amplitude e fase mudando continuamente com o tempo. Neste caso, o pacote de onda não se aproxima do perfil uniforme durante a evolução temporal, como no caso observado quando oscilações regulares estão presentes. Nós observamos oscilações irregulares apresentando até quatro modos quando a intensidade da não linearidade se aproxima do limiar de auto-armadilhamento. Um número maior de modos pode ser atingido em cadeias mais longas. Estes modos tornam-se cada vez mais superpostos o que acarreta na transição para o estado auto-armadilhado. Na figura 4.5-d, nós mostramos os perfis típicos da amplitude e da fase de um estado auto-armadilhado. A amplitude é fortemente concentrada em torno de um sítio, embora apresente um ruído residual espalhado por toda a cadeia. O perfil da fase é aleatório, exceto na vizinhança próxima do pico predominante do pacote de onda.

A sequência de comportamentos dinâmicos mostrados na figura 4.4 também pode ser

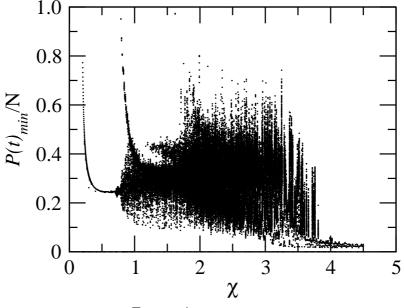
Figura 4.6: Algumas órbitas representativas no espaço de fase do número de participação $dP(t)/dt \times P(t)$ obtido em uma cadeia linear com N=100 sítios no intervalo 80000 < t < 100000. $\chi=0.29$: As órbitas fechadas simples sinalizam um padrão de breathing regular da função de onda. $\chi=1.0$: As órbitas tornam-se instáveis mas as oscilações são aproximadamente regulares. $\chi=1.6$: Oscilações do tipo caóticas são desenvolvidas. $\chi=4.5$: As órbitas convergem para um único ponto indicando a localização assintótica da função de onda.



ilustrada pela órbitas representativas no espaço de fase do número de participação $\frac{dP}{dt} \times P$, como apresentado na figura 4.6. Logo acima do limiar IM, uma única órbita fechada no espaço de fase sinaliza as oscilações periódicas do pacote de onda entre o estado uniforme com P/N=1 e o estado localizado no segmento finito, visto na figura 4.6-a. Quando a não linearidade é aumentada, as órbitas do espaço de fase começam a se tornar instáveis, apresentando oscilações próximas às regulares. As órbitas evoluem para o padrão do tipo caótico quando χ é aumentado ainda mais, conforme as figuras 4.6-b-c. Finalmente, elas convergem para um único local, representando o auto-armadilhamento do estado localizado, observado na figura 4.6-d.

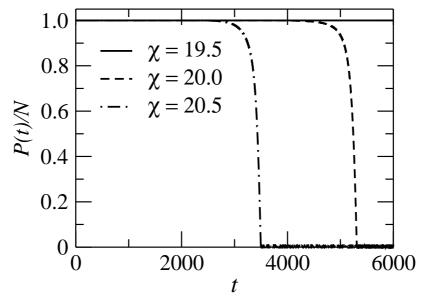
Os resultados acima mostram que a função de onda e seu número de participação associado exibem uma sequência complexa no comportamento dinâmico como função da intensidade do parâmetro não linear. No intuito de fornecer um entendimento mais completo de

Figura 4.7: Diagrama mostrando o número de participação normalizado mínimo versus χ obtido de uma função de onda inicialmente uniforme, evoluindo em uma cadeia linear com N=100 sítios. O único mínimo surgindo para pequenos χ sinaliza o surgimento da instabilidade modulacional. Um padrão caótico separa os regimes de funções de onda uniformes e localizadas.



como a dinâmica da função de onda varia com χ , localizamos os mínimos locais do número de participação para um grande conjunto de intensidades não lineares cobrindo todos os regimes dinâmicos descritos anteriormente. O resultado é apresentado na figura 4.7. Apenas os números de participação mínimo presentes no intervalo temporal 80000 < t < 100000 foram considerados. A primeira ramificação aparecendo logo acima de $\chi_{IM} \simeq 0.2$ representa o regime no qual a função de onda apresenta oscilações periódicas entre os estado uniforme e o único estado localizado. A segunda ramificação aparecendo para $\chi \simeq 0.8$ delimita o final do regime de oscilações periódicas únicas. Numa estreita faixa de intensidades não lineares, as oscilações são principalmente entre o estado uniforme e dois estados localizados, embora o primeiro esteja associado com a primeira ramificação ficar instável. A dinâmica torna-se caótica para $1.0 \simeq \chi \simeq 3.8$ com o número de participação possuindo diversos mínimos devido a suas osciladores irregulares. Esses mínimos varrem densamente um intervalo finito de valores do número de participação. O auto armadilhamento é atingido para valores $\chi > \chi_{AA} \simeq 3.8$.

Figura 4.8: Evolução temporal do número de participação normalizado P(t)/N de uma função de onda inicialmente uniforme em uma rede quadrada com $N=L^2=2500$ sítios para três valores representativos do acoplamento não linear. Nota-se que há uma transição direta entre o regime estável uniforme e o regime de solução estacionária fortemente localizada. A transição ocorre próximo de $\chi_{IM}=19,7$, em acordo com a previsão analítica baseada na análise da instabilidade modulacional. O tempo característico para a localização decresce com χ à medida que nos afastamos de χ_{IM} .

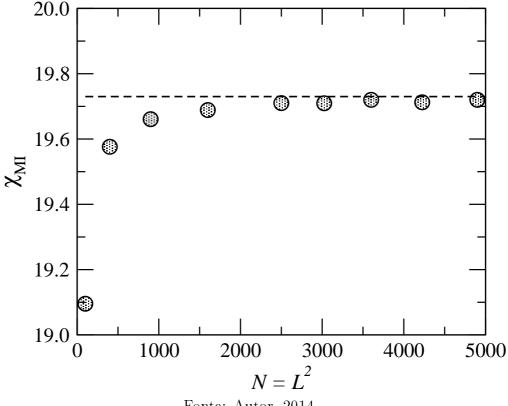


4.1.2 Rede Quadrada

Começamos observando a evolução temporal de uma função de onda inicial uniformemente distribuída em redes quadradas com condições de contorno periódicas. Na figura 4.8 mostramos a evolução temporal do número de participação normalizado P(t)/N para alguns valores representativos da intensidade não linear na vizinhança da transição previsa para a IM baseada na análise de estabilidade da solução CW da equação de Schrödinger não linear contínua. Os dados foram obtidos a partir da solução numérica da equação 4.1 na rede quadrada com $N=L^2=2500$ sítios.

Claramente observamos a transição do regime de soluções uniformes estáveis, no qual o número de participação normalizado permanece unitário ao longo de simulações muito longas, para o regime de soluções CW instáveis no qual o número de participação decresce após um tempo característico τ , que torna-se menor quando a intensidade não linear aumenta. Existe uma transição direta entre o regime uniforme e o de soluções localizadas auto-armadilhadas. Essa característica está em acordo com a previsão baseada na análise

Figura 4.9: Acoplamento não linear característico da instabilidade modulacional χ_{IM} versus o número de sítios da rede quadrada. O pequeno desvio da previsão analítica (linha tracejada) sinaliza a limitação da aproximação contínua para descrever as dinâmicas em redes discretas pequenas.

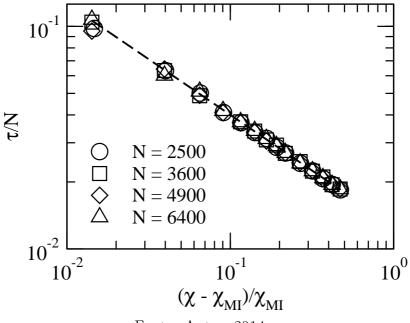


via instabilidade modulacional de que $\chi_{IM} > \chi_{AA}$, significando que a criação da instabilidade de onda contínuas ocorre dentro do regime de soluções estáveis auto-armadilhadas.

Na figura 4.9 fornecemos uma estimativa numérica precisa para χ_{IM} em redes quadradas finitas com tamanhos distintos. A linha tracejada representa a previsão independente do tamanho da rede $\chi_{IM}=2\pi^2$ obtida a partir da análise da IM da equação não linear contínua de Schrödinger. Ela fornece uma estimativa muito boa para o limiar das soluções CW em redes discretas com dimensão lateral $L=\sqrt{N}>40$. Os desvios apresentados sinalizam a limitação da aproximação contínua utilizada para capturar a dinâmica mais precisa de redes discretas menores. Nesse regime de redes discretas menores, uma relação de dispersão completa no modelo discreto foi considerada, por exemplo em (91, 92). No entanto, aqui focamos na transição do regime de estados estáveis para o regime estados auto-armadilhados os quais ocorrem independente do tamanho da rede.

Também determinamos o tempo característico τ com que a instabilidade modulacional

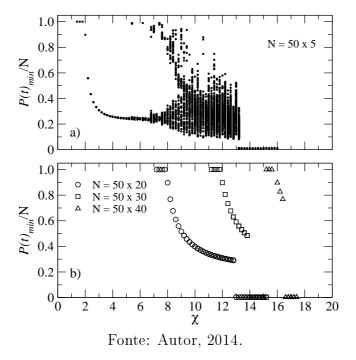
Figura 4.10: Tempo característico normalizado da instabilidade τ/N de uma função de onda inicialmente uniforme versus $\Delta\chi=(\chi-\chi_{\scriptscriptstyle IM})/\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ obtido para redes quadradas de tamanhos distintos. A linha tracejada corresponde à previsão baseada na análise da instabilidade modulacional $\tau/N=(1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$.



cresce como função da intensidade da não linearidade χ . É simples mostrar que no regime inicial de crescimento exponencial das pequenas perturbações, o número de participação normalizado evolui como $P(t)/N=1-\alpha e^{2t/\tau}$, onde α é proporcional ao ruído inicial. Por isso, estimamos numericamente τ ajustando o desvio exponencial inicial de P(t)/N unitária. Essas estimativas são mostradas na figura 4.10. Os valores de τ/N versus $\Delta\chi=(\chi-\chi_{IM})/\chi_{IM}$ obtidos para tamanhos de rede distintos colapsam em uma lei de potência. A linha tracejada representa a previsão a partir da análise da IM $\tau/N=(1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$ e estão em bom acordo com os resultados numéricos.

Realizamos ainda um estudo relacionado com a transição entre o comportamento no caso 1D para o 2D. Para realizar tal estudo, consideramos a evolução temporal de um pacote de onda inicialmente uniforme sobre todos os sítios da fita com $N=L\times l$ sítios com condições de contorno periódicas, onde L é usado para a maior dimensão da fita e l para a menor dimensão. Para evidenciar o comportamento dinâmico distinto, plotamos o número de participação normalizada mínima em função da intensidade não linear χ , como foi feito para o caso da cadeia linear. Esse resultado está mostrado na figura 4.11. Para fitas estreitas, como mostrado na figura 4.11a, observamos a presença de quatro regimes

Figura 4.11: Diagrama mostrando o número de participação mínima normalizada versus χ obtido a partir da evolução temporal de um pacote de onda inicialmente distribuído uniformemente sobre todos os sítios. a) Fita estreita com $N=50\times 5$ sítios. O comportamento é bastante similar ao das cadeias lineares, mostrando regimes com soluções estáveis e uniformes, batimentos regulares, comportamento do tipo caótico e auto-armadilhamento. b) Fitas mais largas com $N=50\times 20$ até $N=50\times 40$. Nesses casos, o regime do tipo caótico é ausente e o regime de batimentos regulares é reduzido até que a geometria de redes quadradas é alcançada.



dinâmicos distintos: pacotes de onda estacionários e uniformes para pequenos valores da intensidade não linear, batimentos regulares acima do limiar de IM o qual evolui para um comportamento do tipo caótico e finalmente o auto-armadilhamento.

No entanto, o regime do tipo caótico é fortemente suprimido quando o comprimento da fita é aumentado. Esse comportamento desaparece por completo para $l/L \gtrsim 0.3$. Na figura 4.11b mostramos o número de participação mínima para fitas com comprimentos de $N=50\times 20$ até $N=50\times 40$ sítios. Nota-se que apenas os padrões de batimentos regulares estão presentes entre o estado estável uniforme e o estado auto-armadilhado, o que é sinalizado por um único mínimo P_{min}/N distinto para esses valores limites. Além disso, o regime intermediário de batimentos continuamente estreita-se a medida que ela aproxima-se da geometria de redes quadradas. O limiar de instabilidade modulacional em fitas deve ser $\chi_{IM}=2\pi^2(l/L)$, o qual está completamente em acordo com nossa previsão através da análise da instabilidade modulacional.

4.2 Instabilidade modulacional na família de fulerenos

Nesta seção iremos investigar o fenômeno da instabilidade modulacional na família de fulerenos e comparar com a dinâmica equivalente na cadeia linear. Neste caso, iremos considerar a aproximação adiabática na qual a não-linearidade é representada por um termo cúbico na equação não-linear discreta de Schrödinger.

4.2.1 Resultados

Vamos considerar um pacote de onda inicialmente distribuído de maneira uniforme sobre todos os sítios da rede. Além disso os coeficientes são $\phi_n = 1/N$ onde N é o número total de sítios da rede. Nosso foco consiste em investigar a estabilidade do perfil do pacote de onda uniforme e suas relações com o grau de não linearidade da rede. Estudaremos a dinâmica de pacotes de onda em redes discretas com condições de contorno periódicas.

Inicialmente, revisitamos a dinâmica em cadeias lineares finitas. Na figura 4.12 fornecemos o número de participação normalizado P(t)/N versus o tempo t para N=50 e $\chi=0.3$ e $\chi=0.6$. Observamos que para, $\chi=0.3$, o número de participação é constante em todo o intervalo de tempo considerado, Portanto indica que o pacote de onda uniforme permanece estável. Para $\chi = 0.6$ o número de participação exibe um comportamento oscilatório, que sinaliza a instabilidade da largura do pacote de onda. Além disso, nossos cálculos indicam que existe um valor crítico da não linearidade (χ_c) abaixo do qual o pacote de onda permanece estável e distribuído sobre todos os sítios da rede. Para $\chi > \chi_c$, a dinâmica de instabilidade conduz a um comportamento oscilante da função de participação do pacote de onda eletrônico, que podem ser associadas a batimentos periódicos. No entanto, a função de participação oscila em torno de valores relativamente grandes, indicando que o pacote de onda permanece estendido, pelo menos, ligeiramente acima da transição. Consideramos também duas cadeias lineares com tamanhos distintos e exatamente o mesmo valor do acoplamento não linear (ver figura 4.13(a)). Para $N=40, \chi=0.45$ é fraco o suficiente para manter a estabilidade do pacote de onda e o número de participação permanece constante. Já para N=50, e o mesmo valor da intensidade do acoplamento não linear $\chi=0.45$, é

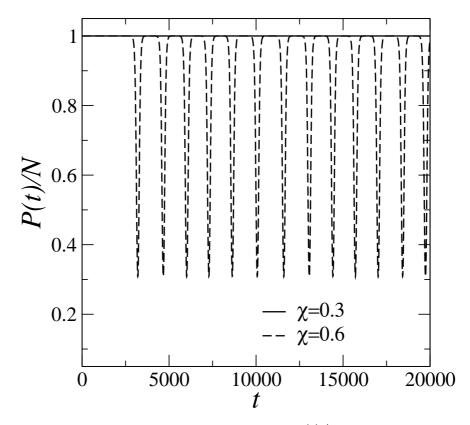


Figura 4.12: Número de participação normalizado P(t)/N versus tempo t para cadeias lineares com N=50 e $\chi=0.3$ e $\chi=0.6$. Em nossos cálculos, consideramos o pacote de onda inicialmente distribuído sobre todos os sítios da cadeia linear. Além disso, o pacote de onda inicial possui $\phi_n=1/N$ onde N é o número total de sítios. Observamos que para $\chi=0.3$, o número de participação é constante durante todos o intervalo de tempo considerado, portanto indicando que o pacote de onda é estável. Para $\chi=0.6$ o número de participação exibe um fortes oscilações, sinalizando a instabilidade do pacote de onda uniforme.

forte o suficiente para desencadear uma instabilidade no pacote de onda e os batimentos periódicos emergem. Como resultado do aumento do comprimento da cadeia linear, a intensidade da não linearidade crítica χ_c diminui decresce. Essa dependência da intensidade da não linearidade crítica com o tamanho da cadeia foi determinada numericamente, com a curva resultante mostrada na figura 4.13(b). Encontramos, numericamente, que a não linearidade crítica decresce proporcionalmente à 1/N. Na figura 4.13(b) os círculos representam os valores de χ_c obtidos numericamente para diferentes tamanhos de cadeias lineares, já a curva pontilhada representa o melhor fit para a lei de potência 1/N.

A partir daqui ampliamos nossas análises de estabilidade do pacote de onda para o caso de topologias de rede nas quais os sítios estão distribuídos sobre uma superfície fechada. Em particular, iremos considerar a topologia da rede formada por fulerenos. Inicialmente

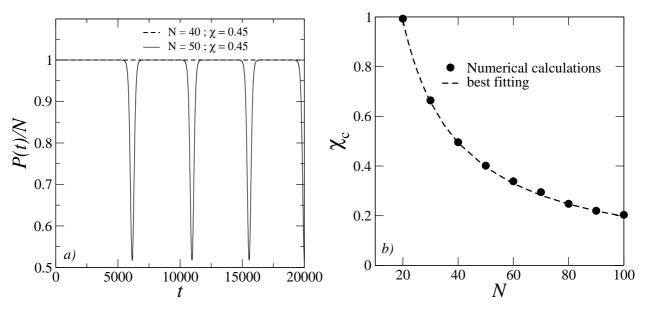


Figura 4.13: a) Número de participação normalizado P(t)/N versus o tempo t para cadeias lineares com tamanhos distintos e grau de não linearidade $\chi=0.45$. Observamos que para N=40, tal acoplamento não linear é suficiente para manter a estabilidade do pacote de onda. No entanto, para N=50, o estado uniforme torna-se instável e o número de participação desenvolve oscilações, sinalizando um padrão de batimentos. b) Demonstramos que o valor χ_c que separa o estado estável para a fase instável decresce com 1/N. As barras de erro são menores que o tamanho dos símbolos.

consideramos que o pacote de onda está uniformemente distribuído sobre todos os sítios do fulereno e seguimos numericamente sua evolução temporal. Dedicamos uma atenção particular para as características da transição do estado estável para o estado instável dos pacotes de onda uniformes e suas dependências com o tamanho do fulereno. Na figura 4.14, mostramos uma representação esquemática de dois tipos de fulerenos: são eles o C60 e o C180. Porém, nosso estudo foi aplicado a toda a família de buckyballs desde N=20 até N=720. O pacote de onda uniforme inicial também possui como coeficientes $\phi_n=1/N$ onde N é número de sítios do fulereno considerado. Na figura 4.15 plotamos a função de participação P(t)/N versus o tempo t para $\chi=7$ e $\chi=7.5$. Temos usado a topologia do C60 para esses cálculos. Podemos observar que existem dois tipos distintos de regimes a depender do grau de não linearidade. Um desses regimes é caracterizado pela estabilidade do pacote de onda que permanece ocupando integralmente o fulereno. Consequentemente, a função de participação normalizada permanece constante durante todo o intervalo de tempo considerado. Em contrapartida, no outro regime, o pacote de onda focaliza em torno de uma pequena fração de sítios do fulereno, um fenômeno similar ao bem conhecido fenômeno de

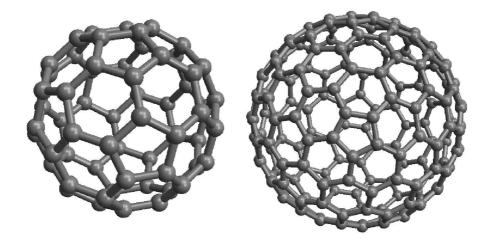


Figura 4.14: Representação esquemática de dois fulerenos, denominados C60 e C180.

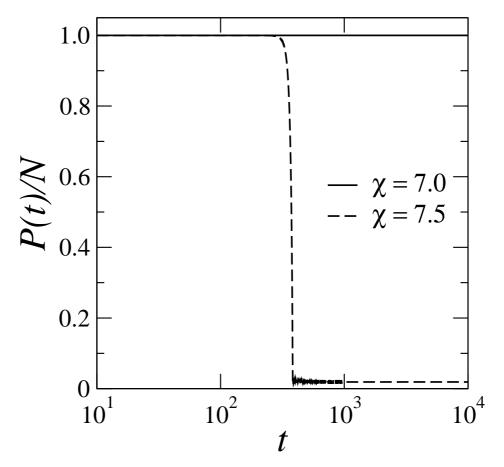


Figura 4.15: Função de participação normalizada P(t)/N versus o tempo t para $\chi=7.0$ e $\chi=7.5$. Consideramos aqui o pacote de onda uniformemente distribuído sobre todos os sítios do C60. Podemos observar que $\chi=7.0$ o pacote de onda permanece estável ocupando todo o fulereno. Para $\chi=7.5$, observamos que o pacote de onda localiza-se sobre uma pequena fração de sítios, sinalizando o fenômeno de auto-focalização.

auto-focalização.

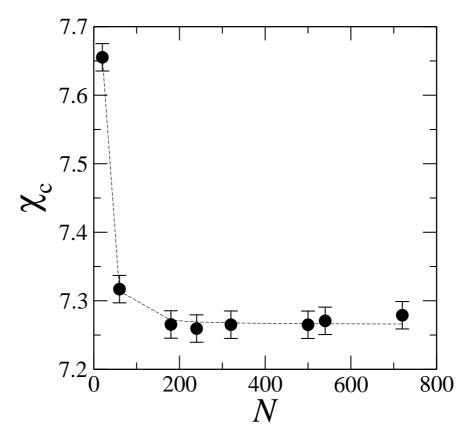


Figura 4.16: Intensidade da não linearidade crítica separando o estado uniforme estável e a fase auto-focalizada como uma função do número de sítios nos fulerenos. O valor crítico χ_c necessário para promover a transição representa uma fraca dependência com o tamanho para os fulerenos.

Para o caso do C60, podemos notar, através da evolução da função de participação normalizada P(t)/N, que as transições ocorrem para valores típicos da não linearidade próximos a $\chi_c = 7{,}32$. Além disso, não são observadas oscilações acima das transições. Em vez de apresentar o desenvolvimento de batimentos, como ocorre para cadeias lineares, há uma transição direta do estado uniforme estendido para um estado fortemente localizado. Determinamos numericamente a intensidade da não linearidade crítica que determina essa transição para toda a família de fulerenos. Encontramos que o valor χ_c necessário para prover a transição decresce lentamente quando o número de sítios dos fulerenos é aumentado, como mostrado na figura 4.16. Contudo, esse valor de intensidade não linear crítica satura em um valor finito, muito próximo para os fulerenos maiores, em contraposição com o que foi mostrado para o decrescimento contínuo da não linearidade com o tamanho em cadeias lineares.

As tendências acima associadas a dependência de tamanhos distintos tanto em cadeias

lineares quanto em fulerenos do acoplamento não linear, acima do qual o pacote de onda torna-se instável pode ser compreendido sob à luz da análise da instabilidade modulacional. Como o estado inicial é uniforme, a natureza discreta da rede não é relevante para descrever os aspectos gerais relacionados com sua instabilidade.

De acordo com a discussão apresentada no capítuo 2, perturbações harmônicas com grandes vetores de onda permanece estáveis (Ω real), enquanto aquelas com $k < k_{IM} = \sqrt{2\chi |\psi_0|^2}$ crescem exponencialmente (Ω imaginário). Como consequência, as soluções CW serão instáveis sempre que $k_{\scriptscriptstyle IM}=\sqrt{2\chi/N}>2\pi/L$, onde L é o comprimento típico da dimensão linear do sistema e $2\pi/L$ o menor vetor de onda permitido para uma perturbação harmônica. Essa última expressão determina a intensidade não linear característica $\chi_{_{IM}} = 2\pi^2 N/L^2$ acima da qual a solução CW é instável. Em cadeias lineares $N \propto L$, resultando $\chi_{_{IM}} \propto 1/N$. Em cadeias lineares de grandes comprimentos, o limiar da instabilidade modulacional crítica é bastante pequeno. No entanto, o pacote de onda uniforme torna-se instável acima de χ_{IM} , e o acoplamento não linear não é forte o suficiente para promover a localização do pacote de onda e são desenvolvidos padrões de batimentos. Por outro lado, $N \propto L^2$ quando consideramos a topologia de fulerenos. Nesse caso, a intensidade crítica do acoplamento não linear torna-se independente do tamanho para a instabilidade modulacional da solução CW. Esse valor crítico é grande o suficiente para guiar o pacote de onda para uma forte localização. Esses resultados estão em total acordo com os dados numéricos obtidos das simulações computacionais.

4.3 Efeito da relaxação da não-linearidade no Fulereno C_{60}

Nesta seção, nós estudamos a dinâmica do pacote de onda de um elétron no fulereno C_{60} com uma uma relaxação na intensidade da não linearidade. A dinâmica eletrônica é considerada como sendo governada pela equação não linear discreta de Schrödinger, na qual a contribuição não linear obedece um processo de relaxação do tipo Debye. Acompanhamos a evolução temporal do pacote de onda e usamos o número de participação para explorar

sua extensão espacial. Considerando situações iniciais distintas, caracterizamos a transição delocalização auto-armadilhamento como função da intensidade não linear e do tempo de relaxação. Mostramos que o diagrama de fase exibe um padrão complexo de saliências indicando um comportamento de re-entrâncias da transição. As re-entrâncias tornam-se menos proeminentes para condições iniciais nas quais os pacotes de onda estão espacialmente distribuídas sobre sítios opostos.

4.3.1 Modelo e Formalismo

A seguir, analisaremos a dinâmica do pacote de onda de um elétron numa topologia do tipo fulereno, mais especificamente, no C_{60} . Iremos considerar que o fulereno possui vibrações intrínsecas que não alcançam o equilíbrio quando comparado com o tempo de evolução do elétron. Sob essa condição, um cenário não adiabático foi aplicado para levar em conta a relaxação do termo não linear efetivo resultante do acoplamento elétron-fônon. Vamos assumir que a relaxação da não linearidade é do tipo Debye (38, 40), a dinâmica não adiabática pode ser estudada usando as equações acopladas:

$$i\dot{a}_j = V(a_{j+1} + a_{j-1}) + x_j a_j$$
 (4.1)

$$\dot{x}_j = -\frac{1}{\tau}(x_j + \chi |a_j|^2), \tag{4.2}$$

onde o pacote de onda eletrônico está representado nos orbitais localizados através da representação Wannier por $|\Psi\rangle = \sum_j a_j(t)|j\rangle$. x_j é a contribuição não linear dependente do tempo para um potencial efetivo no sítio no qual a relaxação possui um tempo característico τ . V é a amplitude de hopping de um elétron e χ parametriza a intensidade da contribuição não linear que é proporcional ao acoplamento elétron-fônon. O fulereno C_{60} possui 60 sítios que estão distribuídos em 20 hexágonos e 12 pentágonos. Cada sítio possui três ligações, duas delas entre um hexágono e um pentágono (ligações simples) e a outra entre dois hexágonos (ligações π). Embora esses dois tipos de ligações possuam comprimentos ligeiramente diferentes iremos considerar que a amplitude de hopping V é a mesma independente do tipo de ligaçõe, e será considerada como unitária daqui em diante.

Para examinar a dinâmica do pacote de onda, iremos acompanhar a evolução temporal do número de participação P(t), definido como

$$P(t) = \left[\sum_{j} |a_{j}|^{4}\right]^{-1}.$$
(4.2)

Em geral, o número de participação é uma boa estimativa do número de sítios que efetivamente contribuem para a distribuição eletrônica de probabilidades. Para estados uniformemente estendidos, P(t) é igual ao número total de sítios N. Para estados fortemente localizados, o número de participação torna-se muito menor que N.

4.3.2 Resultados e Discussões

Resolvemos numericamente as equações 4.2 considerando diversos tipos distintos de condições iniciais. Acompanhamos a evolução temporal de um pacote de onda até que ela atinja o regime estacionário. Começamos mostrando nossos resultados para o caso no qual o pacote de onda está inicialmente distribuído uniformemente sobre os sítios do pentágono como ilustrado na figura 4.17-a. A evolução temporal da função de participação é reportada para alguns conjuntos típicos de parâmetros do modelo (como a intensidade da não linearidade χ e o tempo de relaxação τ), como ilustrado nas figuras 4.17-(b-c). Em todos os casos, o pacote de onda inicial possui um número de participação P(t=0)=5, de acordo com a distribuição inicial sobre os sítios do pentágono. Na figura 4.17-b, fixamos o tempo de relaxação e variamos a intensidade do parâmetro não linear para valores próximos da transição dos estados localizados para estados auto-armadilhados.

Notamos que as oscilações ocorrem em tempos intermediários, as quais sinalizam o surgimento de batimentos irregulares, são fracamente sensíveis ao valor preciso da intensidade da não linearidade. No entanto, a convergência para um estado estacionário final depende fortemente de χ . Para não linearidades pequenas, o estado estacionário é uniformemente distribuído sobre todos os sítios do buckyball, enquanto ele focaliza sobre poucos sítios para não linearidades fortes. É importante chamar atenção para o fato que a transição entre o regime de estados delocalizados e o regime de estados auto-armadilhados ocorre com o aumento da

intensidade da não linearidade, representado pelo comportamento re-entrantes, caracterizado por uma sequência de pacotes de onda assintoticamente delocalizados e auto-armadilhados.

Na figura 4.17-c exploramos a dependência da evolução temporal do pacote de onda com o tempo de relaxação τ . Aqui, fixamos o valor do acoplamento não linear em um patamar próximo ao da transição delocalização/auto-armadilhamento e apresentamos os resultados para alguns valores representativos do tempo de relaxação. Também observamos que o transiente inicial de oscilações é fracamente sensível ao valor preciso de τ , contrário a distribuição final do pacote de onda assintótico. O comportamento re-entrante da transição como uma função de τ é também evidenciada. Na figura 4.18, fornecemos o diagrama de fase completo no espaço de parâmetros $\chi \times \tau$. Esse comportamento re-entrante da transição é reflexo da emergência de várias "pontas", as quais tornam-se bastante fragmentadas no regime com tempos de relaxação curtos. Nesse regime, existe uma forte sensibilidade dos estados assintóticos em certos valores dos parâmetros do modelo.

No intuito de explorar a sensibilidade com relação à condição inicial da transição delocalização/au armadilhamento, consideramos o caso no qual o pacote de onda inicial está uniformemente distribuído sobre os sítios de um hexágono, como ilustra a figura 4.17-a. Nós também fornecemos algumas séries representativas da evolução temporal do número de participação (veja figura 4.19b-c). A transição também apresenta um comportamento re-entrante, tanto em função da intensidade não linear (figura 4.19 b) quanto como função do tempo de relaxação (figura 4.19-c). O diagrama de fases é mostrado na figura 4.20. Embora ele possua um diagrama de fase similar ao apresentado para a condição inicial pentagonal, existem algumas características que merecem ser observadas. Primeiramente, as re-entrâncias são menos pronunciadas para a condição inicial hexagonal. No entanto, a sequência de pontas é mais claramente definida, apontando para uma fraca sensitividade aos parâmetros do modelo no regime de curtos tempos de relaxação. Além disso, a intensidade da não linearidade crítica no regime em que a resposta não linear varia lentamente (valores grande de τ) é um pouco maior que a obtida na condição inicial pentagonal. Essa característica está de acordo com os resultados prévios sobre a transição de auto-armadilhamento que se mostrou um crescimento monotônico do limiar de auto-armadilhamento quando a largura do pacote de onda inicial é aumentada (34).

Figura 4.17: (a) Ilustração de um pacote de onda inicial distribuído uniformemente sobre os sítios de um hexágono. (b-c) Algumas evoluções temporais representativas do número de participação para (b) $\chi=6.5$ e $\tau=0.22,0.45,1.5$; e (c) $\chi=7.5$ e $\tau=0.22,0.45,1.5$. Observamos uma sequência alternada de localização e auto-armadilhamento tanto em função de χ quanto de τ .

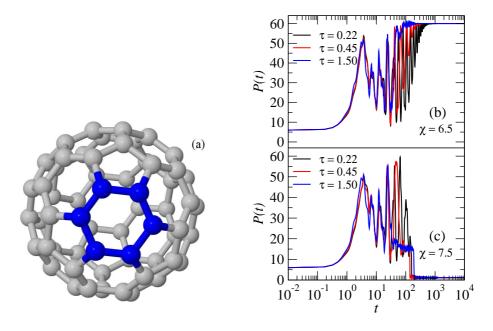
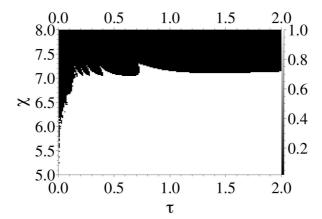


Figura 4.18: Diagrama de fase mostrando os regimes auto-armadilhado (regiões pretas) e delocalizado (regiões brancas) no espaço de parâmetros bidimensional (τ,χ) . Esses cálculos foram realizados para o caso no qual o pacote de onda inicial está uniformemente distribuído sobre os sítios de um hexágono.



Observamos na figura 4.19 que para $\chi = 6.1$ e tempos curtos, o pacote de onda está armadilhado em cinco sítios (sítios do pentágono). No entanto, para tempos longos, o pacote de onda espalha-se sobre toda a estrutura do C_{60} ($P(t) \propto N \text{ com } N \approx 60$, o número de sítios da topologia do C_{60}). Para tempos intermediários, observamos também uma região de instabilidade. Notamos que o pacote de onda exibe um perfil de batimentos antes de alcançar

Figura 4.19: (a) Ilustração de um pacote de onda inicial distribuído uniformemente sobre os sítios de um pentágono. (b-c) Algumas evoluções temporais representativas do número de participação para (b) $\chi=6.1$ e $\tau=0.30,0.61,1.82;$ e (c) $\chi=7.0$ e $\tau=0.30,0.61,1.82.$ Observamos também uma sequência alternada de localização e auto-armadilhamento tanto em função de χ quanto de τ .

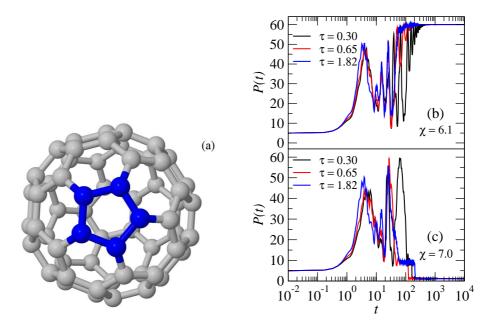
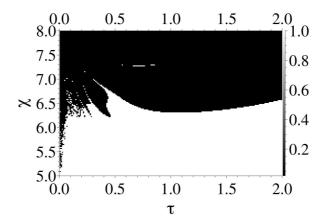


Figura 4.20: Diagrama de fase com relação ao espaço de parâmetros bidimensional τ, χ . A região em preto indica o regime auto-armadilhado enquanto a região em branco o regime delocalizado. Esses cálculos foram realizados para o caso no qual o pacote de onda inicial está uniformemente distribuído sobre os sítios de um pentágono.



um comportamento estacionário estendido (com $P(t) \approx N$). Notamos ainda que, quando o tempo de resposta τ é aumentado, o pacote de onda evolui mais rapidamente para o perfil estacionário estendido. Na figura 4.19-c, observamos para $\chi = 7$ e todos os valores de τ considerados que o número de participação evolui para um pequeno valor finito ($P(t) \approx n_0$ com $n_0 \ll N$). Na figura 4.20, exploramos o espaço de parâmetros bidimensional τ, χ no intuito

Figura 4.21: Ilustrações de quatro condições iniciais distintas com o pacote de onda uniformemente distribuído sobre os sítios de (a) um pentágono estendido, (b) de dois pentágonos opostos, (c) de um hexágono estendido e (d) de dois hexágonos opostos.

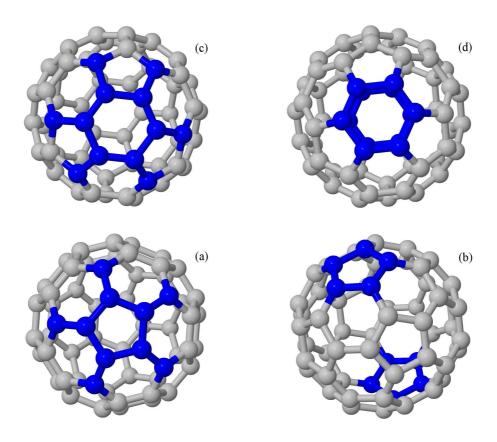
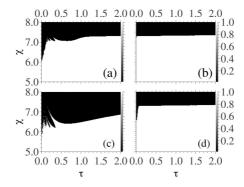


Figura 4.22: Os diagramas de fase com os parâmetros de espaço bidimensionais τ, χ . Os cálculos foram realizados considerando quatro tipos distintos de condições iniciais: (a) pentágono estendido, (b) dois pentágonos opostos, (c) hexágono estendido e (d) dois hexágonos opostos. É importante notar que as re-entrâncias estão ausentes quando a condição inicial do pacote de onda está distribuído em um conjunto de sítios opostos.



de construir um diagrama de fase que forneça os regimes localizado (região em preto com pequenos P(t)) e delocalizado (região em branco com $P(t) \approx N$). Observamos novamente que o diagrama de fases exibe uma forma não usual e um conjunto de protuberâncias e re-

entrâncias. A linha que separa os modos estendidos dos estados armadilhados exibem uma aparência e torna-se mais difícil de estimar o limiar da transição de auto-armadilhamento. Para um grande intervalo de valores do tempo de resposta finito τ , notamos que o limiar da transição de auto-armadilhamento é menor que no caso do hexágono. As saliências e entrâncias indicam, de novo, a possibilidade de a transição de auto-armadilhamento ser induzida por um tempo de resposta finito τ . Por exemplo, para um valor fixo $\chi=6.5$ podemos obter ambos os regimes: armadilhado para $\tau\approx0.4$ e delocalizado para $\tau\approx0.5$. Este interessante fenômeno está fortemente relacionado com o tipo de condição inicial considerada.

Antes de finalizar, consideramos outros tipos de condições iniciais (veja a figura 4.21): a) pentágono estendido b) dois pentágonos opostos c) hexágono estendido e d) dois hexágonos opostos. A condição inicial com o pentágono estendido consiste do pacote de onda distribuído uniformemente sobre 10 sítios: desses, um pentágono e seus primeiros vizinhos, como ilustrado na figura 4.20-a. A condição inicial de dois pentágonos opostos também consiste do pacote de onda inicial uniformemente distribuído sobre 10 sítios, porém distribuídos de maneira oposta (veja figura 4.20-b). Na condição inicial com o hexágono estendido, o pacote de onda está distribuído sobre 12 sítios ocupando um hexágono e seus primeiros vizinhos, como mostrado na figura 4.20-c, enquanto que na condição inicial de dois hexágonos opostos, eles ocupam dois hexágonos diametralmente opostos (figura 4.20-d).

Na figura 4.22, reportamos o diagrama de fase resultante para cada uma das condições anteriormente mencionadas. Para as condições iniciais de pentágono estendido (figura 4.22-a) e hexágono estendido (figura 4.22-c), os diagramas de fase são bastante similares àqueles obtidos para os pacotes de onda inicialmente distribuídos sobre os casos de apenas um pentágono e um hexágono, respectivamente. A principal diferença é que as pontas reentrantes são ligeiramente menos pronunciadas. Por outro lado, os diagramas de fase relacionados com as condições iniciais com o pacote de onda inicial distribuído em estruturas opostas são bastante distintas, ainda que elas possuam o mesmo número de de sítios para a participação inicial para o caso de sítios estendidos. Nesses casos (veja figura 4.22-b e 4.22-d) as pontas reentrantes estão ausentes. O limiar do acoplamento não linear separando o regime de pacotes de onda delocalizados e o auto-armadilhados são praticamente independentes do tempo de relaxação, exceto no regime de tempos de resposta muitos rápidos nos quais eles apresentam

um pequeno decréscimo (visível na figura 4.22-b). Essa característica é devido ao fato que, para essas condições iniciais o pacote de onde espalha-se sobre toda a estrutura do C_{60} em um intervalo de tempo menor do que no caso de um único cluster. Nesse caso, a transição do regime delocalizado para o auto-armadilhado é desencadeado pela instabilidade modulacional da solução uniforme. O limiar assintótico é também maior nos casos de apenas um cluster conectado, corroborando sua expectativa de dependência do número de participação inicial (34).

Conclusão

Em resumo, estudamos, tanto analiticamente quanto numericamente, a evolução temporal de uma função de onda inicialmente uniforme em redes não lineares discretas de baixa dimensionalidade governada pela equação não linear discreta de Schrödinger. A análise da instabilidade modulacional foi aplicada para mostrar que a intensidade não linear $\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ acima do qual as pequenas perturbações superpostas ao estado uniforme crescem exponencialmente é finita na rede quadrada enquanto ela é inversamente proporcional ao comprimento L em cadeias unidimensionais. Em ambos os casos, demonstramos que o tempo característico de crescimento da instabilidade $\tau \propto L^2 \Delta \chi^{-1/2}$, com $\Delta \chi = \chi - \chi_{_{IM}}$. A IM é considerada como uma etapa inicial para a emergência de soluções localizadas tais como sólitons e batimentos $(\mathit{discrete\ breathers}).$ Na rede quadrada, o valor de $\chi_{\scriptscriptstyle IM}$ é maior que o acoplamento não linear necessário para a ocorrência de soluções auto-armadilhadas χ_{AA} . Como consequência, para valores acima de $\chi_{\scriptscriptstyle IM}$, a instabilidade da solução uniforme guia o sistema para o estado localizado com uma distribuição de probabilidades estacionária. Em contraste, $\chi_{_{IM}} << \chi_{_{AA}}$ em cadeias lineares. Essa característica é responsável pela existência de um regime no qual nem o estado uniforme nem o estado auto-armadilhado são estáveis. Em tal regime, a dinâmica do pacote de onda exibe uma série de comportamentos não convencionais partindo de batimentos periódicos para oscilações do tipo caóticas entre estados localizados distintos. Nós caracterizamos a mudança dos estados uniformes para os estados localizados pela apresentação de algumas órbitas típicas no espaço de fase do número de participação, assim como o diagrama de bifurcação do número de participação mínimo.

É importante acrescentar que, recentemente, foi demonstrado que a dimensão da rede influencia fortemente a dinâmica dos condensados de Bose-Einstein em redes ópticas (76). Portanto, os resultados apresentados nesta tese avançam na compreensão das dinâmicas de funções de ondas quânticas em redes discretas revelando um papel importante desempenhado pela relação entre a instabilidade modulacional e o auto-armadilhamento. Ainda nesse sentido, existem vários aspectos que merecem investigações adicionais. Por exemplo, a resposta não linear usualmente apresenta certa saturação a possui um tempo de resposta finito. Como esse fenômeno influencia a relativa intensidade de IM e a de auto-armadilhamento? Além do mais, a IM a o auto-armadilhamento são menores em redes de bidimensionais com um menor número de coordenação, o qual pode impactar na dinâmica das funções de onda no grafeno. Futuros trabalhos focando nesses pontos podem contribuir ainda mais para a construção de um panorama da dinâmica de pacotes de onda em meios não lineares.

Também estudamos a dinâmica do pacote de onda de um elétron no fulereno C_{60} com uma uma relaxação na intensidade da não linearidade. A dinâmica eletrônica é considerada como sendo governada pela equação não linear discreta de Schrödinger, na qual a contribuição não linear obedece um processo de relaxação do tipo Debye. Acompanhamos a evolução temporal do pacote de onda e usamos o número de participação para explorar sua extensão espacial. Considerando situações iniciais distintas, caracterizamos a transição delocalização auto-armadilhamento como função da intensidade não linear e do tempo de relaxação. Mostramos que o diagrama de fase exibe um padrão complexo de saliências indicando um comportamento de re-entrâncias da transição. As re-entrâncias tornam-se menos proeminentes para condições iniciais nas quais os pacotes de onda estão espacialmente distribuídas sobre sítios opostos.

Em resumo, investigamos a evolução temporal de pacotes de onda eletrônicos restritos à evolução nos sítios de um fulereno C_{60} sob a influência de uma não linearidade de terceira ordem considerando um tempo de relaxação finito τ . Utilizando a aproximação tight-biding e incluindo um processo de relaxação do tipo Debey na contribuição não linear, fornecemos um estudo detalhado da transição dos estados delocalizados para os estados auto-armadilhados assintoticamente localizados. No regime de fracos acoplamentos não lineares, o estado assintótico torna-se delocalizado com relação ao tempo de relaxação da não

linearidade e condição inicial. Por outro lado, o pacote de onda evolui para um estado estacionário auto-armadilhado para fortes não linearidades. Revelamos que a localização atual da transição é fortemente dependente da condição inicial assim como o tempo de relaxação da não linearidade. Fornecemos o diagrama de fase completo para as seis condições iniciais, e em quatro delas, consideramos que o pacote de onda foi inicialmente distribuído sobre os sítios de um cluster conectado (pentágono, hexágono, pentágonos estendidos, e hexágonos estendidos). Em todos esses casos, os diagramas de fase apresentam pontas reentrantes que refletem a presença de uma sequência de transições quando a intensidade não linear é aumentada, antes do auto-armadilhamento final. Essas reentrâncias são mais proeminentes em regimes em curtos tempos de relaxação, assim como nas condições iniciais com cluster menores. Adicionalmente, no intervalo de intensidades não lineares correspondentes a esse comportamento reentrante, a sequência de transições de auto-armadilhamento para delocalizado também pode surgir com o aumento do tempo de relaxação. Para a condição inicial nas quais o pacote de onda é distribuído em clusteres opostos desconectados (pentágono oposto e hexágono oposto) o comportamento reentrante da transição é suprimido e o limiar não linear sinalizando a transição de auto-armadilhamento torna-se praticamente independente do tempo de relaxação não linear. Nesse caso, a transição de auto-armadilhamento ocorre após o espalhamento inicial do pacote de onda sobre todo o fulereno e é desencadeado pela instabilidade modulacional da solução uniforme.

Finalmente, comparamos a instabilidade modulacional de um pacote de onda eletrônico evoluindo em uma cadeia linear discreta e na famíla de fulerenos. No caso da cadeia linear, o valor de χ_c que separa a fase estável da fase instável dos pacotes de onda decai proporcionalmente a 1/N, com o pacote de onda desenvolvendo um padrão de batimento logo acima do limiar de instabilidade. Em fulerenos, também existe um χ_c abaixo do qual o pacote de onda eletrônico permanece uniformemente distribuído. Para valores da não linearidade acima de χ_c , o pacote de onda eletrônico focaliza em torno de uma pequena fração dos sítios do fulereno. Enquanto na cadeia linear esse acoplamento não linear crítico decresce monotonicamente com o tamanho da cadeia, em fulerenos χ_c apresenta uma dependência muito fraca com o tamanho. Foi demonstrado que a dinâmica distinta do pacote de onda em cadeias lineares e em fulerenos pode ser compreendida no contexto do fenômeno de instabi-

lidade modulacional. O presente estudo pode ser estendido para as análises da estabilidade dos pacotes de onda uniformes em outras estruturas nanoscópicas (nanotubos, nanofitas, etc) de atual interesse científico e tecnológico, assim como a estabilidade de soluções do tipo sólitons. Nesse contexto, o tempo de relaxação da não linearidade poderia ser um ingrediente relevante para ser incluído na análise da instabilidade modulacional (40).

Como perspectivas futuras, esses tópicos merecem ser investigamos no intuito de fornecer uma visão mais ampla da compreensão da dinâmica eletrônica do pacote de onda em nanoestruturas, tais como grafeno e nanotubos de carbono, devido seu potencial tecnológico. Ainda podemos avançar no sentido de compreender o papel da desordem na dinâmica desses pacotes de onda nessas estruturas levando em conta ou não a aproximação adiabática para o tempo de relação da interação elétron-fônon.

- 1 FERMI, H.; PASTA, J.; ULAM, S. Studies of Nonlinear Problems. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, (Report Nº LA1940) 1955.
- 2 DAVYDOV, A. S. Solitons in Molecular Systems. Dordrecht: Reidel, 1991.
- 3 EISENBERG, H. et al. Discrete spatial optical solitons in waveguide arrays. *Physical Review Letters*, v. 81, n. 16, p. 3383–3386, Oct. 1998. ISSN 0031-9007.
- 4 KIVSHAR, Y. S.; AGRAWAL, G. P. Optical Solitons, from Fibers to Photonic Crystals. San Diego: Academic Press, 2003.
- 5 DÍAZ, E. et al. Dynamics and stability of bose-einstein solitons in tilted optical lattices.

 Physical Review A, v. 81, n. 5, p. 051607, May 2010. ISSN 1050-2947.
- 6 AGRAWAL, G. P. Nonlinear Fiber Optics. San Diego: Academic Press, 1995.
- 7 ANDERSON, M. et al. Observation of bose-einstein condensation in a dilute atomic vapor.

 Science, v. 269, p. 198–201, Jul. 1995.
- 8 BRADLEY, C. et al. Evidence of bose-einstein condensation in an atomic gas with attractive interactions. *Physical Review Letters*, v. 75, n. 9, p. 1687–1690, Aug. 1995. ISSN 0031-9007.
- 9 DAVIS, K. et al. Bose-einstein condensation in a gas of sodium atoms. *Physical Review Letters*, v. 75, n. 22, p. 3969–3973, Nov. 1995. ISSN 0031-9007.
- FRIED, D. et al. Bose-einstein condensation of atomic hydrogen. Physical Review Letters,
 v. 81, n. 18, p. 3811–3814, Nov. 1998. ISSN 0031-9007.

11 DALFOVO, F. et al. Theory of bose-einstein condensation in trapped gases. Review of Modern Physics, v. 71, p. 463–512, Apr. 1999.

- 12 KENKRE, V. M.; WU, H.-L. Time evolution of the nonadiabatic nonlinear quantum dimer. *Physical Review B*, v. 39, p. 6907–6913, Apr. 1989.
- 13 FLACH, S.; KRIMER, D. O.; SKOKOS, C. Universal spreading of wave packets in disordered nonlinear systems. *Physical Review Letters*, v. 102, p. 024101, Jan. 2009.
- 14 CAETANO, R. A.; MOURA, F. de; LYRA, M. L. Anderson localization in a disordered chain with a finite nonlinear response time. *The European Physical Journal B*, v. 80, n. 3, p. 321–324, Mar. 2011. ISSN 1434-6028.
- 15 SMERZI, A. et al. Quantum coherent atomic tunneling between two trapped bose-einstein condensates. *Phys. Rev. Lett.*, v. 79, p. 4950–4953, Dec. 1997.
- 16 ALFIMOV, G. L. et al. Wannier functions analysis of the nonlinear schrödinger equation with a periodic potential. *Physical Review E*, v. 66, p. 046608, Oct. 2002.
- 17 PEYRARD, M.; BISHOP, A. Statistical mechanics of a nonlinear model for dna denaturation. *Physical Review Letters*, v. 62, n. 23, p. 2755–2758, Jun. 1989. ISSN 0031-9007.
- 18 DAUXOIS, T.; PEYRARD, M.; BISHOP, A. Entropy-driven dna denaturation. *Physical Review E*, v. 47, n. 1, p. R44–R47, Jan. 1993. ISSN 1063-651X.
- 19 DAUXOIS, T.; PEYRARD, M.; BISHOP, A. Dynamics and thermodynamics of a non-linear model for dna denaturation. *Physical Review E*, v. 47, n. 1, p. 684–695, Jan. 1993. ISSN 1063-651X.
- 20 CHRISTODOULIDES, D. N.; JOSEPH, R. I. Discrete self-focusing in nonlinear arrays of coupled waveguides. *Optics Letters*, v. 13, n. 9, p. 794, Sep. 1988. ISSN 0146-9592.
- 21 ACEVES, A. et al. Discrete self-trapping, soliton interactions, and beam steering in nonlinear waveguide arrays. *Physical Review E*, v. 53, n. 1, p. 1172–1189, Jan. 1996. ISSN 1063-651X.

22 KIVSHAR, Y.; PEYRARD, M. Modulational instabilities in discrete lattices. *Physical Review A*, v. 46, n. 6, p. 3198–3205, Sep. 1992. ISSN 1050-2947.

- 23 KIVSHAR, Y. Creation of nonlinear localized modes in discrete lattices. *Physical Review* E, v. 48, n. 5, p. 4132–4135, Nov. 1993. ISSN 1063-651X.
- 24 JENSEN, S. The nonlinear coherent. IEEE Journal of Quantum Electronics, v. 18, n. 10, p. 1580–1583, Oct. 1982.
- 25 MORANDOTTI, R. et al. Dynamics of discrete solitons in optical waveguide arrays.

 Physical Review Letters, v. 83, n. 14, p. 2726–2729, Oct. 1999. ISSN 0031-9007.
- 26 ANDERSON, B. P.; KASEVICH, M. A. Macroscopic quantum interference from atomic tunnel arrays. *Science*, v. 282, n. 5394, p. 1686–1689, Nov. 1998.
- 27 TROMBETTONI, A.; SMERZI, A. Discrete solitons and breathers with dilute bose-einstein condensates. *Physical Review Letters*, v. 86, n. 11, p. 2353–2356, Mar. 2001. ISSN 0031-9007.
- 28 KALOSAKAS, G.; RASMUSSEN, K.; BISHOP, A. Delocalizing transition of bose-einstein condensates in optical lattices. *Physical Review Letters*, v. 89, n. 3, p. 030402, Jun. 2002. ISSN 0031-9007.
- 29 CATALIOTTI, F. S. et al. Josephson junction arrays with bose-einstein condensates. Science, v. 293, n. 5531, p. 843-6, Aug 2001. ISSN 0036-8075.
- 30 MEIER, J. et al. Experimental observation of discrete modulational instability. *Physical Review Letters*, v. 92, n. 16, p. 163902, Apr. 2004. ISSN 0031-9007.
- 31 HOLSTEIN, T. Studies of polaron motion: Part i. the molecular-crystal model. *Annals of Physics*, v. 8, n. 3, p. 325 342, 1959. ISSN 0003-4916.
- 32 KENKRE, V. M.; CAMPBELL, D. K. Self-trapping on a dimer: Time-dependent solutions of a discrete nonlinear schrödinger equation. *Physical Review B*, v. 34, p. 4959, 1986.

33 JOHANSSON, M.; HöRNQUIST, M.; RIKLUND, R. Effects of nonlinearity on the time evolution of single-site localized states in periodic and aperiodic discrete systems. *Physical Review B*, v. 52, n. 1, p. 231–240, Jul 1995. ISSN 0163-1829.

- 34 DIAS, W. S.; LYRA, M. L.; MOURA, F. A. B. F. de. Effects of nonlinearity on wave-packet dynamics in square and honeycomb lattices. *Physical Review B*, v. 82, p. 233102, 2010.
- 35 DATTA, P.; KUNDU, K. Time evolution of models described by a one-dimensional discrete nonlinear schrödinger equation. *Physical Review B*, v. 53, n. 22, p. 14929–14936, Jun. 1996. ISSN 0163-1829.
- 36 IVANCHENKO, M. q breathers in finite lattices: Nonlinearity and weak disorder. *Physical Review Letters*, v. 102, n. 17, p. 175507, Apr. 2009. ISSN 0031-9007.
- 37 MOURA, F. de et al. Wave-packet dynamics in chains with delayed electronic nonlinear response. *Physical Review Letters*, v. 103, n. 9, p. 096401, Aug. 2009. ISSN 0031-9007.
- 38 MOURA, F. de et al. Electron self-trapping and self-focusing in periodic chains with a finite nonlinear response time. *Physics Letters A*, v. 374, n. 40, p. 4152–4155, Sep. 2010. ISSN 03759601.
- 39 MULANSKY, M.; PIKOVSKY, A. S. Re-localization due to finite response times in a nonlinear anderson chain. *The European Physical Journal B*, v. 85, n. 3, p. 105, Mar. 2012. ISSN 1434-6028.
- 40 LYRA, M. L.; LIMA, R. P. A. Wave-packet spreading dynamics under a noninstantaneous nonlinearity: Self-trapping, defocusing, and focusing. *Physical Review E*, v. 85, n. 5, p. 057201, May 2012. ISSN 1539-3755.
- 41 FILHO, V. L. C.; LIMA, R. P. A.; LYRA, M. L. Interplay between modulational instability and self-trapping of wavepackets in nonlinear discrete lattices. *Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science*, AIP Publishing, v. 25, n. 6, p. 063101, Jun 2015. ISSN 1054-1500.

42 FILHO, V. L. C. et al. Stability of uniform electronic wavepackets in chains and fullerenes.

International Journal of Modern Physics C, World Scientific Publishing Company, v. 26,
n. 12, p. 1550133, Mar. 2015.

- 43 SILVA, A. et al. Sensitivity to initial conditions of the self-trapping transition in c_{60} buckyballs with relaxing nonlinearity. Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation, Elsevier, 2015 Aceito para publicação.
- 44 KARTASHOV, Y. V.; MALOMED, B. A.; TORNER, L. Solitons in nonlinear lattices.

 Reviews of Modern Physics, v. 83, n. 1, p. 247–305, Apr. 2011. ISSN 0034-6861.
- HASEGAWA, A. Soliton effects in optical waveguides. Reports on Progress in Physics,
 v. 65, p. 999–1024, 2002.
- 46 FLACH, S.; GORBACH, A. V. Discrete breathers advances in theory and applications.

 Physics Reports, v. 467, n. 1-3, p. 1–116, Oct. 2008. ISSN 03701573.
- 47 ZAKHAROV, V. E.; OSTROVSKY, L. A. Modulation instability: The beginning. *Physica D*, v. 238, n. 5, p. 540–548, Mar. 2009. ISSN 0167-2789.
- 48 DAVYDOV, A. S. The theory of contraction of proteins under their excitation. *Journal* of Theoretical Biology, v. 38, n. 3, p. 559–569, 1973. ISSN 0022-5193.
- 49 SCOTT, A. Davydov's soliton. *Physics Reports*, v. 217, n. 1, p. 1–67, Aug. 1992. ISSN 03701573.
- 50 SCOTT, A. C. Nonlinear Science. Oxford: OUP, 1999.
- 51 DAUMONT, I.; DAUXOIS, T.; PEYRARD, M. Modulational instability: first step towards energy localization in nonlinear lattices. *Nonlinearity*, v. 10, n. 3, p. 617–630, May 1997. ISSN 0951-7715.
- 52 MORGANTE, A. M. et al. Standing wave instabilities in a chain of nonlinear coupled oscillators. *Physica D: Nonlinear Phenomena*, v. 162, n. 1-2, p. 53–94, feb. 2002. ISSN 01672789.

53 SCOTT, A. C.; EILBECK, J. C. On the ch stretch overtones of benzene. *Chemical Physics Letters*, v. 132, n. 1, p. 23–28, 1986. ISSN 0009-2614.

- 54 AUBRY, S. Breathers in nonlinear lattices: Existence, linear stability and quantization.

 Physica D, v. 103, n. 1-4, p. 201–250, Apr. 1997. ISSN 01672789.
- 55 FLACH, S.; WILLIS, C. Discrete breathers. *Physics Reports*, v. 295, n. 5, p. 181–264, Mar. 1998. ISSN 03701573.
- 56 SMERZI, A. et al. Dynamical superfluid-insulator transition in a chain of weakly coupled bose-einstein condensates. *Physical Review Letters*, v. 89, n. 17, p. 170402, Oct. 2002. ISSN 0031-9007.
- 57 CAMPBELL, D. K.; BISHOP, A. R.; FESSER, K. Polarons in quasi-one-dimensional systems. *Phys. Rev. B*, v. 26, p. 6862–6874, Dec. 1982.
- 58 BORN, M.; OPPENHEIMER, R. Zur quantentheorie der molekeln. *Annalen der Physik*, v. 84, n. 20, p. 457–484, Aug. 1927.
- 59 AKHMEDIEV, N.; SOTO-CRESPO, J. M.; ANKIEWICZ, A. How to excite a rogue wave. *Physical Review A*, v. 80, p. 043818, Oct. 2009.
- 60 BRIHAYE, Y.; HARTMANN, B. Fullerenic solitons. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, v. 37, n. 4, p. 1181–1192, Jan. 2004. ISSN 0305-4470.
- 61 HARTMANN, B.; ZAKRZEWSKI, W. J. Electrons on hexagonal lattices and applications to nanotubes. *Physical Review B*, v. 68, p. 184302, Nov 2003.
- GRÜNEIS, A. et al. Electronic structure and electron-phonon coupling of doped graphene layers in kc₈. *Physical Review B*, v. 79, p. 205106, May 2009.
- 63 BIANCHI, M. et al. Electron-phonon coupling in potassium-doped graphene: Angleresolved photoemission spectroscopy. *Physical Review B*, v. 81, p. 041403, Jan 2010.
- 64 BESPALOV, V.; TALANOV, V. Filamentary scrtucture of light in nonlinear liquids.

 ZhETF Pisma Redaktsiiu, v. 3, p. 471, Jun. 1966.

Referências 72

65 BENJAMIN, T. B.; FEIR, J. E. The disintegration of wave trains on deep water part 1. theory. *Journal of Fluid Mechanics*, v. 27, p. 417–430, Feb. 1967.

- 66 KONOTOP, V. V.; SALERNO, M. Modulational instability in bose-einstein condensates in optical lattices. *Physical Review A*, v. 65, n. 2, p. 021602, Jan. 2002. ISSN 1050-2947.
- 67 TAI, K.; HASEGAWA, A.; TOMITA, A. Observation of modulational instability in optical fibers. *Physical Review Letters*, v. 56, n. 2, p. 135–138, Jan. 1986. ISSN 0031-9007.
- 68 SHIVAMOGGI, B. Relativistic modulational instability of an electromagnetic wave in a magnetized plasma. *Physical Review A*, v. 31, n. 3, p. 1728–1730, Mar. 1985. ISSN 0556-2791.
- 69 DUDLEY, J. M.; COEN, S. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber. *Reviews* of Modern Physics, v. 78, n. 4, p. 1135–1184, Oct. 2006. ISSN 0034-6861.
- 70 DARMANYAN, S.; RELKE, I.; LEDERER, F. Instability of continuous waves and rotating solitons in waveguide arrays. *Physical Review E*, v. 55, n. 6, p. 7662–7668, Jun. 1997. ISSN 1063-651X.
- 71 JOHANSSON, M. et al. Standing wave instabilities, breather formation and thermalization in a hamiltonian anharmonic lattice. *The European Physical Journal B Condensed Matter*, v. 29, n. 2, p. 279–283, Sep. 2002. ISSN 1434-6028.
- 72 GAUL, C. et al. Stable bloch oscillations of cold atoms with time-dependent interaction.

 Physical Review Letters, v. 102, n. 25, p. 255303, Jun. 2009. ISSN 0031-9007.
- 73 LI, L. et al. Exact soliton solutions and nonlinear modulation instability in spinor boseeinstein condensates. *Physical Review A*, v. 72, n. 3, p. 033611, Sep. 2005. ISSN 1050-2947.
- 74 DOKTOROV, E. V.; ROTHOS, V. M.; KIVSHAR, Y. S. Full-time dynamics of modulational instability in spinor bose-einstein condensates. *Physical Review A*, v. 76, n. 1, p. 013626, Jul. 2007. ISSN 1050-2947.
- 75 ZHAO, X.-D.; XIE, Z.; ZHANG, W. Modulational instability of nonlinear spin waves in an atomic chain of spinor bose-einstein condensates. *Physical Review B*, v. 76, n. 21, p. 214408, Dec. 2007. ISSN 1098-0121.

Referências 73

76 XUE, J.-K.; ZHANG, A.-X.; LIU, J. Self-trapping of bose-einstein condensates in optical lattices: The effect of the lattice dimension. *Physical Review A*, v. 77, n. 1, p. 013602, Jan. 2008. ISSN 1050-2947.

- 77 BAIZAKOV, B. B. et al. Modulational instability in two-component discrete media with cubic-quintic nonlinearity. *Physical Review E*, v. 79, n. 4, p. 046605, Apr. 2009. ISSN 1539-3755.
- 78 HOEFER, M. A. et al. Dark-dark solitons and modulational instability in miscible two-component bose-einstein condensates. *Physical Review A*, v. 84, n. 4, p. 041605, Oct. 2011. ISSN 1050-2947.
- 79 FLACH, S.; KLADKO, K.; MACKAY, R. Energy thresholds for discrete breathers in one-, two-, and three-dimensional lattices. *Physical Review Letters*, v. 78, n. 7, p. 1207–1210, Feb. 1997. ISSN 0031-9007.
- 80 DAUXOIS, T. et al. The anti-fpu problem. *Chaos (Woodbury, N.Y.)*, v. 15, n. 1, p. 15110, Mar. 2005. ISSN 1054-1500.
- 81 PAN, Z.; XIONG, S.; GONG, C. Effects of off-diagonal nonlinearity on the time evolution of an initially localized mode. *Physical Review E*, v. 56, n. 4, p. 4744–4750, Oct. 1997. ISSN 1063-651X.
- 82 KIVSHAR, Y.; SALERNO, M. Modulational instabilities in the discrete deformable non-linear schrödinger equation. *Physical Review E*, v. 49, n. 4, p. 3543–3546, Apr. 1994. ISSN 1063-651X.
- 83 KEVREKIDIS, P. G.; ; RASMUSSEN K BISHOP, A. R. The discrete nonlinear schrödinger equation: a survey of recent results. v. 15, n. 21, p. 2833–2900, 2001.
- 84 RAPTI, Z. et al. Parametric and modulational instabilities of the discrete nonlinear schrödinger equation. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, v. 37, n. 7, p. S257–S264, Apr. 2004. ISSN 0953-4075.

Referências 74

ABDULLAEV, F. et al. Modulational instability and discrete breathers in the discrete cubic-quintic nonlinear schrödinger equation. *Physica D: Nonlinear Phenomena*, v. 232, n. 1, p. 54–61, Aug. 2007. ISSN 01672789.

- 86 GORI, G.; MACRÌ, T.; TROMBETTONI, A. Modulational instabilities in lattices with power-law hoppings and interactions. *Physical Review E*, v. 87, n. 3, p. 032905, Mar. 2013. ISSN 1539-3755.
- 87 WANG, B. et al. Self-trapping of bose-einstein condensates in optical lattices. *Physical Review A*, v. 74, n. 6, p. 063610, Dec. 2006. ISSN 1050-2947.
- 88 SANGIOVANNI, G. et al. Electron-phonon interaction close to a mott transition. *Physical Review Letters*, v. 94, n. 2, p. 026401, Jan 2005. ISSN 0031-9007.
- 89 SKOKOS, C. et al. Delocalization of wave packets in disordered nonlinear chains. *Physical Review E*, v. 79, n. 5, p. 056211, May 2009. ISSN 1539-3755.
- 90 PRESS, W. H. et al. *Numerical recipes: the art of scientific computing*. Cambridge: Cambridge University Press, 2007.
- 91 CHRISTIANSEN, P. et al. Solitary excitations in discrete two-dimensional nonlinear schrödinger models with dispersive dipole-dipole interactions. *Physical Review B*, v. 57, n. 18, p. 11303–11318, May 1998. ISSN 0163-1829.
- 92 HADZIEVSKI, L.; STEPIĆ, M.; SKORIĆ, M. Modulation instability in two-dimensional nonlinear schrödinger lattice models with dispersion and long-range interactions. *Physical Review B*, v. 68, n. 1, p. 014305, Jul. 2003. ISSN 0163-1829.

Apêndice A

Dedução da equação não linear de Schrödinger com a aproximação adiabática

Neste apêndice detalharemos o procedimento analítico utilizado para obter a ENLS na aproximação adiabática. Partiremos da equação 2.1:

$$H_1 \equiv \sum_{j} \left\{ \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 + V \left[a_j^* \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) \right] + E x_j a_j^* a_j \right\}$$
 (A.0)

Iremos diferenciar a equação A com relação a uma variável x_p :

$$\frac{\partial H_1}{\partial x_p} = \frac{\partial}{\partial x_p} \sum_j \left\{ \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 + V \left[a_j^* \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) \right] + E x_j a_j^* a_j \right\}$$
(A.0)

Como a derivada da soma é a soma da derivada, iremos desenvolver cada termo separadamente;

$$\frac{\partial}{\partial x_p} \left(\sum_j \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 \right) = \frac{M\omega^2}{2} 2x_p$$

$$= M\omega^2 x_p \tag{A.0}$$

$$\frac{\partial}{\partial x_{p}} \left\{ \sum_{j} V \left[a_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) \right] \right\} = \frac{\partial}{\partial x_{p}} \left[\sum_{j} V \left(a_{j}^{*} a_{j+1} + a_{j}^{*} a_{j-1} \right) \right] \\
= \sum_{j} \left\{ \frac{\partial a_{j}^{*}}{\partial x_{p}} \left[V \left(a_{j-1} + a_{j-1} \right) \right] + \frac{\partial a_{j}}{\partial x_{p}} \left[V \left(a_{j-1}^{*} + a_{j-1}^{*} \right) \right] \right\} \tag{A.0}$$

$$\frac{\partial}{\partial x_p} \left(E \sum_j x_j a_j^* a_j \right) = \sum_j E \frac{\partial x_j}{\partial x_p} a_j^* a_j + \sum_j E x_j \frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} a_j + \sum_j E x_j a_j^* \frac{\partial a_j}{\partial x_p}
= E|a_p|^2 + \sum_j \left(\frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} E x_j a_j + \frac{\partial a_j}{\partial x_p} E x_j a_j^* \right)$$
(A.0)

Juntando os resultados obtidos A.0, A.0 e A.0 na equação A:

$$\frac{\partial H_1}{\partial x_p} = M\omega^2 x_p + \sum_j \left\{ \frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} \left[V\left(a_{j-1} + a_{j-1}\right) \right] + \frac{\partial a_j}{\partial x_p} \left[V\left(a_{j-1}^* + a_{j-1}^*\right) \right] \right\} + \\
+ E|a_p|^2 + \sum_j \left(\frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} E x_j a_j + \frac{\partial a_j}{\partial x_p} E x_j a_j^* \right) \\
\frac{\partial H_1}{\partial x_p} = M\omega^2 x_p + E|a_p|^2 + \sum_j \left\{ \frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} \left[E x_j a_j + V\left(a_{j+1} + a_{j-1}\right) \right] \right\} + \\
+ \sum_j \left\{ \frac{\partial a_j}{\partial x_p} \left[E x_j a_j^* + V\left(a_{j-1}^* + a_{j+1}^*\right) \right] \right\} \tag{A.-2}$$

Incluindo a conservação da norma através de um multiplicador de Langrange, temos:

$$\frac{\partial H_1}{\partial x_p} = M\omega^2 x_p + E|a_p|^2 + \sum_j \left\{ \frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} \left[Ex_j a_j + V \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) - \lambda a_j \right] \right\} + \sum_j \left\{ \frac{\partial a_j}{\partial x_p} \left[Ex_j a_j^* + V \left(a_{j-1}^* + a_{j+1}^* - \lambda a_j^* \right) \right] \right\} \tag{A.-2}$$

Utilizando a equação de Schrödinger $\hat{H}\psi=E'\psi$ e a equação 2.1:

$$E'a_{j}^{*} = \frac{M\omega^{2}}{2}x_{j}^{2}a_{j}^{*} + V\left(a_{j+1}^{*} + a_{j-1}^{*}\right) + Ex_{j}a_{j}^{*}$$

$$E'a_{j}^{*} - \frac{M\omega^{2}}{2}x_{j}^{2}a_{j}^{*} = V\left(a_{j+1}^{*} + a_{j-1}^{*}\right) + Ex_{j}a_{j}^{*}$$
(A.-2)

Substituindo a equação A.-2 na equação A.-2:

$$\frac{\partial H_1}{\partial x_p} = M\omega^2 x_p + E|a_p|^2 + \sum_j \left\{ \frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} \left[E'a_j - \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 a_j - \lambda a_j \right] \right\} + \\
+ \sum_j \left\{ \frac{\partial a_j}{\partial x_p} \left[E'a_j^* - \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 a_j^* - \lambda a_j^* \right] \right\} \\
\frac{\partial H_1}{\partial x_p} = M\omega^2 x_p + E|a_p|^2 + \\
+ \sum_j \left\{ \left[E' - \frac{M\omega^2}{2} x_j^2 - \lambda \right] \underbrace{\left[a_j \frac{\partial a_j^*}{\partial x_p} + a_j^* \frac{\partial a_j}{\partial x_p} \right]}_{I} \right\} \tag{A.-4}$$

O termo (I) na equação A.-4 é nulo, devido a conservação da norma, portanto, a equação A.-4 pode ser escrita da seguinte maneira:

$$\frac{\partial H_1}{\partial x_p} = M\omega^2 x_p + E|a_p|^2 \tag{A.-4}$$

A partir deste ponto, utilizamos uma abordagem variacional. Os valores de x_p devem ser tais que a derivada de H_1 em relação a x_p seja nula, para que o hamiltoniano seja mínimo. Partindo desta observação, reescrevemos a equação A:

$$x_p = -\frac{E|a_p|^2}{M\omega^2} \tag{A.-4}$$

Utilizando o resultado da equação A na equação A, temos:

$$H_{1} = \sum_{j} \left\{ \frac{M\omega^{2}}{2} \left(-\frac{E|a_{j}|^{2}}{M\omega^{2}} \right)^{2} + Va_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) + E\left(-\frac{E|a_{j}|^{2}}{M\omega^{2}} |a_{j}|^{2} \right) \right\}$$

$$= \sum_{j} \left\{ \frac{M\omega^{2}}{2} \frac{E^{2}|a_{j}|^{4}}{(M\omega^{2})^{2}} + Va_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) - \frac{E^{2}|a_{j}|^{2}}{M\omega^{2}} \right\}$$

$$= \sum_{j} \left\{ Va_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) - \frac{E^{2}|a_{j}|^{4}}{M\omega^{2}} \right\}$$
(A.-5)

Agora, temos que encontrar as equações de movimento através das relações canônicas:

$$\hat{H}|\psi\rangle = i\hbar \frac{\partial |\psi\rangle}{\partial t} \tag{A.-4}$$

$$\langle \psi| = \sum_{j} a_{j}^{*}(x_{1}, \dots, x_{N}) \phi_{j}^{*} \tag{A.-3}$$

$$\langle \psi|\hat{H}|\psi\rangle = \left\langle \psi \left| i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \right| \psi \right\rangle$$

$$= i\hbar \langle \psi \frac{\partial}{\partial t} \rangle \psi$$

$$\int \psi^{*} \hat{H} \psi d\mathbf{r} = i\hbar \int \psi^{*} \frac{\partial}{\partial t} \psi d\mathbf{r}$$

$$= i\hbar \int \psi^{*} \frac{\partial}{\partial t} \psi d\mathbf{r}$$

$$= i\hbar \int \sum_{k} a_{k}^{*} \phi_{k}^{*} \frac{\partial}{\partial t} \sum_{l} a_{l} \phi_{l} d\mathbf{r}$$

$$= i\hbar \sum_{k} a_{k}^{*} \frac{\partial a_{l}}{\partial t} \int \phi_{k}^{*} \phi_{l} d\mathbf{r}$$

$$(A.-7)$$

Logo,

$$\frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} \left(\int \psi^{*} \hat{H} \psi d\mathbf{r} \right) = i\hbar \frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} \left(\sum_{k,l} a_{j}^{*} \frac{\partial a_{l}}{\partial t} \int \phi_{k}^{*} \phi_{l} d\mathbf{r} \right)$$

$$\frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} H_{1} = i\hbar \dot{a}_{j} \tag{A.-7}$$

Recorrendo ao teorema de Ehrenfest

$$\dot{x_j} = \frac{\partial H_1}{\partial p_j} \quad e \quad \dot{p_j} = -\frac{\partial H_1}{\partial x_j}$$
 (A.-6)

Derivando parcialmente a equação A.-5 com relação à a_i^* :

$$\frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} H_{1} = \frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} \sum_{i} \left[V a_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) - \frac{E^{2} |a_{j}|^{2} \left(a_{j}^{*} a_{j} \right)}{M \omega^{2}} \right]$$
(A.-5)

$$i\hbar \dot{a}_j = V(a_{j+1} + a_{j-1}) - \frac{E^2|a_j|^2 a_j}{M\omega^2}$$
 (A.-4)

Fazendo $\hbar = 1$ e $\chi = \frac{E^2}{M\omega^2}$, finalmente encontramos:

$$i\dot{a}_j = V(a_{j+1} + a_{j-1}) - \chi |a_j|^2 a_j$$
 (A.-4)

Apêndice B

Dedução da equação não linear de Schrödinger sem aproximação adiabática

Neste apêndice, a relaxação da não-linearidade associada ao acoplamento elétron-fônos será mantida explicitamente nas equações que governam a evolução temporal do pacote de onda. Para encontrarmos as equações de movimento, utilizaremos a equação 2.2 que é dada da seguinte forma:

$$H_{1} = \sum_{j} \left[\frac{\hbar^{2}}{2M} \frac{\partial a_{j}^{*}}{\partial x_{j}} \frac{\partial a_{j}}{\partial x_{j}} + \frac{M\omega^{2}}{2} x_{j}^{2} + V a_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) + E x_{j} a_{j}^{*} a_{j} \right].$$
 (B.0)

Também recorreremos as relações canônicas:

$$\hat{H}|\psi\rangle = i\hbar \frac{\partial |\psi\rangle}{\partial t} \tag{B.1}$$

$$\langle \psi| = \sum_{j} a_{j}^{*}(x_{1}, \dots, x_{N})\phi_{j}^{*} \tag{B.2}$$

$$\langle \psi|\hat{H}|\psi\rangle = \left\langle \psi \left| i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \right| \psi \right\rangle$$

$$= i\hbar \left\langle \psi \left| \frac{\partial}{\partial t} \right| \psi \right\rangle$$

$$\int \psi^{*}\hat{H}\psi d\mathbf{r} = i\hbar \int \psi^{*} \frac{\partial}{\partial t}\psi d\mathbf{r}$$

$$= i\hbar \int \sum_{k,l} a_{k}^{*} \frac{\partial}{\partial t} \sum_{l} a_{l} \phi_{l} d\mathbf{r}$$

$$= i\hbar \sum_{k,l} a_{k}^{*} \frac{\partial a_{l}}{\partial t} \int \phi_{k}^{*} \phi_{l} d\mathbf{r}$$

$$(B.1)$$

Logo,

$$\frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} \left(\int \psi^{*} \hat{H} \psi d\mathbf{r} \right) = i\hbar \frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} \left(\sum_{k,l} a_{j}^{*} \frac{\partial a_{l}}{\partial t} \int \phi_{k}^{*} \phi_{l} d\mathbf{r} \right)$$

$$\frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} H_{1} = i\hbar \dot{a}_{j} \tag{B.-1}$$

Recorrendo ao teorema de Ehrenfest

$$\dot{x_j} = \frac{\partial H_1}{\partial p_j} \quad e \quad \dot{p_j} = -\frac{\partial H_1}{\partial x_j}$$
 (B.0)

Temos que $p_j = M\dot{x}_j$, então, $\dot{p}_j = M\ddot{x}_j$, logo:

$$\dot{p}_j = -\frac{\partial H_1}{\partial x_j} \tag{B.1}$$

$$M\ddot{x}_j = -\frac{\partial H_1}{\partial x_j}$$
 (B.2)

Mas,

$$\frac{\partial H_1}{\partial x_j} = \frac{M\omega^2}{2} 2x_j + Ea_j^* a_j \tag{B.3}$$

$$= M\omega^2 x_j + Ea_j^* a_j \tag{B.4}$$

Substituindo a equação B.4 na equação B.2, temos:

$$M\ddot{x}_j = -M\omega^2 x_j - Ea_i^* a_j \tag{B.5}$$

$$\ddot{x}_j = -\omega^2 x_j - \frac{E}{M} |a_j|^2 \tag{B.6}$$

Utilizando a equação B.-1 e B, obtemos:

$$i\hbar \dot{a}_{j} = \frac{\partial}{\partial a_{j}^{*}} \left[\sum_{j} \left\{ \frac{\hbar^{2}}{2M} \frac{\partial a_{j}^{*}}{\partial x_{j}} \frac{\partial a_{j}}{\partial x_{j}} + \frac{M\omega^{2}}{2} x_{j}^{2} + V a_{j}^{*} \left(a_{j+1} + a_{j-1} \right) + E x_{j} a_{j}^{*} a_{j} \right\} \right]$$
(B.7)

Fazendo $\hbar = 1$:

$$i\dot{a}_j = V(a_{j+1} + a_{j-1}) + Ex_j a_j$$
 (B.7)

Ficando assim, demonstrada as equações 2.4 e 2.5.

ANEXO A

Artigo: Stability of uniform electronic wavepackets in chains and fullerenes

International Journal of Modern Physics C Vol. 26, No. 12 (2015) 1550133 (9 pages) © World Scientific Publishing Company DOI: 10.1142/S0129183115501338



Stability of uniform electronic wavepackets in chains and fullerenes

Valdemir L. Chaves Filho*,†, Rodrigo P. A. Lima*, F. A. B. F. de Moura* and Marcelo L. Lyra*,‡

*GISC and GFTC, Instituto de Física, Universidade Federal de Alagoas 57072-970 Maceió-AL. Brazil

> †Instituto Federal de Alagoas, Campus Satuba Satuba AL, 57120-000, Brazil †marcelo@fis.ufal.br

> > Received 28 January 2015 Accepted 13 March 2015 Published 4 May 2015

In this paper, we investigate the influence of electron-lattice interaction on the stability of uniform electronic wavepackets on chains as well as on several types of fullerenes. We will use an effective nonlinear Schrödinger equation to mimic the electron-phonon coupling in these topologies. By numerically solving the nonlinear dynamic equation for an initially uniform electronic wavepacket, we show that the critical nonlinear coupling above which it becomes unstable continuously decreases with the chain size. On the other hand, the critical nonlinear strength saturates on a finite value in large fullerene buckyballs. We also provide analytical arguments to support these findings based on a modulational instability analysis.

Keywords: Nonlinearity; localization; self-focusing; self-trapped.

PACS Nos.: 62.30.+d; 62.20.dq; 72.15.Rn.

1. Introduction

The direct connection between the time-dependent behavior of electronic wave-packets and the electrical properties of materials has impelled the development of new studies devoted to the one-electron dynamics within the context of condensed matter physics. ^{1–3} Since the works by Anderson and co-workers, it is known that the presence of disorder is a key factor governing the extension of the wave function. ³ It was demonstrated that all states in a disordered system with dimension below two are localized in a small fraction of the lattice, even for a small disorder degree. We emphasize that, although the Anderson localization has been developed in the electronic context, such prediction is still valid for every field described by a wave equation. For instance, Anderson localization of electromagnetic fields, ⁴ water waves ⁵ and Bose–Einstein Condensates (BEC) ⁶ has been reported in the literature. One interesting issue concerning the BEC issue is that its dynamic is well described

V. L. C. Filho et al.

by the Gross-Pitaevskii equation⁷ and the nonlinearity present in this equation reveals exciting new physical properties.^{8–10} In general, even within the electronic context, nonlinearity also can be present. It was shown that the interaction between electrons and optical phonons is well described by a nonlinear Schrödinger equation. 10,11 One of the most interesting phenomenon promoted by the nonlinearity is the self-trapping (ST) which occurs when the nonlinearity strength exceeds a critical value of order of the band width. 11-17 In this regime, an initially localized wavepacket does not spread over the system, remaining localized around its initial position. Usually, the electron-phonon interaction included in the nonlinear Schrödinger equation commonly found in the literature describes the coupling between the lattice vibration and the diagonal electronic matrix elements of the electron Hamiltonian, namely, diagonal linearity. In fact, it was shown that the lattice vibration also can couple with the off-diagonal electronic matrix elements. ¹⁸ In Ref. 19 the effect of offdiagonal nonlinearity on the electronic time-evolution was investigated. The authors analyzed the second momentum of the electronic probability and the participation number for different nonlinearity strengths. In general, it was demonstrated that the off-diagonal nonlinearity also provides the trapping of the wavepacket in a finite fraction of the system.

The competition between topology and non-linearity has attracted a great interest in the last years. In Ref. 20, a detailed study of the ST transition in square and honeycomb lattices were reported showing that the ST threshold continuously grow as a function of the initial wavepacket width. By using a tight-binding Hamiltonian approach, the dynamics of one-electron wavepackets in a twisted ladder geometry with adiabatic electron–phonon interaction was investigated. The considered model mimics the electronic wavepacket dynamics in DNA-like segments. In the presence of electron–phonon interaction, the Anderson localization existent in DNA segments is suppressed and a delocalized sub-diffusive regime takes place. A partially self-trapped behavior develops at strong nonlinearities. Self-trapping at large nonlinearities was also reported to take place in carbon nanotubes with strong electron–phonon coupling. More recently, it has been evidenced that the relaxation process of the nonlinearity has a profound impact in the wavepacket dynamics and in the formation of self-trapped stationary states in C_{60} buckyballs.

In this paper, we advance in the study of the wavepacket electron dynamics in the presence of an effective nonlinearity by numerically investigating the time-evolution of an initially uniform electronic wavepacket on chains as well as on several fullerene topologies. In our model, we include the effect of electron-lattice interaction through an effective nonlinear Schrödinger equation. We will solve numerically the dynamic nonlinear equation for an uniform wavepacket and investigate its stability. Our numerical calculations reveal the existence of a strong dependence of the critical nonlinear coupling above which the uniform state is unstable in linear chain, contrasting with its weak size dependence on fullerene buckyballs. We will also provide some analytical arguments supporting these findings based on the modulational instability analysis of the uniform state.

Stability of electronic wavepackets in chains and fullerenes

2. Model and Numerical Calculation

Within the context of electronic dynamics under the influence of lattice vibrations, the effective nonlinear Schrödinger equation appears as an interesting tool that allows a close investigation of the nonlinear electron wavepacket dynamics on distinct topologies. By considering an adiabatic approximation, the nonlinear term can be considered as the on-site potential depending on the local electron density. Using a tight-binding approach and considering localized orbital basis, the dynamics of the electronic wavepacket can be described following the discrete nonlinear Schrödinger equation written as

$$i\dot{\psi}_n(t) = \varepsilon_n \psi_n(t) + \sum_m V_{nm} \psi_m(t) + \chi |\psi_n(t)|^2 \psi_n(t), \tag{1}$$

where we used $\hbar=1$. $\psi_n(t)$ is the wavevector coefficient at the local orbital at site $n:|\Psi(t)\rangle=\sum_n\psi_n(t)|n\rangle$. The sum is taken over the first nearest neighbors. V_{nm} represents the energy hopping and ε_n is the on-site energy at site n. The dynamic equations will be solved by using an eighth-order Runge–Kutta algorithm and the wave function norm $(N(t)=\sum_n|\psi_n|^2)$ is accompanied with an accuracy of $|1-N(t)|<10^{-8}$ to ensure the numerical accuracy.

To describe the spatial extent of the electron wavepacket, we calculate its participation function defined as

$$P(t) = \left[\sum_{n=1}^{N} |\psi_n(t)|^4 \right]^{-1}, \tag{2}$$

P(t) provides a measure of the fraction of sites over which the wavepacket is spread at time t. P(t) becomes equal to N for a wavepacket evenly distributed over the entire system, while P=1 for a state located in a single site.

3. Results

In this paper, we consider the wavepacket initially uniformly distributed over the entire lattice. Therefore, the initial wavepacket coefficients are $\phi_n=1/N$ where N is the number of sites. Our focus consists in investigating the stability of the uniform wavepacket profile and its relation with the degree of nonlinearity. We initially study the wavepacket dynamics in a discrete chain with periodic boundary conditions. In Fig. 1(a), we plot the normalized participation number P(t)/N versus time t for N=50 and $\chi=0.3$ and 0.6. We observe that, for $\chi=0.3$, the participation number is constant for all times considered, thus indicating that the uniform wavepacket remains stable. For $\chi=0.6$ the participation number exhibits an oscillating profile, which signals the instability of the wavepacket width. Such instability is related to the mechanism of polaron formation in the underlying electron–phonon system. Therefore, our calculations indicate that there is a critical value of the nonlinearity (χ_c) below which the uniform wavepacket remains stable and spread over the entire chain. For $\chi>\chi_c$, a dynamic instability leads to an oscillating behavior of the

V. L. C. Filho et al.

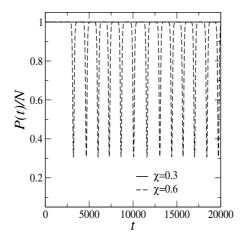


Fig. 1. The normalized participation number P(t)/N versus time t for linear chains with N=50 and $\chi=0.3$ and 0.6. In our calculations, we considered the wavepacket initially distributed over the entire chain. Therefore, the initial wavepacket has $\phi_n=1/N$ where N is the number of sites. We observe that for $\chi=0.3$ the participation number is constant for all times considered, thus indicating that the wavepacket is stable. For $\chi=0.6$ the participation number exhibits an oscillating profile, signaling the instability of the uniform wavepacket.

participation function of the electronic wavepacket, which is associated with periodic breathings. However, the participation function oscillates around a relatively large value, indicating that the wavepacket remains extended, at least slightly above the transition. We consider also two chains with distinct sizes and exactly the same value of the nonlinear coupling (see Fig. 2(a)). For N=40, $\chi=0.45$ is weak enough to keep the wavepacket stability and the participation number remains constant. However, for N=50, the same nonlinear strength $\chi=0.45$ in strong enough to trigger the wavepacket instability and periodic breathings emerge. As a result, the critical nonlinearity χ_c decreases as the chain size increases. The size dependence of the critical nonlinear strength was numerically determined, with the resulting curve reported in Fig. 2(b). We found numerically that the critical nonlinearity decreases proportional to 1/N. In Fig. 2(b), the circles represent the values of χ_c obtained numerically for different sizes of linear chains. The dotted curve represents a best fitting to a 1/N power-law.

We now extend our analysis of the wavepacket stability for the case of lattice topologies on which the sites are distributed over a closed surface. In particular, we consider the lattice topology of fullerene buckyballs. We initially consider the wavepacket uniformly distributed over all fullerene sites and we follow numerically its time-evolution. We pay particular attention to the characteristics of the transition from stable to unstable uniform wavepackets and its dependence on the buckyball size. In Fig. 3, we show a schematic representation of two typical fullerenes: namely C60 and C180. However, our study was extended to the whole buckyball family ranging from N=20 up to N=720. The initial uniform wavepacket still has coefficients $\phi_n=1/N$ where N is the number of sites in a given

Stability of electronic wavepackets in chains and fullerenes

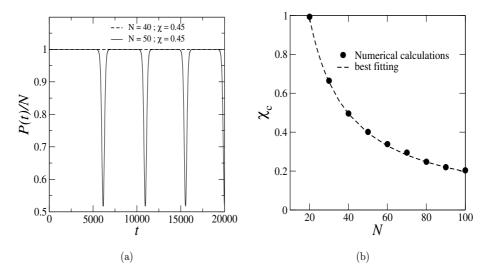


Fig. 2. (a) Normalized participation number P(t)/N versus time t for linear chains with distinct sizes and degree of nonlinearity ($\chi=0.45$). We observe that for N=40, such nonlinear coupling is sufficient to keep the wavepacket stability. However, for N=50, the uniform state becomes unstable and the participation number develops oscillations, signaling the wavepacket breathing. (b) We numerically demonstrated that the value χ_c that separates the stable phase from the unstable phase decreases as 1/N. Error bars are smaller than the symbol sizes.

fullerene. In Fig. 4, we plot the scaled participation function P(t)/N versus time t for $\chi=7$ and 7.5. We have used the C60 topology for these calculations. We can observe that there are two distinct regimes depending on the degree of nonlinearity. One of these regimes is characterized by the stability of the wavepacket occupying the entire buckyball. Consequently, the scaled participation function remains constant for all times. In the other regime, the wavepacket focuses around a small fraction of the buckyball sites, a phenomenon similar to the well-known wavepacket self-focusing. For the case of C60, we can see through the evolution of the normalized participation function P/N that the transition occurs for a typical value of the nonlinearity

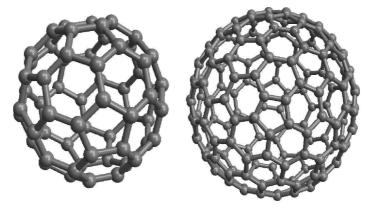


Fig. 3. Schematic representation of two fullerene buckyballs, namely C60 and C180.

V. L. C. Filho et al.

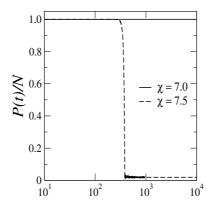


Fig. 4. Scaled participation function P(t)/N versus time t for $\chi=7$ and 7.5. We have considered here the wavepacket uniformly distributed over a C60 geometry. We can observe that for $\chi=7$ the wavepacket remains stable occupying the entire buckyball. For $\chi=7.5$, we observe that the wavepacket localizes over a small fraction of sites, signaling a self-focusing phenomena.

around $\chi_c=7.32$. Further, no oscillations are observed above the transition. Instead of developing breathings, as it occurs in a linear chain, there is a direct transition from a stable uniform extend state to a strongly localized state. We numerically determined the critical nonlinear strength governing this transition for the entire buckyball family. We found that the critical value χ_c necessary to promote the transition slightly decreases as the number of sites of the fullerene is increased, as reported in Fig. 5. However, it saturates at a finite value for very large buckyballs, in contrast with the reported continuous decrease of the critical nonlinearity with the size of linear chains. It is important to stress that the above features characterizes the transition from stable to unstable initially uniform wavepackets. The influence of the nonlinearity on the stability of initially localized or extended nonuniform states is strongly dependent on the specific initial wavepacket distribution.²⁰

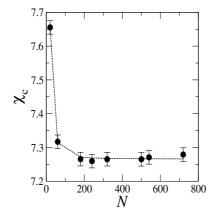


Fig. 5. The critical nonlinear strength separating the stable uniform state phase and the self-focusing phase as a function of the number of sites in fullerene buckyballs. The critical value χ_c necessary to promote the transition depicts a weak size dependence for fullerene buckyballs.

Stability of electronic wavepackets in chains and fullerenes

The above trends associated with the distinct size dependence in linear chains and buckyballs of the nonlinear coupling above where a uniform wavepacket becomes unstable can be understood under the light of a modulational instability analysis. As the initial state is uniform, the discrete nature of the lattice is not relevant to describe the general aspects related to its stability. Within this context, one may perform the modulational instability analysis in the continuous version of the nonlinear Schrödinger equation, which may be put in the form

$$i\frac{d\psi}{dt} = \nabla^2 \psi + \chi |\psi|^2 \psi \tag{3}$$

from which a linear diagonal term was dropped as it does not influence the wave-function dynamics. The above continuous nonlinear Schrödinger equation has as CW solution $\psi(t) = \psi_0 e^{-i\chi|\psi_0|^2 t}$. In order to investigate its stability, one adds a small perturbation to its amplitude as

$$\psi(\mathbf{r},t) = [\psi_0 + \varepsilon(\mathbf{r},t)]e^{-i\chi|\psi_0|^2t}.$$
 (4)

The time evolution of the perturbation $\varepsilon(\mathbf{r},t)$ obeys

$$i\frac{d\varepsilon}{dt} = \nabla^2 \varepsilon + \chi |\psi_0|^2 (\varepsilon + \varepsilon^*), \tag{5}$$

where ε^* stands for the complex conjugate of ε and nonlinear terms are disregarded. The above equation has harmonic solutions in the form

$$\varepsilon(\mathbf{r},t) = Ae^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+\Omega t)} + Be^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+\Omega t)},\tag{6}$$

subjected to the dispersion relation

$$\Omega = \sqrt{k^2(k^2 - 2\chi|\psi_0|^2)}. (7)$$

According to the above dispersion relation, harmonic perturbations with large wavevectors remain stable (real Ω), while those with $k < k_{MI} = \sqrt{2\chi |\psi_0|^2}$ grow exponentially (imaginary Ω). As a consequence, the CW solution will be unstable whenever $k_{MI} = \sqrt{2\chi/N} > 2\pi/L$, where L is the typical linear dimension of the system and $2\pi/L$ is the minimum allowed wavevector for an harmonic perturbation. This last expression ultimately determines a characteristic nonlinear strength $\chi_{MI} = 2\pi^2 N/L^2$ above which the CW solution is unstable. In linear chains $N \propto L$, leading to $\chi_{MI} \propto 1/N$. In large chain sizes, the critical modulational instability threshold is quite small. Although the uniform wavepacket becomes unstable above χ_{MI} , the nonlinear coupling is not strong enough to promote the wavepacket localization and breathing pattern develops. According to the dispersion relation (Eq. 7) the period of the breathing oscillations scales as $\tau \propto (\chi - \chi_{MI})^{-1/2}$ above the modulational instability threshold. On the other hand, $N \propto L^2$ in a buckyball geometry. In this case, one results with a size-independent characteristic nonlinear strength for the modulational instability of the CW solution. This critical value is large enough to drive

V. L. C. Filho et al.

the wavepacket toward its strong localization. These analytical results are in full agreement with the numerical data.

4. Summary and Conclusions

In summary, we study the instability of an electronic wavepacket evolving in discrete chains and fullerene buckyballs. In the case of the discrete linear chain, we found that the value of χ_c separating the phase of stable from unstable wavepackets profile decays proportional to 1/N, with the wavepacket developing breathings right above the instability threshold. In fullerenes, there is also a χ_c below which the electronic wavepacket remains uniformly distributed. For values of nonlinearity above χ_c , the electronic wavepacket focuses around a small fraction of the buckyball sites. While in linear chains this critical nonlinear coupling decreases monotonically with the chain size, in fullerenes χ_c displays a very weak size dependence. We demonstrated that the distinct reported wavepacket dynamics in linear chains and buckyballs can be understood within the framework of the modulational instability phenomenon. The present study can be extended to the analysis of the stability of uniform wavepackets in other nanoscopic structures (nanotubes, nanostripes, etc) of current scientific and technological interest, as well as to the stability of soliton-like solutions. Within this context, the relaxation time of the nonlinearity shall be a relevant ingredient to be included in the stability analysis. ²³ These are topics that deserve to be investigated in the near future in order to provide a more complete scenario regarding the electronic wavepacket dynamics in nanostructures.

Acknowledgments

This work was partially supported by CNPq, CAPES (PVE A121), and FINEP (Federal Brazilian Agencies), CNPq-Rede Nanobioestruturas, as well as FAPEAL (Alagoas State Agency).

References

- 1. E. Abrahams, P. W. Anderson, D. C. Licciardello and T. V. Ramakrishnan, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 673 (1979).
- B. Kramer and A. MacKinnon, Rep. Prog. Phys. 56 1469, (1993); T. A. L. Ziman, Phys. Rev. Lett. 49, 337 (1982). I. M. Lifshitz, S. A. Gredeskul and L. A. Pastur, Introduction to the Theory of Disordered Systems (Wiley, New York, 1988).
- E. Abrahams, P.W. Anderson, D. C. Licciardello and T. V. Ramakrishnan, *Phys. Rev. Lett.* 42, 673 (1979).
- 4. D. S. Wiersma, P. Bartolini, A. Lagendijk and R. Righini, Nature 390, 671 (1997).
- 5. J. Billy et al., Nature 453, 891 (2008).
- 6. G. Roati et al., Nature 453, 895 (2008).
- 7. F. Dalfovo, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii and S. Stringari, Rev. Mod. Phys. 71, 463 (1999).
- 8. C. Ryu, M. F. Andersen, A. Vaziri, M. B. dArcy, J. M. Gross-man, K. Helmerson and W. D. Phillips, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 160403 (2006).

Stability of electronic wavepackets in chains and fullerenes

- 9. G. Behinaein, V. Ramareddy, P. Ahmadi and G. S. Summy, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 244101 (2006).
- 10. M. Johansson, M. Hörnquist and R. Riklund, Phys. Rev B 52, 231 (1995).
- 11. P. K. Datta and K. Kundu, Phys. Rev. B 53, 14929 (1996).
- 12. Z. Pan, S. Xiong and C. Gong, *Phys. Rev. E* **56**, 4744 (1997).
- 13. F. A. B. F. de Moura, I. Gléria, I. F. dos Santos and M. L. Lyra, *Phys Rev. Lett.* **103**, 096401 (2009).
- 14. A. Iomin, Phys. Rev. E 81, 017601 (2010).
- 15. R. A. Caetano, F. A. B. F. de Moura and M. L. Lyra, Eur. Phys. J. B 80, 321 (2011).
- S. Tietsche and A. Pikovsky, Europhys. Lett. 84, 10006 (2008).
- 17. W. S. Dias, M. L. Lyra and F. A. B. F. de Moura, Eur. Phys. J. B 85, 7 (2012).
- W. P. Su, J. R. Schrieffer and A. J. Heeger, *Phys. Rev. Lett.* 42, 1698 (1979); W. P. Su, J. R. Schrieffer and A. J. Heeger, *Phys. Rev. B* 22, 2099 (1980); A. J. Heeger, S. Kivelson, J. R. Schrieffer and W.-P. Su, *Rev. Mod. Phys.* 60, 781 (1988).
- 19. Z. Pan, S. Xiong and C. Gong, Phys. Rev. B 56, 1063 (1997).
- 20. W. S. Dias, M. L. Lyra and F. A. B. F. de Moura, Phys. Rev. B 82, 233102 (2010).
- 21. F. A. B. F. de Moura, U. L. Fulco and M. L. Lyra, F. Domnguez-Adame and E. L. Albuquerque, *Phys. A* **390**, 535 (2011).
- 22. P. K. Upadhyay and A. K. Nagar, Int. J. Mod. Phys.: Conf. Series 22, 670 (2013).
- 23. M. L. Lyra and R. P. A. Lima, Phys. Rev. E 85, 057201 (2012).

ANEXO B

Artigo: Interplay between modulational instability and self-trapping of wavepackets in nonlinear discrete lattices

CHAOS 25, 063101 (2015)



Interplay between modulational instability and self-trapping of wavepackets in nonlinear discrete lattices

V. L. Chaves Filho, 1,2 R. P. A. Lima, 2,3 and M. L. Lyra2

¹Instituto Federal de Educação, Ciência e Tecnologia de Alagoas, Satuba, Alagoas 57120-000, Brazil ²GFTC, Instituto de Física, Universidade Federal de Alagoas, Maceió 57072-970, Alagoas, Brazil ³GISC, Instituto de Física, Universidade Federal de Alagoas, Maceió 57072-970, Alagoas, Brazil

(Received 1 April 2015; accepted 19 May 2015; published online 2 June 2015)

We investigate the modulational instability of uniform wavepackets governed by the discrete nonlinear Schrodinger equation in finite linear chains and square lattices. We show that, while the critical nonlinear coupling χ_{MI} above which modulational instability occurs remains finite in square lattices, it decays as 1/L in linear chains. In square lattices, there is a direct transition between the regime of stable uniform wavefunctions and the regime of asymptotically localized solutions with stationary probability distributions. On the other hand, there is an intermediate regime in linear chains for which the wavefunction dynamics develops complex breathing patterns. We analytically compute the critical nonlinear strengths for modulational instability in both lattices, as well as the characteristic time τ governing the exponential increase of perturbations in the vicinity of the transition. We unveil that the interplay between modulational instability and self-trapping phenomena is responsible for the distinct wavefunction dynamics in linear and square lattices. © 2015 AIP Publishing LLC. [http://dx.doi.org/10.1063/1.4921937]

Wave dynamics in nonlinear media is a subject directly related to several phenomena in optics, Bose-Einstein condensates, and condensed matter physics. The medium nonlinear response usually acts together with dispersive contributions to promote the formation of stable localized waves. However, distinct physical mechanisms come into play depending on the initial wave profile. Self-trapping is the main mechanism acting on initially localized waves, while modulational instability triggers the localization of initially wide waves. In the present study, we show that the interplay between these two physical mechanisms acting on wavepackets leads to quite distinct wave dynamics in one and two dimensional discrete lattices. We demonstrate that, while a direct transition between extended and localized waves takes place in two-dimensions, there is an intermediate regime of chaotic-like dynamics in linear chains.

I. INTRODUCTION

The nonlinear Schrodinger equation is widely used in the description of wave dynamics in several physical scenarios. In the context of optical physics, it governs the propagation of optical pulses in matter in the slowly varying envelope approximation, with the nonlinearity arising from the change on the refractive index of the medium due to a third order susceptibility. The interplay of dispersive and nonlinear contributions in the wave equation is responsible by many physical phenomena, such as soliton formation, breather solution modes, and modulational instability, 6.6 that have been explored in the context of several devices of technological interest. In particular, modulational instability (MI) refers to the stability of a continuous wave (CW) solution with respect to small perturbations. A CW solution is

fully stable in media with normal dispersion. On the other hand, it develops an instability in anomalous dispersive media, with harmonic perturbations having wavevector smaller than a characteristic value growing exponentially. Modulational instability is usually seen as the primary step towards soliton formation. A nonlinear Schrodinger equation also describes the dynamics of Bose-Einstein condensates (BEC) with the nonlinearity being originated from interparticle interactions. ^{8,9} MI in BEC has been shown to be responsible for the dephasing and localization of the condensate. ^{10–17}

Usually, the appropriate wave equation in nonlinear lattices is written as a discrete version of the nonlinear Schrodinger equation consisting of a set of coupled nonlinear ordinary differential equations. 18-29 It has been shown that the discrete nonlinear Schrodinger equation (DNLSE) captures the mechanism of charge transport and local denaturation of DNA molecules³⁰⁻³⁵ and properly describes the propagation of optical pulses in a coupled waveguides array^{36,37} as well as vibrations in unharmonic lattices. ^{18,19} It has also been used to describe the dynamics of matter waves of BEC in deep optical lattices produced by counterpropagating laser beams forming a periodic interference pattern. 38-40 In solid state physics, a strong coupling of electrons with optical phonons leads to an effective DNLSE governing the electronic wavepacket in the adiabatic approximation, which assumes that the local site polarization is much faster than the electron transfer between sites. 41-50,54 Denoting by $\psi_n(t)$ the electronic wave amplitude at the localized Wannier orbital $|n\rangle (|\Psi\rangle(t) = \sum_n \psi_n(t)|n\rangle)$, the effective electronic DNLSE can be put in the form

$$i\frac{d\psi_n(t)}{dt} = \sum_m \psi_m(t) + \chi |\psi_n(t)|^2 \psi_n(t), \tag{1}$$

1054-1500/2015/25(6)/063101/9/\$30.00

25, 063101-1

© 2015 AIP Publishing LLC

where the sum extends over the sites that are first neighbors of site n in the simplest case of very short range hoppings. Here, we are assuming units of $\hbar = 1$ and a unitary hopping amplitude. The parameter χ represents the nonlinearity strength, which increases with increasing electron-phonon coupling. The effective nonlinear contribution to the electronic wave equation favors the wavepacket localization, a phenomenon usually termed as self-trapping. A wavepacket initially localized in a single site remains trapped around its initial position, whenever the nonlinear strength is above a characteristic value χ_{ST} , which is of the order of the bandwidth of the corresponding linear system ($\chi_{ST} \simeq 2z$, with z being the lattice coordination number). ^{41–43,50} An initially uniform wave also suffers from modulational instability in nonlinear discrete lattices, which may lead to the formation of discrete breathers. 18,22,24,26,51 Although the emergence of discrete breathers triggered by modulational instability has been predicted to occur in several physical scenarios such as BEC, vibrational excitations, and optical pulses, the question regarding the corresponding phenomenology associated with the dynamics of single electron wavepackets under the influence of an effective nonlinearity due to a strong underlying coupling with optical phonons is still open.

In the present work, we will provide a detailed analysis of the dynamics of initially uniform one-electron wavepackets evolving on nonlinear finite chains and square lattices. We will analytically determine the critical value of the nonlinear strength χ_{MI} above which the uniform wave is modulationally unstable. We will show that, while this critical value is finite in square lattices, it decreases as 1/L in linear chains. We will unveil that the interplay between modulational instability and self-trapping leads to quite distinct wavepacket dynamics on linear and square lattices. While a direct transition between stable uniform and self-trapped wavepackets takes place in square lattices, there is an intermediate regime in linear chains on which the wavepacket develops a complex sequence of breathing patterns. By computing the participation number to quantify the spacial extension of the wavepacket, we will characterize the sequence of transitions using standard techniques developed to the analysis of nonlinear dynamical systems.

II. ADIABATIC APPROXIMATION FOR THE ELECTRON-LATTICE INTERACTION: THE EFFECTIVE ELECTRONIC NONLINEAR SCHRODINGER EQUATION

The discrete nonlinear Schrodinger equation appears in the description of several physical scenarios. In this section, we draw the main lines of its use to effectively describe the influence of lattice vibrations on the nature of one-electron states, as first discussed in Ref. 52. The Hamiltonian associated with the electron-lattice interaction in the Holstein molecular-crystal model can be written as⁵²

$$H = \sum_{n} \left[\frac{p_n^2}{2M} + \frac{M\omega_0^2 u_n^2}{2} \right] + V \sum_{(n,m)} a_n^{\dagger} a_m + U \sum_{n} u_n a_n^{\dagger} a_n, \quad (2)$$

where the first term is associated with the harmonic vibrations of isolated molecules with mass M and Einstein frequency ω_0 (u_n and p_n stand for the vibrational displacement and its conjugated momentum, respectively). The second sum corresponds to the electron hopping integral V between first neighbor sites (n, m), while the third one accounts for the electron-lattice coupling of strength U. a_n^{\dagger} and a_n are the standard creation and annihilation fermion operators. In the adiabatic approximation, the kinetic energy of lattice vibrations is disregarded. The eigen-energies and eigenstates of a single electron can then be considered as parametric functions of the lattice displacements. By decomposing the electronic quantum state in the local Wannier basis set $(|\Psi\rangle = \sum_n a_n |n\rangle$, the time-evolution of the electronic wavefunction amplitudes is given by

$$i\frac{da_n}{dt} = V \sum_m a_m + Uu_n a_n, \tag{3}$$

in units of $\hbar=1$. A variational treatment provides that the minimal eigen-energies are achieved for $u_n=\frac{U}{M\omega_0^2}|a_n|^2$, 53 thus resulting in an effective discrete nonlinear Schrodinger equation (see Eq. (1)) with the nonlinear parameter $\chi=\frac{U^2}{M\omega_0^2}$ accounting for the underlying electron-lattice coupling.

III. MODULATIONAL INSTABILITY ANALYSIS

The discrete nonlinear Schrodinger equation (Eq. (1)) under periodic boundary conditions in a regular lattice with N sites and coordination number z (number of first neighbors) has a CW solution $\psi_{CW}(t) = \psi_0 e^{-i\omega t}$, with $\omega = z + \chi/N$ and $\psi_0 = 1/\sqrt{N}$. The CW amplitude accounts for the wavefunction normalization over the lattice. However, such CW solution may be unstable against small perturbations. A standard procedure to investigate analytically the stability of the CW solution is the MI analysis. Sign Here, we just sketch the main lines of the MI procedure with emphasis on the main aspects that will be used to analyze our results concerning the instability of discrete wavepackets.

According to the MI analysis, 5,6 harmonic perturbations with wavevector \mathbf{k} grow exponentially in time if $k < k_{MI}$, where k_{MI} is a characteristic wavevector that depends on the nonlinearity strength and the CW amplitude. In discrete lattices with periodic boundary conditions, the allowed harmonic waves have wavenumbers in the interval $2\pi/L < k < 2\pi/a$, where a is the lattice spacing (taken as unitary in Eq. (1)) and L is the lateral dimension (L=N in a linear chain and $L = \sqrt{N}$ in a square lattice). As a white noise random perturbation has a wide spectral range including all harmonic contributions, it will lead to the instability of the CW solution whenever $k_{MI} > 2\pi/L$. Therefore, the long wavelength regime of the harmonic perturbation ultimately determines the stability of the CW solution. Within this context, one may perform the modulational instability analysis in the continuous version of Eq. (1), which may be put in the form

$$i\frac{d\psi}{dt} = \nabla^2 \psi + \chi |\psi|^2 \psi, \tag{4}$$

from which a linear diagonal term was dropped as it does not have any influence on the wavefunction dynamics. The above continuous nonlinear Schrodinger equation has as CW

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP:

Chaos 25, 063101 (2015)

solution $\psi(t) = \psi_0 e^{-i\chi|\psi_0|^2 t}$, with $\psi_0 \in \Re$ without loss of generality. In order to investigate its stability, one adds a small perturbation to its amplitude as

$$\psi(\mathbf{r},t) = [\psi_0 + \varepsilon(\mathbf{r},t)]e^{-i\chi|\psi_0|^2t},\tag{5}$$

and follows the time evolution of the perturbation $\varepsilon(\mathbf{r}, t)$ which, in the linear regime of $|\varepsilon(\mathbf{r}, t)| \ll \psi_0$, obeys

$$i\frac{d\varepsilon}{dt} = \nabla^2 \varepsilon + \chi |\psi_0|^2 (\varepsilon + \varepsilon^*), \tag{6}$$

where ε^* stands for the complex conjugate of ε . The above equation has harmonic solutions in the form

$$\varepsilon(\mathbf{r},t) = Ae^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+\Omega t)} + Be^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}+\Omega t)},\tag{7}$$

subjected to the dispersion relation

$$\Omega = \sqrt{k^2 (k^2 - 2\chi |\psi_0|^2)}.$$
 (8)

According to the above dispersion relation, harmonic perturbations with large wavevectors remain stable (real Ω), while those with $k < k_{MI} = \sqrt{2\chi |\psi_0|^2}$ grow exponentially (imaginary Ω). As a consequence, the CW solution will be unstable whenever $k_{MI} = \sqrt{2\chi/N} > 2\pi/L$, which ultimately determines a characteristic nonlinear strength $\chi_{MI} = 2\pi^2 N/L^2$ above which a CW is unstable. The generality of scaling arguments for the setup of instabilities in nonlinear dynamical systems has been pointed out in Ref. 54. Finite-size scaling relation for the modulational instability threshold has also been reported in the context of the Fermi-Pasta-Ulam model. ⁵⁵

At this point, we shall discuss separately the stability of the CW solution in the linear and square lattices. In linear chains N=L, leading to $\chi_{MI}=2\pi^2/L$. Therefore, the CW solution is stable in finite chains only in the regime of very weak nonlinearities. Above χ_{MI} small perturbations grow exponentially with a characteristic time $\tau=1/\Re[\Omega]=(L^2/4\pi^2)[(\chi-\chi_{MI})/\chi_{MI}]^{-1/2}$. In the thermodynamic limit of $N\to\infty$, a CW solution is always unstable for any finite nonlinearity. It is important to stress that a wavepacket initially localized in a single site only evolves towards a stable self-trapped solution for nonlinear strengths above a characteristic value, $^{41-43}_{}$ which is of the order of the bandwidth of the corresponding linear problem $(\chi_{ST}\simeq 4$ in a linear chain). As such, a regime with a complex nontrivial wavepacket dynamics is anticipated in the regime of $\chi_{MI}<\chi<\chi_{ST}$, which will be explored numerically in Sec. IV.

On the other hand, $N=L^2$ in a square lattice. In this case, one results with a size-independent characteristic nonlinear strength for the modulational instability of the CW solution $\chi_{MI}=2\pi^2=19.739...$ This value is substantially larger than $\chi_{ST}\simeq 8$, contrasting with the opposite relation in a linear chain. Therefore, when the nonlinear strength becomes large enough to promote the instability of the CW solution, a stable self-trapped solution exists in the square lattice, and a direct transition between these two regimes shall occur. The characteristic time governing the exponential growth of the perturbation obeys the same scaling form found in the case of a linear chain.

IV. NUMERICAL RESULTS

In this section, we will provide numerical results for the time evolution of an initially uniform wavefunction in linear and square lattices aiming to evaluate the accuracy of the linear modulational instability analysis based on the continuous nonlinear Schrodinger equation, as well as to unveil the nontrivial dynamic behavior predicted to take place in linear chains between the modulational instability and self-trapping transitions. The initial wavefunction will be considered to be a superposition of a uniform wave of amplitude $\psi_0 = 1/\sqrt{N}$ and a small perturbation with the amplitudes at each site being randomly distributed in the interval $[0, 10^{-3}\psi_0]$, with the unitary norm of the resulting wavefunction being restored after a proper normalization. The set of discrete nonlinear Schrodinger equations (Eq. (1)) were solved numerically by employing the eighth order Runge-Kutta method with a discretization time $\Delta t = 10^{-2}$, which was short enough to keep the wavefunction normalization unitary within a precision of 10^{-6} during the entire integration time.

To probe the time evolution of the wavefunction spacial extension, we will compute its time-dependent participation number defined as

$$P(t) = \left[\sum_{n} |\psi_{n}|^{4}(t)\right]^{-1},\tag{9}$$

where the sum runs over all lattice sites. For a uniform wavefunction, the participation number equals the number of lattice sites, while P(t) becomes unitary when the wavefunction is fully localized in a single site. Therefore, this quantity works as a measure of the number of sites over which the wavefunction is distributed, being of the order of its localization length for exponentially localized wavepackets.

A. Square lattice

We start by following the time evolution of an initially uniform wavefunction distributed in a finite square lattice with periodic boundary conditions. In Fig. 1, we report the time-dependent normalized participation number P(t)/N for some representative values of the nonlinear strength in the vicinity of the predicted MI transition based on the linear stability analysis of the CW solution of the continuous nonlinear Schrodinger equation. Data were obtained from the numerical solution of Eq. (1) on a square lattice with $N = L^2$ = 2500 sites. One clearly observes the transition from the regime of a stable uniform solution, on which the normalized participation number remains unitary over very long runs, to the regime of unstable CW solution on which the participation number decreases after a characteristic time τ that becomes shorter as the nonlinear strength increases. There is a direct transition between the regime of uniform and selftrapped localized solutions. Such self-trapped solution in the square lattice corresponds to a single-peaked wavepacket superposed to a weak background noise. This feature is in agreement with MI analysis prediction of $\chi_{MI} > \chi_{ST}$, meaning that the set up of CW instability occurs within the regime of stable self-trapped solutions.

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP

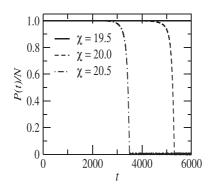


FIG. 1. Time evolution of the normalized participation number P(t)/N of an initially uniform wavefunction in a square lattice with $N-L^2=2500$ sites for three representative values of the nonlinear coupling. Notice that there is a direct transition between the regime of stable uniform solution to a regime of stationary strongly localized solution. The transition takes place around $\chi_{MI}=19.7$, in agreement with the analytical prediction based on the modulational instability analysis. The characteristic time for localization decreases as χ further departs from χ_{MI} .

In Fig. 2, we provide accurate numerical estimates of χ_{MI} on finite square lattices of distinct sizes. The dashed line represents the prediction of a size independent $\chi_{MI} = 2\pi^2$ derived from the MI analysis of the continuous nonlinear Schrodinger equation. This provides a very good estimate of the MI threshold of the CW solution on discrete lattices with lateral dimension $L = \sqrt{N} > 40$ sites. Deviations appearing in the opposite regime signal the limitation of the continuous approach to capture the precise dynamics on small discrete lattices. In this regime of small lattice sizes, the full dispersion relation of the discrete model has to be considered, as done, for example, in Refs. 56 and 57. However, in the present work, we will focus on the transition from the stable uniform to stable self-localized states, which remains a direct one irrespective to the lattice size.

We also determined numerically the characteristic instability time τ as a function of the nonlinear strength χ . It is straightforward to show that in the initial regime of exponential

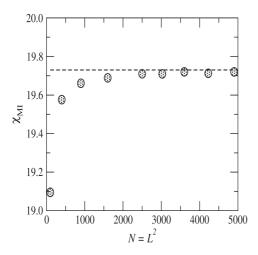


FIG. 2. The characteristic modulational instability nonlinear coupling χ_{MI} versus the number of lattice sites. The small deviation from the analytical prediction (dashed line) signals the limitation of the continuous approach to describe the dynamics on small discrete lattices.

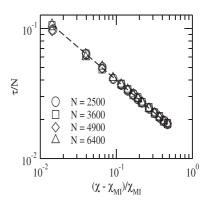


FIG. 3. The normalized characteristic instability time τ/N of a uniform wavefunction versus $\Delta\chi = (\chi - \chi_M)/\chi_M$ as obtained from distinct lattice sizes. The dashed line corresponds to the prediction based on the modulational instability analysis $\tau/N = (1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$.

growth of the small perturbation, the normalized participation number evolves as $P(t)/N=1-\alpha e^{2t/\tau}$, where α is proportional to the initial noise dispersion. Therefore, we numerically estimate τ by fitting the initial exponential deviation of P(t)/N from unit. The resulting estimates are reported in Fig. 3. The values of τ/N versus $\Delta\chi=(\chi-\chi_{MI})/\chi_{MI}$ obtained from distinct lattices sizes collapse in a single power-law. The dashed line represents the MI analysis prediction $\tau/N=(1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$ and accurately fits the numerical data.

B. Linear chain

The analytical prediction of $\chi_{MI} \ll \chi_{ST}$ in linear chains points towards the existence of an intermediate regime on which neither uniform nor self-trapped solutions are stable. In this section, besides probing the MI of the CW solution and the scaling characteristics of the MI threshold and instability time, we will explore the wavefunction dynamics in the crossover regime.

Some typical time series of the normalized participation number are depicted in Fig. 4. Data are from the time evolution in a closed chain with $N\!=\!L\!=\!100$ sites. According to the MI

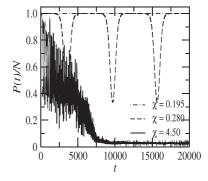


FIG. 4. Time evolution of the normalized participation number P(t)/N of an initially uniform wavefunction in a linear chain with $N\!=\!L\!=\!100$ sites for three representative values of the nonlinear coupling. Notice that there is an intermediate oscillatory (breathing) regime between the regime of stable uniform solution and the regime of strongly localized solution. The transition from stable uniform to breathing solutions takes place around $\chi_{MI}\!=\!0.20$, in agreement with the analytical prediction based on the modulational instability analysis. Localized solutions appear above $\chi_{ST}\!\simeq\!4$.

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP:

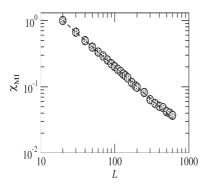


FIG. 5. Numerical estimates of the characteristic modulational instability nonlinear coupling χ_{MI} versus the linear chain size. The dashed line corresponds to the analytical prediction $\chi_{MI} = 2\pi^2/L$.

analysis developed in Sec. III, the CW solution shall become unstable for $\chi > \chi_{MI} = 2\pi^2/L \simeq 0.197$. Indeed, the normalized participation number remains unitary over very long runs below this threshold. However, contrasting with the direct transition to a stable self-trapped state taking place in a square lattice, the wavefunction develops regular breathings right above χ_{MI} , signaled by periodic oscillations of the participation number. Only for nonlinear couplings larger than $\chi_{ST} \simeq 4$ is that an initially uniform state evolves towards a stable localized one. In this case, there is a transient period on which the wavefunction exhibits an irregular (chaotic-like) dynamics.

We numerically determined χ_{MI} considering chains on a wide range of linear sizes. Accurate estimates are reported in Fig. 5 together with the MI analysis prediction. Although we used a continuous approach to derive the analytical expression for χ_{MI} , it fairly fits the numerical data even for very short discrete chains. The characteristic instability time in the close vicinity of the MI threshold was also computed. The numerical estimates of τ/L^2 versus $\Delta \chi$ are displayed in Fig. 6. Data from distinct chain sizes collapse over a single

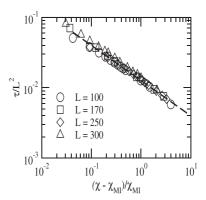


FIG. 6. The normalized characteristic instability time τ/L^2 of an initially uniform wavefunction versus $\Delta\chi = (\chi - \chi_{MI})/\chi_{MI}$ as obtained from distinct linear chain sizes. The dashed line corresponds to the prediction based on the modulational instability analysis $\tau/L^2 = (1/4\pi^2)\Delta\chi^{-1/2}$.

curve, which confirms the scaling behavior predicted by the MI analysis (dashed line).

In the following, we are going to closely investigate the intermediate regime on which the instability of the CW solution does not lead to an asymptotically stationary localized state. In Fig. 7, we plot some representative time-evolutions of the wavefunction probability distribution over a finite chain with N = 100 sites. In the close vicinity of the MI threshold, the wavefunction develops a regular breathing oscillation between the uniform state and a state localized in a finite segment. As one further departs from γ_{MI} , the breathing pattern becomes more complex, with oscillations between distinct localized states, as shown for $\gamma = 1.0$. The oscillations among distinct localized states become chaoticlike as one approaches χ_{ST} . In the illustrated case of $\chi = 3.0$, these oscillations have no tendency of achieving a stationary behavior. Above χ_{ST} , a self-trapped state is reached after the initial chaotic-like transient. A similar sequence of events

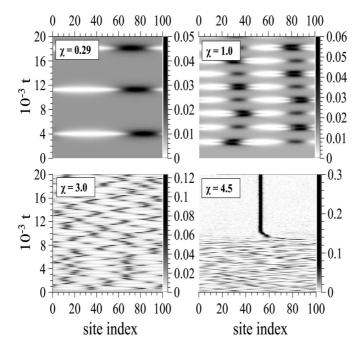


FIG. 7. Time evolution of the wavefunction probability distribution $|\psi_n(t)|^2$ on a linear chain with N=100sites for some representative values of the nonlinear coupling above the modulational instability transition. $\gamma = 0.29$: Just above the MI transition, a quite regular breathing pattern takes place between the uniform and a localized state. $\chi = 1.0$: The breathing becomes more complex with oscillations between distinct localized states. $\chi = 3.0$: as one further departs from the MI threshold, chaotic-like oscillations between several localized states are developed. $\chi = 4.5$: Above χ_{ST} , a localized stationary solution emerges after a chaotic-like transient time.

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP:

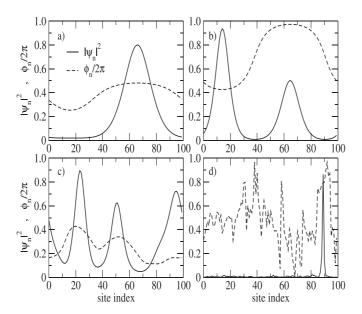


FIG. 8. Typical profiles of the wavepacket squared amplitude and phase of the breathers and self-trapped states appearing during the time evolution in different regimes of nonlinearities: (a) For $\chi = 0.29$, just above the modulational instability threshold, the wavepacket develops a single breather with a smooth phase-profile; (b) At $\chi = 1.0$, almost regular oscillations develop with two breathers of nearly opposite phase profiles; (c) For $\chi = 3.0$, three breathers appear but the amplitude and phase profiles evolve irregularly in time; (d) For $\chi = 4.5$, the wavepacket evolves to a strongly localized state exhibiting a single peaked structure superposed to a background noise. The phase profile is also random except in the close vicinity of the wavepacket peak. The squared amplitudes are shown in arbitrary units for better visualization.

has been previously shown to take place in more general nonlinear dynamical systems as a function of the norm of the initially extended wavepacket. 55,58

In order to provide a more detailed view of the wave-packet distribution in each one of the regimes identified above, we plot in Fig. 8 the profiles of the squared amplitude $|\psi_n|^2$ and the phase ϕ_n of wavepackets $(\psi_n = |\psi_n|e^{i\phi_n})$ at representative times on which the breathers and self-trapped states are present. Just above the modulational instability threshold, the system develops regular oscillations of a single breather with a quite smooth phase profile (see Fig. 8(a)). For larger nonlinearities, as shown in Fig. 8(b), roughly regular oscillations with two breathers emerge. These breathers have also smooth, although nearly opposite, phase-profiles. The number of breathers increases with the nonlinearity. In Fig. 8(c), one identifies three breathers for $\chi=3.0$. However, the dynamic evolution is quite irregular with the amplitude and phase profiles continuously changing in time. In this

case, the wavepacket does not approach the uniform state during the course of evolution, as it happens in the case of regular oscillations with one and two breathers. We observed irregular oscillation with up to four breathers when the nonlinearity strength approaches the self-trapping threshold (not shown). A larger number of breathers can be achieved in longer chains. These breathers become quite superposed, which ultimately triggers the transition to a strongly localized self-trapped state. In Fig. 8(d), we show the amplitude and phase profiles of a typical self-trapped state. It is strongly peaked at a single site, although depicting a background noise. The phase profile is also random, except in the close vicinity of the wavepacket peak.

The above sequence of dynamical behaviors leading to the ultimate asymptotic self-trapping can also be illustrated by plotting some representative orbits in the participation number phase-space $\frac{dP}{dt} \times P$, as provided in Fig. 9. Just above the MI threshold, a single closed orbit in phase-space signals

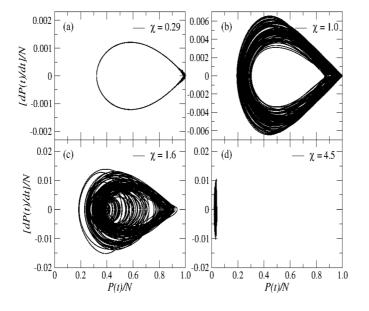


FIG. 9. Some representative orbits in the participation number phase-space $dP(t)/dt \times P(t)$ as obtained from linear chains with N=100 sites in the time interval $80\,000 < t < 100\,000$, $\chi = 0.29$. The simple closed orbit signals a regular wavefunction breathing pattern. $\chi = 1.0$: The orbit becomes unstable but the oscillations are nearly regular. $\chi = 1.6$: Chaotic-like oscillations are developed. $\chi = 4.5$: The orbit converges to a single point signaling the asymptotic wave-function localization.

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP

the periodic oscillation of the wavepacket between the uniform state with P/N = 1 and a state localized on a finite segment. As the nonlinearity is increased, the phase-space orbit starts to become unstable, presenting nearly regular oscillations. The orbit evolves to a chaotic-like pattern as χ is further increased. Finally, it converges to a single spot representing the self-trapping in a localized state.

The above results show that the wavefunction and its associated participation number exhibit a complex sequence of dynamic behavior as a function of the nonlinear strength. In order to provide a more complete picture of how the wavefunction dynamics changes with γ , we located the local minima of the participation number for a large set of nonlinear strengths covering all dynamical regimes described above. The resulting data are reported in Fig. 10. Only minima of the participation number occurring in the time interval $80\,000 < t < 100\,000$ were plotted. The first branching appearing just above $\chi_{MI} \simeq 0.2$ represents the regime on which the wavefunction displays periodic oscillations between the uniform and a single localized state. The second branching appearing for $\chi \simeq 0.8$ delimits the end of the regime of single periodic oscillations. In a narrow range of nonlinear strengths, the oscillations are mainly between the uniform and two localized states, although the one associated with the first branch starts to become unstable. The dynamics become chaotic-like for $1.0 \lesssim \chi \lesssim 3.8$, with the participation number having many minima due to its irregular oscillations. These minima cover densely a finite range of participation values. Self-trapping is reached for $\chi > \chi_{ST} \simeq 3.8$.

Before finishing, we show some results related to the crossover from 1D to 2D behavior. To perform such study, we considered the time-evolution of initially uniform wave-packets on ribbons with $N = L \times \ell$ sites with periodic boundary conditions, where $L\left(\ell\right)$ accounts for the largest (smallest) dimension of the ribbon. To evidence the distinct dynamical behaviors, we plotted the minima of the normalized participation number as a function of the nonlinear parameter χ , as done above for the case of a linear chain. Our results are summarized in Fig. 11. For narrow ribbons, as shown in Fig. 11(a), one still observes the presence of four dynamical

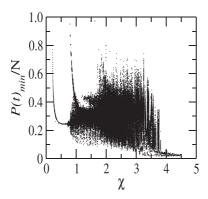


FIG. 10. Diagram showing the minima of the normalized participation number versus χ as obtained from an initially uniform wavefunction evolving on a linear chain with $N\!=\!100$ sites. The single minima appearing at small χ signal the emergence of modulational instability. A chaotic-like pattern separates the regimes of stable uniform and localized wave-functions.

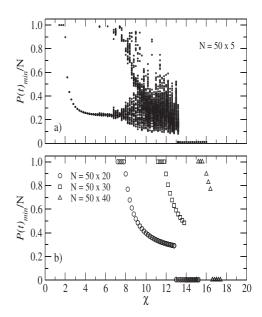


FIG. 11. Diagram showing the minima of the normalized participation number versus χ as obtained from an initially uniform wavefunction evolving on ribbons of distinct widths. (a) A narrow ribbon with $N=50\times5$ sites. The behavior is quite similar to the one observed in linear chains, showing regimes of stable uniform, regular breathings, chaotic-like behavior, and self-trapping. (b) Wider ribbons with $N=50\times20$ up to $N=50\times40$ sites. In these cases, the chaotic-like regime is absent and the regime of regular breathings continuously reduces as the square lattice geometry is approached.

regimes: stable uniform wavepackets at small nonlinearities, regular breathings above the MI threshold which evolves towards a chaotic-like behavior prior to the ultimate self-trapping. However, the chaotic-like regime is strongly suppressed when the width of the ribbon increases. It fully disappears for $\ell/L \gtrsim 0.3$. In Fig. 11(b), we show the normalized participation minima for ribbons with $N=50\times 20$ up to $N=50\times 40$ sites. Notice that only regular breathings are present between the stable uniform and self-trapped states, which are signaled by single minima with P_{min}/N distinct from its limiting values. Further, this intermediate breathing regime continuously shrinks as the square lattice geometry is approached. The MI threshold in ribbons is found to be $\chi_{MI}=2\pi^2(\ell/L)$, which is in full agreement with the modulational instability analysis prediction.

V. SUMMARY AND CONCLUSIONS

In summary, we studied, both analytically and numerically, the time-evolution of initially uniform electronic wavepackets in discrete nonlinear low-dimensional lattices governed by a discrete nonlinear Schrodinger equation. A modulational instability analysis was employed to show that the critical nonlinear strength χ_{MI} above which small perturbations superposed to the uniform state grow exponentially is finite in the square lattice, while it is inversely proportional to the length L in one-dimensional chains. In both cases, we showed that the characteristic instability time scales with $\Delta\chi = \chi - \chi_{MI}$ as $\tau \propto L^2 \Delta \chi^{-1/2}$. MI is usually considered as the initial step towards the emergence of localized solutions

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP:

such as solitons and breathers. In the square lattice, χ_{MI} is much larger than the characteristic nonlinear coupling χ_{ST} required to make an initially fully localized wavepacket to remain self-trapped. As a consequence, above χ_{MI} , the instability of the uniform solution drives the system to a localized state with a stationary probability distribution. In contrast, $\chi_{MI} \ll \chi_{ST}$ in linear chains. This feature is responsible for the existence of an intermediate regime on which, although the uniform state is unstable, the system is not driven towards a stable self-trapped state. In such regime, the wavepacket dynamics exhibits a series of unconventional behavior ranging from periodic to irregular (chaotic-like) breathings. We characterized the crossover from uniform to localized stable states by reporting some typical orbits in the participation number phase-space, as well as the bifurcation diagram of the participation number minima. We also reported the crossover from 1D to 2D behavior by considering the wavepacket dynamics on ribbons. We found that the chaotic-like regime is strongly suppressed, being fully absent in wide ribbons on which the regimes of stable and self-trapped states are separated by a regular breathing regime. The MI and ST thresholds continuously merge as the square geometry is approached.

It is interesting to emphasize that the discrete nonlinear Schrodinger equation also supports unconventional solutions such as stable twisted solitons in 1D⁵⁹ and discrete vortices in 2D.⁶⁰ For the initial conditions considered in the present work consisting of a random perturbation superposed to a uniform state, no such states appear during the evolution. It would be valuable to investigate if these unconventional solitons can naturally evolve from the uniform state by properly manipulating the perturbation to include an intrinsic twist or vorticity. Further, it has been recently demonstrated that the lattice dimension strongly influences the dynamics of Bose-Einstein condensates in optical lattices.²⁵ Therefore, the present results advance in the understanding of the dynamics of wavefunctions in discrete lattices by unveiling the relevant role played by the relation between modulational instability and self-trapping. Along this direction, there are several aspects that would deserve further investigation. For example, the nonlinear response usually depicts some saturation and has a finite response-time. How do these phenomena influence the relative strength of MI and ST? Further, the MI and ST thresholds are lower in two-dimensional lattices with a smaller coordination number, which may have an impact on the wavefunction dynamics on graphene and fullerene. Future works addressing these points would further contribute to build a more complete scenario regarding the wavepacket dynamics in nonlinear media.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was partially supported by the Brazilian research agencies CAPES-PVE121, FINEP, and CNPq, as well as by the Alagoas state research agency FAPEAL.

```
<sup>4</sup>C. Gaul, E. Díaz, R. P. A. Lima, F. Domínguez-Adame, and C. A. Müller,
Phys. Rev. A 84, 053627 (2011).
```

⁵C. Sulem and P.-L. Sulem, The Nonlinear Schrödinger Equation: Self-Focusing and Wave Collapse (Springer-Verlag, New York, 1999).

⁶V. E. Zakharov and L. A. Ostrovsky, Physica D 238, 540 (2009) and references therein.

⁷G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, San Diego, 1995).

⁸F. Dalfovo, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii, and S. Stringari, Rev. Mod. Phys. 71, 463 (1999).

Or. Gaul, R. P. A. Lima, E. Díaz, C. A. Müller, and F. Domínguez-Adame, Phys. Rev. Lett. 102, 255303 (2009).

¹⁰V. V. Konotop and M. Salerno, Phys. Rev. A **65**, 021602(R) (2002).

¹¹A. Smerzi, A. Trombettoni, P. G. Kevrekidis, and A. R. Bishop, Phys. Rev. Lett. 89, 170402 (2002).

¹²L. Li, Z. Li, B. A. Malomed, D. Mihalache, and W. M. Liu, Phys. Rev. A 72, 033611 (2005).

¹³E. V. Doktorov, V. M. Rothos, and Y. S. Kivshar, Phys. Rev. A 76, 013626 (2007).

¹⁴X.-D. Zhao, Z.-W. Xie, and W.-P. Zhang, Phys. Rev. B 76, 214408 (2007).

¹⁵B. B. Baizakov, A. Bouketir, A. Messikh, and B. A. Umarov, Phys. Rev. E 79, 046605 (2009).

¹⁶M. A. Hoefer, J. J. Chang, C. Hamner, and P. Engels, Phys. Rev. A 84, 041605(R) (2011).

¹⁷J.-K. Xue, G. Q. Li, A.-X. Zhang, and P. Peng, Phys. Rev. E 77, 016606 (2008).

¹⁸Y. S. Kivshar and M. Peyrard, Phys. Rev. A **46**, 3198 (1992).

¹⁹Y. S. Kivshar, Phys. Rev. E **48**, 4132 (1993).

²⁰Y. S. Kivshar and M. Salerno, Phys. Rev. E **49**, 3543 (1994).

²¹P. G. Kevrekidis, K. Ø. Rasmussen, and A. R. Bishop, Int. J. Mod. Phys. B 15, 2833 (2001).

²²Z. Rapti, P. G. Kevrekidis, A. Smerzi, and A. R. Bishop, J. Phys. B 37, S257 (2004)

²³J. Meier, G. I. Stegeman, D. N. Christodoulides, Y. Silberberg, R. Morandotti, H. Yang, G. Salamo, M. Sorel, and J. S. Aitchison, Phys. Rev. Lett. 92, 163902 (2004).

²⁴F. K. Abdullaev, A. Bouketir, A. Messikh, and B. A. Umarov, Physica D **232**, 54 (2007).

²⁵J.-K. Xue, A.-X. Zhang, and J. Liu, Phys. Rev. A 77, 013602 (2008).

²⁶G. Gori, T. Macrì, and A. Trombettoni, Phys. Rev. E 87, 032905 (2013).

²⁷D. Hennig and G. P. Tsironis, Phys. Rep. **307**, 333 (1999).

²⁸G. Wellein and H. Fehske, Phys. Rev. B **58**, 6208 (1998).

A. S. Mishchenko and N. Nagaosa, Phys. Rev. Lett. 93, 036402 (2004).
 C. B. Tabi, A. Mohamadou, and T. C. Kofane, Chaos 19, 043101 (2009).

³¹A. D. Koko, C. B. Tabi, H. P. E. Fouda, A. Mohamadou, and T. C. Kofane, Chaos 22, 043110 (2012).

³²M. Peyrard and A. R. Bishop, Phys. Rev. Lett. 62, 2755 (1989).

³³T. Dauxois, M. Peyrard, and A. R. Bishop, *Phys. Rev. E* **47**, R44 (1993).

³⁴T. Dauxois, M. Peyrard, and A. R. Bishop, *Phys. Rev. E* **47**, 684 (1993).

³⁵E. Díaz, R. P. A. Lima, and F. Domínguez-Adame, Phys. Rev. B 78, 134303 (2008).

³⁶D. N. Christodoulides and R. I. Joseph, Opt. Lett. 13, 794 (1988).

³⁷A. B. Aceves, C. De Angelis, T. Peschel, R. Muschall, F. Lederer, S. Trillo, and S. Wabnitz, Phys. Rev. E 53, 1172 (1996).

³⁸A. Trombettoni and A. Smerzi, Phys. Rev. Lett. **86**, 2353 (2001).

³⁹B. B. Wang, P. M. Fu, J. Liu, and B. Wu, Phys. Rev. A 74, 063610 (2006).

⁴⁰J.-K. Xue and A.-X. Zhang, Phys. Rev. Lett. **101**, 180401 (2008).

⁴¹M. Johansson, M. Hörnquist, and R. Riklund, Phys. Rev. B 52, 231 (1995).

⁴²P. K. Datta and K. Kundu, Phys. Rev. B **53**, 14929 (1996).

⁴³Z. Pan, S. Xiong, and C. Gong, Phys. Rev. E **56**, 4744 (1997).

⁴⁴M. V. Ivanchenko, Phys. Rev. Lett. **102**, 175507 (2009).

⁴⁵S. Flach, D. O. Krimer, and C. Skokos, Phys. Rev. Lett. **102**, 024101 (2009)

⁴⁶C. Skokos, D. O. Krimer, S. Komineas, and S. Flach, Phys. Rev. E 79, 056211 (2009).

⁴⁷G. Sangiovanni, M. Capone, C. Castellani, and M. Grilli, Phys. Rev. Lett. 94, 026401 (2005).

⁴⁸F. A. B. F. de Moura, I. Gléria, I. F. dos Santos, and M. L. Lyra, Phys. Rev. Lett. **103**, 096401 (2009).

⁴⁹F. A. B. F. de Moura, E. J. G. G. Vidal, I. Gléria, and M. L. Lyra, Phys. Lett. A 374, 4152 (2010).

¹Y. V. Kartashov, B. A. Malomed, and L. Torner, Rev. Mod. Phys. 83, 247 (2011).

²A. Hasegawa, Rep. Prog. Phys. **65**, 999 (2002).

³S. Flach and A. V. Gorbach, Phys. Rep. 467, 1 (2008).

063101-9 Chaves Filho, Lima, and Lyra

Chaos 25, 063101 (2015)

- ⁵⁰W. S. Dias, M. L. Lyra, and F. A. B. F. de Moura, Phys. Rev. B 82, 233102 (2010).
- ⁵¹E. Díaz, C. Gaul, R. P. A. Lima, F. Domínguez-Adame, and C. A. Müller, Phys. Rev. A 81, 051607R (2010).
- ⁵²T. Holstein, Ann. Phys. (N.Y.) **8**, 325 (1959).
- ⁵³L. A. Turkevich and T. D. Holstein, *Phys. Rev. B* **35**, 7474 (1987).
- S. Flach, K. Kladko, and R. S. MacKay, Phys. Rev. Lett. 78, 1207 (1997).
 Dauxois, R. Khomeriki, F. Piazza, and S. Ruffo, Chaos 15, 015110 (2005).
- ⁵⁶P. L. Christiansen, Y. B. Gaididei, M. Johansson, K. Ø. Rasmussen, V. K. Mezentsev, and J. J. Rasmussen, Phys. Rev. B 57, 11303 (1998).
- ⁵⁷L. Hadzievski, M. Stepic, and M. M. Skoric, Phys. Rev. B 68, 014305 (2003).
- ⁵⁸M. Johansson and K. Ø. Rasmussen, *Phys. Rev. E* **70**, 066610 (2004).
- ⁵⁹S. Darmanyan, A. Kobyakov, and F. Lederer, **JETP 86**, 682 (1998).
- ⁶⁰B. A. Malomed and P. G. Kevrekidis, Phys. Rev. E 64, 026601 (2001).

ANEXO C

Artigo: Sensitivity to initial conditions of the self-trapping transition in C_{60} buckyballs with relaxing nonlinearity

Sensitivity to initial conditions of the self-trapping transition in C_{60} buckyballs with relaxing nonlinearity

A.F.G. Silva,¹ R.P.A. Lima,^{1,2} V. Chaves,^{1,3} F.A.B.F. de Moura,¹ and M.L.Lyra^{1*,**}

Abstract

We study the one-electron wavepacket dynamics in a C_{60} buckyball topology with a relaxing nonlinearity. The electron dynamics is considered to be governed by a discrete Schrödinger equation on which the nonlinear contribution obeys a Debyelike relaxation process. We follow the temporal evolution of the wavepacket and use the associated participation number to probe its spatial extension. By considering distinct initial conditions, we characterize the delocalization/self-trapping transition as a function of the nonlinear strength and relaxation time. We show that the phase-diagram exhibits a complex pattern of tongues signaling a re-entrant behavior of the transition which is strongly sensitive to the initial wavepacket distribution. The re-entrances become less prominent for initial conditions which are spatially distributed over opposite clusters.

 $\mathit{Key\ words:}$, C_{60} buckyballs, Third-order nonlinearity, Wavepacket dynamics, Self-trapping transition

Email address: marcelo@fis.ufal.br (and M.L.Lyra¹).

Preprint submitted to Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation April 2015

¹ GFTC and GISC ², Instituto de Física, Universidade Federal de Alagoas, Maceió AL 57072-970, Brazil

³ Instituto Federal de Educação, Ciência e Tecnologia de Alagoas, Satuba AL 57120-000. Brazil

^{* 55 82 3214-1432}

^{**55 82 3214-1645}

1 Introduction

Wave propagation in low-dimensional nonlinear models is a timely subject with several connections with basic and applied solid state physics, optics. acoustics, and Bose-Einstein condensation, among others [1–22,24–29]. Within the context of electronic transport in low-dimensional nonlinear discrete lattices, one of the most known properties is the self-trapping (ST) phenomena. In general lines, ST occurs when the strength of the nonlinearity surpasses a threshold which is of the order the bandwidth for initially fully localized wavepackets [2–6]. In this case, the electron wavepacket remains trapped around the initial position with the probability of finding the electron at its initial position remaining finite in the long-time limit. Some specificities of the ST transition in square and honevcomb lattices were reported in [7] showing that the ST threshold continuously grows as a function of the initial wavepacket width. Recent experiments have probed the electron-phonon interaction in graphene [30,31] and mapped the wavefunction in graphene quantum dots [32– 34]. Low-temperature scanning tunneling microscopy experiments can thus be explored to directly observe theoretical predictions concerning the wavepacket dynamics in carbon-based structures.

A question that has attracted recent interest concerns the role played by the finite nonlinear response time on the wavepacket dynamics in discrete lattices. In ref. [6] the problem of electronic ST in a chain with a non-adiabatic delayed electron-phonon coupling was investigated. It was shown that, in the regime of short delay times, a weaker nonlinearity is required to promote the ST transition when compared with the case of an instantaneous response. It was also demonstrated that for slowly responding media, ST only takes place for very strong nonlinearities. By using a Debye-like law for the relaxation of the nonlinearity, it was shown that the slow relaxation of the nonlinearity is responsible for the reduction of the delocalized regime and for the emergence of a complex wavepacket self-focusing regime [22]. The competition between disorder and a finite nonlinear response time was investigated in ref. [23]. It was numerically demonstrated that no sub-diffusive spreading of the second moment of the wavepacket distribution takes place when the finite response time of the nonlinearity is taken into account. Such re-localization was latter explained as resulting from the energy drift towards the band edge[24]. More recently, it has been evidenced that the relaxation process of the nonlinearity has a profound impact in the wavepacket dynamics and in the formation of self-trapped stationary states in C_{60} buckyballs[27]. In this structure, finitesize effects play a mayor role in the wavepacket dynamics.

In the present work, we will unveil the influence of the initial wavepacket distribution on the self-trapping transition in the C_{60} topology in the presence of a non-instantaneous nonlinearity. By considering a discrete nonlinear

Schrödinger equation within a non-adiabatic approximation, we will analyze the dynamics of a one-electron wavepacket having distinct initial distributions. We will present the phase diagram as a function of the nonlinear coupling and the relaxation time of the nonlinearity. In particular, we will show that the wavepacket dynamics depicts re-entrant behaviors both as a function of the strength of the nonlinear coupling and as a function of the relaxation time. This leads to a complex structure of tongues in the phase-diagram that becomes less prominent when wider initial wavepackets distributed in disconnected clusters are considered.

2 Model and Formalism

In the following, we will analyze the one-electron wavepacket dynamics on a C_{60} buckyball topology. We will consider that the intrinsic vibrations of the lattice do not reach equilibrium as compared with the time-evolution of the electron wavepacket. Under this condition, a non-adiabatic framework has to be employed to account for the relaxation of the effective nonlinear term resulting from the underlying electron-lattice coupling.

The discrete nonlinear Schrödinger equation appears within the electron-lattice interaction picture in an Einstein-like model of the lattice vibrations[35] whose Hamiltonian can be written as

$$H = \sum_{n} \left[\frac{p_n^2}{2M} + \frac{M\omega_0^2 u_n^2}{2} \right] + \sum_{(n,m)} V_{n,m} a_n^{\dagger} a_m + U \sum_{n} u_n a_n^{\dagger} a_n, \tag{1}$$

where the first term is associated with local harmonic oscillators with mass Mand Einstein frequency ω_0 (u_n and p_n stand for the vibrational displacement and its conjugated momentum, respectively). The on-site electron energy is set to zero without loss of generality. The second sum corresponds to the electron hopping integral between first neighbor sites (n, m). The C_{60} buckyball has 60 sites distributed in 20 hexagons and 12 pentagons. Each site has three bonds, two of them between a hexagon and a pentagon (single bonds) and the other between two hexagons (π bonds). Although these two types of bonds have slightly different lengths, we will consider that the hopping amplitude V_{nm} is the same irrespective to the bond type. It will be taken as unitary hereafter. The third term accounts for the electron-lattice coupling of strength U. a_n^{\dagger} and a_n are creation and annihilation fermion operators. In the absence of electron-phonon coupling, the one-electron eigen-energies and the structure of the eigenstates were investigated in the previous literature [36]. An exact diagonalization of the Hamiltonian matrix shows that, although most of the eigenstates are not uniformly distributed over the buckyball, they are spread over a significant fraction of the sites. By decomposing the electronic quantum

state in the local Wannier basis set $(|\Psi\rangle = \sum_n \Psi_n |n\rangle)$, the time-evolution of the electronic wavefunction amplitudes is given by

$$i\dot{\Psi}_n(t) = \sum_m V_{nm} \Psi_m(t) - X_n(t) \Psi_n(t), \qquad (2)$$

in units of $\hbar=1$. A variational treatment provides that the minimal eigenenergies are achieved for the stationary value $X_n=\frac{U^2}{M\omega_0^2}|\Psi_n|^2[37]$, thus resulting in an effective discrete nonlinear Schrödinger equation, with the nonlinear parameter $\chi=\frac{U^2}{M\omega_0^2}$ accounting for the underlying electron-lattice coupling. Here, we will consider the relaxation process of the nonlinearity assuming that the lattice oscillations are over-damped. In this way, its relaxation towards the stationary value is governed by a single time scale τ characterizing a Debye-like process described by

$$\dot{X}_n(t) = -\frac{1}{\tau} \left[X_n(t) + \chi |\Psi_n(t)|^2 \right] . \tag{3}$$

To probe the wavepacket dynamics, we will follow the time-evolution of the participation number P(t) defined as

$$P(t) = \left[\sum_{j} |\Psi_{j}|^{4}\right]^{-1}.$$
 (4)

In general, the participation number is used as an estimate of the number of sites that effectively contribute to the electronic probability distribution. For uniformly extended states, P(t) equals the total number of sites N. For strongly localized states, the participation number becomes much smaller than N.

3 Results and Discussions

We numerically solved the model equations by considering several distinct kinds of initial conditions using a standard eight-order Runge-Kutta algorithm [38] with time step dt=0.005. We did not find any significant quantitative or qualitative difference for time discretizations dt<<0.005 or by solving the nonlinear equations using alternative numerical methods. The numerical convergence and stability were checked at each time step. We verified that the norm conservation, e.g. $(|1-\sum_n |\Psi_n|^2|<10^{-7})$ was satisfied during the entire simulation time.

We followed the time evolution of the wavepacket until it has reached a stationary regime. We start by showing our results for the case in which the wavepacket is initially distributed uniformly over the sites of a pentagon, as

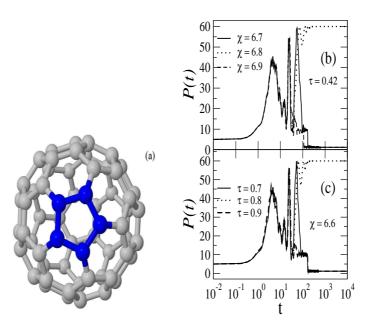


Fig. 1. Color on-line:(a) Illustration of the initial wavepacket uniformly distributed over the sites of a pentagon. (b-c) Some representative time-dependent participation function for (b) $\tau=0.42$ and $\chi=6.7,6.8,6.9$; (c) $\chi=6.6$ and $\tau=0.7,0.8,0.9$. There appears an alternate sequence of localization and self-trapping as a function of both χ and τ .

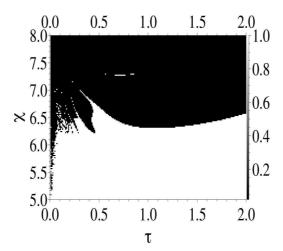


Fig. 2. The phase diagram within the two-dimensional parameter space τ, χ . Black region indicates the self-trapped regime and the white region accounts for fully delocalized states. The transition between these two regimes is discontinuous. Calculations were done for the case in which the wavepacket is initially uniformly distributed over the sites of a pentagon.

illustrated in fig.1a. The temporal evolution of the participation function is reported for some typical sets of model parameters (namely the strength of the nonlinearity χ and the relaxation time τ) (see fig.1b-c). In all cases, the initial

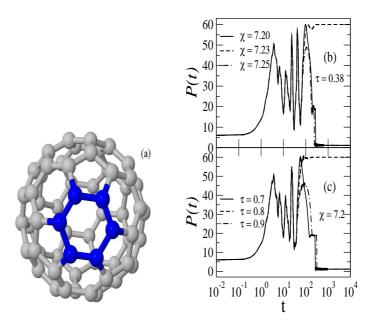


Fig. 3. Color on-line:(a) Illustration of the initial wavepacket distributed uniformly over the sites of an hexagon. (b-c) Some representative time-dependent participation function for (b) $\tau=0.38$ and $\chi=7.20,~7.23,~7.25;$ (c) $\chi=7.2$ and $\tau=0.7,0.8,0.9.$ Notice the alternate sequence of localization and self-trapping as a function of both χ and τ .

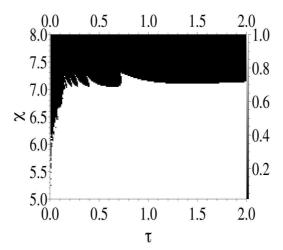


Fig. 4. The phase diagram regarding the self-trapped (black region) and the delocalized (white region) regimes in the two-dimensional parameter space (τ, χ) . Calculations were done for the case in which that the wavepacket is initially uniformly distributed over the sites of an hexagon.

wave packet has a participation number P(t=0)=5, according to the initial wave packet distribution over the pentagon. In fig.1b, we fixed the relaxation time and varied the nonlinear strength over values close to the transition from delocalized to self-trapped states. Notice that the oscillations taking place at

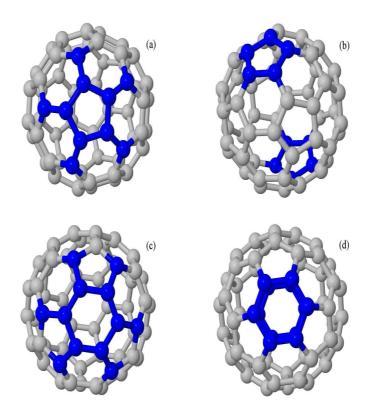


Fig. 5. Color online: Illustrative representations of 4 distinct initial conditions with the wavepacket distributed uniformly over the sites of (a) an extended pentagon, (b) two opposite pentagons, (c) an extended hexagon, and (d) two opposite hexagons.

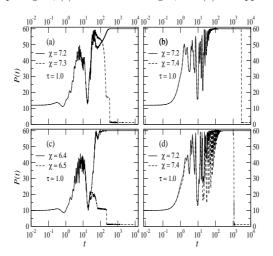


Fig. 6. Some representative time-dependent participation functions for distinct initial conditions: (a) Extended pentagon; (b) Extended hexagon; (c) Opposite pentagons; and (d) Opposite hexagons. In all cases, the transition from well localized to fully extended asymptotic states is direct.

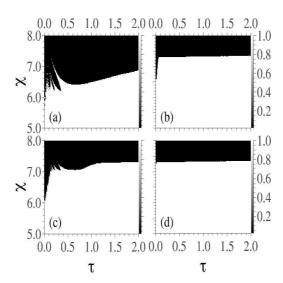


Fig. 7. The phase diagrams within the two-dimensional parameter space τ , χ . Calculations were done by considering four distinct types of initial conditions : a) extended pentagon b) two opposite pentagons c) extended hexagon and (d) two opposite hexagons. Notice that the re-entrances are absent when the initial wavepacket is distributed in opposite clusters.

intermediate times, which signal the emergence of irregular breathings, are weakly sensitive to the precise value of the nonlinear strength. However, the convergence to the ultimate stationary state strongly depends on χ . For small nonlinearities, the stationary state is uniformly distributed over all sites of the buckyball, while it focuses over very few sites for strong nonlinearities. It is worth to call attention to the fact that the transition from delocalized to self-trapped states that takes place with increasing strengths of the nonlinearity depicts a re-entrant behavior, characterized by an alternate sequence of self-trapped and delocalized asymptotic wavepackets. In fig.1c we explore the dependence of the wavepacket time-evolution on the relaxation time τ . Here we fixed the nonlinear coupling at a value close to the delocalization/self-trapped transition and report results for some representative values of the relaxation time. We also observe that the initial transient oscillations are weakly sensitive to the actual precise value of τ , in contrast to the participation number of the asymptotic wavepacket. The re-entrant behavior of the transition as a function of τ is also evidenced. In fig.2 we provide the full phase diagram in the parameter space $\chi \times \tau$. The region in white corresponds to asymptotic participation P/N = 1 (fully extended wavepacket) while the region in black to P/N near zero (well localized wavepacket). Intermediate values would appear in gray scale between these two limiting values. The absence of asymptotic intermediate values of the participation number signals that the transition from localized to extended asymptotic states is discontinuous. The re-entrant behavior of the transition is reflected by the emergence of several tongues, which become quite fragmented in the regime of short relaxation times. In

this regime, there is a strong sensitivity of the asymptotic state on the precise values of the model parameters.

In order to explore the sensitivity on the initial condition of the delocalization/selftrapping transition, we now consider the case on which the wavepacket is initially distributed uniformly over the sites of an hexagon, as illustrate in fig.3a. We also show some representative time evolution series of the participation number (see fig.3b-c). The transition also depicts a re-entrant behavior, either as a function of the nonlinear strength (fig.3b) or as a function of the relaxation time (fig.3c). The corresponding phase diagram is shown in fig.4. Although it has a similar structure as the one attained for the pentagonal initial condition, there are a few characteristics that deserve to be stressed. Firstly, the re-entrances are less pronounced for the hexagonal initial condition. However, the sequence of tongues is more clearly defined, pointing for a weaker sensitivity on the model parameters in the regime of short relaxation times. Further, the critical nonlinear strength in the regime of slowly responding nonlinearity ((large τ) is somewhat larger than the one obtained for the pentagonal initial condition. This feature is in agreement with previous results concerning the self-trapping transition which showed a monotonic increase of the self-trapping threshold when the width of the initial wavepacket distribution is increased [7].

Before concluding, we consider other kinds of initial conditions (see fig. 5): a) extended pentagon, b) two opposite pentagons, c) extended hexagon, and d) two opposite hexagons. The extended pentagon initial condition consists of the wavepacket initially distributed uniformly over 10 sites: those of a pentagon and its five nearest neighboring sites, as illustrated in fig.5a. The two opposite pentagons initial condition also consists of the wavepacket distributed uniformly over 10 sites, but distributed in opposite clusters (see fig.5b). In the extended hexagon initial condition, the wavepacket is initially distributed over 12 sites occupying an hexagon and its nearest neighbors, as shown in fig.5c, while in the two opposite hexagons initial condition the 12 sites occupy diametrically opposite hexagonal clusters (see fig.5d). Representative plots of the participation number time-evolution for each one of these initial conditions are shown in fig.6. In all cases, the participation depicts a direct transition between well localized and fully extended asymptotic states. The location of the asymptotically localized state is strongly dependent on the initial condition and model parameters, especially near the localization-delocalization transition.

In fig.7, we report the phase diagrams resulting from each one of the above initial conditions. For the extended pentagon (fig.6a) and hexagon (fig.6c) initial conditions, the phase diagrams are quite similar to those obtained for wavepackets distributed initially over the corresponding closed clusters. The main difference is that the re-entrant tongues are slightly less pronounced. On

the other hand, the phase diagrams related to the initial conditions with the wavepacket distributed in opposite clusters are quite distinct, even though they have the same initial participation number as their extended cluster counterpart. In these cases (see fig.6b and 6d) the re-entrant tongues are absent. The threshold nonlinear coupling separating delocalized from self-trapped asymptotic wavepackets are roughly independent of the relaxation time, except in the regime of very fast nonlinear responses on which the self-trapping threshold displays a small decrease (visible in fig.6b). This feature is due to the fact that, for these initial conditions the wavepacket spreads over the entire buck-yball in a shorter time than in the case of an initially connected single cluster. In this case, the transition from delocalization to self-trapping is triggered by the modulational instability of the uniform solution. The asymptotic threshold is also larger than in the cases of single connected clusters, corroborating its expected dependence on the initial participation number [7].

4 Summary and Conclusions

In summary, we investigated the time-evolution of one-electron wavepackets restricted to evolve on the sites of a C_{60} buckyball under the influence of a third-order nonlinearity with a finite relaxation time τ . Within a tight-binding approach including a Debye-like relaxation process of the nonlinear contribution, we provided a detailed study of the transition from delocalized to self-trapped asymptotically stationary states. In the regime of weak nonlinear couplings, the asymptotic state becomes delocalized irrespective to the nonlinear relaxation time and initial condition. On the other hand, the wavepacket evolves to a self-trapped stationary state for strong nonlinearities. However, we unveiled that the actual location of the transition is strongly dependent on the initial condition as well on the relaxation time of the nonlinearity.

We provided the full phase-diagram for six distinct initial conditions. In four of them, we considered that the wavepacket was initially uniformly distributed over the sites of a connected cluster (pentagon, hexagon, extended pentagon, and extended hexagon). In all of these cases, the phase diagram presents reentrant tongues reflecting the presence of a sequence of transitions when increasing the nonlinear strength, before the ultimate self-trapping. These reentrances are more prominent in the short relaxation time regime, as well as in the smallest initial cluster. Such re-entrant phase-diagram indicate that the border between the dynamical attractors related to localized and extended states is complex, as usual in high-dimensional nonlinear dynamical systems (120 dynamical variables in the present model). Further, in the range of nonlinear strengths corresponding to this re-entrant behavior, a sequence of self-trapping to delocalization transitions can also take place with increasing relaxation times. For the initial conditions on which the wavepacket is distributed

in disconnected opposite clusters (opposite pentagons and hexagons) the reentrant behavior of the transition is suppressed and the nonlinear threshold signaling the self-trapping transition becomes roughly independent of the nonlinear relaxation time. In this case, the self-trapping transition occurs after the initial spread of the wavepacket over the entire buckyball and is triggered by the modulational instability of the uniform solution.

The above phenomenology shall also appear in general nonlinear physical systems where the wavepacket dynamics is influenced by a relaxing nonlinearity. Extensions of the present study to other nanosized clusters with strong electron-phonon coupling, BEC in optical lattices, as well as of light propagation in nonlinear photonic crystals would be in order to provide a more complete scenario regarding the physical mechanisms behind the self-trapping transition in slowly responding nonlinear lattices.

4.1 Acknowledgments

This work was partially supported by CNPq, CAPES (Grant No. PVE-A121), and FINEP (Federal Brazilian Agencies), as well as FAPEAL (Alagoas State Agency). The authors would like to thanks HPC-Lattes (UNILA) for providing computational facilities.

References

- [1] D. Hennig and G.P. Tsironis, Phys. Rep. **307** (1999) 333.
- [2] G. Kopidakis, C.M. Soukoulis and E. N. Economou, Europhys. Lett. 33 (1996) 459.
- [3] G. Kopidakis, C.M. Soukoulis, and E.N. Economou Phys. Rev. B 51 (1995) 15038.
- [4] M.V. Ivanchenko, Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 175507; S. Flach, D.O. Krimer, and Ch. Skokos, Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 024101; Ch. Skokos, D.O. Krimer, S. Komineas, and S. Flach, Phys. Rev. E 79 (2009) 056211; G. Sangiovanni, M. Capone, C. Castellani, and M. Grilli, Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 026401.
- [5] W.S. Dias, M.L. Lyra, and F.A.B.F. de Moura, Eur. Phys. J. B 85 (2012) 7.
- [6] F.A.B.F. de Moura, I. Gléria, I.F. dos Santos, and M.L. Lyra, Phys. Rev. Lett. 103 096401 (2009).
- [7] W.S. Dias, M.L. Lyra, and F.A.B.F. de Moura, Phys. Rev. B 82 233102 (2010)

- [8] G. Kopidakis, S. Komineas, S. Flach, and S. Aubry, Phys. Rev. Lett. 100 (2008) 084103;
 A.S. Pikovsky and D.L. Shepelyansky, Phys. Rev. Lett. 100 (2008) 094101;
 D. Hajnal and R. Schilling, Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 124101;
 Y. Lahini, A. Avidan, F. Pozzi, M. Sorel, R. Morandotti, D.N. Christodoulides, and Y. Silberberg, Phys. Rev. Lett. 100 (2008) 013906.
- [9] F.A.B.F. de Moura, R.A. Caetano, and B. Santos, J. Phys.: Condens. Matter 24 (2012) 245401.
- [10] A.S. Davydov, Solitons in Molecular Systems, 2nd ed., Reidel, Dordrecht, 1991.
- [11] A.C. Scott, Phys. Rep. **217** (1992) 1.
- [12] A.S. Davydov, Phys. Scripta **20** (1979) 387.
- [13] A.S. Davydov, J. Theor. Biol. **66** (1977) 379.
- [14] A.S. Davydov, Biology and Quantum Mechanics (Pergamon, New York, 1982).
- [15] L. Brizhik, A.P. Chetverikov, W. Ebeling, G. Ropke, and M.G. Velarde, Phys. Rev. B 85 (2012) 245105.
- [16] A.P. Chetverikov, W. Ebeling, and M.G. Velarde, Physica D 240 (2011) 1954.
- [17] D. Hennig, M.G. Velarde, W. Ebeling, A.P. Chetverikov, Phys. Rev. E 78 (2008) 066606.
- [18] V.A. Makarov, M.G. Velarde, A.P. Chetverikov, and W. Ebeling, Phys. Rev. E 73 (2006) 066626.
- [19] D. Hennig, C. Neissner, M.G. Velarde, and W. Ebeling, Phys. Rev. B, 73 (2006) 024306.
- [20] W. Ebeling, A.P. Chetverikov, G. Röpke, and M.G. Velarde, Contrib. Plasm. Phys. 53 (2013) 736.
- [21] M. O. Sales and F.A.B.F. de Moura, J. Phys.: Condens. Matter 26 415401 (2014).
- [22] F.A.B.F. de Moura, E.J.G.G. Vidal, Iram Gleria, and M. L. Lyra, Phys. Lett. A 374 (2010) 4152.
- [23] R.A. Caetano, F.A.B.F. de Moura, and M.L. Lyra, Eur. Phys. J. B 80 (2011) 321.
- [24] M. Mulanski and A.S. Pikovsky, Eur. Phys. J. B 85 (2012) 105.
- [25] V. M. Kenkre and H.-L. Wu, Phys. Rev. B 39 (1989) 6907.
- [26] P. Grigolini, H.-L. Wu, and V. M. Kenkre, Phys. Rev. B 40 (1989) 7045.
- [27] M.L. Lyra and R.P.A. Lima, Phys. Rev. E 85 (2012) 057201.
- [28] S.-F. Tian, L.Zu, Q. Ding, and H.-Q. Zhang, Commun. Nonlinear Sci. Numer. Simulat.17 (2012) 3247.

- [29] S.A. Tawfik, Commun. Nonlinear Sci. Numer. Simulat. 17 (2012) 3552.
- [30] M. Bianchi, E.D.L. Rienks, S. Lizzit, A. Baraldi, R. Balog, L. Hornekaer, and Ph. Hofmann, Phys. Rev. B 81 (2010) 041403.
- [31] A. Grüneis, C. Attaccalite, A. Rubio, D.V. Vyalikh, S.L. Molodtsov, J. Fink, R. Follath, W. Eberhardt, B. Büchner, and T. Pichler, Phys. Rev. B 79 (2009) 205106.
- [32] D. Subramaniam, F. Libisch, Y. Li, C. Pauly, V. Geringer, R. Reiter, T. Mashoff, M. Liebmann, J. Burgdörfer, C. Busse, T. Michely, R. Mazzarello, M. Pratzer, and M. Morgenstern, Phys. Rev. Lett. 108 (2012) 046801.
- [33] S.H. Park, J. Borme, A.L. Vanegas, M. Corbetta, D. Sander, and J. Kirschner, ACS Nano 5 (2011) 8162.
- [34] S.K. Hämäläinen, Z. Sun, M.P. Boneschanscher, A. Uppstu, M. Ijäs, A. Harju, D. Vanmaekelbergh, and P. Liljeroth, Phys. Rev. Lett. 107(2011) 236803.
- [35] T. Holstein, Ann. Phys. (N.Y.) 8 (1959) 325.
- [36] E. Manousakis, Phys. Rev. B 44 (1991) 10991.
- [37] L.A. Turkevich and T.D. Holstein, Phys. Rev. B 35 (1987) 7474.
- [38] E. Hairer, S.P. Nørsett, and G. Wanner (2010) Solving Ordinary Dierential Equations I: Nonstiff Problems (Springer Series in Computational Mathematics) (Berlin: Springr); W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky and W.T. Wetterling (2007) Numerical Recipes: The Art of Scientific Computing 3rd edn (New York: Cambridge University Press)