

Universidade Federal de Uberlândia

Halyne Silva Borges

**Dinâmica coerente de estados quânticos em nanoestruturas
semicondutoras acopladas**

Uberlândia

2014

Halyne Silva Borges

**Dinâmica coerente de estados quânticos em nanoestruturas
semicondutoras acopladas**

Tese apresentada ao Programa de Pós-graduação em Física da Universidade Federal de Uberlândia, como requisito parcial para obtenção do título de doutor em Física.

Orientador:
PROF. DR. AUGUSTO M. ALCALDE MILLA

Uberlândia
2014

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)
Sistema de Bibliotecas da UFU, MG, Brasil.

B732d
2014

Borges, Halyne Silva, 1986-

Dinâmica coerente de estados quânticos em nanoestruturas
semicondutoras acopladas / Halyne Silva Borges. - 2014.

153 f. : il.

Orientador: Augusto M. Alcalde Milla.

Tese (doutorado) - Universidade Federal de Uberlândia, Programa
de Pós-Graduação em Física.

Inclui bibliografia.

1. Física - Teses. 2. Pontos quânticos - Teses. 3. Semicondutores -
Propriedades óticas - Teses. 4. Tunelamento (Física) - Teses. I. Milla,
Augusto M. Alcalde. II. Universidade Federal de Uberlândia, Programa
de Pós-Graduação em Física. III. Título.

CDU: 53



**SERVIÇO PÚBLICO FEDERAL
MINISTÉRIO DA EDUCAÇÃO
UNIVERSIDADE FEDERAL DE UBERLÂNDIA
INSTITUTO DE FÍSICA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA**



HALYNE SILVA BORGES

Tese apresentada a coordenação do Programa de Pós-graduação em física, do Instituto de Física da Universidade Federal de Uberlândia, para obtenção do título de Doutor em Física.

Uberlândia, 05 de agosto de 2014.

BANCA EXAMINADORA

Prof. Dr. Augusto Miguel Alcalde Milla
Universidade Federal de Uberlândia – UFU

Prof. Dr. Fabrício Macedo Souza
Universidade Federal de Uberlândia - UFU

Profa. Dra. Viviane Pilla
Universidade Federal de Uberlândia – UFU

Prof. Dr. Celso Jorge Villas-Bôas
Universidade Federal de São Carlos - UFSCar

Prof. Dr. José Antônio Roversi
Universidade Estadual de Campinas – UNICAMP

A Marcus Vinícius e aos meus pais.

Agradecimentos

Agradeço primeiramente a Deus e à minha família por sempre estarem ao meu lado e me apoiarem ao longo destes anos.

Aos meus pais pelo exemplo e incentivo, fundamentais para minha formação pessoal e profissional.

Ao Marcus Vinícius pelo carinho, companheirismo e paciência.

Ao Prof. Dr. Augusto Miguel Alcalde Milla pela competência e excelente orientação.

Ao Prof. Dr. Sergio Ulloa por sua coorientação e colaboração durante o desenvolvimento deste trabalho.

Ao Grupo de Óptica e Informação Quântica e todos aos meus amigos, professores e funcionários do Instituto de Física, que direta ou indiretamente contribuíram para o desenvolvimento desse trabalho. Agradeço também pela ótima convivência ao longo destes anos.

Finalmente, agradeço ao Instituto de Física da Universidade Federal de Uberlândia e à Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior, CAPES, pelo apoio financeiro.

Resumo

Neste trabalho investigamos teoricamente a dinâmica dissipativa de estados de excitons em um sistema formado por pontos quânticos duplos, que por sua vez apresentam uma grande flexibilidade e capacidade experimental em alterar seu espectro de energia juntamente com sua forma estrutural por meio de campos elétricos externos. Deste modo, o controle óptico coerente de portadores de carga nessas nanoestruturas permite a investigação de diversos processos de interferência quântica, tais como transparência induzida por tunelamento. Investigamos a resposta óptica da molécula quântica considerando diferentes regimes ópticos e valores de campo elétrico, nos quais o tunelamento entre os pontos pode estabelecer eficientemente caminhos de interferência quântica destrutiva provocando mudanças significativas no espectro óptico. Usando parâmetros experimentais realísticos mostramos que os estados excitônicos acoplados por tunelamento exibem uma resposta óptica controlável e bastante enriquecida. Neste mesmo sistema, investigamos o emaranhamento entre elétron e buraco, e demonstramos que através do controle de parâmetros tais como, a barreira de potencial aplicada, a frequência e intensidade do laser incidente, o sistema evolui para um estado assintótico com um alto grau de emaranhamento, que se apresenta robusto a processos de decoerência.

Palavras-chave: pontos quânticos semicondutores, tunelamento, excitons, transparência induzida, controle coerente, emaranhamento.

Abstract

In this work we investigate theoretically the dissipative dynamics of exciton states in a system constituted by coupled quantum dots, which in turn exhibit a great flexibility and experimental ability to change their energy spectrum and structural geometry through of external electric fields. In this way, the optical coherent control of charge carriers enables the investigation of several quantum interference process, such as tunneling induced transparency. We investigate the optical response of the quantum dot molecule considering different optical regimes and electric field values, where the tunneling between the dots can establish efficiently quantum destructive interference paths causing significant changes on the optical spectrum. Using realistic experimental parameters we show that the excitons states coupled by tunneling exhibit a controllable and enriched optical response. In this system, we also investigate the entanglement degree between the electron and hole, and we demonstrate through of the control of parameters such as, the applied gate voltage, the incident laser frequency and intensity, the system goes to an asymptotic state with a high entanglement degree, which is robust to decoherence process.

Keywords: semiconductors quantum dots, tunneling, excitons, induced transparency, coherent control, entanglement.

Sumário

1	Introdução	p. 1
2	Nanoestruturas Semicondutoras	p. 7
2.1	Heteroestruturas e efeitos do confinamento quântico	p. 7
2.2	Pontos Quânticos	p. 9
2.2.1	Pontos-quânticos auto-organizados	p. 10
2.2.2	Regras de seleção óptica	p. 12
2.2.3	Interação de troca	p. 15
2.2.4	Pontos quânticos acoplados	p. 19
2.2.5	Moléculas artificiais sob incidência de campo elétrico	p. 21
2.2.6	Transferência de energia por ressonância de Föster - FRET . . .	p. 26
2.2.7	Regime de fotocorrente	p. 27
3	Conceitos Teóricos Fundamentais	p. 31
3.1	Operador Matriz Densidade	p. 31
3.1.1	Traço parcial	p. 34
3.1.2	Transposição parcial	p. 35
3.1.3	Decomposição de Schmidt	p. 35
4	Hamiltoniano para transições ópticas em pontos quânticos	p. 37
4.1	Hamiltoniano de interação	p. 37
5	Processos de Decoerência e Equação mestra	p. 41

5.1	Decoerência	p. 41
5.2	Equação mestra	p. 42
5.3	Equação mestra na Forma de Lindblad	p. 45
6	Propriedades ópticas e processos de interferência quântica	p. 47
6.1	Função de susceptibilidade óptica linear	p. 47
6.2	Fenômenos ópticos: interferência quântica	p. 52
7	Emaranhamento quântico	p. 57
7.1	Estados emaranhados	p. 57
7.2	Medidas de Emaranhamento	p. 59
8	Resultados: Fenômenos de interferência quântica em pontos quânticos acoplados	p. 66
8.1	Sistema Físico e modelo	p. 66
8.2	Propriedade ópticas	p. 73
8.3	Conclusões	p. 85
9	Interação de troca e transparência óptica induzida por tunelamento em pontos quânticos acoplados	p. 87
9.1	Sistema Físico e Modelo	p. 87
9.2	Interação de troca e simetria dos estados excitônicos	p. 92
9.3	Interação de troca e transparência induzida por tunelamento	p. 96
9.4	Conclusões	p. 106
10	Emaranhamento em pontos quânticos acoplados	p. 107
10.1	Sistema e Modelo Físico	p. 107
10.2	Emaranhamento excitônico	p. 110
10.2.1	Sistema Fechado	p. 110
10.2.2	Sistema Aberto	p. 117

10.3 Conclusões	p. 125
11 Conclusões gerais e perspectivas futuras	p. 126
Apêndice A – Hamiltoniano efetivo	p. 128
Referências	p. 131

Lista de Figuras

- 15 Diagrama de níveis dos estados excitônicos incluindo acoplamentos ópticos, sendo Ω_p e Ω_c as frequências de Rabi do laser de prova e de controle respectivamente, e a taxa de tunelamento do elétron entre os pontos (T_e). p. 68
- 16 Espectro excitônico como função do campo elétrico F . As linhas verticais pontilhadas identificam os valores de campos F_- e F_+ onde os estados diretos e indiretos de anticruzam. Nos gráficos (b) e (c) são evidenciados os anticruzamentos nas regiões de campos $F_- = -17.94$ kV/cm e $F_+ = 22.7$ kV/cm, respectivamente. Consideramos $\Omega_c = 5\Gamma_4$ e $T_e/\Gamma_4 = 2$. . . p. 71
- 17 (a) Espectro excitônico como função do campo elétrico em uma região ao redor do valor $F_+ = 22.7$ kV/cm (linha vertical pontilhada) para $T_e/\Gamma_4 = 2$ e $\Omega_c = 5\Gamma_4$. (b) Representação esquemática dos autoestados do sistema para $F = F_+$, as setas verticais representam as transições óptica permitidas. p. 72
- 18 Parte imaginária da susceptibilidade linear do laser de prova como função da sua dessintonia δ_p , para $\Omega_c = 0$, $T_e = 1/2\Gamma_4$ (curva preta) e $\Omega_c = 5\Gamma_4$, $T_e = 2\Gamma_4$ (curva vermelha). Em ambos os casos foram considerados $\delta_c = 0$ e $F = 22.7$ kV/cm. p. 76
- 19 Partes real e imaginária (a),(b) da função χ como função da dessintonia δ_p e do campo elétrico F para $\Omega_c = 5\Gamma_4$, $\delta_c = 0$ e $T_e/\Gamma_4 = 1/2$. Espectro de absorção (c) e dispersão (d), como função de δ_p , considerando o valor fixo de $F_+ = 22.7$ kV/cm para ambos os casos: $T_e = 0$ (curva preta) e $T_e/\Gamma_4 = 1/2$ (curva vermelha). p. 77
- 20 (a) Parte imaginária de χ como função da dessintonia do laser de prova δ_p e da razão T_e/Γ_4 , para $\Omega_c/\Gamma_4 = 5$. Em (b), (c) e (d) é mostrado o espectro de absorção como função de δ_p em três diferentes regimes de tunelamento (linhas brancas pontilhadas). p. 78
- 21 Absorção total (linha preta) e parte imaginária de R_i (linhas sólidas e pontilhadas de cores verdes e vermelhas) como função da dessintonia do laser de prova δ_p para diferentes valores de T_e/Γ_4 . (a) $T_e/\Gamma_4 = 1/5$, (b) $T_e/\Gamma_4 = 1/3$, (c) $T_e/\Gamma_4 = 2$ e (d) $T_e/\Gamma_4 = 5$. Em todos os casos foi considerado a condição $\Omega_c/\Gamma_4 = 5$ p. 81

- 22 (a) Índice de refração $n(\omega_p)$ e, (b) sua disperção $dn/d\omega_p$ como função da dessintonia do laser de prova δ_p , considerando $T_e = 0$ (linha preta pontilhada) e $T_e/\Gamma_4 = 1/2$ (linha vermelha sólida). A relação $\Omega_c = 5\Gamma_4$ foi considerado. p. 83
- 23 (a) Razão c/v_{gr} como função do campo elétrico F na região próxima a F_+ e δ_p . (b) dipersão de $n(\omega_p)$ como função da dessintonia do laser de prova para, (a) $F = F_+ = 22.7$ kV/cm e (b) $F = 22.75$ kV/cm. Em todos os casos foi considerado $T_e/\Gamma_4 = 1/2$ e $\Omega_c = 5\Gamma_4$ p. 84
- 24 (a) Razão c/v_{gr} como função de T_e/Γ_4 . (b) Razão c/v_{gr} versus T_e/Γ_4 , para $\delta_p = -0.05$ meV (curva preta) e $\delta_p = -0.05$ meV (curva vermelha). Em todos os casos foi considerado $F = F_+ = 22.7$ kV/cm e $\Omega_c = 5\Gamma_4$. . . p. 85
- 25 Representação esquemática dos níveis excitônicos incluindo os relevantes acoplamentos dados no hamiltoniano 9.1, onde \uparrow e \downarrow representam os estados de spin do buraco e, \uparrow e \downarrow os estados de spin do elétron. p. 89
- 26 Campo eletromagnético decomposto em duas componentes ortogonais entre si escritas como função do ângulo ϕ , onde $\phi = 0$ corresponde ao laser com polarização circular à direita (σ_+) e, $\phi = \pi/2$ com polarização circular à esquerda (σ_-). p. 91
- 27 (a) Espectro excitônico como função do campo elétrico F . Áreas delimitadas pelos retângulos pontilhados mostram os relevantes anticruzamentos entre estados de excitons diretos e indiretos. (b) e (c) são ampliações das regiões em destaque na Fig. 27 que evidenciam os anticruzamentos entre estados de excitons diretos $|d_B^S\rangle$ e $|d_B^A\rangle$ com estados de excitons indiretos de mesma simetria sob paridade, combinações simétricas (S) e antissimétricas (A), respectivamente. As linhas verticais pontilhadas indicam os valores de campo elétrico F específicos nos quais os estados excitons diretos e indiretos são ressonantes. p. 93

- 28 Parte imaginária dos elementos de matriz densidade que contribuem para a absorção total $\chi(\omega_p)$, sob a incidência de luz polarizada circularmente à direita ($\phi = 0$). Nos painéis (a) e (d) são mostradas as contribuições éxcitons diretos $\rho_{0d\pm 1}$; em (b) e (e) mostram as contribuições dos éxcitons indiretos $\rho_{0i\pm 1}$. (c) e (f) mostram a parte imaginária total da susceptibilidade óptica $\text{Im}\chi$, que descreve a absorção do sistema. Os painéis da esquerda foram calculados para o valor de campo $F = F_B^S$, enquanto os painéis da direita para $F = F_D^S$. As regiões denotadas por A e A' indicam as janelas de transparência induzidas pelo tunelamento T_h e T_h^f , respectivamente. p. 98
- 29 Parte imaginária dos elementos de matriz densidade que contribuem para a absorção total $\chi(\omega_p)$, sob a incidência de luz polarizada circularmente à direita ($\phi = 0$), para um valor de campo de $F = F_B^A$. Nos painéis (a) e (b) são mostradas as contribuições éxcitons diretos $\rho_{0d\pm 1}$ e indiretos $\rho_{0i\pm 1}$ e; em (c) mostra a parte imaginária total da susceptibilidade óptica $\text{Im}\chi$, que descreve a absorção do sistema. p. 103
- 30 Parte imaginária dos elementos de matriz densidade que contribuem para a susceptibilidade total $\chi(\omega_p)$ como função de δ_d para diferentes condições de polarização do laser de prova. Os painéis da esquerda são para $\phi = \pi/4$ (polarização linear) e os painéis da direita são para $\phi = \pi/6$ (polarização elíptica). Em todos as situações foi considerado $F = F_B^S$ p. 104
- 31 A parte imaginária da função de susceptibilidade $\chi(\omega_p)$, como função da dessintonia δ_d , considerando valores de campo espaçados por uma quantidade de 4.375 V/cm. p. 105
- 32 Representação esquemática dos estados do elétron e buraco nas bandas de condução e valência respectivamente, baseados na base de número de ocupação, onde $|0\rangle$ está associado a ausência e $|1\rangle$ a presença do portador em cada ponto quântico. p. 108
- 33 Diagrama de níveis dos seis estados excitônicos e seus acoplamentos. Os parâmetros Ω , V_F , $T_{e(h)}$ representam a frequência de Rabi do laser incidente, o acoplamento de Förster e as taxas de tunelamento dos portadores entre os pontos, respectivamente. p. 109

- 34 (a) Espectro de energia dos níveis excitônicos e (b) entropia de von Neumann como função do campo elétrico aplicado, considerando $\Omega = 4$ meV e $\hbar\omega_L = E_{10}^{01} = 1315.4$ meV. Em ambos gráficos foi considerado $V_F = 0.08$ meV, $T_e = 20T_h = 2$ meV, $V_{XX} = -5$ meV, $d = 8.4$ nm. p. 112
- 35 Espectro de energia como função do campo elétrico aplicado, evidenciando os anticruzamentos na região de F_I . Foram considerados os mesmos parâmetros da Fig. 34. p. 113
- 36 Probabilidade de ocupação dos seis níveis excitônicos como função do tempo, considerando diferentes estados iniciais $|\psi(t = 0)\rangle$. Em (a) $|\psi(t = 0)\rangle = |X_{00}^{00}\rangle$ e (c) $|\psi(t = 0)\rangle = |\phi^+\rangle$. Nos gráficos (b) e (d) foram ilustradas $C(\rho_{eh})$ (linha vermelha) e $\mathcal{N}(\rho_{eh})$ (linha preta) como função do tempo considerando respectivamente os estados iniciais das Figs. 36(a) e (c). Em todos estes resultados consideramos o valor de campo $F = F_I$ e o laser ressonante com o estado $|X_{01}^{10}\rangle$. Em relação aos parâmetros do hamiltoniano foram usados $\Omega = 10$ meV, $T_e = 20T_h = 0.02$ meV, $V_F = 0.08$ meV. p. 116
- 37 População dos estados de éxitons como função do tempo, considerando (a) $\Omega = 4$ meV e (b) $\Omega = 10$ meV. Ambos os gráficos foram calculados para $F = F_I$ e $\Gamma_D = 10^3\Gamma_I = 10 \mu\text{eV}$. Os outros parâmetros do hamiltoniano foram os mesmos usados na Fig. 34. p. 118
- 38 Probabilidade de ocupação no regime estacionário como função do campo elétrico, considerando o mesmo regime de parâmetros do hamiltoniano usados na Fig. 34 e $\Gamma_D = 10^3\Gamma_I = 10 \mu\text{eV}$ p. 119
- 39 Fidelidade do sistema no regime estacionário em relação a cada um dos seis autoestado como função do campo elétrico, considerando o mesmo regime de parâmetros do hamiltoniano usados na Fig. 34 e $\Gamma_D = 10^3\Gamma_I = 10 \mu\text{eV}$ p. 120
- 40 Negatividade como função do campo elétrico no regime estacionário, considerando: (a) $\Omega = 2$ meV, (b) $\Omega = 4$ meV e (c) $\Omega = 10$ meV. Foram usados os mesmo parâmetros da Fig. 34. p. 122
- 41 Negatividade como função da frequência de Rabi Ω no regime estacionário, para $F = F_I$. Nesta figura consideramos os mesmos parâmetros da Fig. 34. p. 123

1 *Introdução*

Devido ao avanço tecnológico de técnicas de fabricação e crescimento de nanoestruturas de estado sólido, tem se tornado crescente a investigação de novas propriedades eletrônicas e processos de natureza quântica em sistemas semicondutores de baixa dimensionalidade. Juntamente com o rápido progresso no campo da nanotecnologia, a área de informação quântica tem despertado na última década um significativo interesse de diversas áreas da física, afim de encontrar um sistema físico escalável para a implementação do computador quântico. A principal razão deste interesse surge das várias demonstrações teóricas que evidenciam a performance superior de um computador quântico em relação a um computador clássico, na realização de tarefas em um tempo muito mais rápido (CLEVE et al., 1998; BENNETT; DIVINCENZO, 2000). Dentre estas tarefas temos como exemplo, o problema de busca em banco de dados e a determinação de fatores primos de grandes números, que podem ser resolvidos por meio do algoritmo quântico de Grover e do algoritmo de Shor, respectivamente (GROVER, 1998; SHOR, 1999).

De maneira geral, um sistema físico deve satisfazer alguns critérios fundamentais, propostos primeiramente por David P. DiVincenzo, para sua implementação como dispositivos de processamento quântico de informação (DIVINCENZO, 2000). A identificação de um conjunto de qubits¹ escaláveis e bem caracterizados, assim como a habilidade de inicializar e manipular de forma controlada estes qubits, estão entre as condições essenciais para a realização de computação quântica universal. Um conjunto de operações universal para computação quântica pode ser construído a partir de rotações controladas sobre um qubit individual e operações condicionais entre pares de qubits. Portas lógicas quânticas são essencialmente sequências de operações lógicas descritas por operações unitárias, que

¹ A unidade básica de processamento na computação quântica é o bit quântico (qubit), que é um estado quântico escrito em termos de dois estados arbitrariamente ortogonais usualmente denotados por $|0\rangle$ e $|1\rangle$. Como consequência do princípio de superposição da mecânica quântica, um qubit pode ser descrito como a $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$, possibilitando assim cálculos simultâneos do resultado de uma função para ambos valores lógicos. Em princípio, um qubit pode ser modelado por qualquer sistema quântico de dois níveis. Por exemplo, $|\psi\rangle$ pode ser representado pela superposição dos spins de um elétron (BEREZOVSKY et al., 2008) ou por dois estados de polarizações diferentes de um fóton (TOGAN et al., 2010).

devem ser implementadas em um tempo consideravelmente menor do que o tempo que o sistema leva para perder sua coerência. Além disso, medidas específicas sobre os qubits se tornam necessárias para a leitura do resultado após as realizações das operações quânticas. Na literatura, há diversos sistemas que exibem características apropriadas para a implementação física de qubits. Dentre estes sistemas, podemos destacar íons aprisionados em armadilhas elétricas, circuitos supercondutores, átomos em microcavidades, ressonância magnética de sistemas moleculares e portadores de cargas em nanoestruturas semicondutoras (LADD et al., 2010).

Neste contexto, pontos quânticos semicondutores têm se destacado por suas propriedades optoeletrônicas como um interessante candidato, já que eles representam sistemas nanoscópicos que estão localizados na interface entre física do estado sólido e óptica em sistema atômicos (LOSS; DIVINCENZO, 1998; HENNESSY et al., 2007). Pontos quânticos são nanocristais semicondutores opticamente ativos que confinam o movimento de portadores de cargas nas três direções. Elétrons e buracos (ausência de elétron na banda de valência) confinados em pontos quânticos ocupam um conjunto de estados de energia discretos, equivalentes aos estados atômicos. Desta forma, sistemas constituídos por pontos quânticos oferecem a possibilidade de manipular coerentemente estados quânticos de uma maneira similar àquelas realizadas em átomos, mas com as vantagens tecnológicas de um sistema de estado sólido. Um dos aspectos mais relevantes dos pontos quânticos é a capacidade de manipular sua estrutura eletrônica, não apenas através da modificação estrutural, que pode ser facilmente realizada com as tecnologias atuais, mas também por intermédio de campos elétricos externos (BRACKER et al., 2006).

Os estados de spin de portadores de carga e transições ópticas em pontos quânticos constituem sistemas quânticos de dois níveis que têm sido promissoramente propostos como qubits escaláveis (GREILICH et al., 2009; ROLON; ULLOA, 2010). Por meio da incidência de campos eletromagnéticos com apropriada polarização, estados de éxcitons (par elétron-buraco), biéxcitons (dois estados de éxcitons) e trions (éxcitons carregados) podem ser criados com determinada configuração de spins. Diversos trabalhos têm demonstrado o completo controle dinâmico de um spin eletrônico, através de pulsos de laser em uma escala de picosegundos (PRESS et al., 2008; BRACKER; GAMMON; KORENEV, 2008). O tempo de coerência de spins em pontos quânticos é da ordem de microsegundos. Deste modo, usando pulsos ópticos ultra-rápidos, um grande número de rotações do spin eletrônico sobre eixos arbitrários pode ser executado enquanto a coerência do qubit é mantida. A manipulação óptica coerente também tem sido usada para implementação de portas lógicas de dois qubits observada sob a forma de oscilações de Rabi, entre estados de éx-

citons e biéxcitons em um único ponto (TROIANI; HOHENESTER; MOLINARI, 2000; LI et al., 2003).

Fatores como a escalabilidade e dinâmica quântica condicional, onde o estado quântico de um sistema controla o resultado da medida de um outro sistema quântico, são ingredientes importantes para a implementação de operações lógicas controladas entre pares de qubits (ROBLEDO et al., 2008; GREILICH et al., 2011). Neste contexto, pontos quânticos acoplados mediados pelo tunelamento coerente de elétrons e buracos são sistemas que produzem novos mecanismos de interação que fornecem, por sua vez, diferentes maneiras para manipular estados quânticos (KODRIANO et al., 2014). A interação entre dois qubits por exemplo, possibilita a criação de correlações quânticas como o emaranhamento, que é de fundamental importância na implementação de diversos protocolos quânticos. A possibilidade de controlar opticamente um estado emaranhado de dois spins eletrônicos e a implementação de portas de dois qubits, que interagem através do tunelamento de cargas entre pontos quânticos duplos, fazem com que estes sistemas sejam intensamente investigados por diversos grupos teóricos e experimentais (KIM SAMUEL G. CARTER; GAMMON, 2010; ECONOMOU et al., 2012; MULLER et al., 2013b).

O controle óptico coerente de estados quânticos em pontos quânticos duplos, acoplados pelo tunelamento dos portadores confinados, é o principal assunto de interesse ao longo desta tese. Neste tipo de sistema é possível criar diversas configurações de níveis excitônicos, que podem ser controlados através de uma barreira de potencial aplicada externamente à nanoestrutura. Desta forma, diversos assuntos como proteção de estados por tempos apreciáveis, correlações quânticas tais como emaranhamento e processos de interferência quântica, são bastante interessantes no contexto de aplicabilidade destes sistemas em computação quântica e no seu uso como um ambiente controlável para a investigação experimental de processos quânticos (XU et al., 2009; BORGES et al., 2010; VALLE, 2011). Neste trabalho estamos particularmente interessados na manipulação óptica de estados excitônicos, sob a influência de processos de *dephasing* puro e decaimento radioativo do par elétron-buraco, como processos de decoerência. Utilizamos o formalismo de equação mestra escrita na forma de Lindblad, para calcular a dinâmica dissipativa do sistema e a resposta óptica do mesmo, devido à incidência de campos eletromagnéticos.

Devido à grande flexibilidade apresentada por sistemas formados por pontos quânticos duplos, consideramos diferentes regimes ópticos e de tunelamento para investigar a resposta óptica do sistema. Considerando intencionalmente uma assimetria estrutural na amostra, como por exemplo a altura de um ponto em relação ao outro, o tipo de portador

que tunela (elétron ou buraco) pode ser apropriadamente selecionado através de um campo elétrico externo de controle. As propriedades ópticas de um ponto quântico, tais como a absorção e dispersão, sob a ação de radiação laser incidente, podem ser significativamente alteradas quando diferentes caminhos de excitações ópticas interferem destrutivamente. Sob condições apropriadas, mostramos que o tunelamento entre os pontos pode estabelecer um eficiente caminho de interferência quântica destrutiva que pode criar regiões de cancelamento ou redução da absorção no espectro. Nossos resultados, permitem identificar configurações de parâmetros físicos, factíveis experimentalmente para amostras de pontos quânticos constituídas por materiais semicondutores do tipo III-V (STINAFF et al., 2006; BRACKER et al., 2006) nas quais é possível observar vários processos ópticos, como transparência induzida por tunelamento, dubletos de Autler-Townes e tripletos de Mollow. Considerando a incidência de dois lasers de diferentes intensidades, e assumindo uma assimetria estrutural e valores de campos propícios para o favorecimento do tunelamento do elétron, mostramos um enriquecido espectro óptico do ponto quântico duplo, calculado através da função de susceptibilidade óptica linear. Neste caso, o sistema pode ser modelado através de um sistema quântico de cinco níveis, onde assumindo diferentes regimes ópticos e de tunelamento é possível estabelecer limites e condições que devem ser obedecidas para a observação dos distintos regimes observados no espectro de absorção. É importante mencionar ainda, que assim como o efeito de transparência eletromagneticamente induzida, no qual a supressão da absorção do laser incidente é causado pela presença de um outro laser com maior intensidade, a região de transparência induzida por tunelamento, reportado aqui nesta tese, também está associada com o efeito de luz lenta. Nós investigamos também as propriedades relacionadas à dispersão do sistema, e mostramos que na região de transparência o índice de refração experimenta uma mudança abrupta, acarretando na propagação de pulsos com velocidade de grupo reduzida e consequentemente a possibilidade de usar este sistema como memórias quânticas.

Em relação ao assunto de transparência induzida por tunelamento, investigamos também a resposta óptica do sistema considerando a incidência de luz polarizada. Neste caso, consideramos uma amostra na qual o tunelamento do buraco é privilegiado e estudamos o efeito da interação de troca entre elétron-buraco sobre as propriedades ópticas, que é intrínseca ao sistema. Fundamentalmente, a interação de troca remove os diversos níveis de degenerescência entre estados excitônicos brilhantes, que são criados a partir do acoplamento óptico, e excitons escuros. Em nosso modelo, assumimos que os estados de excitons escuros são criados devido ao processo de tunelamento do buraco, que pode tunelar invertendo seu spin. Considerando uma estrutura de níveis mais complexa, modelada

com um sistema de nove níveis, mostramos a aparição de novos canais de interferência quântica que geram uma rica e controlável estrutura óptica formada por diversas regiões de transparência induzida por tunelamento.

Neste trabalho investigamos também o emaranhamento quântico entre os pares elétron-buraco, considerando as diferentes configurações de estados de éxitons criados no ponto quântico duplo. Sob a incidência de um laser contínuo, consideramos uma amostra de pontos quânticos com tamanhos similares, onde um único laser pode promover excitações ópticas em ambos os pontos. Através da manipulação do campo elétrico aplicado na direção de crescimento da nanoestrutura, o tunelamento ressonante do elétron ou do buraco é garantido para determinadas regiões de campo, resultando na formação de estados de éxitons de caráter indireto, onde os portadores estão espacialmente separados. Diversas regiões de anticruzamentos entre os estados excitônicos podem ser identificadas no espectro de autovalores como função do campo elétrico, que são por sua vez uma assinatura do processo de tunelamento coerente entre os pontos. Afim de calcular e quantificar o emaranhamento excitônico considerando o sistema puro e sob a influência de processos de decoerência, calculamos a entropia de von-Neumann e a negatividade como medidas de emaranhamento, respectivamente. Neste contexto, analisamos a relação entre as regiões de anticruzamento no espectro excitônico como função do campo com o grau de emaranhamento, e mostramos a possibilidade de obter um estado assimptótico com um alto grau de emaranhamento. Nossos resultados mostram que através do controle apropriado de parâmetros físicos como a intensidade do laser, o campo elétrico externo e a largura da barreira entre os pontos, é possível controlar e optimizar o grau de emaranhamento, que está associado à criação de um estado assimptótico escrito como uma superposição dos estados de éxitons indiretos, que apresentam por sua vez um longo tempo de vida.

Esta tese está estruturada da seguinte forma: no capítulo 2 abordamos os principais conceitos relacionados com a física de semicondutores necessários para a descrição do sistema físico, no capítulo 3, apresentamos os fundamentos teóricos fundamentais e as principais propriedades do formalismo de matriz densidade usado para nossos cálculos. Nos capítulos 4 e 5 apresentamos uma breve discussão da descrição semiclássica do hamiltoniano de interação e do formalismo de equação mestra na forma de Lindblad respectivamente, utilizados para a investigação da dinâmica dissipativa do sistema físico sob a incidência de radiação coerente. No capítulo 6 abordamos os principais conceitos teóricos relacionados com fenômenos ópticos baseados em processos de interferência e apresentamos no capítulo 7 uma breve discussão sobre emaranhamento e suas principais medidas presentes na literatura. Nossos resultados serão apresentados nos capítulos 8, 9 e 10. Os

resultados obtidos nesta tese podem ser divididos em duas partes: i) nos capítulos 8 e 9 investigamos as propriedades ópticas do sistema formado por pontos quânticos duplos e exploramos diversos regimes ópticos associados com processos de interferência quântica estabelecidos pelo tunelamento coerente entre os pontos, ii) no capítulo 10 demonstramos teoricamente a relação existente entre o grau de emaranhamento excitônico com a criação de estados protegidos no regime estacionário do sistema. Além disso, em ambos aspectos nós estabelecemos condições físicas baseadas em parâmetros físicos realísticos, nos quais o grau de emaranhamento excitônico pode ser optimizado e o espectro de absorção óptica pode ser controlado, exibindo diferentes regimes ópticos.

2 *Nanoestruturas Semicondutoras*

Neste capítulo iremos apresentar os principais conceitos e características de nanoestruturas semicondutoras. Focaremos nosso estudo em sistemas formados por pontos quânticos acoplados, compostos por ligas binárias de elementos III-V da tabela periódica. Tais heteroestruturas apresentam um alinhamento de banda favorável para a investigação de processos ópticos. Deste modo, investigaremos a dinâmica das excitações ópticas e em particular estudaremos o efeito do tunelamento sobre a resposta óptica do sistema. Além disso, estabeleceremos as regras de seleção para as transições ópticas permitidas e discutiremos os efeitos de anisotropia através da interação de troca e seu impacto no estudo das propriedades ópticas na presença de luz polarizada.

2.1 Heteroestruturas e efeitos do confinamento quântico

Em um material semicondutor a população eletrônica é agrupada em bandas de energia separadas por regiões proibidas, as quais correspondem a intervalos de energia não permitidos para o elétron. Esta lacuna de energia é conhecida como *gap* de energia (KIT-TEL, 2005) e define a energia mínima necessária para que elétrons efetuem transições da banda de valência à banda de condução.

Os materiais semicondutores são compostos por elementos da coluna IV, como o silício, e por compostos formados por elementos das colunas III-V e II-IV da tabela periódica. Dentre esses materiais as ligas binárias apresentam maior eficiência óptica, possibilitando assim, um maior controle de propriedades como a energia do *gap*.

O máximo da banda de valência e o mínimo da banda de condução podem ser ou não coincidentes no espaço \vec{k} . Quando o ponto mais alto da banda de valência e o ponto mais baixo da banda de condução ocorrerem para o mesmo valor de \vec{k} , teremos um semicondutor de *gap* direto. Se ao invés disso, esses pontos estiverem separados por um vetor de onda

\vec{k} , teremos um semicondutor de *gap* indireto. Ao incidir um fóton em um semicondutor de *gap* direto, cuja energia mínima ($\hbar\omega$) é igual a energia do *gap* (E_g), o fóton absorvido irá criar um elétron na banda de condução e um buraco na banda de valência. Já em uma transição óptica indireta, a absorção do fóton provocará a formação de um elétron, um buraco e um fônon. O valor da energia do fóton que corresponde ao início da transição óptica indireta é igual à soma da energia do *gap* com a energia do fônon emitido ($\hbar\Omega$), ou seja, $\hbar\omega = E_g + \hbar\Omega$. Neste trabalho, consideraremos nanoestruturas formadas de apenas semicondutores de *gap* direto.

O desenvolvimento do controle de técnicas de crescimento epitaxial de semicondutores possibilitou a construção de sistemas denominados heteroestruturas nas quais as propriedades eletrônicas são modificadas principalmente devido à redução da dimensionalidade (SINGH, 1993). Essas heteroestruturas são formadas por dois ou mais materiais semicondutores distintos e podem ser crescidas, na escala nanométrica, com determinadas características ópticas e eletrônicas desejadas. Dependendo da técnica ou processos de crescimento é possível criar nanoestruturas semicondutoras de dimensão reduzida que permite confinar portadores de carga em diferentes dimensões. Dentre elas estão: poços quânticos (*quantum wells*), fios quânticos (*quantum wires*) e pontos quânticos (*quantum dots*). Como exemplo podemos citar os poços quânticos que são estruturas eletrônicas formadas por uma fina camada de um semicondutor colocado entre duas camadas de um outro semicondutor com *gap* maior. Devido à diferença entre as energias do *gap* de cada material, o elétron é confinado na camada com *gap* menor restringindo assim o movimento do elétron em duas dimensões e quantizando fortemente a estrutura eletrônica na direção perpendicular. Estes sistemas bi-dimensionais têm sido produzidos e implementados em numerosos dispositivos opto-eletrônicos. O uso de diversas técnicas de litografia possibilitaram a produção de estruturas onde os elétrons apresentam somente um grau de liberdade e a completa quantização do movimento dos elétrons é implementada através do aprisionamento dos mesmos em nanoestruturas, denominados pontos quânticos. Como resultado deste forte confinamento, os portadores de carga têm seu espectro de energias quantizadas em valores discretos, como em um átomo. Por esta razão, são frequentemente chamados de átomos artificiais. A quantização da energia depende diretamente do potencial de confinamento, o qual pode ser controlado através de campos estáticos externos ou por parâmetros estruturais como forma e topologia do ponto quântico. Esta flexibilidade na manipulação de propriedades eletrônicas fazem com que esses sistemas apresentem diversas características favoráveis à implementação de dispositivos de computação quântica (ECONOMOU et al., 2012).

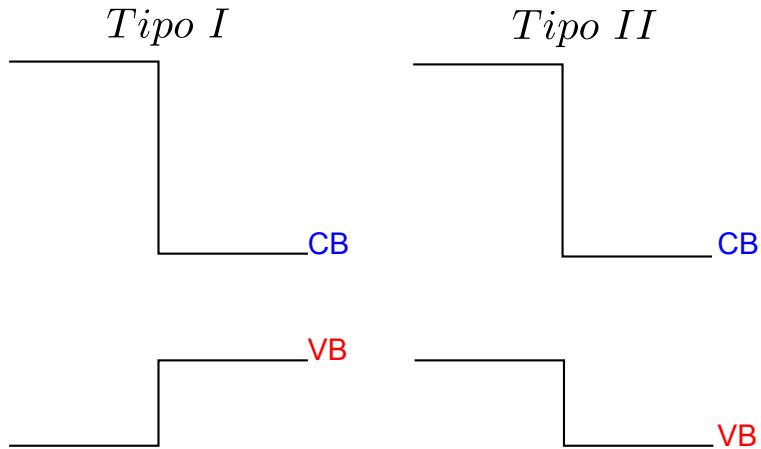


Figura 1: Diferentes tipos de alinhamento de banda em uma heteroestrutura.

Como foi mencionado, uma consequência das heteroestruturas serem formadas por camadas semicondutoras de *gaps* diferentes é a formação de um potencial de confinamento cujos diferentes perfis nos permite classificar dois tipos de alinhamento de bandas na interface dos materiais: tipo I e tipo II (REISS; PROTIERE; LI, 2009). Na Fig. 1 é ilustrado esquematicamente estes dois diferentes tipos de alinhamento. Em heteroestruturas com alinhamento de banda tipo I, tanto o elétron como o buraco em seus estados de mais baixa energia, ficam confinados no mesmo material. Dentre essas estruturas com alinhamento de banda tipo I podemos citar os pontos quânticos InAs/InP e InAs/GaAs. Já em heteroestruturas com alinhamento de banda tipo II, o perfil do potencial sentido pelo elétron e pelo buraco, permite o confinamento de somente um dos dois portadores no material de menor *gap*, o outro portador ficará confinado no material de maior *gap*. Estes portadores ficarão ligados somente pela interação coulombiana existente entre eles. Dentre os exemplos de pontos quânticos que possuem alinhamento de banda tipo II estão: GaSb/GaAs e InP/GaAs. Restringiremos nosso estudo a pontos quânticos com alinhamento de bandas tipo I.

2.2 Pontos Quânticos

Pontos quânticos são nanoestruturas semicondutoras que permitem confinar portadores de cargas nas três direções. Desta forma, elétrons e buracos (ausência de elétron na banda de valência) confinados em pontos quânticos podem ocupar um conjunto de estados de energia discretos, equivalentes aos estados atômicos. Tal propriedade nos permite em princípio, tratar a evolução dinâmica em pontos quânticos com métodos similares

aos utilizados na física atômica. A partir da absorção de um fóton, um elétron pode ser excitado da banda de valência para a banda de condução deixando o buraco na banda de valência. A proximidade espacial entre estes dois portadores de carga resulta na interação coulombiana entre eles, ocasionando a formação de um par elétron-buraco correlacionados chamado de exciton. Definidos como quasi-partículas, estados excitônicos têm um tempo de vida que pode variar de centenas de picosegundos a nanosegundos, dependendo da sobreposição entre as funções de onda do par elétron-buraco (KRENNER et al., 2005b).

Os diferentes tipos de pontos quânticos e suas diferentes propriedades são determinados por seus processos de formação (JACAK; HAWRYLAK; WOJS, 1998). O avanço de diferentes técnicas como, epitaxia por feixe molecular (do inglês, *Molecular Beam Epitaxy* - MBE), confinamento de elétrons utilizando eletrodos litografados, manipulação de flutuações da interface entre materiais e auto-formação de estruturas em sistemas epitaxiais, possibilitou a construção dessas heteroestruturas. Usando técnicas de MBE, as estruturas de pontos quânticos são crescidas pelo método de auto-formação (do inglês, *Self-assembled dots* - SAD), onde a formação ocorre devido à diferença do parâmetro de rede do substrato e do material crescido sobre ele. Um par de compostos extensamente utilizado para a formação de pontos quânticos auto-formados é o InAs e o GaAs, onde o parâmetro de rede do InAs é aproximadamente 7% maior do que o parâmetro de rede do GaAs. Neste trabalho focaremos nosso estudo na dinâmica coerente de pontos quânticos empilhados (do inglês, *stacked quantum dots*) auto-formados obtidos por crescimento epitaxial, que podem ter suas propriedades e características convenientemente investigadas por meio de experimentos de espectroscopia óptica.

2.2.1 Pontos-quânticos auto-organizados

Em pontos quânticos auto-formados constituídos por InAs/GaAs, o composto InAs é depositado sobre uma superfície de GaAs, onde devido ao descasamento dos parâmetros de rede, será criada uma tensão na rede cristalina acumulando energia elástica. Durante esta primeira etapa do processo de formação, uma fina camada epitaxial é formada com o mesmo parâmetro de rede do substrato (essa camada é conhecida como camada molhada, do inglês *wetting layer-WL*). Quando a espessura crítica é excedida, a energia dessa camada relaxa, e então há a criação espontânea de pequenas ilhas distribuídas aleatoriamente sobre a camada de InAs (WL). A camada não-homogênea de InAs é eventualmente coberta com outra camada de GaAs, a fim de isolar os estados eletrônicos do ponto quântico das flutuações da superfície.

O resultado desse processo de crescimento são portadores de carga confinados no material de menor gap (neste caso, o InAs), cujo espaçamento entre os níveis de energia é tipicamente dezenas de meV. Do ponto de vista experimental, estes pontos quânticos apresentam usualmente uma geometria cilíndrica onde as dimensões típicas de pontos quânticos auto-formados de InAs/GaAs, é 4 – 8 nm de altura e 20 – 30 nm na base (MICHLER, 2003). Parâmetros como o tamanho, a altura e a composição podem ser experimentalmente controlados de tal forma que as flutuações associadas ao tamanho dos pontos quânticos podem ser significativamente reduzida (< 10%). É importante ressaltar que a geometria estrutural dos pontos determina o potencial de confinamento e a escala de energia emitida pelos fôtons depois da subsequente recombinação do par elétron-buraco. Pontos quânticos InAs/GaAs apresentam tipicamente energia de emissão em um intervalo de 0.9 – 1.5 eV (KODRIANO et al., 2014).

Como mencionado anteriormente, pontos quânticos auto-formados possuem usualmente a forma de discos, cujas dimensões laterais excedem consideravelmente sua altura, o que faz com que a quantização da energia na direção vertical seja bem maior do que na direção lateral. Devido a essas características dimensionais, o nível de energia de um elétron no estado fundamental na direção z é aproximadamente uma ordem de grandeza maior do que no plano xy . Nós assumiremos aqui que as componentes lateral e vertical do potencial de confinamento estão desacopladas, de tal forma que $V(r) = V(z) + V(x, y)$. Particularmente, para pontos crescidos por SAD, o potencial lateral pode ser aproximado para um potencial parabólico. O potencial lateral, pode ser escrito como $V(x, y) = V(\rho) = 1/2m^*\omega_g^2\rho^2$, onde: $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ e ω_g corresponde à frequência característica associada ao confinamento lateral (RIBEIRO et al., 1997). Ao longo da direção de crescimento o potencial $V(z)$ é modelado em um potencial tipo poço quântico. Na Fig. 2 é mostrado uma representação esquemática dos potenciais de confinamento na direção lateral e vertical.

De forma similar aos estados atômicos, os níveis de energia discretizados em um ponto quântico podem ser referidos com a mesma nomenclatura usada para identificar os diferentes estados atômicos (s , p , d e f) (BRACKER; GAMMON; KORENEV, 2008). Considerações teóricas baseadas em cálculos de estrutura de banda demonstraram que para pontos quânticos InAs/GaAs o nível fundamental da banda de condução apresenta um caráter orbital tipo- s , com momento angular $l = 0$, enquanto o nível de energia associado ao topo da banda de valência é do tipo- p ($l = 1$). É importante ressaltar que para pontos InAs/GaAs, a diferença entre os níveis s e p é usualmente da ordem de 50 meV para elétron, enquanto para buracos é cerca de 10 meV (MICHLER, 2003).

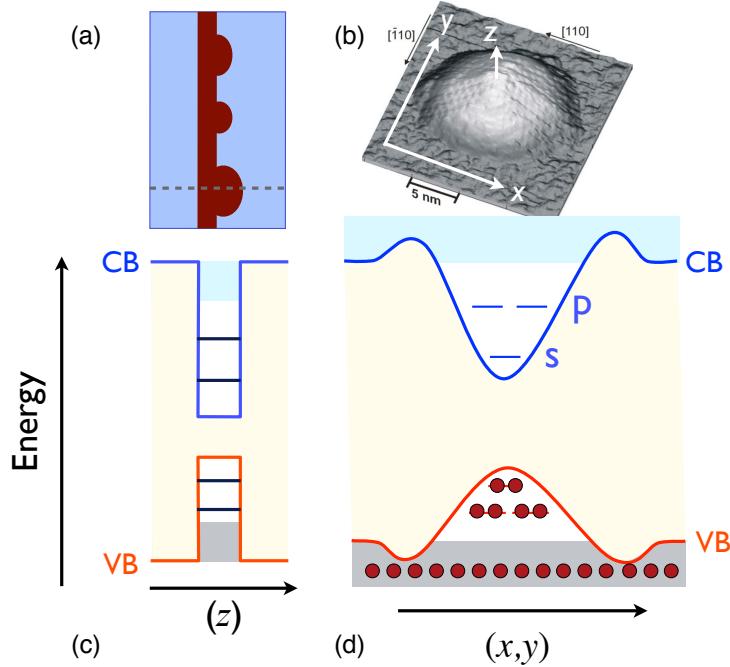


Figura 2: Representação esquemática do potencial de confinamento na direção vertical e lateral em pontos quânticos auto-formados. Esta figura foi cedida pelo Prof. José Maria Villas-Bôas.

2.2.2 Regras de seleção óptica

O momento angular total \vec{j} de uma partícula é constituído por dois números quânticos, $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$, onde \vec{l} é o momento angular orbital e \vec{s} corresponde ao momento angular intrínseco (spin). O valor de j deve obedecer a condição $|l - s| \leq j \leq l + s$. Na banda de condução, onde $l = 0$, $j = s = 1/2$. A banda de valência, em contraste com a banda de condução, apresenta um caráter orbital do tipo- p , onde $l = 1$. Assim, temos que para a banda de valência $j \in \{1/2, 3/2\}$. Considerando as diferentes projeções na direção z do momento angular total, m_l , a banda de valência possui três diferentes sub-bandas: a sub-banda referida de *split-off* (SO), a banda de buraco leve (do inglês *light hole*-lh) e a banda de buraco pesado (do inglês *heavy hole*-hh). Os estados associados a valores diferentes de j e m_l para as bandas de valência e condução são representados por $|j, m_l\rangle$, e são mostrados na tabela 1.

Nas bandas de buracos leve e pesado $j = 3/2$, e seus respectivos estados são: $|3/2, \pm 1/2\rangle$ (lh) e $|3/2, \pm 3/2\rangle$ (hh). Já na banda de condução e na sub-banda *split-off* da banda de valência $j = 1/2$, e seus respectivos estados $|1/2, \pm 1/2\rangle$ são duplamente degenerados. É importante ressaltar que a sub-banda de *split-off*, é separada das bandas de buraco leve e pesado devido a energia de interação spin-órbita. Esta interação surge devido ao aco-

Banda de condução ($l = 0$)	$j = s = \frac{1}{2}$	$ \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2}\rangle$	
Banda de valência ($l = 1$)	$j = \frac{1}{2}$	$ \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2}\rangle$	<i>split-off</i>
	$j = \frac{3}{2}$	$ \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2}\rangle$	<i>light-hole</i>
		$ \frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2}\rangle$	<i>heavy-hole</i>

Tabela 1: Estados da banda de condução e banda de valência, definidos de acordo com seu momento angular j e sua projeção na direção z .

plamento entre o spin do portador e seu momento angular orbital. Em pontos quânticos InAs/GaAs, as sub-bandas lh e hh também são separadas em energia por dezenas de meV, devido à presença da tensão ocasionada durante o processo de crescimento e dos efeitos de confinamento. Tal separação é causada pela energia de confinamento nas sub-bandas hh e lh devido a diferença entre o valor de suas massas efetivas¹. Como resultado desta separação em energia, é frequentemente considerado para aplicações ópticas que o estado fundamental para buracos na banda de valência é fundamentalmente de buraco pesado, ou seja, com projeção do momento angular $m_{hh} = \pm 3/2$. A representação esquemática da estrutura de banda de um semicondutor de gap direto mostrando a banda de condução e diferentes sub-bandas na banda de valência é ilustrado na Fig. 3.

Desta forma, assumindo as condições mencionadas acima tem-se que o spin do elétron na banda de condução tem dois estados, $|1/2, 1/2\rangle$ usualmente representado por $|\uparrow\rangle$ e $|1/2, -1/2\rangle$ representado por $|\downarrow\rangle$. Já os estados de buraco pesado na banda de valência são: $|3/2, 3/2\rangle$ e $|3/2, -3/2\rangle$, representados respectivamente por $|\uparrow\uparrow\rangle$ e $|\downarrow\downarrow\rangle$. Assim, existem quatro configurações possíveis para estados de exciton: $|\uparrow\downarrow\rangle$, $|\downarrow\uparrow\rangle$, $|\downarrow\downarrow\rangle$ e $|\uparrow\uparrow\rangle$. A configuração de spin dos portadores está diretamente relacionada com as regras de seleção óptica.

Considerando um campo eletromagnético com vetor de onda $\vec{k}_f = k_f \hat{z}$, temos que um estado de exciton pode ser criado se a polarização do fóton incidente satisfizer a conservação do momento angular na direção z , ou seja,

$$S_z = m_f = m_e + m_{hh}, \quad (2.1)$$

onde S_z é a projeção do momento angular total do elétron (m_e) e do buraco (m_{hh}), e m_f

¹A massa efetiva de uma partícula é usualmente denotada por m^* , e é dada por $1/m^* = (1/\hbar^2)d^2E(k)/dk^2$. Desta forma, a massa efetiva está diretamente relacionada com a curvatura da relação de dispersão $E(k)$.

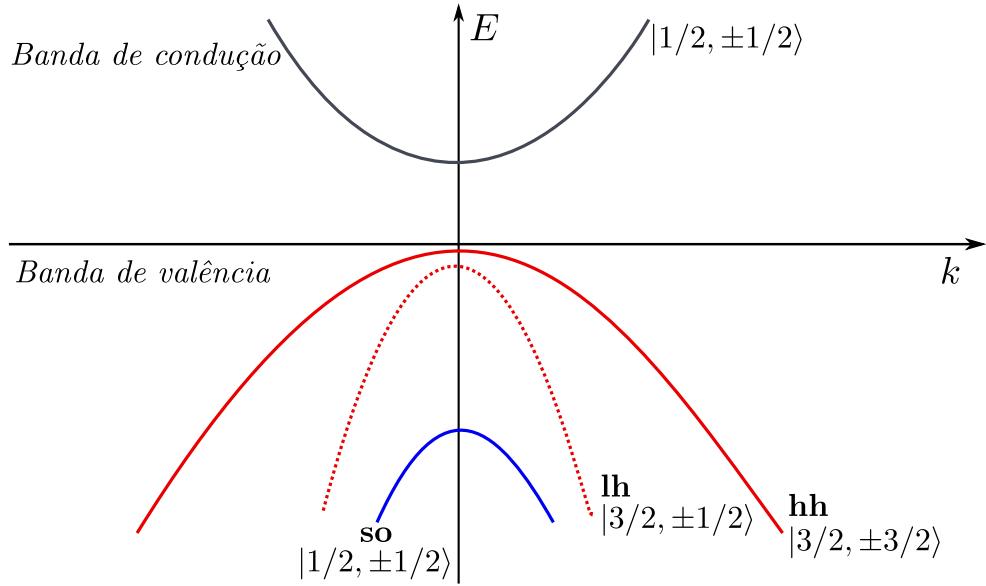


Figura 3: Diagrama da estrutura de banda de um semicondutor de gap direto, mostrando as diferentes sub-bandas na banda de valência.

é a projeção do momento angular do fóton, ambas na direção z .

Desta forma, para um campo elétrico com vetor de polarização na direção z , a projeção do momento angular do fóton pode assumir os valores $m_f = +1$, quando o campo é polarizado circularmente à direita (σ_+), e $m_f = -1$, quando é polarizado circularmente à esquerda (σ_-). Para um campo linearmente polarizado, $m_f = 0$ e as polarizações lineares horizontal (π_x) e vertical (π_y) podem ser escritas como combinações lineares de σ_+ e σ_- da seguinte forma:

$$\pi_x = \frac{(\sigma_+ + \sigma_-)}{\sqrt{2}}; \quad \pi_y = \frac{-i(\sigma_+ - \sigma_-)}{\sqrt{2}}. \quad (2.2)$$

Uma forma bastante usual de escrever estados de exciton com diferentes configurações de spin é por meio da base descrita pelo momento angular total $|S_z = m_e + m_{hh}\rangle$. Assim, os estados de exciton associados às diferentes configurações de spins dos portadores escrita na base de $|S_z\rangle$ são: $|+1\rangle$, $| -1\rangle$, $|+2\rangle$ e $| -2\rangle$. As excitações ópticas criadas a partir da absorção de fótons com polarizações σ_+ e σ_- correspondem aos seguintes estados:

$$|+1\rangle = |\downarrow\uparrow\rangle$$

$$| -1\rangle = |\uparrow\downarrow\rangle,$$

onde estes estados recombinação radioativamente e são conhecidos na literatura como excitons brilhantes (do inglês *bright excitons*). Os estados de exciton com configurações de spin paralelos, $|\pm 2\rangle$, não são ópticamente ativos, e são chamados de excitons escuros (do

inglês *dark excitons*). Em relação às excitações ópticas criadas a partir da absorção de fótons polarizados linearmente ($m_f = 0$), temos a criação dos seguintes estados:

$$|X\rangle = \frac{|+1\rangle + |-1\rangle}{\sqrt{2}}$$

$$|Y\rangle = \frac{|+1\rangle - |-1\rangle}{\sqrt{2}},$$

que são combinações lineares dos estados de exciton brilhantes.

As regras de seleção podem, portanto, serem usadas para seletivamente excitar determinada configuração de spin do par elétron-buraco, que após um certo tempo irá recombinar emitindo um fóton com um determinada polarização. Informações como a polarização e energia da luz emitida contém informações sobre a população e natureza dos estados de spins confinados no ponto quântico. Consequentemente, tais informações podem ser usadas para caracterizar os estados dos pontos quânticos e as interações presentes entre eles, através de experimentos de fotoluminescência (SCHEIBNER et al., 2007b).

2.2.3 Interação de troca

Estados de excitons formados por elétrons no estado fundamental da banda de condução e buracos pesados, são em princípio quatro vezes degenerados com relação ao seu momento angular total $|S_z = \pm 1, \pm 2\rangle$, quando confinados em pontos quânticos esfericamente simétricos (EFROS et al., 1996). Em princípio, a interação do spin do portador com um campo magnético externamente aplicado pode provocar uma quebra de degenerescência entre os estados com diferentes configurações de spin através do efeito Zeeman (DOTY et al., 2010). Este tipo de interação influencia a estrutura fina excitônica, onde os estados com diferentes configurações de spin são afetados diferentemente devido à incidência do campo magnético \vec{B} .

Contudo, pontos quânticos auto-formados de InAs/GaAs tendem a apresentar uma estrutura elíptica no plano da amostra. Esta anisotropia no plano xy , juntamente com a interação de troca entre o par elétron-buraco resulta na quebra de degenerescência dos estados excitônicos, mesmo para $\vec{B} = 0$. Neste caso, a estrutura fina excitônica origina-se principalmente da interação de troca, que corresponde a uma parte da interação de Coulomb que acopla os spins do elétron e buraco. Como as partículas constituintes dos estados de excitons são fermions (possuem spin meio-inteiro), elas devem obedecer o princípio de exclusão de Pauli que proíbe a ocupação simultânea de duas partículas fermiônicas no mesmo estado quântico (BRUUS; FLENSBERG, 2004). Este princípio é

uma consequência do fato de que a função de onda total de duas partículas fermiônicas indistinguíveis é antissimétrica em relação à permutação da coordenada \vec{r} entre duas partículas, ou seja,

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = -\Psi(\vec{r}_2, \vec{r}_1). \quad (2.3)$$

Tais características resultam na interação de troca entre elétron-buraco, cuja energia pode ser escrita da seguinte forma (BAYER et al., 2002):

$$E_{exch} \propto \int \int d^3 r_1 d^3 r_2 \frac{\Psi_X^*(\vec{r}_e = \vec{r}_1, \vec{r}_h = \vec{r}_2) \Psi_X(\vec{r}_e = \vec{r}_2, \vec{r}_h = \vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}, \quad (2.4)$$

onde Ψ_X é função de onda do exciton e $\vec{r}_{e,h}$ são as coordenadas do elétron e do buraco. Na notação usada ao longo desta tese, usamos os termos em inglês *exchange* e *hole* para se referir à interação de troca e buraco, respectivamente. Quando a expressão dada pela integral (2.4) é calculada, ela dá origem à uma parte denominada de curto alcance, que está associada à probabilidade de encontrar um elétron e um buraco na mesma célula unitária de *Wigner-Seitz*, e uma outra parte denominada de longo alcance, cuja contribuição é dada quando ambos portadores estão em células unitárias diferentes.

Considerando assim a interação de troca, os quatro estados excitônicos têm sua degenerescência quebrada, e pode ser escrita através da seguinte expressão (BAYER et al., 2002):

$$H_{exch} = - \sum_{i=x,y,z} a_i S_i^h S_i^e + b_i (S_i^h)^3 S_i^e, \quad (2.5)$$

onde os parâmetros a_i e b_i têm informações sobre a simetria estrutural dos pontos quânticos e $S_{x,y,z}^{e(h)} = \sigma_{x,y,x}^{e(h)}/2$, sendo $\sigma_{x,y,x}^{e(h)}$ as matrizes de Pauli, escritas em termos dos estados associados à projeção do momento angular na direção z para o elétron e buraco pesado. É importante ressaltar que a direção z corresponde à direção ao longo do crescimento da nanoestrutura.

Na notação usada na expressão (2.5), $S_{x,y,z}^{e(h)}$ são representadas matricialmente por ($\hbar = 1$):

$$S_x^{e(h)} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad S_y^{e(h)} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad S_z^{e(h)} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix},$$

com $S_{x,y,z}^e$ sendo escritas seguindo o ordenamento de base $|m_e = +1/2\rangle$ e $|m_e = -1/2\rangle$, enquanto para o buraco as matrizes $S_{x,y,z}^h$ foram escritas usando a representação de pseudospin, onde os estados $|m_h = \pm 3/2\rangle$ são representados por $|\pm 1/2\rangle$ (TAKAGAHARA, 2003).

Usando a base $|+1\rangle$, $| -1\rangle$, $|+2\rangle$ e $| -2\rangle$, o hamiltoniano de interação de troca escrito na forma matricial é dado por:

$$H_{exch} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & \delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix}, \quad (2.6)$$

sendo: $\delta_0 = 1.5(a_z + 2.25b_z)$, $\delta_1 = 0.75(b_x - b_y)$ e $\delta_2 = 0.75(b_x + b_y)$. Verificamos através do hamiltoniano (2.6), que os estados de éxitons brilhantes e escuros não se misturam, já que H_{exch} é uma matriz bloco diagonal. Notemos ainda que os blocos associados a $|S_z| = 1$ e $|S_z| = 2$ são separados por uma quantidade de energia dada por δ_0 , enquanto os parâmetros δ_1 e δ_2 acoplam os estados brilhantes e escuros, respectivamente. Para pontos quânticos InAs/GaAS os valores típicos mostrados em experimentos são $\delta_0 \approx 100 \mu\text{eV}$, $\delta_1 \approx 35 \mu\text{eV}$, e $\delta_2 \approx 1.5 \mu\text{eV}$ (KODRIANO et al., 2014).

As separações entre os níveis excitônicos dadas pelos parâmetros δ_0 e δ_2 da equação (2.6) são originados principalmente da contribuição de curto alcance da interação de troca, e obedecem a relação $\delta_0 > \delta_2$. Esta contribuição independe da simetria da nanoestrutura. O efeito da contribuição de longo alcance afeta também a separação de energia entre os estados de éxitons brilhantes e escuros, e além disso causa uma mistura entre os estados $|+1\rangle$ e $| -1\rangle$. A parte anisotrópica da interação de troca (do inglês, *Anisotropic exchange interaction* - AEI) surge da contribuição do termo de longo alcance, que é ocasionada pela assimetria estrutural no plano xy ($b_x \neq b_y$) da nanoestrutura. Desta forma, estados dados pelas combinações lineares, $(|+1\rangle \pm | -1\rangle)/\sqrt{2}$ são autoestados do hamiltoniano (2.6), separados em energia por uma quantidade de $2\delta_1$.

A estrutura fina excitônica é esquematicamente ilustrada na Fig. 4(a). Na Fig. 4(b) é ilustrado o efeito da parte anisotrópica da interação de troca, onde o termo associado à δ_1 na equação (2.6) provoca uma mistura entre os estados brilhantes, cujos estados são combinações lineares simétrica $|B_S\rangle$ e antissimétrica $|B_A\rangle$ dos estados de éxitons brilhantes. Como mencionado anteriormente fôtons com polarização σ_+ e σ_- estão associados à formação dos estados $|+1\rangle$ e $| -1\rangle$, respectivamente. De forma análoga, as polarizações lineares dada na equação (2.2) estão associadas aos autoestados do hamiltoniano (2.6), $|B_S\rangle$ e $|B_A\rangle$. Como consequência da mistura entre $|+1\rangle$ e $| -1\rangle$ ocasionada pela assimetria no potencial de confinamento lateral do ponto quântico, é observado em espectros de fotoluminescência dubletos associados à emissão de luz polarizada verticalmente (π_y) e horizontalmente (π_x), cuja separação pode ser medida e é dada por δ_1 .

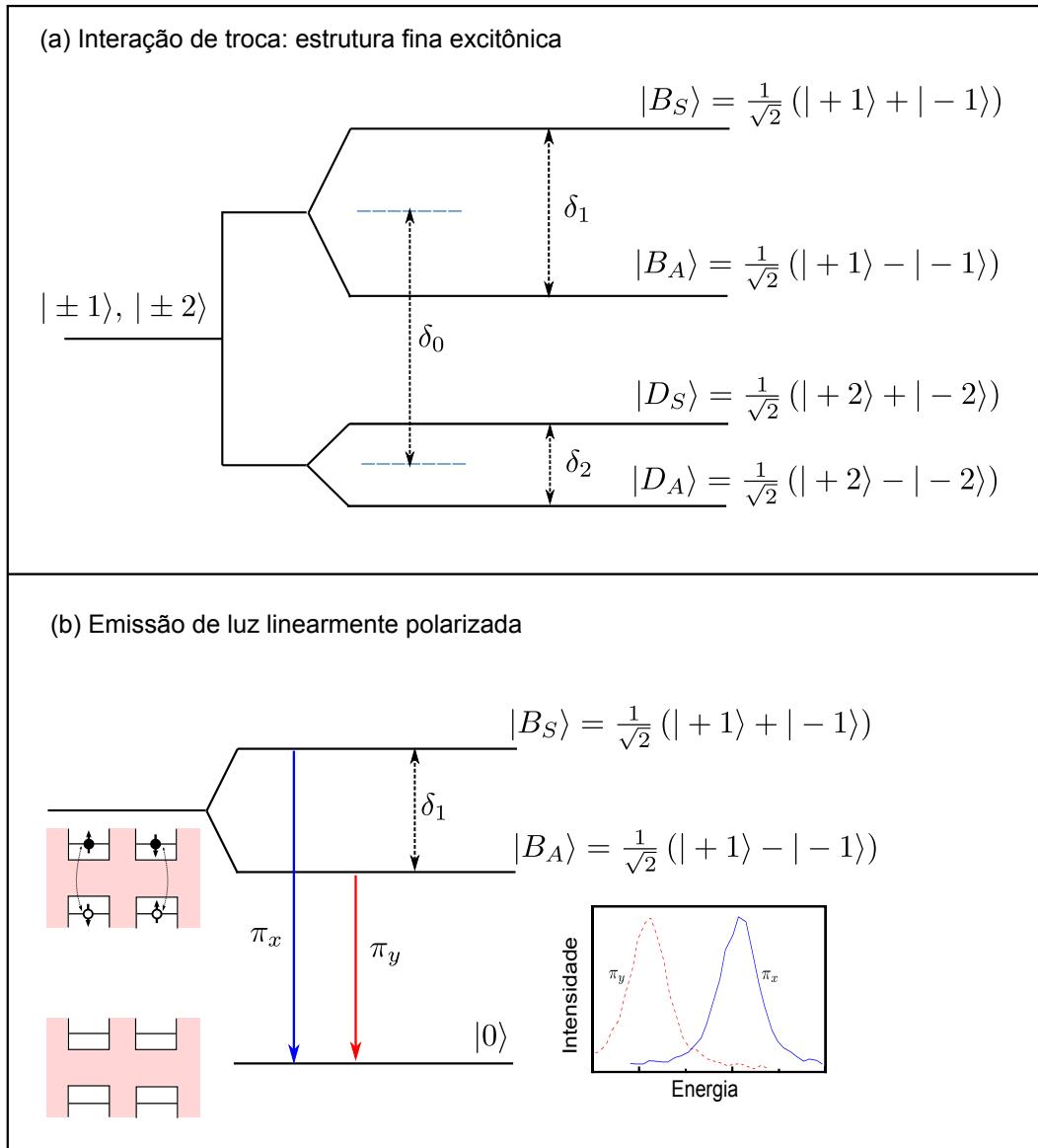


Figura 4: (a) Representação esquemática do diagrama de níveis considerando a interação de troca. As combinações simétricas e antissimétricas dos excitões brilhantes ($|B_S\rangle$, $|B_A\rangle$) e excitões escuros ($|D_S\rangle$, $|D_A\rangle$) são separados por uma quantidade de δ_1 e δ_2 , respectivamente. (b) Representação esquemática do processo de fotoluminescência, cujo efeito da AEI é a emissão de luz polarizada linearmente.

É importante ressaltar que esta quebra de degenerescência e a emissão de fótons com polarização linear não ocorre quando ao invés de considerarmos éxcitons neutros, for considerado estados de éxcitons carregados, também chamados de trions. Tal característica é uma consequência do teorema de Kramers (SAKURAI, 1994). Nos estados de trions o número de elétrons e buracos são diferentes, e portanto são estados com carga total diferente de zero. Além disso se os portadores de carga em cada uma das bandas ocuparem o mesmo nível, eles devem ter spins anti-paralelos de acordo com o princípio de exclusão de Pauli. Desta forma, temos por exemplo que um estado formado por dois elétrons e um buraco (denotado por $|X^{-1}\rangle$), possue a projeção do momento angular total $S_z = \pm 1/2$, ou seja é igual ao momento angular do elétron. Segundo o teorema de Kramers, um sistema com momento angular total S_z com valor meio-inteiro deve ser pelo menos duplamente degenerado. Deste modo estados de trions não exibem estrutura fina em seu espectro na ausência de campo magnético e a recombinação do par elétron buraco resulta na emissão de luz polarizada circularmente (WARE et al., 2005). Temos ainda que estados de biéxciton fundamentais (denotados por $|XX\rangle$), formados por dois elétrons e dois buracos, apresentam projeção do momento angular total $S_z = 0$, sendo completamente degenerado. Porém, como o estado de biéxciton pode decair para um dos estados de mistura dos éxcitons brilhantes, que por sua vez decaem para o estado fundamental $|0\rangle$, exibe em seu espectro de fotoluminescência os dubletos associados à emissão de luz polarizada linearmente (AKIMOV; ANDREWS; HENNEBERGER, 2006).

2.2.4 Pontos quânticos acoplados

Excitações de carga e spins de portadores confinados em pontos quânticos semicondutores são atrativos candidatos a qubits em sistemas de estado sólido, já que ambos podem ser coerentemente manipulados através de pulsos de laser operados em uma escala de tempo muito mais rápida do que seu tempo de decoerência. Porém, no contexto de informação e computação quântica, a escalabilidade do sistema físico é um ingrediente imprescindível para implementação de operações quânticas de dois qubits. Devido ao avanço experimental na fabricação e crescimento de nanoestruturas semicondutoras, pontos quânticos duplos verticalmente empilhados têm despertado um crescente interesse da comunidade científica para implementação de portas lógicas de um e dois qubits baseadas em dinâmica quântica condicional (ROBLEDO et al., 2008; ECONOMOU et al., 2012). Diversos trabalhos têm demonstrado experimentalmente o eficiente controle da interação entre os pontos por intermédio de campo elétricos externos (KRENNER et al., 2005a; STINAFF et al., 2006). O acoplamento entre pontos quânticos produz novos mecanis-

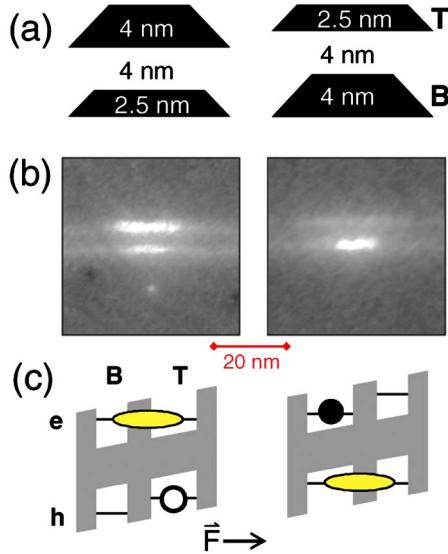


Figura 5: (a) Dois diferentes tipos de amostras de dois pontos quânticos empilhados assimétricos submetido à incidência de um campo elétrico positivo na direção de crescimento. Os pontos quânticos da camada superior e inferior são denotados por B e T , respectivamente, cuja separação é de 4 nm. (b) Imagens microscópicas de cada uma das amostras, evidenciando a assimetria estrutural entre os pontos com diferentes alturas, 4 nm e 2.5 nm. (c) Amostras da esquerda e da direita favorecem o tunelamento do elétron e do buraco, respectivamente. Esta figura foi retirada da referência (BRACKER et al., 2006).

mos de interação, que fornecem por sua vez diferentes maneiras para manipular estados quânticos. As principais interações entre pontos quânticos são o tunelamento do elétron ou buraco (MULLER et al., 2012) e a transferência de energia por ressonância de Föster (FRET do inglês, *Föster resonance energy transfer*) (GERARDOT et al., 2005). A interação de Föster corresponde a uma transferência de energia não radioativa que pode induzir a transferência de um exciton entre dois pontos.

Em sistemas formados por pontos quânticos acoplados por tunelamento é possível criar diversas configurações de níveis excitônicos. Sob certas condições, o tunelamento de portadores entre os pontos acopla estados de excitons em cada ponto quântico, resultando na formação de orbitais moleculares delocalizados sobre ambos os pontos. Devido a esta característica, pontos quânticos duplos acoplados por tunelamento são chamados de moléculas de pontos quânticos (do inglês, *quantum dots molecule* - QDM).

Neste trabalho, concentraremos nossa atenção em sistemas compostos apenas por duas camadas onde pontos quânticos de diferentes tamanhos foram formados, como mostrado na Fig. 5. Devido à assimetria estrutural dos pontos quânticos, ocasionada durante o processo de crescimento da nanoestrutura, os pontos quânticos apresentam diferentes perfis de confinamento. Dessa forma, o tunelamento seletivo de portadores entre os pontos pode

ser estruturalmente controlado, ou seja, o processo de tunelamento pode ser controlado através da incidência de um campo elétrico externo F apropriadamente manipulado por meio de uma diferença de potencial aplicada na direção de crescimento da amostra. Deste modo, para valores específicos de campo elétrico os níveis da banda de condução ou da banda de valência se tornam ressonantes, permitindo o tunelamento entre os pontos do elétron (T_e) ou do buraco (T_h), respectivamente (BRACKER et al., 2006). O forte acoplamento molecular surge do tunelamento de portadores entre os pontos, e se manifesta através de um anticruzamento no espectro de autovalores, que por sua vez é uma assinatura da delocalização do portador sobre o ponto quântico duplo. Neste sistema, pode-se distinguir então duas espécies de excitons: os excitons diretos, em que o elétron e o buraco estão localizados no mesmo ponto, e os excitons indiretos, em que o elétron e o buraco estão em pontos diferentes. Os diferentes estados de excitons fundamentais na molécula quântica podem ser representados através da seguinte notação: $|X_{e_B, h_B}^{e_T, h_T}\rangle$, onde $e_T(h_T)$ e $e_B(h_B)$ representam a ocupação do elétron (ou do buraco) nos pontos da camada superior (T) e da camada inferior (B), respectivamente.

Consideremos por exemplo, uma amostra na qual o tunelamento do elétron é favorecido enquanto os níveis da banda de valência estão muito fora da ressonância proibindo o tunelamento do buraco. Através da incidência de um laser ressonante com o ponto da camada inferior, podemos considerar a formação de um estado de exciton direto, $|X_{11}^{00}\rangle$, onde o elétron pode tunelar para o ponto da outra camada e o estado de exciton indireto $|X_{01}^{10}\rangle$ é formado. Deste modo, os orbitais moleculares são construídos a partir da combinação linear entre estes dois estados, onde de forma análoga aos estados ligan tes e antiligantes de estados moleculares (do inglês, *bonding* e *antibonding*), estes dois estados são dados pela combinação simétrica e antissimétrica $1/\sqrt{2}(|X_{11}^{00}\rangle \pm |X_{01}^{10}\rangle)$, respectivamente (DOTY et al., 2009). Tais características, assim como o anticruzamento entre excitons diretos e indiretos devido ao acoplamento T_e são exibidos no espectro de fotoluminescência Fig. 6(a).

2.2.5 Moléculas artificiais sob incidência de campo elétrico

Nesta tese estamos particularmente interessados no controle coerente de estados de excitons em pontos quânticos acoplados por tunelamento. Do ponto de vista experimental, este sistema físico pode ser formado por duas camadas verticalmente crescidas de pontos quânticos InAs/GaAs com uma fina camada de GaAs entre elas. Devido à tensão local presente no material durante o processo de auto-formação, os pontos quânticos das

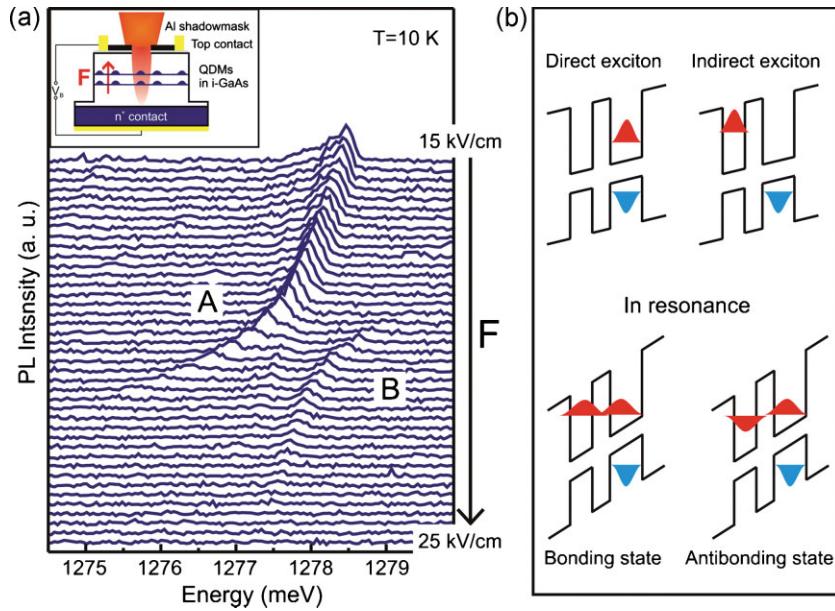


Figura 6: (a) Espectro de fotoluminescência de um molécula de pontos quânticos empilhados sob a influência de um campo externo F , aplicado da direção de crescimento da amostra (inset). É observado claramente um anticruzamento entre os estados de excitons denotados por A e B , para $F \approx 18.5$ kV/cm. (b) Representação esquemática das distribuições das funções de onda do elétron e do buraco quando os níveis da banda de valência estão em ressonância, evidenciando a formação do exciton indireto. Esta figura foi retirada da referência (KRENNER et al., 2005a).

camadas superiores tendem a crescer preferencialmente acima dos pontos quânticos da primeira camada com dimensões estruturais diferentes, como pode ser visto na Fig. 7(a). Sob a influência de um campo elétrico, a energia de transição excitônica em pontos quânticos é modificada. Este efeito que ocasiona o deslocamento nos níveis eletrônicos de energia em nanoestruturas semicondutoras é conhecido como efeito Stark quântico confinado (do inglês, *quantum confined Stark effect*, QCSE). Considerando que a molécula de pontos quânticos é embutida em uma estrutura do tipo diodo Schottky, um campo elétrico F aplicado na direção de crescimento permite a manipulação da injeção de portadores originados em substratos dopados para dentro dos pontos (Fig. 7(b)). Em geral, as amostras constituídas por essas nanoestruturas são colocadas em contato com camadas formadas por materiais altamente dopados e posicionadas entre as superfícies de um eletrodo. Desta forma, aplicando uma diferença de potencial na amostra, a energia do ponto quântico correspondente à transição excitônica é deslocada e a energia eletrostática dos estados eletrônicos dos pontos é ainda modificada em relação ao nível de energia de Fermi da camada dopada (Fig. 7(c)). Variando apropriadamente o campo elétrico aplicado através da barreira de potencial é possível deslocar o estado eletrônico do ponto de tal forma que ele fique ressonante com a energia de Fermi, possibilitando o tunelamento

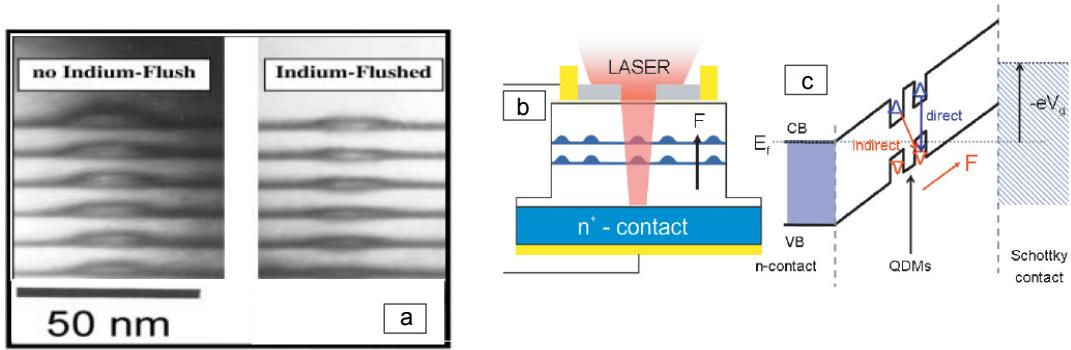


Figura 7: (a) Amostra de pontos quânticos de InAs separadas por camadas de GaAs, crescidas epitaxialmente por feixe molecular. Neste figura é mostrada a técnica de fluxo de índio. (b) Representação esquemática de uma molécula de pontos quânticos embebidos em um dispositivo de diodo do tipo Schottky. (c) Perfil de confinamento de estados de exciton diretos e indiretos como função do campo elétrico F . Estas figuras foram retiradas das referências (MICHLER, 2003; KRENNER et al., 2005b).

do elétron para dentro ou fora do ponto quântico (ASSUNCAO et al., 2013). Desta forma, os pontos quânticos podem ser carregados com cargas extras, confinando estados de exciton positivamente ou negativamente carregados. Através de técnicas de máscaras de sombra constituídas por alumínio, é possível isolar um única molécula de pontos quânticos com uma abertura de aproximadamente $1 \mu\text{m}$ na camada de metal crescida sobre a amostra (FINDEIS et al., 2001).

Experimentalmente, as duas espécies de excitons que se diferem pela configuração espacial do elétron-buraco são distinguíveis por suas respostas ao campo elétrico, cuja variação induz uma mudança na energia excitônica devido ao efeito Stark. Enquanto os excitons indiretos têm seu nível de energia fortemente dependente do campo elétrico, os níveis de energia dos excitons diretos são fracamente alterados (KRENNER et al., 2005b). A perturbação de energia dada pelo efeito Stark é dada por: $\Delta_F = \vec{p} \cdot \vec{F}$, onde $\vec{p} = e\vec{s}$ é o momento de dipolo do exciton e \vec{s} a separação vertical entre o centro de distribuição de carga de cada portador. Para estados de excitons diretos, onde elétron e buraco estão confinados no mesmo ponto, a distância s é aproximadamente $s_d \leq 1 \text{ nm}$. Consequentemente, o momento de dipolo do estado de exciton direto é pequeno e depende fracamente de F , não sendo sensível a separação d entre os pontos (WARBURTON et al., 2002).

Diferentemente dos excitons diretos, quando elétron e buraco estão espacialmente separados em pontos diferentes, $s_i \approx d$. Deste modo, o momento de dipolo é bem maior para excitons indiretos, o que acarreta uma forte variação linear da energia dos estados

excitônicos nesta configuração quando o campo elétrico é alterado. A relação entre essa variação de energia com o campo elétrico é dada por (ROLON; ULLOA, 2010):

$$\Delta_F = \pm edF. \quad (2.7)$$

Assim como mostrado na Fig. 6(a), para o valor de campo elétrico $F \approx 18.5$ kV/cm, a função de onda do elétron é delocalizada sobre ambos os pontos, resultando em uma mistura entre os estados diretos e indiretos. Esta mistura é evidenciada pelo anticruzamento, cuja separação $\Delta E \approx 1.4$ meV é diretamente proporcional à T_e ($\Delta E \sim 2T_e$) (SCHEIBNER et al., 2007a). É importante ressaltar que separação de energia com relação ao anticruzamento originado do tunelamento do elétron é usualmente uma ordem de grandeza maior do que o anticruzamento associado ao tunelamento de um buraco, ou seja, $T_e > T_h$. Tal característica origina significativa diferença entre as massas efetivas dos portadores (SCHEIBNER et al., 2009).

Pontos quânticos duplos sob incidência de radiação eletromagnética, cujos níveis podem ser apropriadamente controlados através de um campo elétrico, exibem um espectro bastante enriquecido devido às diversas configurações de cargas possíveis e suas diferentes interações. As principais diferenças entre um espectro de fotoluminescência de um ponto quântico único ou duplo surgem devido à presença das novas transições de caráter indireto que anticruzam com vários outros estados quando o campo elétrico é variado. Na Fig. 8 é mostrado o espectro de fotoluminescência para ambos os casos, ponto quântico único Fig. 8(a), e molécula artificial Fig. 8(b), como função da voltagem aplicada na amostra, que é por sua vez diretamente proporcional à variação do campo elétrico. Nas Figs. 8(a) e 8(b) as transições ópticas são identificadas por sua posição espectral como função da voltagem, que se tornam visíveis e desaparecem em determinadas regiões do espectro. A amostra é embutida em uma estrutura de diodo tipo-*n*, como mostrada na Fig. 8(a), e para valores de voltagem negativos os elétrons tendem escapar do ponto com direção ao substrato. Assim, é possível identificar no espectro o estado de trion positivamente carregado X^{+1} , denotado na figura por $(\frac{1}{2})$. Variando a voltagem para valores positivos são identificados os estados de exciton neutro X^0 , e trion negativo X^{-1} , denotados por $(\frac{1}{1})$ e $(\frac{2}{1})$, respectivamente. O deslocamento de energia dos estados de trions em relação ao estado de exciton neutro é causado pela diferença da interação de Coulomb e interação de troca entre os portadores, para cada uma das diferentes configurações de carga.

O espectro de fotoluminescência é consideravelmente mais complexo, quando dois pontos quânticos são acoplados pelo tunelamento dos portadores, como pode ser visto na Fig. 8(b). Nesta amostra os níveis da banda de valência são ressonantes, favorecendo o

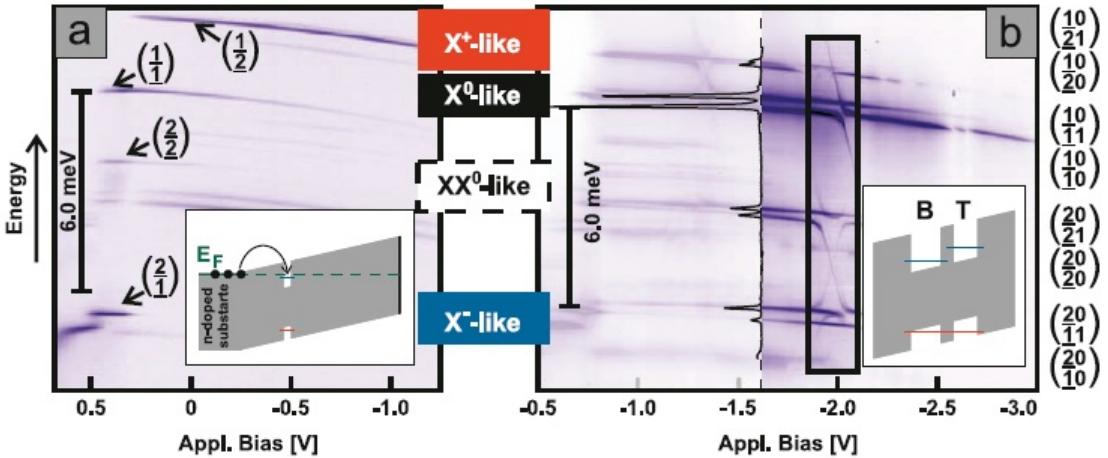


Figura 8: Espectro de fotoluminescência como função da voltagem aplicada na amostra, considerando: (a) uma amostra de um único ponto quântico e (b) uma molécula de pontos quânticos, embutidos em uma estrutura de diodo tipo-*n*. As diferentes configurações de carga estão representadas em ambos espectros, onde para o ponto quântico único os números superior e inferior se referem ao número de ocupação do elétron e do buraco, respectivamente. Já para o ponto quântico duplo as possíveis transições são representadas pelos estados localizados do lado direito do gráfico, onde os números da direita e esquerda representam o número de ocupação do ponto da camada inferior e superior, respectivamente para o elétron (números superiores) e buraco (número inferiores).

tunelamento do buraco. Deste modo, transições de caráter indireto são presentes, cuja mistura com estados diretos é evidenciada pelos anticruzamentos que ocorrem para diferentes valores de voltagem. Como mencionado anteriormente, podemos verificar que as transições ópticas associadas aos estados nos quais os portadores estão espacialmente separados variam linearmente com a variação da voltagem e são evidenciados por uma linha no espectro com uma intensidade bem mais fraca do que os estados diretos. Fora das regiões de anticruzamento, a probabilidade de recombinação do par elétron-buraco, quando os portadores estão confinados no mesmo ponto, é muito maior do que estados em que os portadores estão espacialmente separados. Isto ocorre devido à diferença da sobreposição da função de onda do elétron e buraco, resultando picos de fotoluminescência de intensidade mais fraca para estados de caráter indireto.

Outra característica que diferencia os dois espectros é a aparição de uma forma tipo-*X*, observada do lado direito do espectro 8(b) logo abaixo do anticruzamento associado ao estado de exciton neutro X^0 . Esta forma tipo-*X* é constituída por um conjunto de quatro anticruzamentos, e esta característica é sempre observada se os estados iniciais e finais envolvidos na transição óptica passam por níveis de ressonância para valores similares de campo elétrico (DOTY et al., 2008).

2.2.6 Transferência de energia por ressonância de Föster - FRET

Um outro tipo de acoplamento presente entre estados de excitons confinados em pontos quânticos duplos via transferência de energia por ressonância de Föster, que consiste na transferência direta de energia eletrostática na ausência de transferência de carga (ROLON; ULLOA, 2009). Trabalhos experimentais têm demonstrado o acoplamento entre pontos quânticos sob um regime no qual a probabilidade de tunelamento é fortemente suprimida (KAGAN; MURRAY; BAWENDI, 1996; CROOKER et al., 2002). A taxa de tunelamento entre os pontos diminui exponencialmente com o aumento da distância entre os pontos e da altura da barreira de potencial entre eles. É importante ressaltar que as condições de ressonância para o transferência por Föster e para o tunelamento entre os pontos quânticos são bem diferentes. A taxa de tunelamento dos portadores decresce exponencialmente com o aumento da distância e da altura da barreira entre os pontos quânticos. Enquanto isso, a taxa de transferência por Föster exibe uma dependência de $\propto R^{-6}$, sendo R a distância entre os pontos e é independente da altura da barreira de potencial. Do ponto de vista experimental, é possível o crescimento de pontos quânticos auto-formados que exibem acoplamento predominantemente do tipo Föster (GOVOROV, 2005).

A origem básica do mecanismo de FRET é uma interação do tipo dipolo-dipolo entre os estados de excitons, e envolve somente transferência de energia sem nenhum efeito de tunelamento entre os pontos (GERARDOT et al., 2005). No contexto de pontos quânticos duplos, este processo consiste na transferência de excitação de um ponto para outro via interação de Coulomb. Assim, um estado de exciton direto opticamente excitado em um dos ponto quânticos (doador) transfere sua energia excitônica para o outro ponto (receptor), onde este processo é efetivamente equivalente à recombinação do exciton no ponto doador e sua subsequente criação no ponto receptor. A taxa de transferência por Föster, exibe uma forte dependência com a diferença de energia dos estados de excitons, $\Delta E = E_{exc,2} - E_{exc,1}$, onde os índice 1(2) se referem a cada um dos pontos quânticos. No regime ressonante $\Delta E \approx 0$, a transferência do par excitônico ocorre de forma coerente sem dissipação. No caso de regime não ressonante, $\Delta E = \hbar\omega_{ph}$, e a transferência por Föster pode ser assistida por fônon acústico com energia $\hbar\omega_{ph}$. Considerando dois pontos quânticos na Fig. 9, é mostrada uma representação esquemática do mecanismo de Föster entre dois pontos quânticos separados por uma distância R .

Considerando dois pontos quânticos verticalmente empilhados, na forma de discos cujos raios são \vec{r}_B e \vec{r}_T (Fig. 9), temos que o termo que descreve a interação de Föster V_F

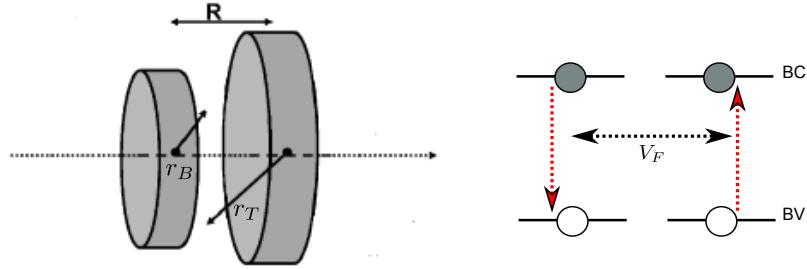


Figura 9: Representação esquemática do acoplamento de Föster entre estados de excitons formados em pontos quânticos diferentes separados por uma distância R , cujos raios são r_b e r_t .

obtido a partir do elemento de matriz da interação de Coulomb é dado por (NAZIR et al., 2005):

$$V_F = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_R R^3} O_B O_T \left[\vec{\mu}_B \cdot \vec{\mu}_T - \frac{3}{R^3} (\vec{\mu}_B \cdot R) (\vec{\mu}_T \cdot R) \right], \quad (2.8)$$

onde ϵ_R é a constante dielétrica do meio e O_i está associado à sobreposição entre as funções de envelope do elétron e buraco para cada um dos pontos B e T , e pode ser escrito como a seguinte integral,

$$O_i = \int d^3\vec{r} \phi_e(\vec{r}_i) \phi_h(\vec{r}_i),$$

e $\vec{\mu}_i$ são os elementos de matriz de dipolo entre as bandas dado por:

$$\vec{\mu}_i = e \int d^3\vec{r}_i U_e(\vec{r}_i) \vec{r}_i U_h(\vec{r}_i),$$

sendo $U_{e(h)}(\vec{r}_i)$ a função de *Bloch* para o elétron (buraco).

Considerando a simetria axial dos pontos quânticos e considerando que os momentos de dipolo $\vec{\mu}_T$ e $\vec{\mu}_B$ são paralelos e orientados na direção do plano xy , temos a seguinte expressão V_F como função da distância entre os pontos:

$$V_F = -\frac{\mu_B \mu_T}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r R^3}. \quad (2.9)$$

Deste modo, o acoplamento de Föster descreve o acoplamento entre duas estruturas individuais sem transferência de carga.

2.2.7 Regime de fotocorrente

Como mencionado anteriormente, os níveis de energia de pontos quânticos embutidos em um estrutura do tipo diodo Schottky podem ser apropriadamente deslocados através da variação de uma barreira de potencial. Deste modo, devido ao efeito Stark, um

campo elétrico F aplicado na direção de crescimento resulta no deslocamento dos níveis de energia da banda de valência e da banda de condução. Se a intensidade do campo for continuamente aumentada, os portadores confinados no ponto, devido à excitação óptica ou provenientes do substrado dopado, tendem a escapar do ponto antes mesmo que ocorra a recombinação entre elétron-buraco. Neste regime, é experimentalmente possível a detecção de photocorrente, que assim como a fotoluminescência é uma ferramenta bastante sensível com o uso das tecnologias atuais, que permite identificar níveis de transições e determinar a ocupação dos estados no ponto.

Na Fig. 10(a) é ilustrado esquematicamente um único ponto quântico sob incidência de radiação coerente, submetido à influência de um campo elétrico aplicado na direção de crescimento. Este tipo de estrutura na qual um único ponto quântico é embutido em uma estrutura do tipo diodo Schottky, pode ser usado para experimentos de medida de photocorrente I , originada do tunelamento dos portadores. Na Fig. 10(b) é mostrado o processo de tunelamento dos portadores que constituem o estado de exciton $|X\rangle$.

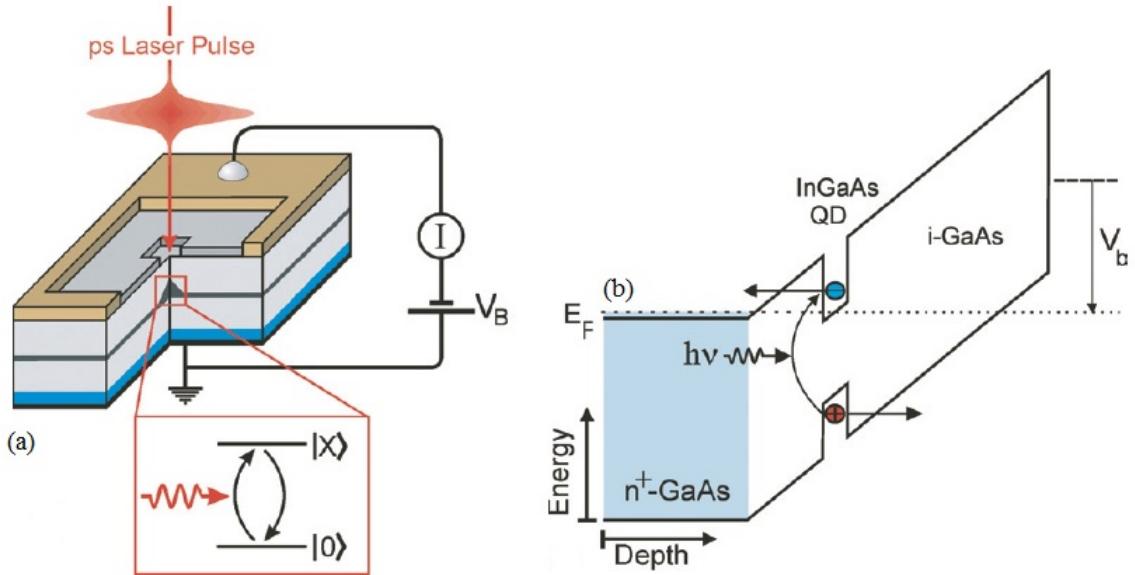


Figura 10: (a) Representação esquemática de um ponto quântico embutido em uma estrutura do tipo diodo Schottky, usado em experimentos de photocorrente. Os diagramas de dois níveis representados na figura representam o acoplamento óptico entre o estado fundamental $|0\rangle$ e o estado de exciton $|1\rangle$. (b) Diagrama da estrutura de níveis na banda de valência e banda de condução no ponto quântico, evidenciando os processos de tunelamento do elétron e do buraco para fora do ponto. Esta figura foi retirada da referência (KRENNER et al., 2005b).

O grupo do Dr. Jonathan J. Finley do Instituto Walter Schottky na Alemanha, tem ao longo desses anos realizado diversos experimentos de photocorrente e fotoluminescência em pontos quânticos simples e duplos (OULTON et al., 2002; MULLER et al., 2011, 2013b).

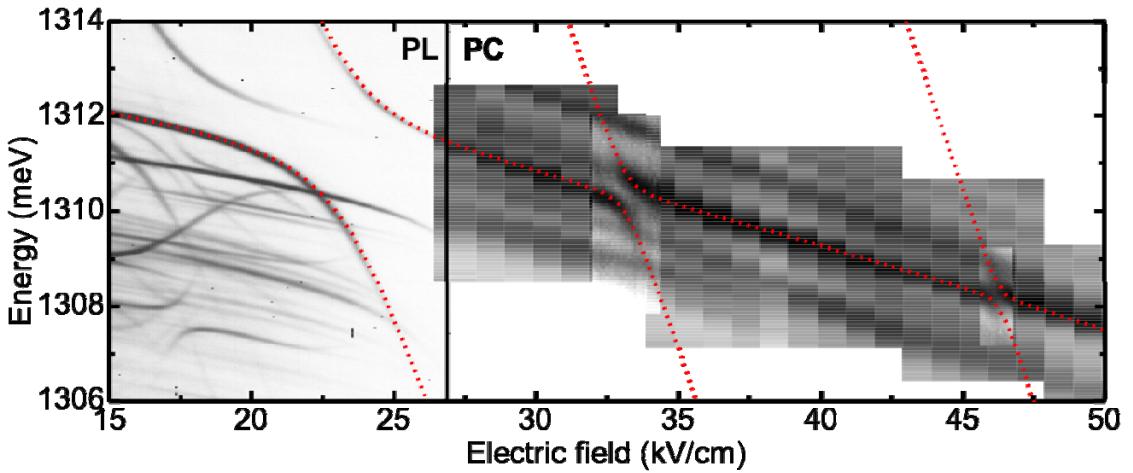


Figura 11: Espectro de absorção de pontos quânticos duplos acoplados pelo tunelamento do elétron como função do campo elétrico aplicado na direção de crescimento. Esta figura foi retirada da referência (MULLER et al., 2012).

Na Fig. 11 é mostrado um espectro de absorção obtido por este grupo de pesquisa em uma molécula de pontos quânticos cuja assimetria favorece o tunelamento do elétron. No painel da esquerda é exibido um anticruzamento (evidenciado pelas linhas pontilhadas vermelhas) que é uma assinatura do acoplamento entre os estados de exciton direto e indireto, onde o elétron é delocalizado sobre ambos os pontos. À medida que o campo aumenta $F > 27\text{kV/cm}$, o elétron e buraco tendem a escapar do ponto quântico antes de recombinar, e assim, o estado de exciton direto no ponto quântico da camada superior pode continuar sendo monitorado através de medidas de photocorrente. Neste regime de photocorrente um outro anticruzamento é exibido quando $F = 33.1\text{ kV/cm}$. Isto ocorre pois, para este valor específico de campo o nível eletrônico do ponto da camada superior está ressonante com o nível eletrônico excitado do outro ponto quântico.

É importante ressaltar que enquanto o tempo típico de recombinação de estados de excitons confinados em pontos quânticos é da ordem de 1 ns, a taxa de tunelamento dos portadores para fora do ponto quântico, inversamente proporcional ao tempo de tunelamento de escape, é apropriadamente manipulado através do campo elétrico. A taxa de tunelamento do portador i (elétron ou buraco) como função do campo elétrico é dada pela seguinte expressão (MULLER et al., 2013a):

$$\Gamma_i = \frac{16V_i^2 L}{\pi^2 \hbar^2} \sqrt{\frac{m_i^*}{2|E_i|}} \exp\left(\frac{-4\sqrt{2m_i^*}}{3\hbar e F |E_s|^{\frac{3}{2}}}\right), \quad (2.10)$$

onde m_i^* é massa efetiva para cada espécie de portador, V_i e L correspondem à altura e largura do poço quântico, no qual pode ser modelado o confinamento na direção z do ponto

quântico e E_i é energia quantizada da partícula confinada. Diversos trabalhos experimentais demonstraram que o tempo de tunelamento como função do campo F podem variar de 5 – 150 ps para elétrons (MULLER et al., 2013a) e $10 - 10^3$ ps para buracos (MULLER et al., 2012). Esta característica surge da diferença entre as massas efetivas dos portadores. Desta forma, experimentos de fotocorrente nos permite identificar eficientemente transições excitônicas de amostras constituídas por pontos quânticos, utilizando pulsos ultra-curtos (na escala de ps) que podem por sua vez, serem usados para implementação de operações quânticas neste tipo de sistema (BOYLE et al., 2008; HEISS et al., 2010).

3 Conceitos Teóricos Fundamentais

Neste capítulo iremos introduzir o formalismo matemático baseado no operador de matriz densidade, que possibilita tanto a descrição de estados puros, representados por um vetor de estado, quanto para estados mistos. Apresentaremos suas principais propriedades e características, assim como algumas ferramentas aplicadas no contexto de sistemas compostos, tais como o traço parcial e decomposição de Schmidt.

3.1 Operador Matriz Densidade

O comportamento de um sistema quântico realístico é fortemente influenciado pela inevitável interação com o ambiente que o cerca. Quando este acoplamento com o meio é considerado, dizemos que este sistema é aberto. Esta interação implicará, em princípio, processos de perda de energia e perda de informação sobre a fase relativa entre os estados do sistema. Em contrapartida, sistemas quânticos fechados, nos quais qualquer tipo de interação com o seu meio externo é negligenciada, podem ser descritos por um estado puro como uma superposição linear de estados $|\psi_k\rangle$, ou seja:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_k c_k(t) |\psi_k\rangle, \quad (3.1)$$

onde $|\psi_k\rangle$ forma um conjunto completo de funções ortonormais do espaço de Hilbert (base) e os coeficientes $c_k(t)$ satisfazem a seguinte relação: $\sum_k |c_k(t)|^2 = 1$. Para um estado puro, o vetor de estado $|\psi(t)\rangle$ fornece toda informação para caracterizar o estado do sistema e $|c_k(t)|^2$ corresponde à amplitude de probabilidade de encontrar o sistema no estado $|\psi_k\rangle$ no tempo t .

Se o estado de um sistema é descrito por um vetor de estado $|\psi(t)\rangle$, o valor médio do observável \mathcal{O} é dado por:

$$\langle \mathcal{O} \rangle = \langle \psi(t) | \mathcal{O} | \psi(t) \rangle = \sum_{i,j} c_i(t) c_j^*(t) O_{ji}, \quad (3.2)$$

onde, $O_{ji} = \langle \psi_j | \mathcal{O} | \psi_i \rangle$ são os elementos de matriz do observável O .

Porém, em sistemas físicos realísticos não possuímos informação completa para caracterizar seu estado quântico. Tais sistemas se encontram em um estado de mistura estatística, onde apenas as probabilidades do sistema ocupar cada estado são bem determinadas. Nesta situação, o sistema não pode ser descrito por um único vetor de estado, mas por um ensemble de estados puros $|\psi_k\rangle$ ($k = 1, 2, 3\dots$), associado à uma distribuição de probabilidade $|\psi_k\rangle$ ($k = 1, 2, 3\dots$) definida sobre o ensemble. O sistema é descrito então por um estado misto, representado por um ensemble clássico cujas probabilidades expressam a falta de informação sobre o estado quântico do sistema.

O formalismo do operador densidade é a maneira mais apropriada para se descrever um sistema quântico cujo estado não é completamente conhecido e apresenta a vantagem de descrever convenientemente tanto estados puros como estados mistos. Para um determinado instante de tempo t , o operador densidade pode ser escrito como (COHEN-TANNOUDJI; DIU; LALOE, 1978):

$$\rho(t) = \sum_k p_k |\psi_k(t)\rangle \langle \psi_k(t)|, \quad (3.3)$$

onde as propriedades da probabilidade p_k devem obedecer as seguintes relações: $\sum_k p_k = 1$ e $p_k \geq 0$.

Podemos ainda representar o operador densidade de um estado geral na seguinte forma:

$$\rho(t) = \sum_{ij} \langle \psi_i | \rho(t) | \psi_j \rangle | \psi_i \rangle \langle \psi_j | = \sum_{ij} \rho_{ij}(t) | \psi_i \rangle \langle \psi_j |, \quad (3.4)$$

onde $|\psi_i\rangle$ representa um estado puro qualquer e $\rho_{ij}(t) = \langle \psi_i | \rho(t) | \psi_j \rangle$ são os elementos de matriz do operador densidade. Têm-se ainda que este operador é hermitiano, ou seja: $\rho_{ij} = \rho_{ji}^*$.

Em um sistema descrito por um estado puro, é importante observar que $p_k = 1$ para algum estado $|\psi_k(t)\rangle$, e $p_k = 0$ para todos os outros estados. Assim, o operador densidade correspondente à superposição (3.1) é dado por:

$$\begin{aligned} \rho(t) &= |\psi_k(t)\rangle \langle \psi_k(t)| = \sum_{kk'} c_k(t) c_{k'}(t) |\psi_k\rangle \langle \psi_{k'}| \\ &= \sum_k |c_k(t)|^2 |\psi_k\rangle \langle \psi_k| + \sum_{k \neq k'} c_k(t) c_{k'}(t) |\psi_k\rangle \langle \psi_{k'}|. \end{aligned} \quad (3.5)$$

É importante salientar que um estado puro descrito pela combinação linear (3.1),

exibe efeitos de interferência que existem devido à presença de termos cruzados do tipo $c_k(t)c_{k'}(t)$, que por sua vez aparecem nos elementos fora da diagonal da matriz densidade quando escritos na base $|\psi_k\rangle$. No estado totalmente misto, somente os elementos diagonais da matriz densidade são diferentes de zero. O elemento diagonal ρ_{ii} corresponde a probabilidade de encontrar o sistema no estado $|\psi_i\rangle$. Por esta razão, ρ_{ii} é chamado de população do estado $|\psi_i\rangle$ (SCULLY; ZUBAIRY, 2001). Os elementos não-diagonais ρ_{ij} , expressam os efeitos de interferência entre os estados $|\psi_i\rangle$ e $|\psi_j\rangle$, e são chamados de coerências.

Como consequência das propriedades de p_k e da condição de normalização do vetor de estado $|\psi_k(t)\rangle$, temos que o operador densidade para um estado puro ou misto cumpre a seguinte relação:

$$\text{Tr}\rho(t) = \sum_i \rho_{ii}(t) = 1, \quad (3.6)$$

onde $\text{Tr}\rho(t)$ é denotado como o traço de $\rho(t)$, que é a soma dos elementos diagonais da matriz densidade.

Usando a notação matricial de ρ , expressa através da equação (3.4), o valor médio de um observável \mathcal{O} pode ser escrito como:

$$\langle \mathcal{O} \rangle = \text{Tr}[\rho(t)\mathcal{O}]. \quad (3.7)$$

Desta forma, temos que, utilizando a equação (3.5), o valor médio de \mathcal{O} sobre um estado puro é dado por:

$$\langle \mathcal{O} \rangle_{puro} = \sum_{ij} c_i c_j^* \mathcal{O}_{ji}. \quad (3.8)$$

No caso de uma mistura estatística total, temos que o valor esperado do operador \mathcal{O} é da seguinte forma:

$$\langle \mathcal{O} \rangle_{misto} = \sum_i p_i \mathcal{O}_{ii}. \quad (3.9)$$

É possível calcular também, o traço do quadrado do operador densidade. Esta medida será importante para verificar se o sistema se encontra em um estado puro ou em um estado misto. Para um estado puro no qual o operador densidade é um operador projetor, temos que

$$\rho^2(t) = |\psi_k(t)\rangle\langle\psi_k(t)|\psi_k(t)\rangle\langle\psi_k(t)| = \rho(t). \quad (3.10)$$

Da equação acima podemos então concluir que $\text{Tr}\rho^2(t) = \text{Tr}\rho(t) = 1$. Já em uma mistura estatística, temos que $\text{Tr}\rho^2(t) = \sum_i p_i^2 < 1$. Desta forma, temos que esta magnitude

pode ser utilizada como um critério para identificar o estado como puro ou misto. Desta forma, o operador densidade nos permite extrair toda a informação sobre o sistema, esteja ele num estado puro ou misto.

A dinâmica do vetor de estado do sistema em um estado puro pode ser descrita através da equação de Schrödinger. É possível ainda, determinar a evolução temporal do operador densidade associado a este estado descrito pela equação (3.5). A partir da equação de Schrödinger, é possível obter (IMAMOGLU; YAMAMOTO, 1999):

$$\begin{aligned}\frac{d\rho(t)}{dt} &= \left(\frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle \right) \langle \psi(t)| + |\psi(t)\rangle \left(\frac{d}{dt} \langle \psi(t)| \right) \\ &= -\frac{i}{\hbar} H(t) |\psi(t)\rangle \langle \psi(t)| + \frac{i}{\hbar} |\psi(t)\rangle \langle \psi(t)| H(t) \\ &= -\frac{i}{\hbar} [H(t), \rho(t)],\end{aligned}\quad (3.11)$$

onde $[H(t), \rho(t)]$ é o comutador¹ de H e ρ . A equação (3.11) é conhecida como equação de Liouville-von Neumann, e pode ser mostrado que para estados puros a evolução temporal pode ser descrita de forma equivalente tanto por esta equação, quanto pela equação de Schrödinger.

Em uma mistura estatística, a evolução temporal do operador densidade é descrita por uma equação diferencial composta de duas partes: uma parte unitária que é dada pelo comutador usual expresso na equação de Liouville-von Neumann (3.11) e uma outra parte não-unitária associada aos processos dissipativos decorrentes do acoplamento do sistema com o seu meio externo. A evolução temporal do operador densidade $\rho(t)$ associado a um sistema aberto poderá ser vista com mais detalhes posteriormente.

3.1.1 Traço parcial

Consideremos agora um sistema composto formado por dois ou mais subsistemas físicos distintos, A e B respectivamente. No caso de um sistema quântico aberto, o sistema total é composto pelo sistema de interesse e pelo ambiente ao seu redor. Dentre as principais aplicações do operador densidade está a utilização desse formalismo na descrição de uma das partes do sistema composto, através do operador densidade reduzido (NIELSEN, 2000). Seja um estado arbitrário de um sistema quântico bipartite (um sistema dividido em duas partes), cujo operador densidade é ρ_{AB} . O operador densidade ρ_A do subsistema A é obtido por meio da operação de traço parcial sobre o subsistema B da

¹O comutador de dois operadores \mathcal{O}_1 e \mathcal{O}_2 , é definido por: $[\mathcal{O}_1, \mathcal{O}_2] = \mathcal{O}_1 \mathcal{O}_2 - \mathcal{O}_2 \mathcal{O}_1$.

matriz densidade do sistema total AB . Assim, temos que:

$$\rho_A = \text{Tr}_B(\rho_{AB}). \quad (3.12)$$

Portanto, o operador densidade reduzido fornece informações para as medidas realizadas sobre o subsistema A se o operador densidade do sistema global ρ_{AB} for conhecido.

3.1.2 Transposição parcial

Uma outra ferramenta associada ao operador densidade de um sistema composto, é sua transposição parcial. Suponhamos um operador densidade geral de um sistema bipartite AB ,

$$\rho_{AB} = \sum_{i,j,k,l} c_{i,j,k,l} |i_A, j_B\rangle \langle k_A, l_B|,$$

sendo $|i_A, j_B\rangle = |i_A\rangle \otimes |j_B\rangle$ uma base que pertence ao espaço de Hilbert composto $\mathcal{H}_A \otimes \mathcal{H}_B$, que constituem estados produtos de cada um dos subsistemas. Desta forma, $(\rho_{AB})^{TA}$ denota-se a transposta parcial de ρ_{AB} com relação ao subsistema A , onde seus elementos de matriz são definidos como (ZYCZKOWSKI et al., 1998):

$$\langle i_A, j_B | (\rho_{AB})^{TA} | k_A, l_B \rangle = \langle k_A, j_B | \rho_{AB} | i_A, l_B \rangle. \quad (3.13)$$

A operação de transposição parcial corresponde à transposição dos índices de matriz associados somente ao sistema A . É importante ressaltar que a norma do traço de qualquer operador hermitiano O é $\|O\|_1 = \text{Tr}\sqrt{O^\dagger O}$ é igual a soma dos valores absolutos dos autovalores de O . Para operadores de matriz densidade como ρ_{AB} , todos os autovalores são positivos e assim $\|\rho_{AB}\|_1 = \text{Tr}\rho_{AB} = 1$. Já o operador $(\rho_{AB})^{TA}$, apesar de também ser um operador hermitiano que satisfaz a condição $\text{Tr}[(\rho_{AB})^{TA}] = 1$, é um operador positivo semi-definido² somente se ρ_{AB} é uma matriz separável, ou seja, $\rho_{AB} = \sum_i p_i \rho_A^i \otimes \rho_B^i$.

3.1.3 Decomposição de Schmidt

A decomposição de Schmidt é baseada no teorema dado abaixo e pode ser usada como uma ferramenta bastante útil para detectar correlações quânticas entre estados puros bipartites (VEDRAL, 2006).

Teorema: Dado um estado $|\psi_{AB}\rangle \in \mathcal{H} = \mathcal{H}_A \otimes \mathcal{H}_B$ que represente um estado puro

²Um operador O é positivo semi-definido se seus autovalores são não negativos.

de um sistema bipartite, podemos sempre encontrar estados ortonormais $|i\rangle_A$ para o subsistema A e $|i\rangle_B$ para o subsistema B , tal que:

$$|\psi_{AB}\rangle = \sum_i^n \lambda_i |i\rangle_A |i\rangle_B, \quad (3.14)$$

onde $n = \min\{\dim\mathcal{H}_A, \dim\mathcal{H}_B\}$, e λ_i são números reais não negativos que satisfazem à condição $\sum_i \lambda_i^2 = 1$. Eles são conhecidos como coeficientes de Schmidt.

Uma consequência da decomposição de Schmidt é o fato de que se o sistema global é um estado puro, os autovalores dos operadores densidades reduzidos de cada subsistemas são os mesmos. Podemos obter as matrizes reduzidas $\rho_{A(B)}$ do estado puro dado na equação (3.14), através da operação traço parcial (3.12). Desta forma temos que: $\rho_A = \sum_i \lambda_i^2 |i\rangle_A \langle i|$ e $\rho_B = \sum_i \lambda_i^2 |i\rangle_B \langle i|$, apresentando autovalores idênticos λ_i^2 . Muitas propriedades quânticas de um sistema podem ser obtidas por meio de seus autovalores. Assim, neste caso tais propriedades serão as mesmas para ambos subsistemas.

4 *Hamiltoniano para transições ópticas em pontos quânticos*

Neste capítulo nós discutiremos a interação da radiação eletromagnética com o ponto quântico. Nós apresentaremos a teoria semiclássica, onde consideraremos o ponto quântico como um sistema quântico de dois níveis interagindo com o campo eletromagnético, tratado classicamente. Considerando a aproximação de dipolo e aproximação de onda girante (do inglês *Rotating wave approximation - RWA*), que serão mostradas com mais detalhes neste capítulo, nós obteremos o Hamiltoniano de interação que descreve apropriadamente a interação de dipolo elétrico entre as transições ópticas em pontos quânticos.

4.1 Hamiltoniano de interação

Consideremos um campo eletromagnético que interage com um elétron de Bloch. O campo pode ser completamente descrito pelo potencial vetor $\vec{A}(\vec{r}, t)$ e o potencial escalar $\phi(\vec{r}, t)$. Por simplicidade escolhemos o gauge de Coulomb $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$ e $\phi = 0$. Dessa forma o campo elétrico e magnético podem ser escritos como: $\vec{E} = -\partial \vec{A} / \partial t$ e $\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$. Nessas condições o potencial vetor \vec{A} pode ser obtido das equações de Maxwell como uma onda plana de frequência ω :

$$\vec{A} = \vec{\epsilon} A_0 \exp \left[i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) \right] + cc, \quad (4.1)$$

onde o potencial vetor pode ser escrito como $A_0 \vec{\epsilon}$, sendo $\vec{\epsilon}$ o estado de polarização de \vec{A} , os vetores \vec{k} e \vec{r} são o vetor de onda e a posição do elétron. Também podemos verificar a relação $\vec{k} \cdot \vec{\epsilon} = 0$, comprovando que a polarização do potencial vetor (e consequentemente do campo elétrico) é perpendicular à direção de propagação das ondas.

O efeito da força de Lorentz pode ser completamente descrito fazendo $\vec{p} \rightarrow \vec{p} - q\vec{A}$. Assim, o hamiltoniano de um elétron em presença de radiação eletromagnética pode ser

escrito como:

$$H = (\vec{p} - e\vec{A})^2/2m + V(\vec{r}). \quad (4.2)$$

Se considerarmos que a intensidade do campo eletromagnético seja suficientemente pequena para ignorar os termos quadráticos A^2 podemos escrever o hamiltoniano (4.2) como:

$$H = (\vec{p})^2/2m + V(\vec{r}) - (e/m)\vec{A} \cdot \vec{p}, \quad (4.3)$$

onde o último termo descreve a interação entre um elétron e um campo de radiação eletromagnético. Definimos assim o hamiltoniano de interação como:

$$H_{int} = -(e/mc)\vec{A} \cdot \vec{p}. \quad (4.4)$$

Uma forma alternativa deste hamiltoniano de interação, frequentemente encontrada na literatura, é $H_{int} = -e\vec{r} \cdot \vec{E}$, onde \vec{r} é o vetor posição e \vec{E} o campo elétrico aplicado. Esta última equação é equivalente à equação (4.4) no limite de pequenos vetores de onda \vec{k} , aproximação que é conhecida como aproximação do dipolo elétrico (GERRY; KNIGHT, 2005), que será discutida posteriormente neste capítulo.

Particularmente, estudaremos agora a probabilidade de transição de um elétron na banda de valência (com energia E_v e vetor de onda \vec{k}_v) para a banda de condução (com energia E_c e vetor de onda \vec{k}_c). Estes tipos de transições são conhecidas como transições inter-bandas. Para simplificar a discussão consideremos apenas o processo de absorção, e que o efeito do campo eletromagnético é perturbativo e descrito pela regra de ouro de Fermi¹ (SAKURAI, 1967).

A integração temporal da probabilidade de transição fornece a conservação da energia $E_c(\vec{k}_c) - E_v(\vec{k}_v) = \hbar\omega$ que representa a absorção de um fóton em um semicondutor, sob a influência de um campo eletromagnético externo.

Para avaliar o elemento de matriz

$$\langle c | H_{int} | v \rangle = (e/mc) \langle c | \vec{A} \cdot \vec{p} | v \rangle, \quad (4.5)$$

podemos escrever as funções de Bloch na banda de condução e na banda de valência como: $|c\rangle = u_{c,\vec{k}_c} \exp(i\vec{k}_c \cdot \vec{r})$ e $|v\rangle = u_{v,\vec{k}_v} \exp(i\vec{k}_v \cdot \vec{r})$, respectivamente. O cálculo detalhado desse elemento de matriz é extenso e se encontra feito em detalhes por exemplo na referência (YU; CARDONA, 2003). No entanto, devemos mencionar alguns aspectos

¹Na regra de ouro de Fermi a probabilidade de encontrar o sistema no estado final é: $P_{if}(t) \sim |\int_0^t e^{\omega_{fi}t'} W_{fi}(t') dt'|^2$, onde $\omega_{fi} = (E_f - E_i)/\hbar$ e $W_{fi} = \langle f | W | i \rangle$, são os elementos de matriz da perturbação W .

importantes que se desprendem do cálculo: i) A integração espacial da equação (4.5) fornece a conservação do momento: $\vec{k}_c - \vec{k}_v = \vec{q}$ para o processo de absorção e emissão de um fóton, respectivamente. Essa lei de conservação é consequência direta da simetria de translação do cristal e portanto, válido para todos os cristais perfeitos. ii) A aplicação da aproximação de dipolo elétrico, que consiste em assumir a radiação com vetores de onda \vec{k} pequenos (tipicamente na região do visível $\lambda \sim 500$ nm) comparados com a extensão espacial das funções de ondas dos portadores, permite expandir a função de Bloch em uma série de Taylor² em \vec{k} , de onde podemos concluir que: $\vec{k}_v \approx \vec{k}_c$.

Assim, em semicondutores as transições ópticas são conhecidas como transições verticais ou diretas. Na aproximação do dipolo elétrico podemos escrever

$$\begin{aligned} \langle c | H_{int} | v \rangle &= (e/mc) A_0 \langle c | \vec{\epsilon} \cdot \vec{p} | v \rangle \\ &= (e/mc) A_0 \int u_{c,\vec{k}}^* \vec{\epsilon} \cdot \vec{p} u_{v,\vec{k}} d\vec{r} \end{aligned} \quad (4.6)$$

A última integral na equação (4.6) praticamente não depende de \vec{k} , e pode ser substituída por uma constante P_{cv} . Assim temos,

$$\langle c | H_{int} | v \rangle = (e/mc) A_0 P_{cv} = \hbar \Omega_{cv},$$

onde Ω_{cv} caracteriza a intensidade do acoplamento óptico na transição $|v\rangle \rightarrow |c\rangle$. É importante mencionar que a aproximação de dipolo elétrico é equivalente a expandir o termo $\exp i\vec{q} \cdot \vec{r}$ do potencial vetor \vec{A} em série de Taylor: $1 + i(\vec{q} \cdot \vec{r}) + \dots$ e negligenciar todos os termos proporcionais a \vec{q} , dessa forma o caráter vertical das transições ópticas é obtido também de forma automática.

Apesar de termos usado como exemplo transições inter-bandas, o formalismo anterior é válido para quaisquer estados de Bloch. Em geral, os elementos de matriz da transição óptica $\langle j | \vec{\epsilon} \cdot \vec{p} | i \rangle$ determinam as regras de seleção para transições inter-bandas e intra-bandas, já que conectam a polarização da radiação incidente com as propriedades de simetria das funções de onda eletrônicas. Por exemplo, os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$ devem ter paridades opostas para que o elemento de matriz seja diferente de zero. Se os estados envolvidos na transição são autoestados do momento angular $|jm\rangle$ as regras $\Delta j = \pm 1$ e $\Delta m = 0, \pm 1$ devem ser satisfeitas.

Considerando estados de Bloch $\{|k\rangle\}$, podemos representar o operador de interação

²Considerando a conservação do momento, $u_{c,\vec{k}_v + \vec{k}} = u_{c,\vec{k}_v} + \vec{k} \cdot \vec{\nabla}_k u_{c,\vec{k}_v} + \dots$, negligenciando termos proporcionais a \vec{k} temos que $u_{c,\vec{k}_c} \approx u_{c,\vec{k}_v}$.

H_{int} da seguinte forma:

$$H_{int} = (e/mc) \sum_{ij} |i\rangle\langle i| \vec{A} \cdot \vec{p} |j\rangle\langle j|.$$

Por simplicidade, podemos considerar na somatória apenas dois estados de Bloch: $|i\rangle$ e $|j\rangle$, onde $|i\rangle$ representa um estado fundamental e $|j\rangle$ um estado excitado. Desta forma, incluindo as transições ópticas associadas à emissão e absorção de um fóton, temos que:

$$H_{int} = \hbar(\Omega_{ij}e^{i\omega t} + \tilde{\Omega}_{ij}e^{-i\omega t})|i\rangle\langle j| + \hbar(\tilde{\Omega}_{ji}^*e^{i\omega t} + \Omega_{ji}^*e^{-i\omega t})|j\rangle\langle i|, \quad (4.7)$$

onde $\hbar\Omega_{ij} = (e/mc)A_0P_{ij}$ e $\hbar\tilde{\Omega}_{ij} = (e/mc)A_0^*P_{ij}$ representa a intensidade do acoplamento óptico entre os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$.

Na equação 4.7 há alguns termos que não conservam energia, como por exemplo o termo $\hbar\tilde{\Omega}_{ji}^*e^{i\omega t}|j\rangle\langle i|$, que descreve um processo de emissão de um fóton combinado com a transição do estado $|i\rangle$ para o estado excitado $|j\rangle$. Estes termos conhecidos na literatura como contra-girantes podem ser desprezados do hamiltoniano de interação quando $\omega \approx |E_j - E_i|/\hbar$. Esta aproximação, é chamada de aproximação de onda girante (RWA) (PURI, 2001) e consiste em manter os termos do hamiltoniano (4.7) que contribuem apreciavelmente na média temporal no período óptico associado ao sistema, $T = 2\pi/\Omega_{ji}$.

Por fim, o hamiltoniano de interação H_{int} considerando a aproximação RWA, pode ser escrito como:

$$H_{int} = \hbar\Omega_{ij}e^{i\omega t}|i\rangle\langle j| + \Omega_{ji}^*e^{-i\omega t}|j\rangle\langle i|, \quad (4.8)$$

onde Ω_{ij} é também conhecida como frequência de oscilação de Rabi (SCULLY; ZUBAIRY, 2001). De uma maneira geral o Hamiltoniano (4.8) nos permite portanto analisar satisfatoriamente a influência de uma onda eletromagnética incidente sobre o sistema quântico de interesse.

5 *Processos de Decoerênci a e Equação mestra*

Neste capítulo iremos discutir alguns processos de decoerênci a em pontos quânticos semicondutores, devido ao acoplamento do sistema com o ambiente ao seu redor. Em nosso modelo consideramos como principais fontes de decoerênci a o decaimento radioativo e processos de *dephasing* puro, que resultarão por sua vez no decaimento da coerênci a quântica opticamente induzida dos estados excitônicos. Afim de incluir os mecanismos dissipativos na dinâmica dos estados de éxcitons utilizaremos a equação mestra na forma de Lindblad, que será apresentada de forma detalhada neste capítulo.

5.1 Decoerênci a

Em um sistema físi co realístico, a interação com o meio que o cerca implicará mecanismos dissipativos que provocarão em princípio, a perda de sua coerênci a. Desta forma, é necessário investigarmos os efeitos do ambiente sobre a dinâmica do sistema. Diferentemente de um sistema fechado, a dinâmica de um sistema aberto é em geral não-unitária¹, requerendo assim uma descrição apropriada que inclua os efeitos de decoerênci a.

Em sistemas de estado sólido, o acoplamento com o ambiente ao seu redor como por exemplo, a interação com fônon s presentes na rede da nanoestrutura pode, em princípio, resultar no decaimento da coerênci a quântica opticamente induzida dos estados excitônicos. Esses processos são globalmente conhecidos como processos de *dephasing* e podem ocorrer devido à relaxação de energia associada ao decaimento espontâneo da população (*dephasing* inelástico), e a processos de *dephasing* puro. Estes por sua vez são mecanismos que induzem a perda da correlação de fase entre estados preparados como uma superposição coerente, sem envolver mudança de população ou relaxação de energia. Desta forma,

¹Em um sistema fechado a evolução do operador densidade $\rho(t)$ pode ser descrita através de um operador unitário da seguinte forma: $\rho(t) = U\rho(0)U^\dagger$, sendo $\rho(0)$ o operador densidade inicial do sistema. Quando o sistema é aberto, não há um operador unitário U que descreva a dinâmica do mesmo.

temos que a taxa de *dephasing* total é resultado da soma da taxa associada a processos de *dephasing* puro e da contribuição de $\Gamma/2$ correspondente à taxa de decaimento de população (Γ). No regime de baixas temperaturas, a interação entre excitons e fônlons em pontos quânticos não é dominante, assim o processo de *dephasing* é causado principalmente pela recombinação radiativa do par elétron-buraco (TAKAGAHARA, 2003). Porém no contexto de moléculas de pontos quânticos, Borri *et al.* demonstraram que o acoplamento entre os portadores confinados em pontos quânticos adjacentes influencia o tempo de coerência do exciton, que podem ser descritos como processos de *dephasing* puro (BORRI et al., 2003). Especificadamente, em pontos quânticos auto-formados do tipo III-V no qual estamos interessados, estados excitônicos apresentam um tempo de recombinação radiativo de aproximadamente 1.0 ns (VILLAS-BOÃS; ULLOA; GOVOROV, 2007).

Teoricamente o ambiente externo pode ser considerado como um sistema com número infinito de graus de liberdade, que por sua vez, pode ser usualmente considerado como um reservatório térmico. Contudo, estamos interessados na evolução do sistema e para isso, é necessário obter uma equação que governe a dinâmica do sistema analisado e inclua o efeito do reservatório sobre ele. Com este intuito, na seguinte seção discutiremos aspectos básicos da equação mestra na forma de Lindblad que, por sua vez fornece a evolução temporal da matriz densidade associada ao sistema de interesse.

5.2 Equação mestra

Ao incidir uma radiação eletromagnética ressonante a um sistema de dois níveis será criada uma população eletrônica no estado excitado que tende a relaxar através de processos de emissão espontânea. Isto ocorre devido ao acoplamento do sistema com os modos do campo de radiação no vácuo em equilíbrio térmico a uma temperatura T , de tal modo que o campo eletromagnético pode ser descrito como um reservatório de j osciladores harmônicos com frequências iguais a ω_j .

Consideremos assim, que o hamiltoniano total correspondente ao sistema acoplado ao reservatório é dado por:

$$H_{S+R} = H_S + H_R + H_{SR}, \quad (5.1)$$

onde: H_S é o hamiltoniano associado ao sistema de interesse, H_R é o hamiltoniano do reservatório e H_{SR} corresponde à interação entre o reservatório e o sistema.

A evolução temporal do operador densidade do *sistema+reservatório* $\rho_{SR}^{(I)}(t)$, na representação de interação, é descrita como (COHEN-TANNOUDJI; DUPONT-ROC; GRYN-

BERG, 2004):

$$\frac{d}{dt}\rho_{SR}^{(I)} = -\frac{i}{\hbar} [H_{SR}, \rho_{SR}^{(I)}]. \quad (5.2)$$

Através da operação de traço parcial é possível obter o operador densidade reduzido do sistema a partir do $\rho_{S+R}^{(I)}(t)$, tomando o traço parcial Tr_R sobre todas as variáveis do reservatório, ou seja:

$$\rho_S^{(I)}(t) = \text{Tr}_R \rho_{SR}^{(I)}(t), \quad (5.3)$$

onde $\rho_S^{(I)}(t)$ é o operador densidade apenas do sistema de interesse, escrito na representação de interação.

Da equação (5.2), temos que:

$$\rho_{SR}^{(I)}(t) = \rho_T^{(I)}(0) - \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' [H_{SR}^{(I)}(t'), \rho_{SR}^{(I)}(t')]. \quad (5.4)$$

Assim, substituindo a equação (5.4) na equação (5.2), temos que o operador densidade para o sistema de interesse é:

$$\frac{d}{dt}\rho_S^{(I)}(t) = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^t dt' \text{Tr}_R [H_{SR}^{(I)}(t), [H_{SR}^{(I)}(t'), \rho_{SR}^{(I)}(t')]], \quad (5.5)$$

onde assumimos que $\text{Tr}_R [H_{SR}^{(I)}(t), \rho_S^{(I)}(0)] = 0$.

Para obtermos a equação mestra de um sistema acoplado a um reservatório, serão necessárias algumas hipóteses e aproximações. Nós assumiremos que no instante inicial ($t = 0$), o sistema e o reservatório são independentes, não estando correlacionados. Assim temos que ρ_{SR} pode ser escrito como o seguinte produto tensorial (SCHLOSSHAUER, 2007):

$$\rho_{SR}(0) = \rho_S(0) \otimes \rho_R. \quad (5.6)$$

Além disso, assumiremos que o acoplamento entre o sistema e o ambiente que o cerca é suficientemente fraco, e que o ambiente (que pode ser considerado como um reservatório com muitos graus de liberdade) é muito grande em comparação com o tamanho do sistema. Esta aproximação, conhecida como aproximação de Born (CARMICHAEL, 1991), assume que o operador densidade do ambiente ρ_R não muda significativamente como consequência de sua fraca interação com o sistema. Desta forma, o estado do *sistema+reservatório* permanece aproximadamente como um estado separável para todo tempo ($t \geq 0$), ou seja: $\rho_{SR}(t) \approx \rho_S(t) \otimes \rho_R$. Além disso, o Hamiltoniano de interação pode ser escrito na seguinte forma:

$$H_{RS}(t) = \hbar \sum_i S_i(t) \otimes R_i(t), \quad (5.7)$$

onde S_i e R_i são operadores do espaço de Hilbert do sistema e do reservatório respectivamente. É importante salientar que esta relação é válida também para estes operadores escritos na representação de interação.

Desta forma, temos que a equação mestra (5.5) na representação de interação é dada por:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_S^{(I)}(t) &= - \sum_{ij} \int_0^t dt' \left(S_i^{(I)}(t) S_j^{(I)}(t') \rho_S^{(I)}(t') - S_j^{(I)}(t') \rho_S^{(I)}(t') S_i^{(I)}(t') \right) \langle R_i^{(I)}(t) R_j^{(I)}(t') \rangle_R \\ &+ \left(\rho_S^{(I)}(t') S_j^{(I)}(t') S_i^{(I)}(t) - S_i^{(I)}(t) \rho_S^{(I)}(t') S_j^{(I)}(t) \right) \langle R_j^{(I)}(t') R_i^{(I)}(t) \rangle_R, \end{aligned} \quad (5.8)$$

onde $\langle R_i^{(I)}(t) R_j^{(I)}(t') \rangle_R = \text{Tr}_R \left(\rho_R R_i^{(I)}(t) R_j^{(I)}(t') \right)$ são as funções de auto-correlação do reservatório. As funções de auto-correlação representam a correlação entre o resultado de uma medida feita de um particular observável R_i e o resultado de uma medida do mesmo observável realizada em um tempo posterior. Desta forma, estas funções quantificam o grau de informação que o ambiente retém devido sua interação com o sistema.

Assumiremos aqui que qualquer correlação quântica dinamicamente estabelecida entre as variáveis internas do reservatório são destruídas em uma escala de tempo τ_{corr} muito menor do que a escala de tempo τ_S , associada à evolução do estado do sistema. Esta hipótese, $\tau_{corr} \ll \tau_S$, constitui a aproximação de Markov (PURI, 2001). De acordo com esta aproximação, existem duas escalas de tempo distintas: uma escala temporal lenta que corresponde à evolução do sistema S que quantifica a taxa de mudança do operador $\rho_S^{(I)}(t)$ e uma escala de tempo rápida associada ao rápido decaimento das funções de auto-correlação do ambiente. Esta aproximação implicará que as mudanças do operador $\rho_S^{(I)}(t)$ do sistema serão negligenciáveis durante o intervalo de tempo τ_{corr} , no qual as funções $\langle R_j^{(I)}(t') R_i^{(I)}(t) \rangle_R \propto \delta(t - t')$. Portanto, podemos simplificar a equação (5.5), substituindo $\rho_S^{(I)}(t')$ por $\rho_S^{(I)}(t)$ e deste modo cada passo do processo de evolução do sistema acoplado ao reservatório é independente de todos os eventos ocorridos em tempos anteriores. Deste modo, assumindo essas suposições, a equação mestra dada pela expressão (5.8) é uma equação local no tempo que fornece a dinâmica do sistema incluindo a influência do ambiente sobre a mesma. Os operadores $S_i(t)$ e $R_i(t)$ são quantidades conhecidas, que podem ser determinados pela forma do hamiltoniano do sistema investigado.

Através da transformação,

$$\rho_S^{(I)} = e^{iH_S t} \rho_S e^{-iH_S t},$$

sendo ρ_S o operador densidade do sistema escrito na representação de Schrödinger, a

equação mestra (5.8) pode ser reescrita na representação de Schrödinger de uma forma mais simplificada, dada por:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_S(t) = & -\frac{i}{\hbar}[H_S, \rho_S(t)] - \sum_{ij} \int_0^\tau d\tau (\mathcal{C}_{ij}(\tau) [S_i, S_j(-\tau)\rho_S(t)]) \\ & + (\mathcal{C}_{ji}(-\tau) [\rho_S(t)S_j(-\tau), S_i]). \end{aligned} \quad (5.9)$$

Nesta equação acima foi feita a substituição $t' \rightarrow \tau \equiv t - t'$ e, afim de simplifica-lá escrevemos as funções de auto-correlação do reservatório como: $\langle R_i(t')R_j(t) \rangle_R \equiv \mathcal{C}_{ij}(\tau)$.

5.3 Equação mestra na Forma de Lindblad

Equações mestras na forma de Lindblad pertencem a uma classe particular de equações mestras markovianas, que surgem por sua vez, da condição de positividade da matriz densidade do sistema para todo tempo t (SCHLOSSHAUER, 2007),

$$\langle \psi | \rho_S | \psi \rangle \geq 0, \quad (5.10)$$

onde $|\psi\rangle$ representa qualquer estado puro do sistema.

A forma mais geral da equação mestra que garante a condição de positividade (5.10), foi mostrada primeiramente por Lindblad (LINDBLAD, 1976),

$$\frac{d}{dt}\rho_S(t) = -\frac{i}{\hbar}[H_S, \rho_S(t)] + \frac{1}{2} \sum_{ij} \kappa_{ij} \left([S_i \rho_S(t), S_j^\dagger] + [S_i, \rho_S(t) S_j^\dagger] \right), \quad (5.11)$$

onde os coeficientes κ_{ij} são independentes do tempo e contém as informações sobre os parâmetros associados aos processos de decoerência induzidos pelo ambiente.

De maneira geral, a equação mestra escrita na forma de Lindblad (5.11) é um caso especial da equação mestra de *Born-Markov* (5.9), onde ambas se tornam equivalentes se a aproximação de onda girante é considerada. Neste caso, a aproximação de onda girante é justificada se a escala de tempo típica para a evolução do sistema é curta em comparação com a escala de tempo da relaxação do mesmo.

Considerando que os coeficientes κ_{ij} formam um matriz K , a expressão (5.11) pode ser simplificada do seguinte modo:

$$\frac{d}{dt}\rho_S(t) = -\frac{i}{\hbar}[H_S, \rho_S(t)] + L[\rho_S(t)], \quad (5.12)$$

com:

$$L(\rho_S) = 1/2 \sum_k \Gamma_k \left(2L_k \rho_S(t) L_k^\dagger - \rho_S(t) L_k^\dagger L_k - L_k^\dagger L_k \rho_S(t) \right),$$

onde, Γ_k são os autovalores da matriz K e L_k são combinações lineares dos operadores S_i .

Dentre os principais mecanismos de decoerência que afetam o tempo de coerência dos estados de excitons em pontos quânticos, considerando o limite de baixa temperatura, estão: recombinação radioativa e processos de *dephasing* puro (MICHLER, 2003).

Na ausência de interações com fôons e outros portadores que induzem canais de recombinação não-radioativa, o tempo de coerência de excitons é limitado pelo decaimento radioativo. O tempo de vida do estado excitônico é neste caso associado ao tempo de recombinação dos portadores e descreve o processo de relaxação entre o estado excitado $|1\rangle$ (que no nosso modelo corresponde ao estado de exciton) e o estado fundamental $|0\rangle$ (ausência do par elétron-buraco). Na forma de Lindblad, este canal de decaimento associado ao processo de emissão espontânea acarreta uma mudança na população de cada nível e é expresso da seguinte forma (CARMICHAEL, 1991):

$$L_{rec}(\rho_S) = \frac{\Gamma_{ij}}{2} (2\sigma_- \rho_S \sigma_+ - \sigma_+ \sigma_- \rho_S - \rho_S \sigma_+ \sigma_-). \quad (5.13)$$

Considerando o decaimento entre os dois níveis $|0\rangle$ e $|1\rangle$, os operadores $\sigma_+ = |1\rangle\langle 0|$ e $\sigma_- = |0\rangle\langle 1|$, e Γ_{ij} representa a taxa de decaimento entre os estados.

A interação dos portadores confinados no ponto quântico com outros portadores na barreira dos materiais semicondutores, assim como na *wetting layer*, pode resultar em processos de *dephasing* puro. Diferentemente do processo de recombinação entre os pares elétron-buraco, canais de *dephasing* puro estão presentes somente nos termos fora da diagonal da matriz densidade, afetando os termos associados à coerência do sistema, não envolvendo mudança nas populações dos níveis. O operador $L(\rho_S)$ que descreve este processo de decorência é dado por (LAUCHT et al., 2009):

$$L_{dp}(\rho_S) = \frac{\gamma_i}{2} (2\sigma_z \rho_S \sigma_z - \sigma_z \sigma_z \rho_S - \rho_S \sigma_z \sigma_z), \quad (5.14)$$

sendo γ_i representa a taxa de *dephasing* puro para cada um dos níveis.

6 Propriedades ópticas e processos de interferência quântica

Neste capítulo nós discutiremos os aspectos fundamentais da resposta óptica de um sistema quântico sob influência de radiação eletromagnética. Através da função de susceptibilidade óptica linear, obtida por meio da matriz densidade do sistema, investigaremos as propriedades ópticas e processos de interferência quântica em sistemas formados por pontos quânticos acoplados.

6.1 Função de susceptibilidade óptica linear

A polarização induzida é a resposta do meio, devido sua interação com a radiação eletromagnética e é definida como a resultante macroscópica da soma de todos os momentos de dipolos induzidos no meio. A polarização do meio na direção do vetor de polarização \hat{e} , é dada por:

$$P = \sum_i \langle \vec{\mu}_i \cdot \hat{e} \rangle / V, \quad (6.1)$$

onde V é o volume que limita a região de interação e $\vec{\mu}_i$ corresponde a cada momento de dipolo elétrico induzido nesta região.

De acordo com o formalismo de matriz densidade temos que o valor esperado do momento de dipolo é dado por $\langle \mu \rangle = \text{Tr}[\rho \mu]$. Deste modo, temos que a polarização induzida no meio pode ser escrita como:

$$P(t) = \eta \text{Tr}[\rho(t) \mu], \quad (6.2)$$

ou ainda,

$$P(t) = \eta \sum_i \langle i | \rho \mu | i \rangle = \eta \sum_{i,j} \rho_{ij}(t) \mu_{ji}, \quad (6.3)$$

onde, $\eta = N/V$ é densidade de portadores no meio.

Por exemplo, para um sistema quântico de dois níveis, escrito na base de estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$, temos que:

$$P(t) = \eta (\rho_{01}(t)\mu_{10} + \rho_{10}(t)\mu_{01}), \quad (6.4)$$

onde é importante lembrar que somente os elementos fora da diagonal da matriz do momento de dipolo, associados à transição óptica $|0\rangle \leftrightarrow |1\rangle$, são diferentes de zero.

Em geral, a polarização é escrita como um expansão em séries de potência do campo elétrico, onde aparecem termos não lineares. Contudo, estamos interessados aqui na incidência de campos eletromagnéticos pouco intensos em um meio isotrópico, no qual a polarização pode ser escrita como uma função linear do campo,

$$P(\omega_L) = \varepsilon_0 \chi(\omega_L) E(\omega_L), \quad (6.5)$$

onde ω_L é a frequência do laser incidente, ε_0 é a constante dielétrica do vácuo e $\chi = \chi_{Re}(\omega_L) + i\chi_{Im}(\omega_L)$ é uma função complexa denominada susceptibilidade óptica linear. A parte imaginária desta função $\chi_{Im}(\omega_L)$, descreve a absorção ocorrente no meio, enquanto a parte real $\chi_{Re}(\omega_L)$ está associada ao índice de refração, $n(\omega_L)$. Portanto, a susceptibilidade é a função na qual estamos interessados a fim de obtermos informações a respeito da interação do sistema com a radiação incidente.

Utilizando a transformada de Fourier, podemos escrever a polarização induzida $P(t)$ definida na equação (6.5) como função da polarização escrita no domínio de frequência ω_L , da seguinte forma:

$$P(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \varepsilon_0 \chi(\omega) E(\omega) e^{-i\omega t}, \quad (6.6)$$

onde $E(\omega)$ é a transformada de Fourier de $E(t)$. Assim, calculando a transformada de Fourier do campo, temos:

$$E(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) e^{i\omega t} = \frac{\pi E_0}{2} [\delta(\omega - \omega_L) + \delta(\omega + \omega_L)]. \quad (6.7)$$

Por fim, substituindo a equação (6.7) na equação (6.6), temos que a polarização induzida pelo feixe incidente é:

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi(\omega_L) \frac{E_0}{2} e^{i\omega_L t} + c.c \quad (6.8)$$

Comparando as equações (6.8) e (6.4), temos que a função $\chi(\omega_L)$ é diretamente pro-

porcional ao elemento de matriz ρ_{01} , ou seja:

$$\chi = 2 \frac{\mu_{10}}{\varepsilon_0 E_0} \tilde{\rho}_{01}(t), \quad (6.9)$$

sendo $\tilde{\rho}_{01}(t) = \rho_{01}(t)e^{-i\omega_L t}$. Na equação (6.9), a função χ está escrita em função de uma expressão dependente do tempo e é diretamente proporcional ao elemento da matriz densidade relacionado à coerência entre os níveis acoplados opticamente. Contudo, queremos obter a função susceptibilidade como função da frequência ω_L , quando o sistema de interesse alcança o estado de equilíbrio. Através da equação de Von-Neumann Lindblad (5.12) os elementos da matriz densidade podem ser calculados e considerando o regime estacionário, ou seja, $\dot{\rho}_{ij} \approx 0$ a função $\chi(\omega_L)$ é obtida, já que o elemento ρ_{01} pode ser determinado. A partir da função susceptibilidade $\chi(\omega_L)$, é possível descrever a dispersão e absorção de um meio isotrópico, submetido à incidência de um campo eletromagnético.

Nesta parte do capítulo iremos agora demonstrar a relação da função $\chi(\omega_L)$ com as propriedades ópticas do sistema. No contexto físico de pontos quânticos semicondutores, consideremos um fóton incidente com energia $\hbar\omega_L$ quase ressonante à energia associada ao estado de exciton fundamental. Desta forma, utilizaremos um campo eletromagnético cujo vetor de onda é paralelo à direção z ,

$$\vec{E}(z, t) = \vec{E}_0 e^{ikz - i\omega_L t} + c.c., \quad (6.10)$$

onde $k = \omega_L/c$ e c a velocidade da luz no vácuo. Para um meio homogêneo, na ausência de cargas ou corrente elétrica, temos das equações da Maxwell, a seguinte equação de onda eletromagnética:

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{D}(\vec{r}, t) = 0. \quad (6.11)$$

Calculando a transformada de Fourier da equação (6.11), obtemos a seguinte relação:

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, \omega_L) + \frac{\omega_L^2}{c^2 \varepsilon_0} \vec{D}(\vec{r}, \omega_L) = 0, \quad (6.12)$$

sendo $\vec{E}(\vec{r}, \omega_L)$ a transformada de Fourier do campo incidente e $\vec{D}(\vec{r}, \omega_L)$ o vetor de deslocamento elétrico.

O vetor de deslocamento elétrico pode ser expresso em termos da polarização induzida

e do campo elétrico da seguinte forma:

$$\begin{aligned}
 \vec{D}(\vec{r}, \omega_L) &= \varepsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, \omega_L) + P(\vec{r}, \omega_L) \\
 &= \varepsilon_0 (1 + \chi(\omega_L)) \vec{E}(\vec{r}, \omega_L) \\
 &= \varepsilon(\omega_L) \vec{E}(\vec{r}, \omega_L),
 \end{aligned} \tag{6.13}$$

onde, $\varepsilon(\omega_L) = \varepsilon_{Re}(\omega_L) + i\varepsilon_{Im}(\omega_L)$ é a função dielétrica no meio.

É importante salientar que, como mencionado na Seção 4.1, a aproximação de dipolo é válida para sistemas constituídos por pontos quânticos. Desta forma, a resposta óptica linear no sistema no qual estamos interessados (dada pela susceptibilidade $\chi(\omega_L)$), pode ser descrita independentemente do número de onda da radiação eletromagnética.

Assumindo que o campo eletromagnético apresenta-se na forma descrita pela equação (6.10), temos que a solução da equação de onda (6.12) é:

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega_L) = \vec{E}_0 e^{i(k(\omega_L) + i\kappa(\omega_L))z}, \tag{6.14}$$

onde o número de onda $k(\omega_L)$ descreve a dispersão da radiação no meio, enquanto o coeficiente de extinção $\kappa(\omega_L)$ descreve o decaimento exponencial da amplitude do campo incidente.

O índice de refração $n(\omega_L)$ é definido como a razão entre o número de onda dependente da frequência de excitação e o número de onda no vácuo, ou seja:

$$n(\omega_L) = \frac{ck(\omega_L)}{\omega_L}, \tag{6.15}$$

e o coeficiente de absorção $\alpha(\omega_L)$ é dado por:

$$\alpha(\omega_L) = 2\kappa(\omega_L). \tag{6.16}$$

O coeficiente de absorção determina o decaimento da intensidade da luz incidente, como pode ser verificado pela relação

$$I \propto |\vec{E}(z)|^2 = |\vec{E}_0|^2 e^{-\alpha(\omega_L)z}.$$

Inserindo agora as equações (6.13) e (6.14) na equação de onda (6.12), nós obtemos para as partes real e imaginária o seguinte sistema de equações:

$$k^2(\omega_L) - \kappa^2(\omega_L) = \left(\frac{\omega_L}{c}\right)^2 \frac{\varepsilon_{Re}(\omega_L)}{\varepsilon_0},$$

$$2k(\omega_L)\kappa(\omega_L) = \left(\frac{\omega_L}{c}\right)^2 \frac{\varepsilon_{Im}(\omega_L)}{\varepsilon_0}. \quad (6.17)$$

Desta forma, o coeficiente de absorção é dado por:

$$\alpha(\omega_L) = \frac{\omega_L \varepsilon_{Im}(\omega_L)}{\varepsilon_0 n(\omega_L) c} = \frac{\omega_L \chi_{Im}(\omega_L)}{n(\omega_L) c} \quad (6.18)$$

Em pontos quânticos InAs/GaAs, a frequência da onda incidente associada às transições ópticas fundamentais se encontra na região do infra-vermelho (MEIER; THOMAS; KOCH, 2007). Contudo, na maioria das vezes o índice de refração $n(\omega_L)$ é expressivo numa região energeticamente mais alta do que a energia do *gap* (E_g). Desta forma, para transições ópticas próximas da energia E_g , o índice de refração pode ser considerado independente da frequência da radiação ω_L .

Do sistema de equações (6.17), obtemos o índice de refração:

$$n(\omega_L) = \sqrt{\frac{1}{2} \left[\left(\frac{\varepsilon_{Re}(\omega_L)}{\varepsilon_0} \right) + \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_{Re}(\omega_L)}{\varepsilon_0} \right)^2 + \left(\frac{\varepsilon_{Im}(\omega_L)}{\varepsilon_0} \right)^2} \right]}, \quad (6.19)$$

onde as partes reais de $\varepsilon(\omega_L)$ e $\chi(\omega_L)$ estão relacionadas por:

$$\varepsilon_{Re}(\omega_L) = \varepsilon_0 (1 + \chi_{Re}(\omega_L))$$

A velocidade de grupo do pulso de luz propagante no meio pode ser obtida através do índice de refração da seguinte forma:

$$v_{gr} \equiv \left(\frac{d\omega_L}{dk} \right) = \frac{c}{n + \omega_L (dn/d\omega_L)}. \quad (6.20)$$

Notemos então, através da equação (6.20), que quanto maior a variação da curva de dispersão com a frequência do campo incidente, menor será a velocidade da luz no meio.

Como pode ser visto através das equações (6.18) e (6.19), a função susceptibilidade óptica linear nos permite então caracterizar completamente as propriedades ópticas do sistema devido à influência de um campo eletromagnético. Na próxima seção apresentaremos alguns efeitos ópticos que podem ser observados tanto em sistemas atômicos como em sistemas semicondutores baseados na interferência quântica entre os diferentes caminhos de excitação.

6.2 Fenômenos ópticos: interferência quântica

É bem estabelecido que interferência quântica entre caminhos definidos por estados quânticos opticamente excitados podem controlar a resposta óptica do sistema. Isto pode levar por exemplo, à supressão da absorção do laser incidente quando interferência entre diferentes caminhos é destrutiva. O fenômeno conhecido como transparência eletromagneticamente induzida (EIT), no qual a absorção do laser de prova é suprimida pela presença do laser de controle de alta intensidade, tem sido intensivamente investigado e demonstrado em sistemas atômicos e semicondutores (XU et al., 2007; MUCKE et al., 2010). Além disso, têm sido demonstrado nestes sistemas outros fenômenos ópticos tais como, tripletos de Mollow e dubletos de Autler-Townes (XU et al., 2009).

Neste trabalho estamos particularmente interessados no estudo teórico das propriedades ópticas de uma molécula de pontos quânticos, que é por sua vez, um ambiente propício e controlável para a observação deste tipo de fenômeno.

Processos de interferência quântica em sistemas de três níveis modelados por configurações do tipo Λ , V e cascata têm sido extensamente investigados, considerando a presença de dois campos eletromagnéticos. O efeito de transparência eletromagneticamente induzida, observado primeiramente por Harris *et al.* (HAU et al., 1990) em sistema atômicos, é baseado no fenômeno de aprisionamento coerente da população (do inglês *coherent population trapping* - CPT). Este fenômeno é comumente observado em sistemas formados por três níveis com configuração do tipo- Λ (Fig. 12), onde os dois estados de mais baixa energia, $|1\rangle$ e $|2\rangle$, estão acoplados opticamente por dois lasers diferentes a um estado excitado $|3\rangle$.

O fenômeno de CPT consiste em aprisionar o sistema em um estado no qual a amplitude de probabilidade do estado excitado $|3\rangle$ é zero, de tal forma que o estado do sistema é descrito por uma combinação linear dos estados fundamentais $|1\rangle$ e $|2\rangle$. Isto ocorre devido à interferência entre os caminhos ópticos $|1\rangle - |3\rangle$ e $|2\rangle - |3\rangle$.

O hamiltoniano que descreve o sistema de três níveis mostrado na Fig. 12, escrito seguindo o ordenamento de base $|1\rangle$, $|2\rangle$ e $|3\rangle$ é dado por (FLEISCHHAUER; IMAMOGLU; MARANGOS, 2005):

$$H = -\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_p \\ 0 & -2(\Delta_1 - \Delta_2) & \Omega_c \\ \Omega_p & \Omega_c & -2\Delta_1 \end{pmatrix}, \quad (6.21)$$

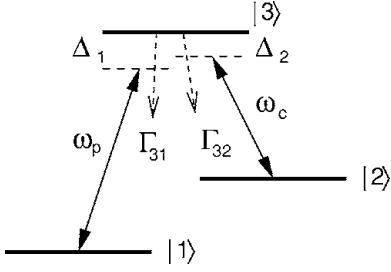


Figura 12: Sistema de três níveis modelado por uma configuração tipo- Λ no qual pode ser observado o fenômeno de CPT. As dessintonias entre o laser de prova (com frequência ω_p) e o laser de controle (com frequência ω_c) com as transições ópticas envolvidas, são representadas por Δ_1 e Δ_2 , respectivamente. As taxas de decaimento do estado excitado $|3\rangle$ para os estados fundamentais $|1\rangle$ e $|2\rangle$ são representadas por Γ_{31} e Γ_{32} . Esta figura foi retirada da referência (FLEISCHHAUER; IMAMOGLU; MARANGOS, 2005).

onde Ω_p é a frequência de Rabi do laser de prova, que acopla os estados $|1\rangle$ e $|3\rangle$, e Ω_c a frequência de Rabi do laser de controle, que acopla os estados $|2\rangle$ e $|3\rangle$. Os parâmetros Δ_1 e Δ_2 são as dessintonias associadas ao laser de prova e laser de controle respectivamente, em relação às transições ópticas envolvidas. Desta forma, considerando ainda a condição $\Delta_1 = \Delta_2 = \Delta$, temos que um dos autoestados deste sistema é:

$$|\lambda_0\rangle = \frac{\Omega_c}{\sqrt{\Omega_c^2 + \Omega_p^2}}|1\rangle - \frac{\Omega_p}{\sqrt{\Omega_c^2 + \Omega_p^2}}|2\rangle,$$

onde podemos verificar que a componente associada ao estado $|3\rangle$ não está presente. O sistema pode então evoluir para este estado, conhecido como estado escuro, através do bombeio óptico. O efeito de EIT constitui essencialmente um caso particular do CPT, onde a intensidade do laser de prova é muito menor do que a intensidade do laser de controle, $\Omega_p \ll \Omega_c$. Sob estas condições os autoestados dos sistemas são:

$$|\lambda_0\rangle = |1\rangle; \quad |\lambda_{\pm}\rangle = \frac{\Omega_c}{\sqrt{\Omega_c^2 + \Delta^2}}|2\rangle \pm \frac{\Delta}{\sqrt{\Omega_c^2 + \Delta^2}}|3\rangle. \quad (6.22)$$

Desta forma, os três níveis ilustrados na Fig. 12 acoplados pelos campos de prova e de controle podem ser descritos sob a condição de EIT, como os três estados vestidos (6.22). Assim, os caminhos de excitação óptica associados ao laser de prova, $|1\rangle - |\lambda_{+}\rangle$ e $|1\rangle - |\lambda_{-}\rangle$ podem interferir destrutivamente, resultando no cancelamento da absorção do laser de prova induzido pela presença do laser de controle. Na Fig. 13, é mostrado a significativa mudança na resposta óptica linear do sistema em relação a incidência do laser de prova. No painel superior é mostrado a parte imaginária da função χ , relacionada com a absorção, enquanto no painel inferior é mostrado a parte real de χ , associada ao índice de refração do meio, considerando diferentes valores de ω_p . Neste figura, é mostrado $\text{Im}[\chi]$ e $\text{Re}[\chi]$ em

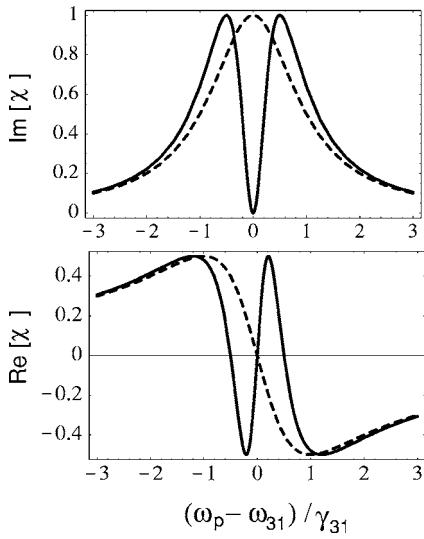


Figura 13: Susceptibilidade óptica linear χ como função da frequência do laser de prova ω_p , com relação à frequência da transição ω_{31} . As partes $\text{Im}[\chi]$ e $\text{Re}[\chi]$ associadas à absorção e dispersão do sistema em relação ao laser de prova respectivamente, são mostradas considerando o laser de controle desligado (linha pontilhada) e quando o mesmo está presente (linha sólida). Esta figura foi retirada da referência (FLEISCHHAUER; IMAMOGLU; MARANGOS, 2005).

duas situações distintas, quando $\Omega_c = 0$ (curva pontilhada) e quando o laser de controle está presente (linha sólida). Observamos que quando $\Omega_c = 0$ a parte imaginária da função susceptibilidade linear apresenta um perfil Lorentziano, cuja largura é proporcional à taxa de decaimento total γ_{31} , que tem por sua vez contribuições do decaimento radioativo (Γ_{31}) e de processos de *dephasing* puro (γ_3), $\gamma_{31} = \Gamma_{31}/2 + \gamma_3$. Quando o laser de controle é ligado $\Omega_c \neq 0$, nota-se que $\text{Im}[\chi] = 0$ na região de frequência onde o laser de prova é ressonante com transição óptica envolvida. Na região de frequência onde se esperava um pico na curva da absorção é observado um janela de transparência na qual o laser de prova não é mais absorvido. É importante notar que na mesma região em que o sistema é transparente ao feixe incidente, a parte real de função χ associada ao índice de refração experimenta uma mudança abrupta, acarretando na propagação de pulsos de luz com velocidades extremamente reduzidas em um meio altamente dispersivo. Como descrito na equação (6.20), a velocidade de grupo de um pulso propagante é inversamente proporcional à variação do índice de refração com a frequência do laser. Deste modo, quando o sistema se encontra sob o regime de EIT, é possível evidenciar o efeito de luz lenta. Hau *et al.* (HAU *et al.*, 1999) demonstraram experimentalmente EIT em um gás ultra-frio de átomos de sódio e reportou velocidade do pulso propagante de 17 m/s.

A largura da janela de transparência depende da razão Ω_c/γ_{31} . Quando $\Omega_c > \gamma_{31}$ o

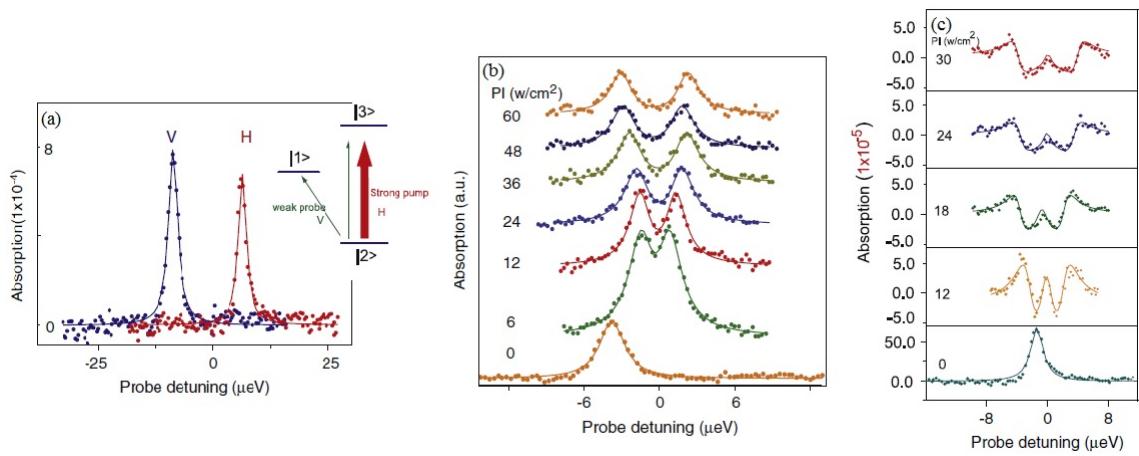


Figura 14: (a) Representação esquemática de um sistema de três níveis, no qual os estados $|1\rangle$ e $|3\rangle$ representam os estados de excitônio neutro formado em único ponto quântico, através da absorção de um pulso polarizado horizontalmente (Ω_{pump}) e um outro polarizado verticalmente (Ω_{probe}). Espectros de absorção evidenciando os dubletos de Autler-Townes (b) os tripletos de Mollow, para diferentes valores de intensidade do laser de controle (Ω_{pump}). Esta figura foi retirada da referência (XU et al., 2009).

espectro de absorção exibe ao invés de uma fina janela de transparência, dois picos bem definidos, onde a frequência de separação entre eles depende diretamente da intensidade do laser de controle. Usando a descrição de estados vestidos (equação 6.22), quando este regime de parâmetros é considerado ($\Omega_c > \gamma_{13}$), os caminhos ópticos associados ao laser de prova passam a ser distinguíveis, e não existe mais EIT. Neste caso, o sistema está no regime de dubletos de Autler-Townes (YANG et al., 2005). No contexto de transições ópticas em um ponto quântico sob influência de campos eletromagnéticos com diferentes intensidades, foi demonstrado experimentalmente diferentes regimes ópticos no espectro de absorção. Variando alguns parâmetros como a intensidade ou a frequência dos lasers, Xu *et. al.* (XU et al., 2009) reportaram comportamentos do tipo dubletos de Autler-Townes e tripletos de Mollow no espectro de absorção de um ponto quântico duplo e inicialmente carregado por um elétron.

Na Fig. 14 são mostrados alguns dos resultados reportados por Xu *et al.*, onde os estados excitônicos formados em um ponto quântico neutro através da incidência de dois lasers polarizados horizontalmente e verticalmente acoplados ao estado fundamental (sistema sem excitações), constituem um sistema de três níveis com configuração tipo-V. Eles mostraram experimentalmente que variando a potência do laser de controle (denotado no artigo como *pump* laser) a separação entre os dubletos exibidos no espectro de absorção do laser de prova (denotado por *probe* laser) pode ser apropriadamente controlada, Fig. 14(b). Na Fig. 14(c), são exibidos no espectro de absorção tripletos de Mollow,

no qual a distância dos picos laterais em relação ao pico central é também controlado pela intensidade do laser de controle. Este regime foi obtido quando os dois lasers foram sintonizados em ressonância com a mesma transição óptica.

Fenômenos ópticos relacionados com processos de interferência quântica são tópicos de interesses nesta tese. Estamos particularmente interessados na resposta óptica de um sistema formado por dois pontos quânticos devido à incidência de radiação, na qual é possível modelar diversas configurações excitônicas. Nos capítulos 8 e 9 apresentamos nossos resultados relacionados com o fenômeno de transparência induzida, que foi por sua vez induzido pela presença do tunelamento entre os pontos quânticos.

7 *Emaranhamento quântico*

Correlações quânticas em sistemas compostos, como o emaranhamento, desempenham um papel fundamental em processamento quântico de informação. Neste capítulo focaremos nossa atenção apenas em sistemas bipartites e discutiremos as principais características e condições de estados emaranhados. Existem diversas formas de se quantificar o grau de emaranhamento entre dois subsistemas. Desta forma, apresentaremos as principais medidas de emaranhamento, considerando sistemas puros e mistos.

7.1 Estados emaranhados

A unidade básica da informação clássica é o bit, que por sua vez pode assumir somente dois valores, 0 ou 1. Devido ao princípio de superposição, um bit quântico ou qubit, diferente do bit clássico, pode ser escrito como uma combinação linear dos estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$, da seguinte forma: $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle = 1$. Os parâmetros α e β são números complexos que obedecem a condição de normalização, ou seja, $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ e, $|0\rangle$ e $|1\rangle$ são os estados que definem a base computacional em um espaço de Hilbert bidimensional. Consequentemente, o estado global de um sistema formado por dois qubits A e B pode ser escrito como uma combinação linear dos quatro estados da base do espaço de Hilbert $\mathcal{H}_A \otimes \mathcal{H}_B$: $|0_A 0_B\rangle$, $|0_A 1_B\rangle$, $|1_A 0_B\rangle$ e $|1_A 1_B\rangle$.

De uma forma geral, quando o princípio de superposição é aplicado a um sistema composto por mais de uma parte, podem surgir correlações quânticas entre os subsistemas que formam o estado global, de tal forma que seu estado não pode ser representado como uma mistura de estados puros fatoráveis de cada uma das partes constituintes. A principal diferença entre correlações clássicas e quânticas é que as clássicas podem ser geradas por operações locais realizadas em cada sistema individual e usando comunicações clássicas entre as partes. Em contrapartida, se um sistema quântico apresenta correlações quânticas, seu estado não pode ser construído via LOCC (Operações Locais e Comunicação Clássicas) (PENIO; VIRMANI, 2007). Na área de computação quântica,

correlações de natureza quântica possibilitam que tarefas computacionais desempenhadas por computadores quânticos superem exponencialmente a computação clássica conhecida. Neste contexto, o emaranhamento é uma fonte essencial no processamento quântico de informação, desempenhando um indispensável papel em algumas tarefas quânticas, tais como, teletransporte, criptografia quântica e codificação super densa (SPILLER, 1997).

Um estado é dito não-emaranhado ou separável, se o mesmo pode ser representado por uma combinação linear convexa (uma mistura estatística) de estados produtos. Dado um estado composto por N partes, o operador matriz densidade do sistema global definido no espaço de Hilbert $\mathcal{H} = \mathcal{H}_1 \otimes \mathcal{H}_2 \otimes \dots \otimes \mathcal{H}_N$, representa um estado separável se puder ser expresso por (VEDRAL, 2006):

$$\rho = \sum_i p_i \rho_A^i \otimes \rho_B^i \otimes \dots \otimes \rho_N, \quad (7.1)$$

onde ρ_N^i pertence ao estado de Hilbert \mathcal{H}_N e $\sum_i p_i = 1$. Se isto não acontece, o estado do sistema é dito emaranhado, e as propriedades dos sistemas constituintes estão correlacionados. Uma das primeiras formas de detecção de emaranhamento em estados puros bipartites foi através da decomposição de Schmidt (PRESKILL, 1998), descrita no capítulo 3 (Sec. 3.1.3). Este critério de separabilidade é baseado nos números de Schmidt λ_i , onde um estado é emaranhado se pelo menos dois dos coeficientes da decomposição de Schmidt são diferentes de zero. Exemplos de estados maximamente emaranhados de dois qubits, bem conhecidos na literatura são os estados de Bell (BENENTI; CASAT; STRINI, 2007),

$$|\phi_{\pm}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|00\rangle \pm |11\rangle),$$

$$|\psi_{\pm}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle \pm |10\rangle). \quad (7.2)$$

Estes estados não podem ser descritos como um produto tensorial dos estados individuais de cada um dos qubits e pertencem a uma classe especial de estados nos quais o emaranhamento é máximo. A partir do formalismo de matriz densidade, um estado é maximamente emaranhado se o operador densidade de cada um dos subsistemas (matriz densidade reduzida) é maximamente misturado, ou seja, considerando um sistema bipartite AB tem-se que: $\rho_{A(B)} = 1/d$, sendo d a dimensão de cada subsistema (GAO; FEI, 2008). É importante ressaltar que para sistemas bipartites, independente da dimensão d dos sistemas constituintes, sempre haverá uma classe de estados maximamente emaranhados. Como mencionado anteriormente, quando $d = 2$ o subsistema é denominado qubit

e de maneira geral um sistema de dimensão d são referidos como qudits. Considerando como exemplo um dos estados maximamente emaranhado de dois qubits, $|\phi_+\rangle$, temos que a matriz densidade do sistema global ρ_{AB} é dada por:

$$\rho_{AB} = |\phi_+\rangle\langle\phi_+| = \frac{|00\rangle\langle 00| + |00\rangle\langle 11| + |11\rangle\langle 00| + |11\rangle\langle 11|}{2}. \quad (7.3)$$

Calculando-se o traço parcial $\text{Tr}_{A(B)}[\rho_{AB}]$, obtemos a matriz densidade de cada sistema individual,

$$\rho_{A(B)} = \text{Tr}_{B(A)}[\rho_{AB}] = \frac{1}{2} (|0\rangle\langle 0| + |1\rangle\langle 1|). \quad (7.4)$$

Verificamos a partir deste simples exemplo que estas matrizes densidades representam uma mistura estatística máxima, onde apesar de termos informação completa sobre o estado do sistema global, o conhecimento a respeito de suas partes constituintes é nulo.

Como existem estados que são maximamente emaranhados, se torna necessário saber o quanto um estado é mais emaranhado que outro, já que o emaranhamento representa um recurso indispensável para a execução de algumas tarefas quânticas. Existem diversas formas de quantificar o grau de emaranhamento entre sistemas correlacionados, e algumas delas serão apresentadas de forma mais detalhadas na próxima seção.

7.2 Medidas de Emaranhamento

Um importante desafio na teoria de emaranhamento quântico é fornecer uma descrição propícia de como classificar e quantificar o grau de emaranhamento para cada tipo de sistema. Existem na literatura várias medidas de emaranhamento, porém algumas sem muito sentido físico ou que requerem métodos numéricos com grande exigência computacional. Para sistemas puros bipartites, o emaranhamento pode ser obtido pela entropia de emaranhamento primeiramente proposta por Bennett *et al.* (BENNETT *et al.*, 1996), que é por sua vez uma medida de emaranhamento bem estabelecida. Para o caso de dois qubits, Wootters propôs uma expressão analítica para o emaranhamento de formação calculado através de uma quantidade chamada *concurrence*, que permite quantificar o grau de emaranhamento para estados puros e mistos (WOOTTERS, 1998). Já para sistemas de dimensões arbitrárias ($d > 2$), medidas para estados mistos ainda não estão bem estabelecidas. Neste trabalho, utilizaremos uma medida conhecida como negatividade baseada no critério de transposição parcial positiva (PPT, do inglês *positive partial transposition*), introduzida por Vidal e Werner que permite a quantificação do grau de emaranhamento

para estados mistos com $d > 2$ (VIDAL; WERNER, 2002). Apresentaremos nesta seção as características e método de cálculo para cada uma das medidas de emaranhamento mencionadas.

Denotaremos $E(\rho)$ uma medida de emaranhamento qualquer de um sistema representado pela matriz densidade ρ . Dentre as principais condições que $E(\rho)$ deve apresentar estão (BRUB, 2002):

1. O emaranhamento de um sistema bipartite $E(\rho)$ é um mapa dos operadores de matriz densidade dentro dos números reais positivos.

$$\rho \rightarrow E(\rho) \in \mathbb{R}^+.$$

2. Se ρ_{AB} é separável então, $E(\rho_{AB}) = 0$.
3. O emaranhamento de um estado maximamente emaranhado entre dois qudits dado por:

$$|\psi_d^+\rangle = \frac{|0,0\rangle + |1,1\rangle + \dots + |d,d\rangle}{\sqrt{d}},$$

é $E(|\psi_d^+\rangle) = \log_2 d$.

4. Aplicando operações locais em ρ e usando comunicações clássicas (LOCC), o emaranhamento de ρ não pode aumentar, ou seja,

$$E(\Gamma_{LOCC}(\rho)) \leq E(\rho).$$

5. Dado dois operadores densidades ρ_1 e ρ_2 , tem-se que no limite de distância nula entre ρ_1 e ρ_2 a diferença entre os seus correspondentes emaranhamentos deve tender a zero,

$$E(\rho_1) - E(\rho_2) \rightarrow 0 \text{ para } \|\rho_1 - \rho_2\| \rightarrow 0.$$

6. Um certo número n de cópias idênticas do estado ρ , deve conter n vezes o emaranhamento de ρ ,

$$E(\rho^{\otimes n}) = nE(\rho).$$

7. O emaranhamento do estado produto de dois estados ρ_1, ρ_2 não deve ser maior do

que a soma do emaranhamento de cada um dos estados, ou seja,

$$E(\rho_1 \otimes \rho_2) \leq E(\rho_1) + E(\rho_2).$$

8. A medida de emaranhamento deve ser um função convexa,

$$E\left(\sum_i p_i \rho_i\right) \leq \sum_i p_i E(\rho_i).$$

É importante salientar que não está bem estabelecido na literatura se todas estas condições listadas acima são requeridas para uma boa medida de emaranhamento. Porém, qualquer medida de emaranhamento deve satisfazer as quatro primeiras condições (PLENIO; VIRMANI, 2007). Listaremos abaixo algumas medidas de emaranhamento já bem estabelecidas, que serão utilizadas nesta tese afim de quantificar o emaranhamento entre elétron e buraco confinados em pontos quânticos semicondutores acoplados.

Para estados puros bipartites a entropia de emaranhamento $E_E(\psi_{AB})$ é uma boa medida de emaranhamento, computada através da entropia de Von-Neumann $S(\rho_A)$, sendo ρ_A a matriz reduzida do subsistema A . A entropia de Von-Neumann de um estado quântico descrito pela matriz densidade ρ é definida como (NEUMANN, 1996):

$$S(\rho) \equiv -\text{Tr}(\log_2 \rho). \quad (7.5)$$

Se α_x são os autovalores de ρ , então a entropia de Von-Neumann pode ser reescrita como:

$$S(\rho) = -\sum_x \alpha_x \log_2 \alpha_x, \quad (7.6)$$

sendo $0 \log_2 0 \equiv 0$. A entropia de Von-Neumann descreve a falta de informação de alguma das componentes do sistema global ρ , e mede portanto, o quanto misturado está o estado quântico ρ . Desta forma, $S(\rho) = 0$ se ρ descreve um estado separável e $S(\rho) = 1$ se o estado é maximamente emaranhado. No caso de estados emaranhados puros as matrizes densidades reduzidas de cada subsistema obtidas a partir do traço parcial do estado global ρ_{AB} (equação 3.12), descrevem estados mistos. Estados puros não possuem correlações clássicas entre os subsistemas constituintes. Deste modo, qualquer correlação existente entre os subsistemas é de origem quântica.

Um estado quântico $|\psi_{AB}\rangle$, pode ser representado pela decomposição de Schmidt (3.14),

$$|\psi_{AB}\rangle = \sum_i^d \lambda_i |i\rangle_A |i\rangle_B.$$

Assim, as matrizes densidades parciais são diagonais na base de Schmidt,

$$\rho_A = |\psi_{AB}\rangle\langle\psi_{AB}| = \sum_i \lambda_i^2 |i\rangle_A\langle i|,$$

onde ρ_B é obtido de forma similar, já que os autovalores λ_i^2 são os mesmos para ambos subsistemas como explicado na seção (3.1.3). Bennett *et al.* (BENNETT et al., 1996) propuseram a entropia de emaranhamento, definida como a entropia de Von-Neumann (7.5) de ρ_A ou ρ_B , como uma maneira natural de parametrizar o emaranhamento de um estado puro emaranhado,

$$E_E(\psi_{AB}) = -\rho_A \log_2 \rho_A = -\rho_B \log_2 \rho_B = -\sum_i \lambda_i^2 \log_2 \lambda_i^2. \quad (7.7)$$

A quantidade E_E varia entre 0, para um estado separável e 1 para um estado bipartite maximamente emaranhado. É importante ressaltar que qualquer medida de emaranhamento deve se reduzir à entropia de emaranhamento quando o sistema for puro, e que para sistemas bipartites de d dimensões o valor máximo de E_E é $\log_2 d$.

Para estados mistos as definições de uma boa medida de emaranhamento são um pouco mais complexas, já que a medida deve discriminar correlações quânticas e clássicas existentes no estado do sistema. Existem várias medidas para estados mistos, porém aqui focaremos em algumas medidas algebricamente computáveis. Descreveremos abaixo com mais detalhes as seguintes medidas para estados mistos: o emaranhamento de formação E_F , que tem uma expressão bem definida para estados de dois qubits e que pode ser obtido através de *concurrence* $C(\rho)$, e a negatividade $\mathcal{N}(\rho)$ baseada no Critério de separabilidade de Peres-Horodecki ou transposição parcial (PERES, 1996). Além disso, apresentaremos uma medida de *concurrence* generalizada, *I-concurrence* que mede o grau de emaranhamento para estados puros com dimensões maiores que dois (RUNGTA et al., 2001).

Qualquer estado ρ pode ser decomposto como uma combinação de projetores descritos por estados puros, $\rho = \sum_i p_i |\psi_i\rangle\langle\psi_i|$. O emaranhamento de formação $E_F(\rho)$ é definido como a média da entropia de Von-Neumann das matrizes reduzidas dos estados puros $|\psi_i\rangle$, minimizado sobre todas as decomposições possíveis (VEDRAL et al., 1997), ou seja,

$$E_f(\rho) = \min \sum p_i S(|\psi_i\rangle\langle\psi_i|). \quad (7.8)$$

Com o intuito de desprezar as correlações clássicas presentes na mistura estatística, é necessária a minimização da média do emaranhamento dos estados puros. Deste modo, dentre todas as decomposições possíveis de ρ em estados puros é necessário computarmos

um valor que minimize a média dada na equação (7.8). Tem-se então um problema de minimização de considerável complexidade de cálculo.

Uma forma que pode ser facilmente computada para sistemas puros ou mistos de dois qubits, foi introduzida por Wootters, onde o emaranhamento de formação é dado pela seguinte expressão (HILL; WOOTTERS, 1997):

$$E_f = \mathcal{E}(C(\rho)) = H \left(\frac{1 - \sqrt{1 - C^2(\rho)}}{2} \right), \quad (7.9)$$

sendo: $\mathcal{E}(C(\rho))$ uma função monotonicamente crescente escrita como função da *concurrence* $C(\rho)$, que varia entre 0 e 1 e, $H(x) = -x \log_2 x - (1-x) \log_2(1-x)$ é a entropia binária de Shannon (NIELSEN, 2000). Esta fórmula de $\mathcal{E}(C(\rho))$ é bastante utilizada para calcular o grau de emaranhamento entre qubits e faz uso de uma transformação chamada *spin-flip*, que é por sua vez baseada na matriz de Pauli $\sigma_y = i(|\downarrow\rangle\langle\uparrow| - |\uparrow\rangle\langle\downarrow|)$. A base de estados $\{|\uparrow\rangle, |\downarrow\rangle\}$ está associada aos estados de um spin de uma partícula spin-1/2, que podem ser identificados como os estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$ do qubit. Assim, podemos agora definir a seguinte matriz densidade a partir de um estado geral ρ :

$$\tilde{\rho} = (\sigma_y \otimes \sigma_y) \rho^* (\sigma_y \otimes \sigma_y), \quad (7.10)$$

onde $\sigma_y \otimes \sigma_y$ é uma matriz anti-diagonal com elementos $\{-1, 1, 1, -1\}$ escrita no ordenamento da base $\{|\uparrow\uparrow\rangle, |\uparrow\downarrow\rangle, |\downarrow\uparrow\rangle, |\downarrow\downarrow\rangle\}$ e ρ^* denota o complexo conjugado de ρ .

De acordo com Wootters, a *concurrence* $C(\rho)$ é dada pela seguinte fórmula:

$$C(\rho) = \max\{0, \lambda_1 - \lambda_2 - \lambda_3 - \lambda_4\}, \quad (7.11)$$

onde λ_i são os autovalores, em ordem decrescente, da matriz hermitiana $R \equiv \sqrt{\sqrt{\rho}\tilde{\rho}\sqrt{\rho}}$. Alternativamente, λ_i são as raízes quadradas dos autovalores da matriz não hermitiana $\rho\tilde{\rho}$.

Estendendo esta medida de emaranhamento para estados puros, a *concurrence* pode ser escrita como:

$$C(\psi) = |\langle\psi|\tilde{\psi}\rangle|. \quad (7.12)$$

O estado $|\tilde{\psi}\rangle$ é definido a partir da transformação *spin-flip*, que por sua vez para estados puros é dado por: $|\tilde{\psi}\rangle = \sigma_y^A \otimes \sigma_y^B |\psi^*\rangle$.

É importante ressaltar que os valores de $C(\rho)$ são confinados em um intervalo de $[0, 1]$, onde $C(\rho) = 0$ corresponde a um estado separável e $C(\rho) = 1$ a um maximamente

emaranhado. A *concurrence* apresenta como principal vantagem ser facilmente computada sendo uma boa medida para sistemas mistos de dois qubits. Porém, esta grandeza é diretamente relacionada ao emaranhamento de formação somente para sistemas bipartites com dimensão $d = 2$.

Considerando estados puros bipartites de dimensões arbitrárias, Rungta *et. al.* (RUNGTA et al., 2001) generalizaram a definição de *concurrence* e introduziram uma medida chamada de *I-concurrence*. A *concurrence* generalizada para um estado puro $|\psi_{AB}\rangle$ constituído por subsistemas de dimensões d_A, d_B é definida como função dos operadores I_A, I_B da seguinte forma:

$$C_I(\psi) = \sqrt{\langle\psi_{AB}|I_A \otimes I_B (|\psi_{AB}\rangle\langle\psi_{AB}|) |\psi_{AB}\rangle}, \quad (7.13)$$

onde, os operadores I_A e I_B agem sobre seus respectivos espaços de Hilbert \mathcal{H}_A e \mathcal{H}_B . É importante ressaltar que qualquer operador I_α deve satisfazer as condições abaixo:

1. $I_\alpha O = (I_\alpha O)^\dagger$, para qualquer operador O hermitiano. Esta condição garante que C_I seja real.
2. I_α comuta com todos operadores unitários, $[I_\alpha, U] = 0$, sendo $UU^\dagger = 1$.
3. $\langle\psi_{AB}|I_A \otimes I_B (|\psi_{AB}\rangle\langle\psi_{AB}|) |\psi_{AB}\rangle > 0$ para todo estado puro emaranhado e igual a 0 somente se o estado $|\psi_{AB}\rangle$ é separável. Deste modo, o operador que satisfaz essas propriedades é da seguinte forma:

$$I_\alpha = \mathbb{1} - |\psi_{AB}\rangle\langle\psi_{AB}|. \quad (7.14)$$

Escrevendo os operadores I_A e I_B de acordo com a expressão (7.14) na equação (7.13) temos que C_I é dada por:

$$C_I = \sqrt{2 \left(1 - \text{Tr}(\rho_{A(B)}^2) \right)}, \quad (7.15)$$

onde C_I pode ser obtido através de qualquer uma das matrizes ρ_A ou ρ_B . Similarmente às outras medidas de emaranhamento $C_I = 0$ para estados puros separáveis, e assume um valor máximo de $C_I^{max} = \sqrt{2(1 - 1/d)}$ sendo d a dimensão do menor subsistema constituinte.

Descreveremos agora uma medida quântica chamada de negatividade $\mathcal{N}(\rho)$ que apresenta a vantagem de medir o grau de emaranhamento de sistemas mistos com dimensões maiores que dois. Vidal e Werner (VIDAL; WERNER, 2002) propuseram uma medida

de emaranhamento cujo cálculo não envolve expressões variacionais assim como o emaranhamento de formação (7.8), sendo portanto algebraicamente calculada para qualquer dimensão. A negatividade é baseada no critério de transposição parcial positiva (TPP) e mede o quanto um dado estado ρ_{AB} falha em satisfazer este critério. Como mencionado na seção 3.1.2, a norma do traço de qualquer operador hermitiano O é $\|O\|_1 = \text{Tr}\sqrt{O^\dagger O}$, que é por sua vez igual ao valor absoluto da soma dos autovalores de O . Para qualquer operador de matriz densidade (estados puros ou mistos), os autovalores são sempre positivos o que implica que $\|\rho_{AB}\|_1 = 1$. Porém, a matriz transposta parcial $(\rho_{AB})^{T_A}$, definida na equação (3.13), pode ter autovalores negativos $\mu_i < 0$. Assim, sua norma do traço é em geral dada por:

$$\|(\rho_{AB})^{T_A}\|_1 = 1 + 2 \left| \sum_i \mu_i \right|, \quad (7.16)$$

onde $\sum_i \mu_i$ é soma dos autovalores negativos da matriz $(\rho_{AB})^{T_A}$. Baseados na norma do traço de $(\rho_{AB})^{T_A}$ Vidal e Werner definiram a negatividade como sendo:

$$\mathcal{N}(\rho_{AB}) \equiv \frac{\|(\rho_{AB})^{T_A}\|_1 - 1}{2}, \quad (7.17)$$

o que implica que $\mathcal{N}(\rho_{AB}) = |\sum_i \mu_i|$ e mede portanto o quanto $(\rho_{AB})^{T_A}$ falha em satisfazer o critério TPP.

A negatividade corresponde a uma versão quantitativa de um critério de separabilidade conhecido como critério de Peres (PERES, 1996). Utilizando o critério TPP, Peres estabeleceu que a condição necessária de separabilidade de um dado estado ρ_{AB} , é que a matriz obtida através de sua transposição parcial tenha somente autovalores positivos. Deste modo, temos que se $\mathcal{N}(\rho_{AB}) \neq 0$, implica necessariamente que o estado bipartite ρ_{AB} é um estado emaranhado. Porém, é importante ressaltar que a família Horodecki (HORODECKI; HORODECKI; HORODECKIC, 1996), encontrou que a positividade da transposição parcial só é um condição necessária e suficiente de separabilidade se os subsistemas constituintes do estado global apresentam dimensões 2×2 e 2×3 . Caso contrário pode se afirmar somente que se $\mathcal{N} \neq 0$, então o estado é emaranhado contudo, o contrário não é verdadeiro.

8 *Resultados: Fenômenos de interferência quântica em pontos quânticos acoplados*

Neste capítulo nós investigamos a resposta óptica de uma molécula quântica sob a influência de dois lasers. Usando um modelo de cinco níveis e parâmetros realísticos, nós mapeamos as condições físicas nas quais é possível encontrar diferentes tipos de fenômenos ópticos: transparência induzida por tunelamento, a formação de dubletos de Autler-Townes e a criação de tripletos similares aos tripletos de Mollow. Por intermédio de um campo elétrico específico aplicado na direção de crescimento da nanoestrutura, nós consideramos que o elétron pode tunelar, e o tunelamento entre os pontos é o acoplamento responsável pela ocorrência dos diferentes regimes ópticos. Os nossos resultados associados ao efeito de transparência induzida por tunelamento em moléculas de pontos quânticos resultaram nas seguintes publicações: *Tunneling induced transparency and slow light in quantum dot molecules*, *Physical Review B*, **85**, 115425 (2012) e *Quantum interference and control of the optical response in quantum dot molecules*, *Applied Physics Letter*, **103**, 222101 (2013).

8.1 Sistema Físico e modelo

Efeitos de interferência quântica têm sido bastante estudados e experimentalmente reportados em diversos sistemas que podem ser modelados por um sistema quântico de três níveis, considerando os diferentes tipos de configuração Λ , V e cascata (MUCKE et al., 2010; XU et al., 2007; BRUNNER et al., 2009; GERARDOT et al., 2009). Submetidos à incidência de dois campos ópticos coerentes, sistemas atômicos e pontos quânticos inicialmente carregados têm sido usados para investigação de fenômenos quânticos tais como, dubletos de Autler-Townes (YANG et al., 2005), tripletos de Mollow (MOLLOW, 1969) e transparência eletromagneticamente induzida (FLEISCHHAUER; IMAMOGLU;

MARANGOS, 2005). A resposta óptica de um sistema físico pode ser consideravelmente enriquecida quando uma estrutura de muitos níveis é considerada. Pontos quânticos semicondutores acoplados pelo tunelamento coerente de portadores são sistemas ideais para investigar processos de interferência quântica de maneira similar àquelas reportadas em sistemas atômicos, com a vantagem de uma controlável estrutura de vários níveis excitônicos.

Baseados no efeito de transparência eletromagneticamente induzida, no qual a absorção do laser de prova de baixa intensidade é cancelada devido a presença do laser de controle (laser intenso); nós temos particular interesse em investigar processos de interferência quântica em pontos quânticos duplos, onde o tunelamento entre pontos cumpre o papel de acoplamento forte (campo de controle), estabelecendo assim eficientes caminhos de interferência destrutiva (BORGES et al., 2012).

Concentraremos nossa atenção em sistemas compostos apenas por duas camadas de semicondutores do tipo III-V onde pontos quânticos empilhados de diferentes tamanhos foram formados. Devido à assimetria estrutural dos pontos quânticos, através de um campo elétrico externo é possível selecionar o tipo de portador que tunela, possibilitando o controle do efeito de tunelamento (BRACKER et al., 2006). Consideramos assim, uma barreira de potencial aplicada na direção de crescimento que induz um deslocamento dos níveis excitônicos, devido ao efeito Stark de confinamento quântico (NAZIR; LOVETT; BRIGGS, 2004). Neste capítulo assumimos uma típica assimetria estrutural na qual as dimensões do ponto da camada superior (especialmente sua altura) são maiores do que o da camada inferior. Assim, através da apropriada manipulação da voltagem aplicada externamente os níveis da banda de valência se tornam ressonantes, favorecendo o tunelamento do elétron enquanto proíbe o tunelamento do buraco.

Em nosso trabalho (BORGES et al., 2012), nós mostramos que uma molécula de pontos quânticos modelada por um sistema de três níveis, exibindo uma configuração de níveis tipo- Λ , pode se tornar transparente e dispersiva, devido a um processo de interferência quântica destrutiva ocasionado pela presença do acoplamento de tunelamento entre os pontos. Nossos resultados mostraram um buraco, associado a região de transparência, no espectro de absorção do laser de prova exatamente na região de ressonância. Além disso, mostramos que na região de transparência a luz se propaga no meio como uma velocidade de grupo bastante reduzida e, através do controle do campo elétrico, é possível manipular apropriadamente a janela de transparência e região onde o efeito de luz lenta ocorre.

Baseados neste efeito de transparência induzida por tunelamento (TIT), considera-

mos aqui nesta parte do trabalho uma estrutura com mais níveis excitônicos submetida a incidência de dois lasers. Nós consideramos um laser de prova de baixa intensidade com frequência ω_p quase ressonante com a transição óptica do ponto da camada superior formando um estado de exciton direto, enquanto um laser de controle intenso, com frequência ω_c está ressonante com a transição do ponto quântico da camada inferior formando outro estado de exciton direto. Adicionalmente, nós usamos um campo elétrico \vec{F} aplicado na direção de crescimento de tal forma que os níveis da banda de condução são ressonantes. Deste modo, o tunelamento do elétron entre os pontos é favorecido, criando estados de excitons indiretos. Neste caso, nós modelamos este sistema aqui considerado como um sistema quântico de cinco níveis que, por sua vez, permite que novos efeitos de interferência quântica sejam explorados.

Considerando as transições ópticas possíveis neste sistema em um regime de baixa excitação, nós podemos descrevê-lo utilizando uma base de cinco estados, onde $|0\rangle$ descreve o estado fundamental que corresponde ao sistema sem excitações, e $|1\rangle$ e $|4\rangle$ os estados de excitons diretos formados nos pontos das camadas superior e inferior, respectivamente. Os estados $|2\rangle$ e $|3\rangle$ nos quais elétron e buraco estão espacialmente separados, são obtidos através do tunelamento do elétron entre os pontos a partir dos estados diretos $|1\rangle$ e $|4\rangle$, respectivamente. A representação esquemática da configuração de níveis e acoplamentos deste sistema é mostrada na Fig.15.

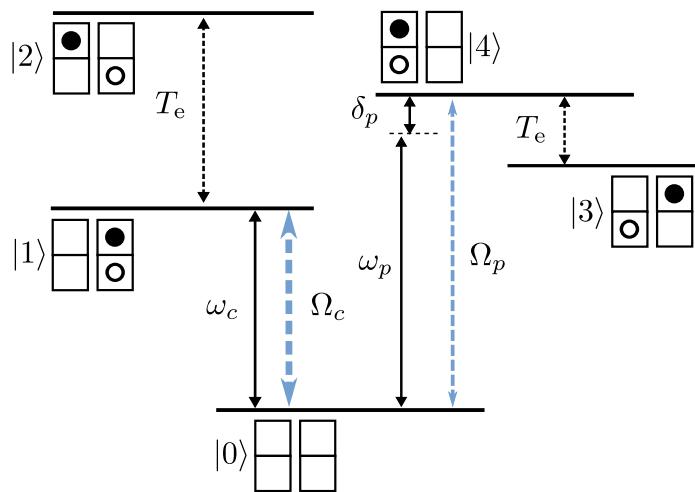


Figura 15: Diagrama de níveis dos estados excitônicos incluindo acoplamentos ópticos, sendo Ω_p e Ω_c as frequências de Rabi do laser de prova e de controle respectivamente, e a taxa de tunelamento do elétron entre os pontos (T_e).

O Hamiltoniano que descreve este sistema físico é dado por:

$$H = \sum_{j=1}^4 E_j |j\rangle\langle j| + \Delta_F (|2\rangle\langle 2| - |3\rangle\langle 3|) + T_e (|1\rangle\langle 2| + |3\rangle\langle 4|) + \hbar\Omega_c e^{i\omega_c t} |0\rangle\langle 1| + \hbar\Omega_p e^{i\omega_p t} |0\rangle\langle 4| + h.c., \quad (8.1)$$

onde: $E_j = \hbar\omega_j$ é energia do estado $|j\rangle$, T_e é o acoplamento de tunelamento do elétron entre os pontos, $\Delta = eFd$ é a quantidade de energia deslocada devido ao efeito Stark e, ω_p e ω_c são as frequências do laser de prova e de controle, respectivamente. Neste sistema o acoplamento óptico entre o estado fundamental $|0\rangle$, e os estados de excitons diretos $|1\rangle$ e $|4\rangle$ é baseado na configuração de um sistema tipo-V, onde $\Omega_c = \frac{\mu_{01}\varepsilon_c}{2\hbar}$ e $\Omega_p = \frac{\mu_{04}\varepsilon_p}{2\hbar}$.

Afim de remover os termos oscilatórios dependentes do tempo do Hamiltoniano (8.1) nós efetuamos a seguinte transformação unitária:

$$H' = UHU^\dagger + i\hbar U^\dagger \frac{\partial U}{\partial t}, \quad (8.2)$$

sendo,

$$U = \exp [i\omega_c t (|1\rangle\langle 1| + |2\rangle\langle 2|) + e^{i\omega_p t} (|3\rangle\langle 3| + |4\rangle\langle 4|)].$$

Desta forma, temos que considerando ainda as aproximações de dipolo elétrico e de onda girante (SCULLY; ZUBAIRY, 2001), o Hamiltoniano resultante escrito na base excitônica $|0\rangle$, $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ e $|4\rangle$, é dado por:

$$H' = \begin{pmatrix} 0 & \hbar\Omega_c & 0 & 0 & \hbar\Omega_p \\ \hbar\Omega_c & \hbar\delta_c & T_e & 0 & 0 \\ 0 & T_e & \hbar\delta_2 + \Delta_F & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \hbar\delta_3 - \Delta_F & T_e \\ \hbar\Omega_p & 0 & 0 & T_e & \hbar\delta_p \end{pmatrix}, \quad (8.3)$$

onde: $\delta_c = (\omega_{10} - \omega_c)$ é a dessintonia entre o laser de controle e a transição óptica associada ao estado direto $|1\rangle$, $\delta_p = (\omega_{40} - \omega_p)$ é a dessintonia do laser de prova em relação à transição do estado $|4\rangle$, $\delta_2 = \delta_c + \omega_{21}$ e $\delta_3 = \delta_p + \omega_{34}$, sendo $\omega_{ij} = E_i - E_j/\hbar$. Nós consideramos aqui, o zero de energia no estado fundamental $|0\rangle$, ou seja, $E_0 = 0$. Além disso, consideramos em nossos resultados a condição $\delta_c = 0$, onde o laser de controle é ressonante com a transição $|0\rangle - |1\rangle$.

Como mencionado na seção (2.2.4), sob a influência do campo elétrico aplicado F , os níveis de energia dos estados de exciton indiretos, nos quais o elétron e buraco estão

espacialmente separados por uma distância d , são deslocados devido ao efeito Stark por um valor de energia de $\Delta_F = eFd$ (equação 2.7). Deste modo, através de um apropriado controle do campo elétrico externo é possível induzir uma ressonância entre os níveis excitônicos. Esta característica, por sua vez, garante uma condição essencial para a ocorrência da redução na absorção do laser de prova (GU et al., 2006). Em nosso modelo nós incluímos também processos de perda, onde consideramos dois diferentes tipos de decoerência: o decaimento espontâneo radioativo da população dos níveis de exciton diretos ($\Gamma_0^1 = \Gamma_0^4 = \Gamma_D$) e excitons indiretos ($\Gamma_0^2 = \Gamma_0^3 = \Gamma_I$) e, canais de *dephasing* puro de cada um dos níveis (γ_i).

Em todos os resultados deste capítulo nós usamos parâmetros realísticos para pontos quânticos InAs/GaAs sob excitação coerente. Porém, é importante ressaltar que nossas considerações podem ser eficientemente aplicadas para pontos quânticos duplos feitas por outros materiais semicondutores. Neste sistema, a taxa de decaimento efetivo $\Gamma_i = \Gamma_0^i/2 + \gamma_i$, é da ordem de $2 - 10 \mu\text{eV}$ (BORRI et al., 2003; BARDOT et al., 2005) para estados de excitons diretos, e três ordem de magnitude menores para excitons indiretos ($\Gamma_{2,3} = 10^{-3}\Gamma_{1,4}$) (BUTOV et al., 1994). Os parâmetros associados à estrutura da molécula e energia dos estados excitônicos foram baseados nos experimentos realizados e investigados na referência (ROLON; ULLOA, 2010). O parâmetro T_e depende principalmente da espessura da barreira entre os pontos e pode variar de 0.01 meV à 0.1 meV (EMARY; SHAM, 2007) para um regime de tunelamento fraco e entre 1 meV à 10 meV para regime de tunelamento forte (TACKEUCHI et al., 2000). Neste modelo, nós consideramos $\Gamma_1 = \Gamma_4 = 10 \mu\text{eV}$, um laser de prova de baixa intensidade $\Omega_p = 0.25\Gamma_4$ e, $\Omega_c = 0.05 \text{ meV}$, obedecendo a condição $\Omega_p \ll \Omega_c, T_e$.

Como nesta parte do trabalho estamos particularmente interessados em investigar a resposta óptica do sistema devido à presença de radiação eletromagnética, e explorar processos de interferência quântica causados pelo tunelamento entre os pontos, se torna bastante interessante explorarmos para quais regiões de campo elétrico os estados de excitons diretos e indiretos se anticruzam. Tais regiões de anticruzamento são assinaturas do tunelamento coerente entre os pontos e podem ser facilmente obtidas e analisadas através do espectro de autovalores do hamiltoniano (8.3). Com o intuito de investigarmos detalhadamente o comportamento deste sistema de cinco níveis quando o tunelamento ocorre, nós graficamos na Fig.16(a) o espectro excitônico como função de F , considerando $T_e = 20 \mu\text{eV}$ e $\Omega_c = 50 \mu\text{eV}$. Nos painéis 16(b) e 16(c), nós evidenciamos as regiões de campo F_- e F_+ respectivamente, onde acontecem os anticruzamentos entre estados diretos e indiretos devido à T_e . Estes valores específicos de campo, $F_- = -17.94 \text{ kV/cm}$

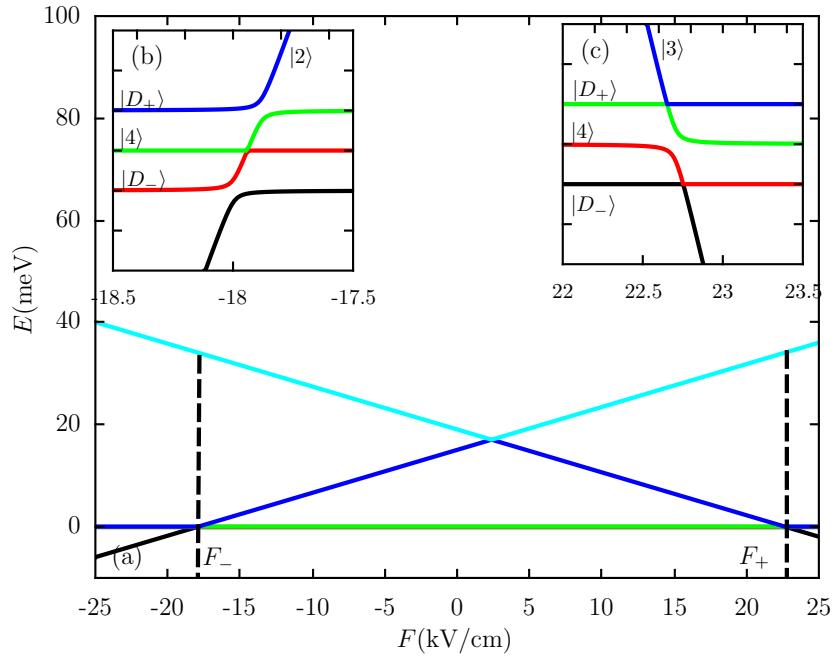


Figura 16: Espectro excitônico como função do campo elétrico F . As linhas verticais pontilhadas identificam os valores de campos F_- e F_+ onde os estados diretos e indiretos de anticruzam. Nos gráficos (b) e (c) são evidenciados os anticruzamentos nas regiões de campos $F_- = -17.94$ kV/cm e $F_+ = 22.7$ kV/cm, respectivamente. Consideramos $\Omega_c = 5\Gamma_4$ e $T_e/\Gamma_4 = 2$.

e $F_+ = 22.7$ kV/cm foram identificados no espectro 16(a) através de linhas verticais pontilhadas. Além desses anticruzamentos observados entre estados diretos e indiretos, notamos que para $F \sim 0$ os estados indiretos se anticruzam. Porém, nesta parte do trabalho estamos particularmente interessados nas regiões de mistura entre excitons diretos e indiretos devido ao acoplamento T_e , onde os estados indiretos $|2\rangle$ e $|3\rangle$ são significativamente populados. Os valores de campo elétrico de interesse F_- e F_+ são os campos nos quais os estados diretos e indiretos acoplados em pares por T_e são ressonantes. O valor de campo $F_- = -17.94$ kV/cm corresponde ao campo no qual a condição $\delta_c = \delta_2 + \Delta_F$ é garantida. Como assumimos que o laser de controle é ressonante ($\delta_c = 0$), temos que nesta condição específica $\Delta_{F_-} = -\hbar\omega_{21}$. Já o valor de campo $F_+ = 22.7$ kV/cm é encontrado quando os estados $|3\rangle$ e $|4\rangle$ são ressonantes, o que implica que $\delta_p = \delta_3 - \Delta_F$ ou $\Delta_{F_+} = \hbar\omega_{34}$. É importante mencionar que para as regiões de campos evidenciadas nos gráficos 16(b) e 16(c), os estados indiretos $|3\rangle$ e $|2\rangle$, respectivamente, estão muito separados em energia do restante dos estados do sistema.

Outra importante característica observada no espectro 16 é que o forte acoplamento óptico Ω_c cria duas superposições simétrica e antissimétrica entre os estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$,

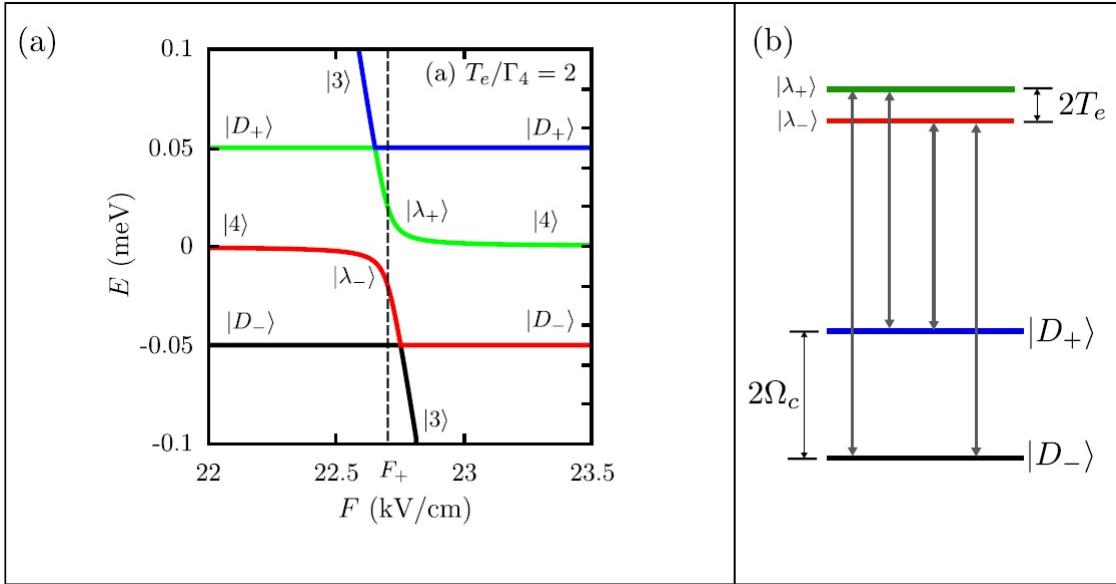


Figura 17: (a) Espectro excitônico como função do campo elétrico em uma região ao redor do valor $F_+ = 22.7$ kV/cm (linha vertical pontilhada) para $T_e/\Gamma_4 = 2$ e $\Omega_c = 5\Gamma_4$. (b) Representação esquemática dos autoestados do sistema para $F = F_+$, as setas verticais representam as transições óptica permitidas.

representadas nos espectros 16(b) e 16(c) pelos autoestados $|D_{\pm}\rangle = (|0\rangle \pm |1\rangle)/\sqrt{2}$. Os estados simétrico ($|D_+\rangle$) e antisimétrico ($|D_-\rangle$) são energeticamente separados por $2\Omega_c$. Como Ω_p é muito fraco ($\Omega_p \ll \Omega_c$), este acoplamento óptico não cria uma mistura entre o estado fundamental $|0\rangle$ e o estado direto $|4\rangle$ e, para esta configuração de parâmetros aqui considerada, o estado $|4\rangle$ é um autoestado do sistema. Porém, na região de campo F_+ , o estado $|4\rangle$ se mistura com estado de exciton indireto $|3\rangle$, de tal forma que T_e acarretará a formação de estados escritos como combinação linear entre estes dois estados. Da mesma forma observamos que na região de campo F_+ aparecem dois anticruzamentos em $E = -\Omega_c = -0.05$ meV e $E = \Omega_c = 0.05$ meV que são assinaturas do acoplamento devido ao tunelamento entre os estados $|D_-\rangle$ e $|3\rangle$ e entre os estados $|D_+\rangle$ e $|3\rangle$, respectivamente.

Como estamos interessados em investigar o efeito de transparência induzida por T_e na resposta óptica do sistema em relação ao laser de prova, focaremos nossa atenção na região de campo próximo a F_+ , na qual os estados $|4\rangle$ (acoplado opticamente ao estado $|0\rangle$ por Ω_p) e $|3\rangle$ se anticruzam. Para uma análise mais detalhada do sistema nesta região de interesse, mostramos novamente na Fig. 17(a) os autovalores do sistema para $T_e/\Gamma_4 = 2$ na região de campo F_+ e, na Fig. 17(b) é ilustrado a configuração de autoestados do sistema para este valor de campo elétrico específico. Como mencionado anteriormente pode ser claramente observado na Fig. 17(a) um anticruzamento entre os estados direto $|4\rangle$ e o indireto $|3\rangle$, quando $F = F_+ = 22.7$ kV/cm. Deste modo devido à ação do

acoplamento T_e , os estados $|\lambda_{\pm}\rangle = (|3\rangle \pm |4\rangle)/\sqrt{2}$ são autoestados do sistema quando $F = F_+$, e são separados energeticamente por uma quantidade de energia igual à $2T_e$. Notemos ainda que em $E = \pm\Omega_c$, os estados $|D_{\pm}\rangle$ anticruzam com os estados $|\lambda_{\pm}\rangle$. A representação esquemática dos autoestados do sistema mostrando as diferenças de energia entre os níveis devido à T_e e Ω_c , assim como as transições ópticas permitidas devido ao laser de prova são ilustradas na Fig. 17(b).

A resposta óptica da molécula quântica nesta região de campo pode ser descrita como uma ação combinada de dois subsistemas de três níveis: (I) sistema composto pelas combinações $\{|D_+\rangle, |\lambda_-\rangle, |\lambda_+\rangle\}$ opticamente relevantes em $\delta_p \sim \Omega_c$ e, (II) sistema de três níveis composto por $\{|D_-\rangle, |\lambda_-\rangle, |\lambda_+\rangle\}$ opticamente ativos em $\delta_p \sim -\Omega_c$. Esta análise detalhada do comportamento dos níveis do sistema nas regiões de anticruzamentos contribuirá bastante no entendimento da resposta óptica do sistema, que será discutida na próxima seção.

8.2 Propriedade ópticas

Nesta seção iremos investigar detalhadamente as propriedades ópticas do laser de prova devido sua interação com o ponto quântico e explorar os diferentes fenômenos baseados em processos de interferência quântica, focando nossa atenção na região de campo F_+ . Afim de investigar a resposta óptica do sistema em relação ao laser de prova, cuja intensidade é muito fraca quando comparada à intensidade do laser de controle e do tunelamento do elétron entre os pontos ($\Omega_p \ll \Omega_c, T_e$), de tal forma que suas propriedades ópticas são fracamente afetadas pelo meio, nós obtemos a susceptibilidade óptica linear $\chi(\omega_p)$. Em nosso modelo, o laser de prova acopla opticamente os estados $|0\rangle$ e $|4\rangle$. Desta forma, a função de susceptibilidade óptica linear é diretamente proporcional ao elemento de matriz ρ_{04}^{esta} no regime estacionário associado a esta transição, onde $\chi(\omega_p)$ é dada pela seguinte forma:

$$\chi = \frac{\Gamma_{opt}}{V} \frac{|\mu_{40}|^2}{\epsilon_0 \hbar \Omega_p} \rho_{04}^{esta}. \quad (8.4)$$

Na função de susceptibilidade, Γ_{opt} é o fator de confinamento óptico, V é o volume de uma molécula quântica, e ϵ_0 é a constante dielétrica do vácuo. A função de susceptibilidade $\chi = \chi' + i\chi''$ é uma função complexa que contém todas as informações necessárias para obter o coeficiente de absorção $\alpha(\omega_p)$, e o índice de refração $n(\omega_p)$ do laser de prova (MEIER; THOMAS; KOCH, 2007). Desta forma, é necessário calcularmos o elemento de matriz

ρ_{04}^{esta} quando o sistema atinge o regime estacionário como função da frequência do laser de prova.

A dinâmica deste sistema de cinco níveis é descrita pela equação de Liouville-von Neumann-Lindblad (MEYSTRE; III, 2007):

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] + L(\rho) \quad (8.5)$$

sendo $\rho(t)$ o operador matriz densidade, H o hamiltoniano do sistema e $L(\rho)$ o operador de Liouville, que descreve os processos de decoerência aqui considerados. $L(\rho)$ é dado pela seguinte forma:

$$\begin{aligned} L(\rho) = & \sum_{i=1,4} \Gamma_D/2 (2|0\rangle\langle i|\rho|i\rangle\langle 0| - \rho|i\rangle\langle i| - |i\rangle\langle i|\rho) + \\ & \sum_{i=2,3} \Gamma_I/2 (2|0\rangle\langle i|\rho|i\rangle\langle 0| - \rho|i\rangle\langle i| - |i\rangle\langle i|\rho) + \\ & \sum_{i=1}^4 \gamma_i (2|i\rangle\langle i|\hat{\rho}|i\rangle\langle i| - \rho|i\rangle\langle i| - |i\rangle\langle i|\hat{\rho}), \end{aligned}$$

onde o primeiro e segundo termo descrevem o decaimento radioativo dos estados de exicitons diretos e indiretos para o estado fundamental, respectivamente e o último termo está associado aos processos de *dephasing* puro de cada um dos níveis.

Afim de obter $\chi(\omega_p)$ nós calculamos as equações de movimento derivadas da equação (8.5). Deste modo, temos o seguinte sistema de equações diferenciais acopladas:

$$\dot{\rho}_{00} = -i[\Omega_p(\rho_{40} - \rho_{04}) + \Omega_c(\rho_{10} - \rho_{01})] + \Gamma_D(\rho_{11} + \rho_{44}) + \Gamma_I(\rho_{22} + \rho_{33})$$

$$\dot{\rho}_{01} = -i[\Omega_p\rho_{41} + \Omega_c(\rho_{11} - \rho_{00}) - \delta_1\rho_{01} - T_e\rho_{02}] - \frac{\Gamma_D + \gamma_1}{2}\rho_{01}$$

$$\dot{\rho}_{02} = -i[\Omega_p\rho_{42} + \Omega_c\rho_{12} - (\delta_2 + \Delta_s)\rho_{02} - T_e\rho_{01}] - \frac{\Gamma_I + \gamma_2}{2}\rho_{02}$$

$$\dot{\rho}_{03} = -i[\Omega_p\rho_{43} + \Omega_c\rho_{13} - (\delta_3 - \Delta_s)\rho_{03} - T_e\rho_{04}] - \frac{\Gamma_I + \gamma_3}{2}\rho_{03}$$

$$\dot{\rho}_{04} = -i[\Omega_p(\rho_{44} - \rho_{00}) + \Omega_c\rho_{14} - \delta_4\rho_{04} - T_e\rho_{03}] - \frac{\Gamma_D + \gamma_4}{2}\rho_{04}$$

$$\dot{\rho}_{11} = -i[\Omega_c(\rho_{01} - \rho_{10}) + T_e(\rho_{21} - \rho_{12})] - \Gamma_D\rho_{11}$$

$$\dot{\rho}_{12} = -i[\Omega_c \rho_{02} + (\delta_1 - \delta_2 - \Delta_s) \rho_{12} + T_e(\rho_{22} - \rho_{11})] - \frac{\Gamma_D + \Gamma_I + \gamma_1 + \gamma_2}{2} \rho_{12}$$

$$\dot{\rho}_{13} = -i[\Omega_c \rho_{03} + (\delta_1 - \delta_3 + \Delta_s) \rho_{13} + T_e(\rho_{23} - \rho_{14})] - \frac{\Gamma_D + \Gamma_I + \gamma_1 + \gamma_3}{2} \rho_{13}$$

$$\dot{\rho}_{14} = -i[-\Omega_p \rho_{10} + \Omega_c \rho_{04} + (\delta_1 - \delta_4) \rho_{14} + T_e(\rho_{24} - \rho_{13})] - \frac{2\Gamma_D + \gamma_1 + \gamma_4}{2} \rho_{14}$$

$$\dot{\rho}_{22} = -i[T_e(\rho_{12} - \rho_{21})] - \Gamma_I \rho_{22}$$

$$\dot{\rho}_{23} = -i[(\delta_2 - \delta_3 + 2\Delta_s) \rho_{23} + T_e(\rho_{13} - \rho_{24})] - \frac{2\Gamma_I + \gamma_2 + \gamma_3}{2} \rho_{23}$$

$$\dot{\rho}_{24} = -i[-\Omega_p \rho_{20} + (\delta_2 - \delta_4 + \Delta_s) \rho_{24} + T_e(\rho_{14} - \rho_{23})] - \frac{\Gamma_D + \Gamma_I + \gamma_2 + \gamma_4}{2} \rho_{24}$$

$$\dot{\rho}_{33} = -i[T_e(\rho_{43} - \rho_{34})] - \Gamma_I \rho_{33}$$

$$\dot{\rho}_{34} = -i[-\Omega_p \rho_{30} + (\delta_3 - \delta_4 - \Delta_s) \rho_{34} + T_e(\rho_{44} - \rho_{33})] - \frac{\Gamma_D + \Gamma_I + \gamma_3 + \gamma_4}{2} \rho_{34}$$

$$\dot{\rho}_{44} = -i[\Omega_p(\rho_{04} - \rho_{40}) + T_e(\rho_{34} - \rho_{43})] - \Gamma_D \rho_{44}. \quad (8.6)$$

Com o intuito de investigar como a resposta óptica do laser de prova é afetada quando o mesmo interage com o sistema quântico, nós resolvemos numericamente este sistema de equações (8.6) no regime estacionário, ou seja, $\dot{\rho}_{ij} \approx 0$. Nós calculamos a função complexa χ , através da equação (8.4) por meio do elemento ρ_{04}^{esta} obtido numericamente, considerando diferentes valores de ω_p .

Antes de explorar os diferentes efeitos de interferência quântica devido ao acoplamento T_e , vamos primeiramente investigar qual o efeito do laser de acoplamento na resposta óptica do sistema. Afim de identificar a principal diferença entre um sistema de três níveis sob o regime de transparência induzida por tunelamento ($T_e < \Gamma_4$) em relação ao sistema de cinco níveis aqui descrito, mostramos na Fig. 18 a parte imaginária da função χ como função da dessintonia δ_p , obtida através da equação (8.4), no regime de tunelamento fraco $T_e/\Gamma_4 = 1/2$, para o valor de campo específico $F_+ = 22.7$ kV/cm.

Na ausência do laser de controle ($\Omega_c = 0$), a molécula pode ser descrita por um sistema de três níveis. Neste caso, somente os níveis $|0\rangle$, $|3\rangle$ e $|4\rangle$ participam da dinâmica. Para a

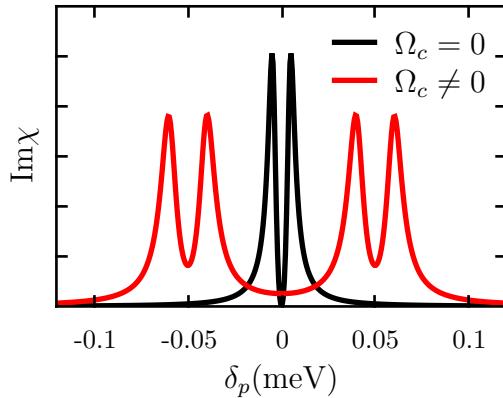


Figura 18: Parte imaginária da susceptibilidade linear do laser de prova como função da sua dessintonia δ_p , para $\Omega_c = 0$, $T_e = 1/2\Gamma_4$ (curva preta) e $\Omega_c = 5\Gamma_4$, $T_e = 2\Gamma_4$ (curva vermelha). Em ambos os casos foram considerados $\delta_c = 0$ e $F = 22.7$ kV/cm.

condição de tunelamento fraco $T_e/\Gamma_4 < 1/2$, a absorção tem uma janela de transparência em $\delta_p = 0$, como pode ser visto na curva preta da Fig. 18 quando o laser de prova é ressonante com a transição do exciton direto $|4\rangle$. Este efeito denotado transparência induzida por tunelamento é analógico ao efeito de EIT porém, com o tunelamento cumprindo o papel do laser de controle. Se a razão $T_e/\Gamma_4 > 1/2$ for satisfeita, é obtido no espectro dubletos de Aultler-Townes. Já na situação em que o laser de controle está ligado (curva vermelha) a configuração de níveis da molécula é alterada para um sistema de cinco níveis, onde nesta região de campo tem uma configuração descrita através dos autoestados mostrados na Fig. 17. Quando $\Omega_c \neq 0$, observamos que o espectro de absorção do laser de prova exibe dois buracos associados a mínimos de absorção, que por sua vez, podem ser modificados e deslocados, alterando a intensidade do laser de controle e do tunelamento entre os pontos. A aparição dessas duplas janelas de transparência, centradas em $\delta_p = \pm\Omega_c$, é uma assinatura de dos dois subsistemas distinguíveis de três níveis mencionados anteriormente na seção 8.2. Desta forma, este sistema permite que diferentes fenômenos ópticos quânticos de multi-níveis possam ser eficientemente explorados em um sistema de semicondutores.

Considerando a partir de agora o laser de controle sempre presente e ressonante com a transição entre os estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$, nós investigamos o comportamento das partes real e imaginária de $\chi(\omega_p)$ sob diferentes condições de tunelamento.

Nas Figs. 19(a) e 19(b) nós graficamos as partes imaginária (absorção) e real (dispersão) da função χ como função da dessintonia do laser de prova δ_p , e do campo elétrico externo F , respectivamente considerando $T_e/\Gamma_4 = 1/2$ e $\Omega_c/\Gamma_4 = 5$. Em ambos os casos o espectro óptico é fortemente influenciado pela presença do tunelamento na região ao redor de $F_+ = 22.7$ kV/cm e para valores simétricos de δ_p , $\delta_p \approx -0.05$ meV e $\delta_p \approx 0.05$ meV.

Nestas regiões são observados janelas de transparência e uma abrupta mudança na parte real de χ . Estas características são melhor ilustradas nas Figs. 19(c) e 19(d) onde $\text{Im}\chi$ e $\text{Re}\chi$ como função de δ_p foram plotadas para um valor fixo de $F = F_+$, considerando $T_e = 0$ (curva preta) e $T_e \neq 0$ (curva vermelha).

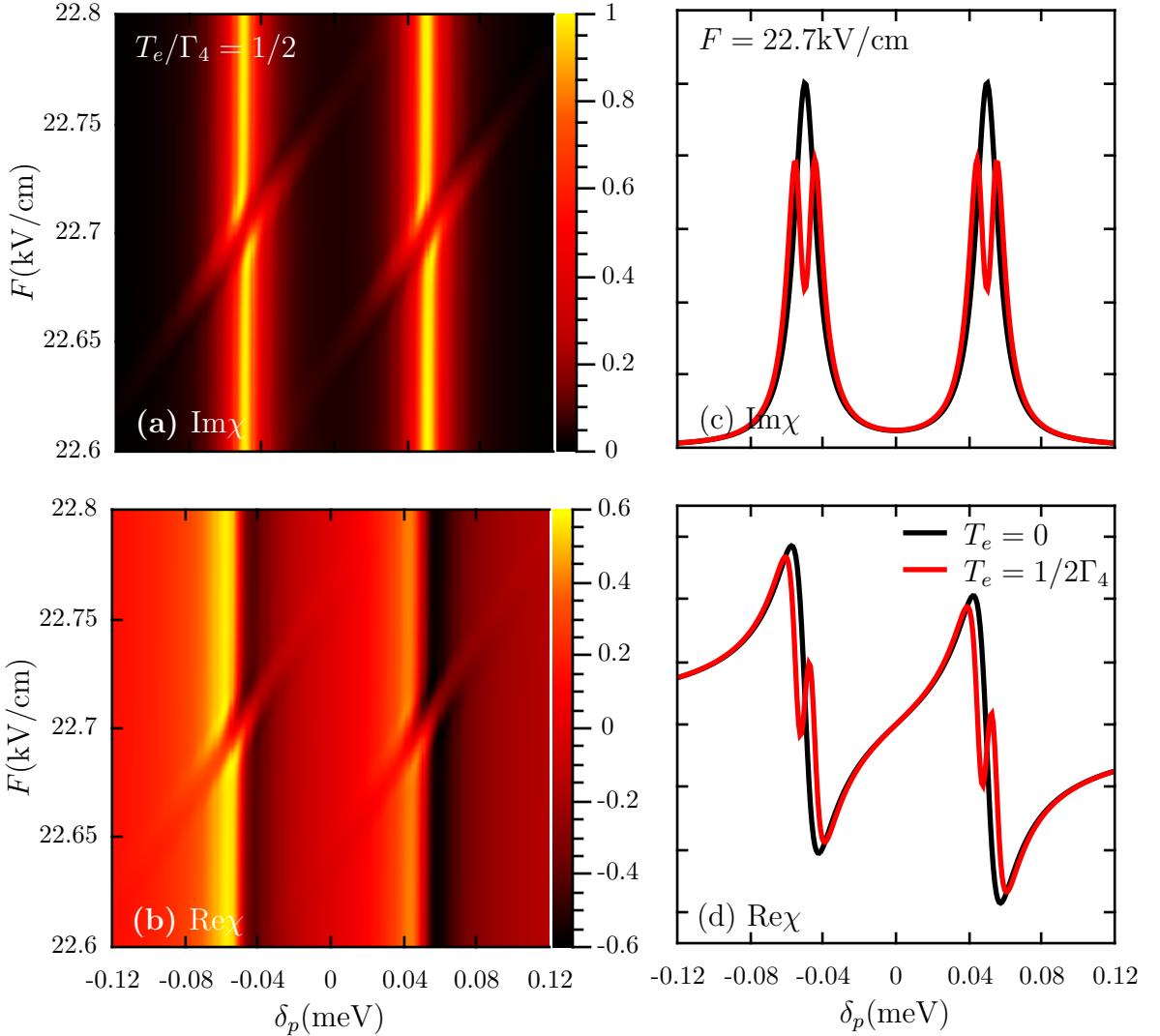


Figura 19: Partes real e imaginária (a),(b) da função χ como função da dessintonia δ_p e do campo elétrico F para $\Omega_c = 5\Gamma_4$, $\delta_c = 0$ e $T_e/\Gamma_4 = 1/2$. Espectro de absorção (c) e dispersão (d), como função de δ_p , considerando o valor fixo de $F_+ = 22.7 \text{ kV/cm}$ para ambos os casos: $T_e = 0$ (curva preta) e $T_e/\Gamma_4 = 1/2$ (curva vermelha).

Através destes resultados observamos que quando $T_e \neq 0$, um processo de interferência destrutiva entre o caminho óptico e o caminho mediado pelo tunelamento de elétrons ocasiona um significativa supressão na absorção do laser de prova. Notemos ainda que a posição dos mínimos de absorção são modificados por meio de uma pequena alteração de F e ocorre em intervalos de frequências ao redor dos valores de δ_p onde o máximo da absorção era esperado, caso T_e não estivesse presente. Para este sistema de cinco níveis a posição

dos mínimos obedecem uma condição dada pela seguinte equação: $\Delta_F = \delta_p + \hbar\omega_{34} \pm \Omega_c$. Este comportamento nos permite então, controlar as janelas de transparência e revela a assinatura do tunelamento de elétron ressonante, já que esta situação corresponde exatamente ao valor positivo do campo elétrico F_+ obtido através da condição de ressonância $\delta_3 - \Delta_F - \delta_p = 0$.

Iremos agora investigar com mais detalhes a resposta óptica do laser de prova para este valor específico de campo (F_+), quando diferentes regimes de tunelamento são considerados, já que o tunelamento é o acoplamento que estabelece eficientemente caminhos de interferência quântica destrutiva.

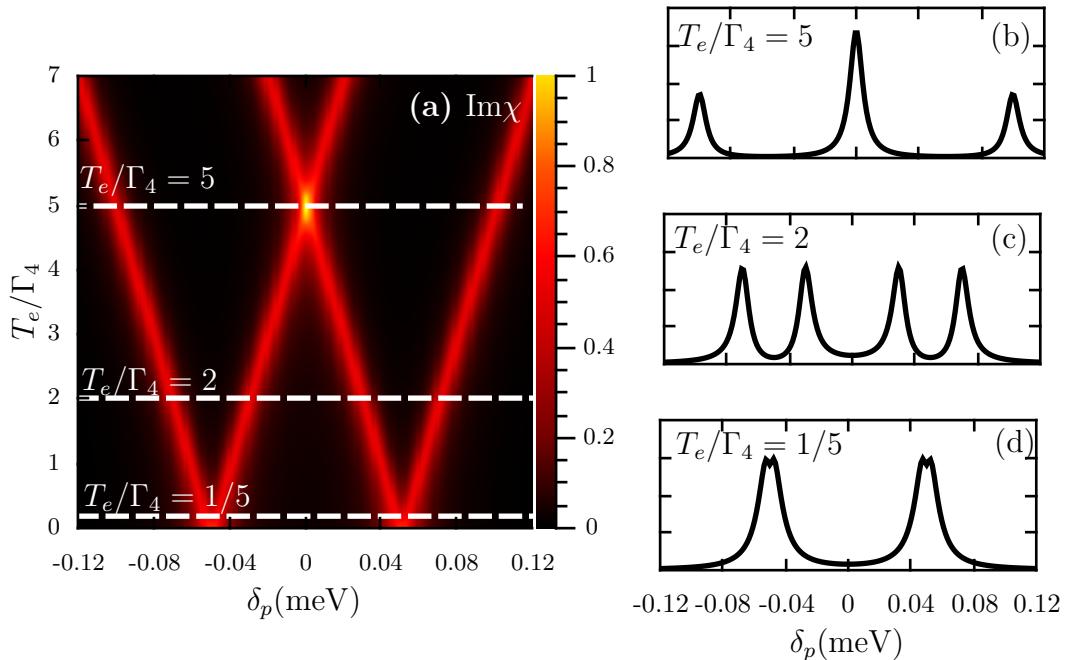


Figura 20: (a) Parte imaginária de χ como função da dessintonia do laser de prova δ_p e da razão T_e/Γ_4 , para $\Omega_c/\Gamma_4 = 5$. Em (b), (c) e (d) é mostrado o espectro de absorção como função de δ_p em três diferentes regimes de tunelamento (linhas brancas pontilhadas).

Na Fig. 20 é mostrado o espectro de absorção do laser de prova para o sistema de cinco níveis como função de sua dessintonia e da razão T_e/Γ_4 . Para este caso a intensidade do laser de controle foi mantida fixa no valor de $\Omega_c = 5\Gamma_4$. Através deste resultado é possível distinguir três diferentes regimes que podem ser vistos claramente nas Figs. 20(b), 20(c) e 20(d). Para pequenos valores da razão T_e/Γ_4 , que corresponde à condição de fraco tunelamento, é observado um efeito similar à transparência induzida por tunelamento. A medida que T_e/Γ_4 aumenta, a resposta óptica exibe um comportamento do tipo doublets de Aultler-Townes. Na condição específica $T_e = \Omega_c$, que corresponde ao caso $T_e/\Gamma_4 = 5$ na Fig. 20, notamos que os doublets dos dois diferentes ramos se juntam em $\delta_p = 0$,

resultando em uma subsequente criação de tripletos similares aos tripletos de Mollow. Quando $T_e/\Gamma_4 > 5$, um perfil de absorção formado por quatro picos é recuperado. Desta forma, é relevante identificar e investigar cada um destes regimes, já que o perfil da linha de absorção do laser de prova apresenta mudanças significativas para limites específicos das razões T_e/Γ_4 e T_e/Ω_c .

Com o intuito de estabelecer condições específicas para distinguir o comportamento óptico como função da razão T_e/Γ_4 , nós utilizamos o mesmo procedimento usado na referência (ABI-SALLOUM, 2010) e em nosso trabalho prévio (BORGES et al., 2012), no qual através de uma análise detalhada da expressão analítica da função $\chi(\omega_p)$ é possível distinguir e identificar a origem de um dos diferentes regimes ópticos.

É bem conhecido na literatura que a redução na absorção óptica em um sistema de três níveis pode ser ocasionada por dois tipos de fenômenos associados a processos de interferência destrutiva: transparência induzida e doublets de Autler-Townes. Contudo, para um sistema de cinco níveis esta análise não tem sido realizada ainda. Em nosso modelo, a redução na absorção e abrupta mudança na inclinação de $\text{Re}\chi$ associado ao laser de prova, ocorre devido a presença de dois acoplamentos fortes: o laser de controle e o tunelamento de elétrons entre os pontos.

A fim de investigar as características e limites para os diferentes regimes mostrados na Fig. 20, nós obtivemos o elemento ρ_{04} analiticamente quando o sistema atinge o regime estacionário, já que a função χ é diretamente proporcional a este termo de coerência como mostrado na equação (8.4). Consideremos primeiramente que o laser de prova está desligado $\Omega_p = 0$. Assim, considerando esta hipótese no sistema de equações (8.6), temos que as populações dos níveis excitônicos quando o sistema atinge o regime estacionário ($\dot{\rho}_{ij} \approx 0$) são dados por:

$$\begin{aligned} \rho_{00}^{(0)} &= \frac{\Gamma_1 \Gamma_D \Delta_1 + \Gamma_D \Delta_1^2 - \Gamma_1 \Omega_c^2}{\Gamma_1 \Gamma_D \Delta_1 + \Gamma_D \Delta_1^2 - 2\Gamma_1 \Omega_c^2}, \\ \rho_{11}^{(0)} &= \frac{-\Gamma_1 \Omega_c^2}{\Gamma_1 \Gamma_D \Delta_1 + \Gamma_D \Delta_1^2 - 2\Gamma_1 \Omega_c^2}, \\ \rho_{22}^{(0)} &= \rho_{33}^{(0)} = \rho_{44}^{(0)}, \end{aligned} \quad (8.7)$$

onde $\rho_{ii}^{(0)}$ representam as populações de cada um dos níveis do sistema quando o laser de prova não está presente. Os parâmetros Δ_1 e Γ_1 são definidos como: $\Delta_1 = -i\delta_1 - \Gamma_D/2$ e $\Gamma_1 = \Gamma_D/2 + \gamma_1$. Como o laser de prova é bem fraco em relação aos outros parâmetros do

hamiltoniano (8.3), ele pode ser considerado como uma pequena perturbação no sistema. Sob esta suposição, as populações dadas por $\rho_{ii}^{(0)}$ não serão alteradas quando o laser de prova com baixa intensidade estiver presente, e somente as coerências (termos da matriz densidade fora da diagonal) serão modificadas. Deste modo, no limite de baixa excitação ($T_e \gg \Omega_p$), temos que considerando somente os termos de primeira ordem em Ω_p , obtivemos a seguinte expressão para o elemento ρ_{04}^{esta} (BORGES et al., 2013):

$$\begin{aligned} \rho_{04} = & -i \left[- \left(\Delta_3(\Delta_3 + \Delta_1^*) + \Omega_c^2 \right) \left(-\Gamma_1(\Gamma_1 + \Delta_1 - \Delta_4) \Omega_c^2 + \Gamma_D \Delta_1(\Delta_1^*(\Delta_4 + \Delta_1^*) - \Omega_c^2) \right) \right. \\ & \left. - T_e^2(\Gamma_1 \Delta_3 \Omega_c^2 + \Gamma_D \Delta_1(\Delta_3 \Delta_1^* + \Omega_c^2)) \right] / \left[(-\Gamma_D \Delta_1 \Delta_1^* - 2\Gamma_1 \Omega_c^2) \left(T_e^4 + T_e^2(2\Delta_3 \Delta_4 \right. \right. \\ & \left. \left. + (\Delta_1^* + \Delta_3 + \Delta_4)\Delta_1^* - 2\Omega_c^2) + (\Delta_3(\Delta_3 + \Delta_1^*) + \Omega_c^2)(\Delta_4(\Delta_4 + \Delta_1^*) + \Omega_c^2) \right) \right], \end{aligned} \quad (8.8)$$

onde: Δ_1^* é o complexo conjugado de Δ_1 , $\Delta_3 = i(\delta_3 - \Delta_F) - \Gamma_3/2$, $\Delta_4 = i\Delta_4 - \Gamma_4/2$ e $\Gamma_i = \Gamma_0^i + \gamma_i$ representa a taxa de dissipação total incluindo ambos processos de decoerência.

A partir da equação (8.8) escrevemos então o elemento ρ_{04}^{esta} como uma soma de quatro componentes R_i ,

$$\rho_{04}^{esta} = \sum_{i=1}^4 R_i \propto \sum_{i=1}^4 \frac{1}{\delta_p - \delta_p^i}, \quad (8.9)$$

sendo $\delta_p^1 = Z_1 - \sqrt{Z_2 - 2\sqrt{Z_3}}/4$, $\delta_p^2 = Z_1 + \sqrt{Z_2 - 2\sqrt{Z_3}}/4$, $\delta_p^3 = Z_1 - \sqrt{Z_2 + 2\sqrt{Z_3}}/4$ e, $\delta_p^4 = Z_1 + \sqrt{Z_2 + 2\sqrt{Z_3}}/4$, onde os parâmetros auxiliares usados para simplificar as expressões são dados por: $Z_1 = -i(\Gamma_1 + \Gamma_3 + \Gamma_4)/4$, $Z_2 = 16(T_e^2 + \Omega_c^2) - (\Gamma_4 - \Gamma_3)^2 - \Gamma_1^2$, e $Z_3 = (\Gamma_1^2 - 16\Omega_c^2)[(\Gamma_4 - \Gamma_3)^2 - 16T_e^2]$. Os parâmetros δ_p^i são as quatro raízes do denominador da expressão (8.8).

Por meio da análise das ressonâncias nós obtivemos limites para os diferentes regimes existentes no espectro óptico do sistema de cinco níveis, estabelecendo algumas condições entre T_e e Ω_c com a taxa de decaimento total Γ_4 e, entre os acoplamentos fortes.

A parte imaginária de χ obtida analiticamente é derivada da soma das quatro ressonâncias ilustradas na Fig. 21. Através deste resultado podemos observar que o espectro de absorção total (curva preta) é composta por quatro picos, onde o comportamento dos perfis das ressonâncias (R_1 , R_2 , R_3 e R_4) diferem para cada valor da razão T_e/Γ_4 . Considerando que o laser de controle é resonante com a transição óptica entre os estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$ e, $F = 22.7$ kV/cm, nós obtivemos para este sistema na região de tunelamento fraco $T_e/\Gamma_4 < 1/4$, uma redução na absorção total muito pequena (quase imperceptível), Fig. 21(a). Tal redução foi ocasionada pela sobreposição completa de cada um dos pares de ressonâncias, onde neste caso $\text{Im}\chi$ é composta de duas ressonâncias negativas com amplitude menores (R_1 e R_4) e duas ressonâncias positivas com amplitudes maiores (R_2

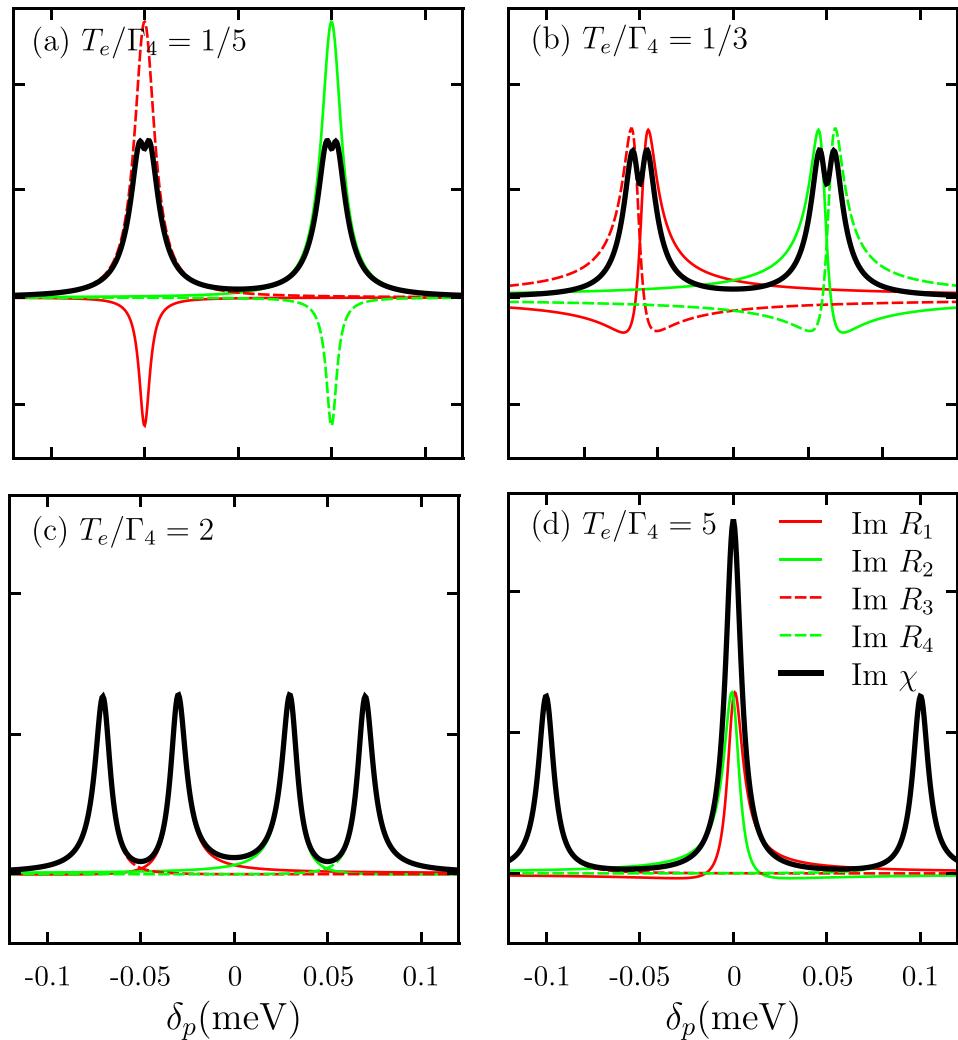


Figura 21: Absorção total (linha preta) e parte imaginária de R_i (linhas sólidas e pontilhadas de cores verdes e vermelhas) como função da dessintonia do laser de prova δ_p para diferentes valores de T_e/Γ_4 . (a) $T_e/\Gamma_4 = 1/5$, (b) $T_e/\Gamma_4 = 1/3$, (c) $T_e/\Gamma_4 = 2$ e (d) $T_e/\Gamma_4 = 5$. Em todos os casos foi considerado a condição $\Omega_c/\Gamma_4 = 5$.

e R_3). Este comportamento é característico de um processo de interferência destrutiva entre dois caminhos ópticos: $|0\rangle - |4\rangle$ e $|0\rangle - |4\rangle - |3\rangle - |4\rangle$, que por sua vez está associado ao fenômeno de transparência. Deste modo, nós descreveremos este comportamento como um regime próximo de TIT, pois apesar das características bastante similares a este regime, a redução na absorção é muito pequena.

Para o regime de tunelamento intermediário, $1/4 < T_e/\Gamma_4 < 1$, nós verificamos que o buraco associado à redução na absorção do laser de prova aumenta como uma consequência da separação entre as ressonâncias, como mostrado na Fig. 21(b). Notemos ainda que as ressonâncias possuem valores negativos, revelando a influência de efeitos de interferência quântica em transição do regime de TIT para dubletos de Autler-Townes.

Nos dois casos seguintes da Fig. 21 o tunelamento é maior, tornando-se maior do que a taxa de decaimento Γ_4 . O comportamento de dubletos de Autler-Townes é observado no regime de tunelamento forte, $T_e/\Gamma_4 > 1$, mostrado na Fig. 21(c), onde o espectro de absorção do laser de prova é resultado da contribuição das quatro ressonâncias positivas para qualquer valor de δ_p . Este comportamento é uma característica do efeito do dubletos de Autler-Townes, onde os buracos em $\delta_p \simeq \pm\Omega_c$ observados no espectro revela a assinatura do tunelamento do elétron.

Através da análise das ressonâncias calculadas analiticamente, nós obtivemos ainda uma condição entre Ω_c e T_e dada por: $\Omega_c T_e / (T_e^2 + \Omega_c^2) = 1/2$, na qual a linha de absorção exibe um perfil similar ao Tripleto de Mollow mostrado na Fig. 21(d). Esta condição é satisfeita quando o laser de controle e o tunelamento assumem exatamente o mesmo valor. Neste resultado (Fig. 21(d)) verificamos que o pico de maior amplitude ocorre devido à sobreposição total das ressonâncias R_1 e R_2 e independente dos valores de T_e e Ω_c , o mesmo ocorre na região de ressonância ($\delta_p = 0$). Observamos ainda que os outros picos de iguais amplitudes são deslocados de $\delta_p \pm 2\Omega_c$ aproximadamente em relação ao pico central, apresentando assim um perfil bastante similar aos tripletos de Mollow.

Além do efeitos de interferência que são observadas no espectro de absorção devido à presença do tunelamento, é importante analisarmos o comportamento das propriedades dispersivas do sistema, que por sua vez são determinadas através da parte real da função de susceptibilidade linear $\chi(\omega_p)$. Nós estamos interessados principalmente no comportamento do índice de refração para os valores de δ_p onde ocorre as janelas de transparência, já que tais regiões são acompanhadas por uma rápida variação no índice de refração.

Sabe-se que a velocidade de luz propagante no sistema é dado pela seguinte expres-

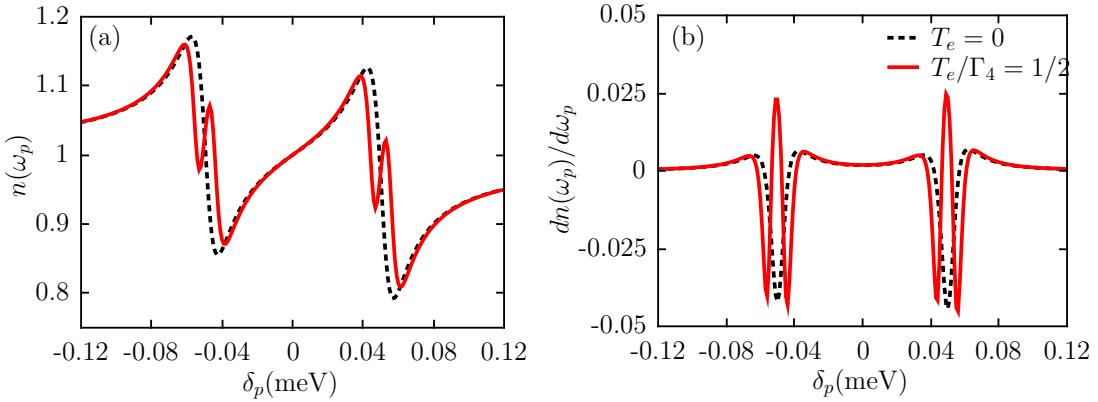


Figura 22: (a) Índice de refração $n(\omega_p)$ e, (b) sua disperção $dn/d\omega_p$ como função da dessintonia do laser de prova δ_p , considerando $T_e = 0$ (linha preta pontilhada) e $T_e/\Gamma_4 = 1/2$ (linha vermelha sólida). A relação $\Omega_c = 5\Gamma_4$ foi considerado.

são (FLEISCHHAUER; IMAMOGLU; MARANGOS, 2005):

$$v_{gr} = \frac{c}{n + \omega_p(dn/d\omega_p)}, \quad (8.10)$$

onde $n(\omega_p) = \sqrt{1 + \text{Re}(\chi)}$ é o índice de refração e $dn/d\omega_p$ é sua dispersão. Desta forma, podemos observar através da equação (8.10) que a velocidade de grupo no meio pode ser significativamente reduzida quando a dispersão do índice de refração assume valores altos e positivos. Na Fig. 22(a) é mostrado o comportamento do índice de refração como função de δ_p para o caso onde o tunelamento não está presente ($T_e = 0$) e quando $T_e/\Gamma_4 = 1/2$. Observamos que exatamente nas regiões de queda na absorção do laser de prova ($\delta_p \approx \pm 0.05$ meV) quando o tunelamento está presente, $n(\omega_p)$ experimenta uma mudança abrupta. Tal comportamento está diretamente associado à uma grande inclinação da reta tangente a curva nesta região, que resultará em um valor positivo e significativo de sua derivada, como mostrado na curva vermelha da Fig. 22(b). Como consequência temos que na mesma região que a molécula quântica se torna quase transparente ao laser de prova, o feixe de prova se propaga com uma velocidade de grupo consideravelmente reduzida em relação à velocidade da luz no vácuo.

A fim de evidenciar esta característica nós graficamos na Fig. 23(a) a razão c/v_{gr} calculada através da equação (8.10), como função do campo elétrico F na região de campo próximo à F_+ , considerando $T_e/\Gamma_4 = 1/2$. Verificamos que exatamente nas regiões que obedecem à relação $\Delta_F \sim \delta_p + \hbar\omega_{34} \pm \Omega_c$, na qual é observado a ocorrência dos buracos associados à queda da absorção, a razão c/v_{gr} assume valores da ordem de 10^4 (associadas às regiões de cor amarela), implicando em velocidade de grupo significativamente reduzida.

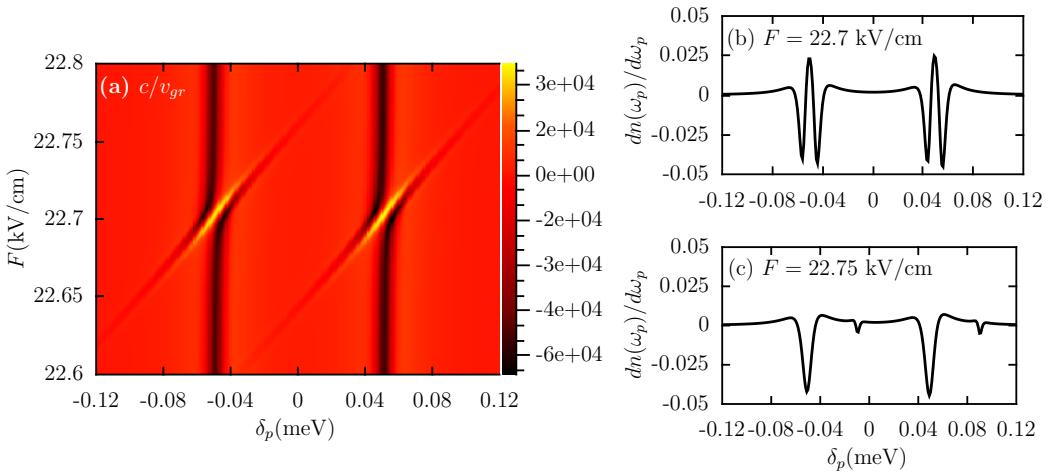


Figura 23: (a) Razão c/v_{gr} como função do campo elétrico F na região próxima a F_+ e δ_p . (b) dispersão de $n(\omega_p)$ como função da dessintonia do laser de prova para, (a) $F = F_+ = 22.7$ kV/cm e (b) $F = 22.75$ kV/cm. Em todos os casos foi considerado $T_e/\Gamma_4 = 1/2$ e $\Omega_c = 5\Gamma_4$.

Nas Figs. 23(b) e 23(c) é mostrado o comportamento da derivada $dn/d\omega_p$ para dois valores de campo diferentes, $F = 22.7$ kV/cm e $F = 22.75$ kV/cm, respectivamente. Verificamos que para $F = F_+$ no qual o tunelamento do elétron entre os pontos é evidenciado através dos buracos no espectro de absorção, $dn/d\omega_p$ assume valores positivos para valores de δ_p que obedecem a condição $\Delta_F \sim \delta_p + \hbar\omega_{34} \pm \Omega_c$ ($\delta_p \sim \pm 0.05$ meV). Isto resulta na propagação do feixe de prova em um meio transparente com velocidade reduzida, diferente do comportamento observado na região de campo $F = 22.75$ kV/cm mostrado na Fig. 23.

Como a redução de velocidade da grupo da luz, assim como as regiões de transparência, estão associadas ao efeito do tunelamento entre os pontos, nós graficamos na Fig. 24(a) novamente a razão c/v_{gr} mas, neste caso, como função de T_e/Γ_4 e δ_p , afim de identificar para qual regime de tunelamento pode-se obter velocidade de grupo da luz mais baixa sob as condições físicas aqui consideradas.

Verificamos na Fig. 24 que no regime de tunelamento $T_e/\Gamma_4 < 1$ associado à região do regime de transparência, são observados os maiores valores da razão c/v_{gr} para $\delta_p \approx \pm 0.05$ meV (regiões evidenciadas pelas áreas de amarelo mais claro) implicando em velocidade de grupo reduzida do feixe de prova. Na Fig. 24(b) mostramos o comportamento da curva c/v_{gr} como função do acoplamento T_e para valores de $\delta_p = \pm 0.05$ meV onde a razão c/v_{gr} assume valores máximos. No caso analisado, verificamos que a melhor escolha experimental para a obtenção dos valores mais baixos da velocidade de grupo do feixe de prova é $T_e/\Gamma_4 \approx 0.57$ e laser de prova com dessintonia $\delta_p = 0.05$ meV.

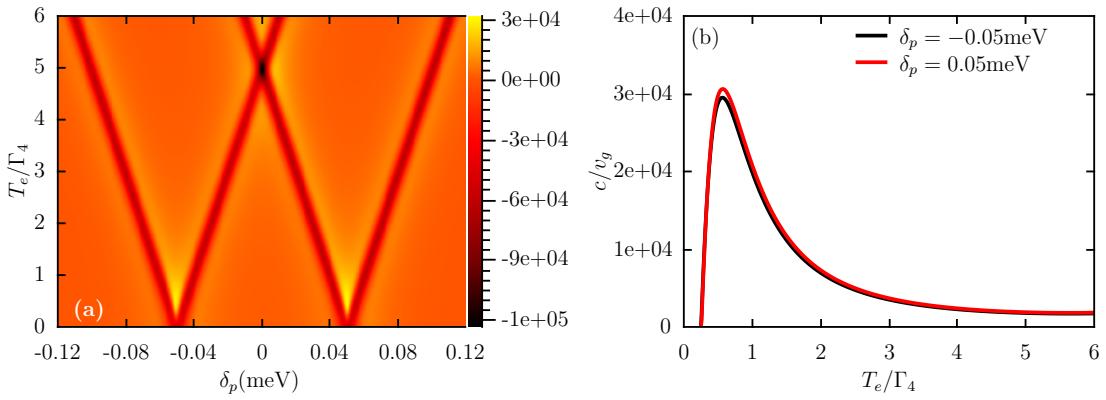


Figura 24: (a) Razão c/v_{gr} como função de T_e/Γ_4 . (b) Razão c/v_{gr} versus T_e/Γ_4 , para $\delta_p = -0.05$ meV (curva preta) e $\delta_p = 0.05$ meV (curva vermelha). Em todos os casos foi considerado $F = F_+ = 22.7$ kV/cm e $\Omega_c = 5 \Gamma_4$.

8.3 Conclusões

Em conclusão, neste capítulo nós investigamos a resposta óptica de uma molécula de pontos quânticos na presença de dois lasers de diferentes intensidades. Nossos resultados mostram que o espectro óptico neste sistema semicondutor, na presença dos campos ópticos e com os estados excitônicos acoplados por tunelamento é significativamente enriquecido. Afim de sumarizar as condições dos parâmetros físicos nas quais os diferentes regimes ópticos são observados no espectro de absorção, nós apresentamos a Tabela 8.3.

Tabela 2: Resposta óptica e parâmetros físicos do sistema para os diferentes regimes ópticos no espectro de absorção do ponto quântico duplo.

Comportamento óptico	Regime de parâmetros
Interferência quântica (quase-TIT)	$T_e/\Gamma_4 < 1/4$
Regime intermediário (TIT-AT)	$1/4 < T_e/\Gamma_4 < 1$
Autler-Towns (AT)	$T_e/\Gamma_4 > 1$
Regime similar ao triplo de Mollow	$T_e = \Omega_c$

Nossa análise estabelece que a manipulação da intensidade do laser de controle e da taxa de tunelamento permitem o controle de uma nanoestrutura que tem por sua vez, potencias aplicações ópticas. Verificamos ainda, que é possível reduzir significativamente a velocidade de grupo do feixe de prova através do controle do campo elétrico, dessintonia do laser e tunelamento. Mostramos através de nossos resultados que nas regiões de transparência induzida por tunelamento, o índice de refração experimenta uma mudança

acentuada, acarretando na redução da velocidade de grupo exatamente nessas regiões. Deste modo, mostramos neste capítulo que o tunelamento entre os pontos cumpre um papel crucial na resposta óptica do sistema, criando diferentes possibilidades para a observação de efeitos de interferência quântica.

9 *Interação de troca e transparência óptica induzida por tunelamento em pontos quânticos acoplados*

Neste capítulo nós investigamos a resposta óptica de pontos quânticos acoplados sob a incidência de luz polarizada, considerando os desdobramentos nos níveis excitônicos causados pelas interações de troca isotrópica e anisotrópica entre o par elétron-buraco. Nós consideramos aqui, que as transições entre os pontos quânticos são mediadas por dois processos de tunelamento do buraco: entre estados excitônicos com o mesmo momento angular total, ou seja, o buraco tunela conservando a orientação do seu momento angular, ou o processo em que o buraco tunela invertendo seu spin. Neste último processo, o tunelamento ocorre entre estados de éxitons brilhantes e escuros. Neste capítulo, investigamos o efeito da interação de troca do par elétron-buraco sobre a resposta óptica da molécula quântica e exploramos espaços relevantes de parâmetros, nos quais o tunelamento do buraco induz um processo de transparência no espectro de absorção do sistema. Os resultados mostrados neste capítulo foi submetido para a publicação na revista *Physical Review B* (BORGES; ALCALDE; ULLOA, 2014).

9.1 Sistema Físico e Modelo

Diversos grupos experimentais demonstraram o tunelamento de elétrons e buracos entre pontos quânticos acoplados (STINAFF et al., 2006; DOTY et al., 2010). Contudo, no contexto de aplicações de informação quântica, é mais interessante sistemas nos quais o tunelamento do buraco é favorecido. Por exemplo, o fraco acoplamento hiperfino de buracos com spins nucleares presentes na rede da nanoestrutura fazem com que os buracos sejam mais robustos contra efeitos de decoerência induzidos por spins nucleares (CHEKHOVICH et al., 2013). Embora nosso modelo seja bastante flexível, quanto à possibilidade do elétron ou buraco tunelarem entre os pontos, nesta parte focamos nosso

estudo em uma amostra de pontos acoplados onde o processo de tunelamento do buraco é dominante.

Como discutido na seção 2.2.2, a presença de campos de deformação durante o processo de formação da nanoestrutura do ponto quântico, assim como a forma anisotrópica exibida por pontos auto-formados em materiais III-V, acarretam em uma forte influência sobre o espectro excitônico através da interação de troca entre o par elétron-buraco. Deste modo, a interação de troca surge devido à interação de Coulomb entre elétron-buraco e acarreta em uma estrutura de múltiplos níveis excitônicos com diferentes valores de momento angular total. A assimetria do potencial de confinamento no plano xy do ponto quântico e seu impacto nas integrais associadas à interação coulombiana que mediam a interação de troca (equação 2.4), produzem um desdobramento nos níveis do estado de exciton neutro resultando na bem conhecida estrutura fina dos estados de excitons. A resposta deste sistema sob influência de luz polarizada é então fortemente afetada por essa interação. O efeito de transparência induzida por tunelamento neste tipo de sistema, quando interações de troca são explicitamente consideradas não tem sido explorado ainda na literatura. Como nós mostraremos aqui, este efeito resulta em um interessante acoplamento da molécula de pontos quânticos.

O sistema físico considerado nesta parte do trabalho é um sistema formado por dois pontos quânticos verticalmente crescidos, constituídos por materiais semicondutores do tipo III-V, com uma típica assimetria estrutural, no qual as dimensões do ponto da camada inferior (especialmente sua altura) são maiores que o ponto da camada superior. Excitações ópticas ressonantes produzem estados de excitons diretos, nos quais elétrons e buracos são espacialmente localizados no mesmo ponto quântico, enquanto o tunelamento entre os pontos do elétron ou do buraco permite a formação de excitons indiretos, nos quais os portadores estão espacialmente separados. Um campo elétrico externo F aplicado ao longo da direção de crescimento (direção- z) induz um deslocamento Stark relativo dos níveis de energia em ambos pontos quânticos. Enquanto os estados de excitons diretos são fracamente deslocados, os estados de excitons indiretos exibem um forte deslocamento com o campo. Como os excitons indiretos são essencialmente produzidos por tunelamento, anticruzamentos entre estados de excitons de caráter direto e indireto são observados para valores de campo F_i bem definidos. Diferentemente do Capítulo 8, nesta parte do trabalho nós consideramos que o elétron está confinado no ponto da camada inferior, e que os níveis da banda de valência de ambos os pontos são ressonantes, favorecendo o tunelamento coerente do buraco entre os pontos, como realizados em diferentes experimentos.

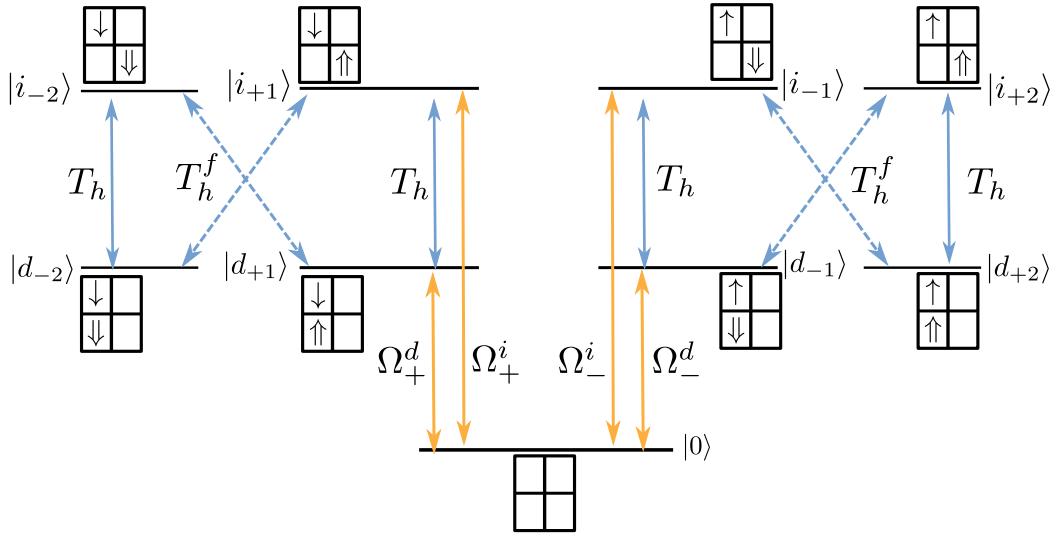


Figura 25: Representação esquemática dos níveis excitônicos incluindo os relevantes acoplamentos dados no hamiltoniano 9.1, onde \uparrow e \downarrow representam os estados de spin do buraco e, \uparrow e \downarrow os estados de spin do elétron.

Modelamos a dinâmica de todos os estados relevantes energeticamente de excitons diretos e indiretos na molécula de pontos quânticos, acoplados pelo tunelamento do buraco e na presença de laser de prova polarizado. Nós consideramos estados de buraco pesado (hh), $|j_{hh}, m_{hh}\rangle = |3/2, \pm 3/2\rangle$ e elétrons na banda de condução $|j_e, m_e\rangle = |1/2, \pm 1/2\rangle$, como os estados de elétrons e buracos relevantes neste sistema. Como consequência, a componente- z do momento angular total do estado de exciton assume os valores $S_z = m_{hh} + m_e = \pm 1$ (excitons brilhantes) a ± 2 (excitons escuros). O tunelamento do buraco contudo, pode ocorrer tanto preservando ou invertendo sua orientação do momento angular. A relaxação de spin dos portadores confinados nos pontos pode ocorrer principalmente devido à interação hiperfina entre os spins dos portadores e os spin nucleares no sistema, ou como uma consequência da interação spin-órbita (DOTY et al., 2010). As taxas de tunelamento são denotadas por: T_h^f , onde a projeção do momento angular intrínseco é invertida durante o processo de tunelamento do buraco e T_h , onde o buraco tunela conservando a projeção do seu momento angular. Quando o processo de tunelamento associado à taxa T_h^f ocorre, os estados de excitons escuros, por sua vez associados com a configuração de spins do elétron e buraco paralelos, e essencialmente desconectados da dinâmica via excitações ópticas, se tornam agora acessíveis e desempenham de fato um importante papel na resposta óptica como será visto neste capítulo.

Em pontos quânticos, a interação de troca entre elétron-buraco produz significantes aspectos no espectro excitônico da molécula de pontos quânticos, tais como o desdobra-

mento dos níveis de energia entre estados de éxcitons brilhantes ($S_z = \pm 1$) e éxcitons escuros ($S_z = \pm 2$), separados por uma quantidade de energia δ_0 . Além disso, a anisotropia estrutural no plano da nanoestrutura resulta no desdobramento de dubletos de ambos, éxcitons brilhantes e escuros, separados por δ_1 e δ_2 , respectivamente (VILLAS-BOÃS; ULLOA; GOVOROV, 2007; ECONOMOU; REINECKE, 2008). Esta contribuição anisotrópica da interação de troca, cumpre um papel essencial nas regras de seleção associadas às excitações ópticas permitidas criadas a partir de luz polarizada (MULLER et al., 2004). Como a interação de troca entre elétron-buraco está diretamente relacionada como a superposição das funções de onda dos portadores, o resultante desdobramento da energia para estados de éxcitons diretos são consideravelmente maiores do que nos estados de éxcitons indiretos, nos quais os portadores estão separados espacialmente na molécula quântica (WIJESUNDARA et al., 2011). Deste modo, modelamos os relevantes estados nos pontos quânticos acoplados considerando quatro estados de éxcitons diretos $|d_{\pm 1}\rangle$, $|d_{\pm 2}\rangle$ e quatro estados de éxcitons indiretos $|i_{\pm 1}\rangle$, $|i_{\pm 2}\rangle$. Nesta notação $d(i)$ se referem aos estados de éxcitons diretos (indiretos). O estado fundamental $|0\rangle$ corresponde ao estado de vácuo, ou seja, o sistema sem excitações. A representação esquemática do sistema de nove níveis, usados para modelar nosso sistema é ilustrado na Fig. 25, onde é representado o acoplamento óptico assim como ambos processos de tunelamento do buraco, conservando ou invertendo a orientação do seu momento angular.

O hamiltoniano que descreve o sistema na aproximação de onda girante, já escrita sem a dependência temporal é dada por:

$$H = H_0 + H_p + H_{T_h} + H_{T_h^f} + H_{exch}, \quad (9.1)$$

com:

$$H_0 = \sum_{S_z=\pm 2, \pm 1} \delta_d |d_{S_z}\rangle \langle d_{S_z}| + (\delta_i - \Delta_F) |i_{S_z}\rangle \langle i_{S_z}| + h.c.$$

$$H_p = \Omega_{\pm}^d |d_{\pm 1}\rangle \langle 0| + \Omega_{\pm}^i |i_{\pm 1}\rangle \langle 0| + h.c.$$

$$H_{T_h} = T_h (|d_{\pm 1}\rangle \langle i_{\pm 1}| + |d_{\pm 2}\rangle \langle i_{\pm 2}|) + h.c.$$

$$H_{T_h^f} = T_h^f (|d_{\pm 1}\rangle \langle i_{\mp 2}| + |d_{\pm 2}\rangle \langle i_{\mp 1}|) + h.c.$$

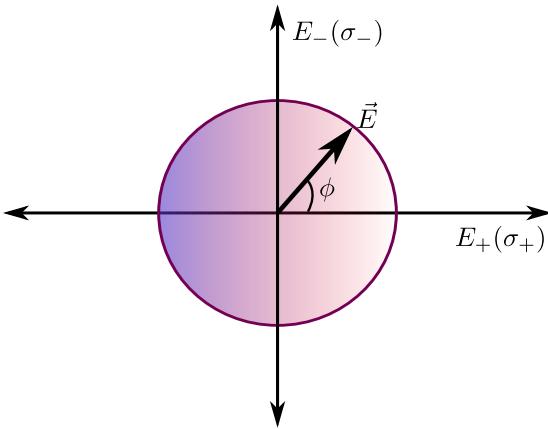


Figura 26: Campo eletromagnético decomposto em duas componentes ortogonais entre si escritas como função do ângulo ϕ , onde $\phi = 0$ corresponde ao laser com polarização circular à direita (σ_+) e, $\phi = \pi/2$ com polarização circular à esquerda (σ_-).

$$H_{exch} = \sum_{j=d,i} \delta_0^j [|j_{\pm 1}\rangle\langle j_{\pm 1}| - |j_{\pm 2}\rangle\langle j_{\pm 2}|] + \delta_1^j |j_{\pm 1}\rangle\langle j_{\mp 1}| + \delta_2^j |j_{\pm 2}\rangle\langle j_{\mp 2}| + h.c.,$$

onde: H_0 descreve a parte livre do hamiltoniano, ou seja o sistema sem interações, com as dessintonias $\delta_{d(i)} = E_{d(i)} - \hbar\omega_p$ dos estados excitônicos em relação ao laser incidente, e $\Delta_F = eFd$ é o deslocamento de energia dos estados indiretos devido ao efeito Stark. As transições entre os pontos quânticos mediadas pelo tunelamento do buraco entre estados com o mesmo momento angular total e, entre estados brilhantes e escuros, são descritas por H_{T_h} e $H_{T_h^f}$, respectivamente. O hamiltoniano H_{exch} leva em conta a estrutura fina excitônica, onde: $2\delta_0^{d(i)}$ é a quantidade de energia que separa os estados de excitons brilhantes e escuros; $\delta_1^{d(i)}$ caracteriza o acoplamento que resulta na mistura entre os estados de excitons brilhantes e $\delta_2^{d(i)}$ para os excitons escuros.

A interação com o laser incidente é descrita por H_p , com os parâmetros de acoplamento óptico $\Omega_{\pm}^d = \langle 0 | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | d_{\pm 1} \rangle / 2\hbar$ e $\Omega_{\pm}^i = \langle 0 | \vec{\mu} \cdot \vec{E} | i_{\pm} \rangle / 2\hbar$, associados aos estados de excitons diretos e indiretos, respectivamente. Aqui, $\vec{\mu}$ é o momento de dipolo elétrico que acopla as transições excitônicas à componente do campo elétrico \vec{E} . Nós consideramos em nosso modelo a condição $\Omega^d < \Omega^i$, já que a razão entre momentos de dipolo entre as bandas do semicondutor é muito menor do que 1, ou seja, $f = \mu_{0d}/\mu_{0i} \ll 1$. O campo eletromagnético pode, por sua vez, ser escrito como função de duas componentes de polarização ortogonais entre si (σ_+ e σ_-), de tal forma que: $\vec{E} = \vec{E}_+ + \vec{E}_-$, onde $E_+ = E \cos(\phi)$ e $E_- = E \sin(\phi)$ sendo E a amplitude do campo e $0 \leq \phi \leq \pi/2$, como é ilustrado na Fig. 26.

Como as transições excitônicas devem obedecer as regras de seleção óptica, de tal

forma que o momento angular do fóton incidente deve ser conservado, ou seja, $S_z = \pm 1$, um pulso de luz polarizado circularmente à direita (σ_+) pode criar o estado de éxciton direto $|d_{+1}\rangle$ ou, polarizado circularmente à esquerda (σ_-) pode criar o estado $|d_{-1}\rangle$. O ângulo $\phi = \arctan(E_-/E_+)$, onde $\phi = 0$ ou $\pi/2$ correspondem às polarizações circulares σ_+ ou σ_- , enquanto $\phi = \pi/4$ corresponde por exemplo a um caso de polarização linear. Neste caso específico de polarização linear, que corresponde à polarização horizontal ($\pi_x = \frac{\sigma_+ + \sigma_-}{\sqrt{2}}$), temos que $\Omega_+ = \Omega_-$. Desta forma, os estados de éxcitons $|d_{\pm 1}\rangle$ são criados com iguais probabilidades.

9.2 Interação de troca e simetria dos estados excitônicos

Com o intuito de investigar os efeitos da interação de troca do par elétron-buraco sobre a resposta óptica do sistema assim como explorar e evidenciar o efeito de transparência induzida por tunelamento, nós graficamos na Fig. 27 o espectro excitônico do ponto quântico duplo como função do campo elétrico externo F . Como é evidenciado no espectro de energia deste sistema de nove níveis, estados escritos como combinações lineares simétricas e antissimétricas dos estados de éxcitons brilhantes ($S_z = \pm 1$) e escuros ($S_z = \pm 2$) são autoestados do sistema. Tal característica é esperada, já que a contribuição anisotrópica da interação de troca provoca uma mistura entre estados de momento angular total ± 1 e ± 2 . Deste modo, quando estes diferentes acoplamentos e interações são levadas em conta, é conveniente analisarmos a dinâmica e propriedades ópticas deste sistema em uma nova base. Nós definimos uma nova base onde os estados são escritos de acordo com a simetria de paridade para estados brilhantes e escuros, que são por sua vez autoestados do sistema e são dados por:

$$\begin{cases} |d_B^{S,A}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{2}} (|d_{+1}\rangle \pm |d_{-1}\rangle), \\ |i_B^{S,A}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{2}} (|i_{+1}\rangle \pm |i_{-1}\rangle), \end{cases} \quad \begin{cases} |d_D^{S,A}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{2}} (|d_{+2}\rangle \pm |d_{-2}\rangle), \\ |i_D^{S,A}\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{2}} (|i_{+2}\rangle \pm |i_{-2}\rangle). \end{cases}$$

Na notação aqui utilizada, o sinal + (ou -) refere-se às combinações simétricas S (ou antissimétrica A) e os índices B e D indicam se os estados de uma dada simetria é uma combinação de estados brilhantes ou escuros, respectivamente.

Além de auxiliar no entendimento das interações e acoplamentos exibidos no espectro (Fig. 27(a)), esta nova base de estados apresenta como principal vantagem o fato de que

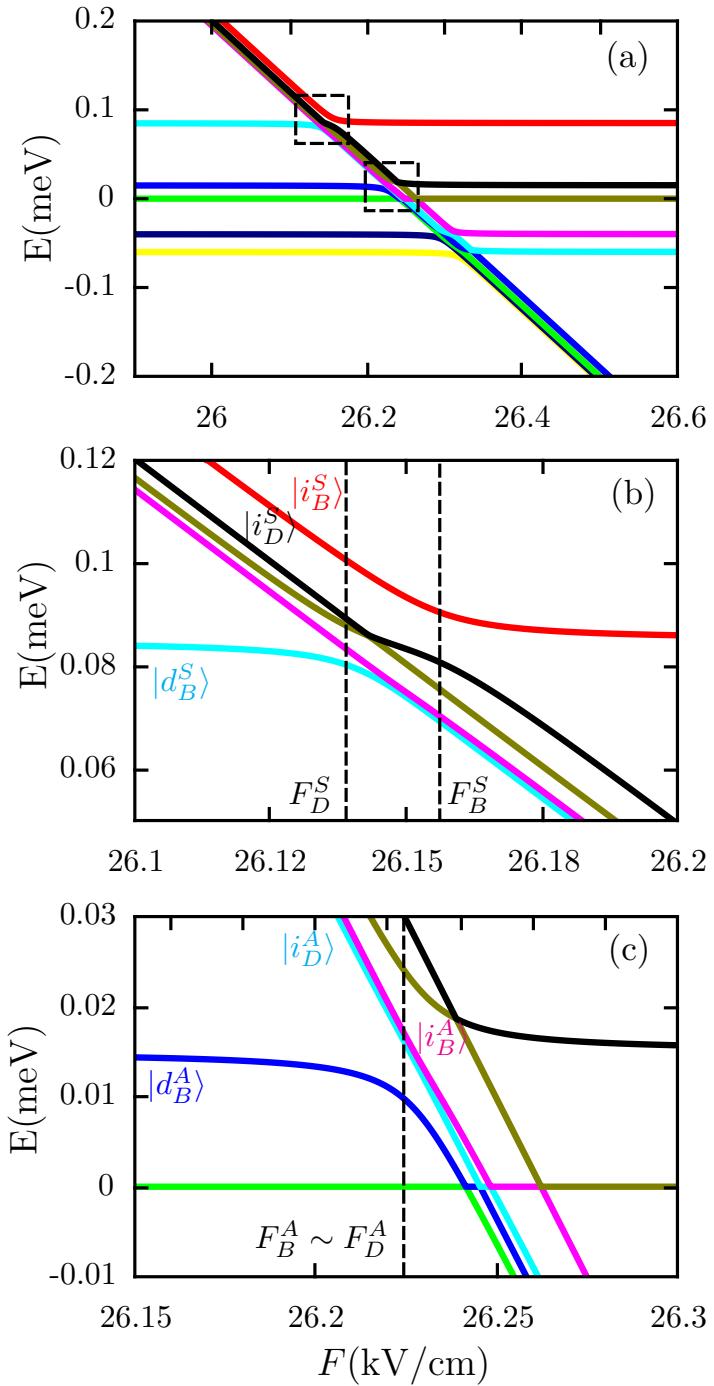


Figura 27: (a) Espectro excitônico como função do campo elétrico F . Áreas delimitadas pelos retângulos pontilhados mostram os relevantes anticruzamentos entre estados de excitons diretos e indiretos. (b) e (c) são ampliações das regiões em destaque na Fig. 27 que evidenciam os anticruzamentos entre estados de excitons diretos $|d_B^S\rangle$ e $|d_B^A\rangle$ com estados de excitons indiretos de mesma simetria sob paridade, combinações simétricas (S) e antissimétricas (A), respectivamente. As linhas verticais pontilhadas indicam os valores de campo elétrico F específicos nos quais os estados excitons diretos e indiretos são ressonantes.

nesta base, os dois grupos de simetrias distintas são praticamente desconectados, a não ser por suas relativas interações com o estado fundamental $|0\rangle$ através do laser incidente. Esta característica surge do fato de que os dois processos de tunelamento, representados pelas taxas T_h^f e T_h , onde o buraco tunela invertendo ou conservando a orientação do seu momento angular, respectivamente, acoplam somente estados de excitons diretos e indiretos com mesma simetria.

Nesta base ordenada por $|0\rangle$, combinações simétricas $(|d_B^S\rangle, |i_B^S\rangle, |d_D^S\rangle, |i_B^S\rangle)$ e combinações antissimétricas $(|d_B^A\rangle, |i_B^A\rangle, |d_D^A\rangle, |i_B^A\rangle)$, obtivemos o seguinte hamiltoniano 9×9 :

$$H' = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_d^S & \Omega_i^S & 0 & 0 & \Omega_d^A & \Omega_i^A & 0 & 0 \\ \Omega_d^S & \delta_{d,B}^S & T_h & 0 & T_h^f & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_i^S & T_h & \delta_{i,B}^S & T_h^f & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & T_h^f & \delta_{d,D}^S & T_h & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & T_h^f & 0 & T_h & \delta_{i,D}^S & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_d^A & 0 & 0 & 0 & 0 & \delta_{d,B}^A & T_h & 0 & -T_h^f \\ \Omega_i^A & 0 & 0 & 0 & 0 & T_h & \delta_{i,B}^A & -T_h^f & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -T_h^f & \delta_{d,D}^A & T_h \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -T_h^f & 0 & T_h & \delta_{i,D}^A \end{pmatrix}, \quad (9.2)$$

onde: $\Omega_d^{S(A)} = \frac{\Omega_+^d \pm \Omega_-^d}{\sqrt{2}}$, $\Omega_i^{S(A)} = \frac{\Omega_+^i \pm \Omega_-^i}{\sqrt{2}}$ descrevem o acoplamento óptico efetivo entre o estado $|0\rangle$ e os estados dados pelas combinações simétricas e antissimétricas dos estados brilhantes. Como pode ser visto, este acoplamento óptico efetivo é uma combinação de luz circularmente polarizada para esquerda e para direita, já que $\Omega_+ = \Omega \cos(\phi)$ $\Omega_- = \Omega \sin(\phi)$. Desta forma, temos que quando consideramos por exemplo a condição de luz polarizada horizontalmente ($\pi_x, \phi = \pi/4$), somente as combinações simétricas são opticamente acopladas ao estado fundamental.

Os termos diagonais do hamiltoniano (9.2) são relacionados às dessintonias de cada nível em relação à energia do laser de prova assim como aos acoplamentos de interação de troca e são dados por: $\delta_{d,B}^{S(A)} = \delta_d + \delta_0^d \pm \delta_1^d$, $\delta_{i,B}^{S(A)} = (\delta_i - \Delta_F) + \delta_0^i \pm \delta_1^i$, $\delta_{d,D}^{S(A)} = \delta_d - \delta_0^d \pm \delta_2^d$, $\delta_{i,D}^{S(A)} = (\delta_i - \Delta_F) - \delta_0^i \pm \delta_2^i$. Em relação aos acoplamentos relacionados à interação de troca, por exemplo em nosso modelo $\delta_1^{d(i)}$ que representa a contribuição anisotrópica dessa interação, está presente no termo de dessintonia efetiva dos estados de brilhantes simétricos ou antissimétricos. Tais estados tem um acoplamento óptico efetivo com o estado $|0\rangle$ por luz polarizada linearmente, dados por $\Omega_{d(i)^S}$ ($\Omega_{d(i)^A}$).

O hamiltoniano H' é uma matriz que exibe uma forma quase bloco diagonal, exceto

pela primeira linha e coluna associadas ao estado fundamental $|0\rangle$. O bloco superior está associado aos estados de combinações simétricas e, o bloco inferior está associado às combinações antissimétricas. Esta característica evidencia o fato de que os processos de tunelamento T_h e T_h^f misturam somente estados de mesma simetria, enquanto ambos blocos são acoplados indiretamente através do estado $|0\rangle$. A taxas de tunelamento que dependem fortemente da espessura d da barreira obedecem a condição $T_h^f < T_h$, e acoplam estados de mesma simetria onde T_h acopla estados de mesmo momento angular e T_h^f mistura estados brilhantes e escuros. Estas características ficam evidentes no espectro excitônico (Fig. 27), onde podemos extrair informações a respeito de quais valores de campo elétrico os anticruzamentos ocorrem que são, por sua vez, regiões onde há um tunelamento coerente de um ponto para outro.

Nos resultados deste capítulo, nós consideramos novamente parâmetros realísticos para pontos quânticos auto-formados de InAs e energias dos estados excitônicos, baseados nos dados experimentais da Ref. (WIJESUNDARA et al., 2011). A interação de troca destes materiais resultam tipicamente no desdobramento dos níveis de energia entre estados brilhantes e escuros de $\delta_0^d \simeq 100 \mu\text{eV}$ e entre suas respectivas combinações simétricas e antissimétricas de $\delta_1^d \simeq 35 \mu\text{eV}$ e $\delta_2^d \simeq 10 \mu\text{eV}$ (BRACKER; GAMMON; KORENEV, 2008). Em nosso modelo nós consideramos também os acoplamentos da interação de troca entre par elétron-buraco quando os portadores estão em pontos diferentes. Neste caso, como a sobreposição da função de onda dos portadores é menor do que para os estados de excitons diretos, nós assumimos $\delta_{0,1,2}^i \approx 0.1\delta_{0,1,2}^d$. Nós também consideramos as taxas de relaxação dos estados excitônicos $\Gamma_d = 10 \mu\text{eV}$ e $\Gamma_i = 10^{-3}\Gamma_d$, que são valores típicos de experimentos deste tipo de molécula quântica (BORRI et al., 2003). As taxas de tunelamento podem ser eficientemente controladas no processo de crescimento da amostra, e aqui assumimos que $T_h = \Gamma_d/2$ e $T_h^f = T_h/2$, sendo comparáveis à taxa de decaimento para estados de excitons diretos. Em relação aos acoplamentos ópticos consideramos um laser de prova de baixa intensidade, tal que $\Omega^d \approx 0.1\Gamma_d$ e $\Omega^i \approx 0.1\Omega^d$, implicando na condição $\Omega_d, \Omega_i \ll T_h, T_h^f$.

O espectro de energia exibe desdobramentos nos níveis de energia caraterísticos dos valores aqui considerados, devido aos acoplamentos da interação de troca e diversas regiões de anticruzamentos, que são por sua vez uma assinatura da delocalização da função de onda do buraco em ambos os pontos. Com o intuito de observar janelas de transparência no espectro de absorção devido à presença do tunelamento, nós focaremos nossa atenção nas regiões destacadas na Fig. 27(a). As Figs. 27(b) e 27(c) mostram estas áreas de forma ampliada, ilustrando que os acoplamentos T_h e T_h^f originam em anticruzamentos

entre estados de éxitons diretos e indiretos, assim como o esperado. Na Fig. 27(b) pode ser notado claramente que o estado $|d_B^S\rangle$ é acoplado somente aos dois estados indiretos simétricos: $|i_B^S\rangle$ e $|i_D^S\rangle$. Assim como pode ser também verificado no hamiltoniano H' (9.2), a mistura entre o estado $|i_B^S\rangle$ ocorre devido à T_h , e com $|i_D^S\rangle$ através de T_h^f .

Um comportamento similar pode ser também observado na Fig. 27(c) para as combinações antissimétricas, onde de forma análoga notamos que o estado $|d_B^A\rangle$ acopla através de T_h e T_h^f aos indiretos de mesma simetria: $|i_B^A\rangle$ e $|i_D^A\rangle$, respectivamente. O valor exato do campo elétrico no qual estes anticruzamentos ocorrem pode ser obtido quando a condição de ressonância entre os respectivos estados diretos e indiretos são ressonantes. Por exemplo, a condição $\delta_d + \delta_0^d + \delta_1^d = (\delta_i - \Delta_F) + \delta_0^i + \delta_1^i$ fornece um valor específico de campo $F_B^S = \Delta_F/ed$ no qual os estados de éxitons diretos e indiretos brilhantes simétricos se misturam. Da forma análoga o valor de campo elétrico específico F_D^S , onde $|d_B^S\rangle$ e $|i_D^S\rangle$ se misturam pode ser obtido quando $\delta_{d,B}^S = \delta_{i,D}^S$. As linhas pontilhadas verticais que aparecem nas Figs. 27(b) e 27(c), mostram os valores de campos onde estes anticruzamentos ocorrem.

Nas Fig. 27(c) são mostrados os valores de campos F_B^A e F_D^A nos quais os estados antissimétricos direto $|d_B^A\rangle$ e indiretos $|i_B^A\rangle$, $|i_D^A\rangle$ anticruzam, respectivamente. Analogamente estes valores de campos podem ser obtidos através das condições de ressonância dos respectivos estados e, para nossas escolhas de parâmetros é importante notar que $F_B^A \simeq F_D^A$.

9.3 Interação de troca e transparência induzida por tunelamento

Nesta seção nós investigamos e exploramos as condições e regimes de parâmetros nos quais os acoplamentos T_h e T_h^f podem estabelecer eficientes caminhos de interferência quântica destrutiva de tal forma que resultem em uma subsequente redução na absorção no espectro de absorção. Com o intuito de investigarmos a resposta óptica do sistema, nós calculamos e analisamos a função de susceptibilidade óptica $\chi(\omega_p)$.

As propriedades ópticas assim como a dinâmica dissipativa dos estados excitônicos na molécula quântica são novamente calculadas usando a equação de Liouville-von Neumann-Lindblad (8.5), que nos fornece nesse modelo uma sistema de nove equações diferenciais acopladas. Nós focamos nossa atenção no regime estacionário onde $\dot{\rho}_{ij} = 0$, sob influência contínua do laser de prova com diferentes valores de frequência. Desta forma, afim de

caracterizar a resposta óptica do sistema quando o laser de prova está presente, nós calculamos a função complexa $\chi = \chi' + i\chi''$ como função da frequência do laser de prova, através da seguinte forma:

$$\chi = \frac{\Gamma_{opt}}{V} \frac{|\mu_{0d}|^2}{\epsilon_0 \hbar \Omega_p} (\rho_{0,d_{\pm 1}} + f \rho_{0,i_{\pm 1}}), \quad (9.3)$$

onde $\rho_{0,d_{\pm 1}}$ e $\rho_{0,i_{\pm 1}}$ são os elementos de matriz associados às transições ópticas permitidas e $f = \mu_{0i}/\mu_{0d} \ll 1$ é a razão entre os momentos de dipolo elétrico das transições dos excitons diretos e indiretos. Os valores numéricos destes parâmetros associados à susceptibilidade foram retirados da trabalho experimental (KIM et al., 2004).

Como estamos interessados em explorar os regimes onde é possível observar o efeito de transparência induzida por tunelamento, calculamos $\text{Im}[\chi(\omega_p)]$ para os específicos valores de campo elétrico nos quais os anticruzamentos ocorrem. Como discutido na Sec. 9.2, estes valores foram obtidos a partir das condições de ressonância entre os estados de excitons diretos e indiretos com mesma simetria, garantindo o tunelamento efetivo entre os pontos. É importante ressaltar que embora a absorção óptica total do sistema (9.3) tenha contribuições de diferentes pesos em relação aos excitons diretos ($\rho_{0,d_{\pm 1}}$) e indiretos ($\rho_{0,i_{\pm 1}}$), a força de oscilador dos portadores espacialmente separados é muito menor do que para exciton diretos. Deste modo, os termos $\rho_{0,i_{\pm 1}}$ não contribuirão significativamente para absorção total do sistema, como será visto nos próximos resultados.

Sob a incidência do laser de prova com polarização σ_+ mostramos nas Figs. 28(a) e 28(b) a parte imaginária dos elementos da matriz densidade $\rho_{0d_{\pm 1}}$ e $\rho_{0i_{\pm 1}}$, respectivamente, como função da dessintonia δ_d para $F = F_B^S$, onde os estados simétricos brilhantes $|d_B^S\rangle$ e $|i_B^S\rangle$ se anticruzam. No gráfico 28(c) é mostrado o perfil da absorção total do sistema, dado por $\text{Im}[\chi(\omega_p)]$, também como função de δ_d , considerando as quatro contribuições dos excitons diretos e indiretos.

Na Fig. 28(a) mostramos separadamente as contribuições de ambos elementos $\rho_{0d_{+1}}$ (linha sólida vermelha) e $\rho_{0d_{-1}}$ (linha pontilhada azul). Nós observamos duas regiões de absorção, uma região próximo a $\delta_d = -\delta_0^d - \delta_1^d = -15 \mu\text{eV}$, que corresponde à ressonância do laser de prova com o estado assimétrico $|d_B^A\rangle$, enquanto a outra região próximo a $\delta_d = -\delta_0^d - \delta_1^d = -85 \mu\text{eV}$, corresponde à ressonância com o estado $|d_B^S\rangle$. Notemos que em $\delta_d = -15 \mu\text{eV}$, as contribuições assimétricas dos elementos $\rho_{0d_{\pm 1}}$ na absorção se cancelam. Em contrapartida, quando o laser de prova é ressonante à transição do estado simétrico, as contribuições dos excitons brilhantes ($S = \pm 1$) são aditivas e um buraco (denotado por A na Fig.28(a)) é observado em $\delta_d = -85 \mu\text{eV}$. Este buraco no espectro de absorção é

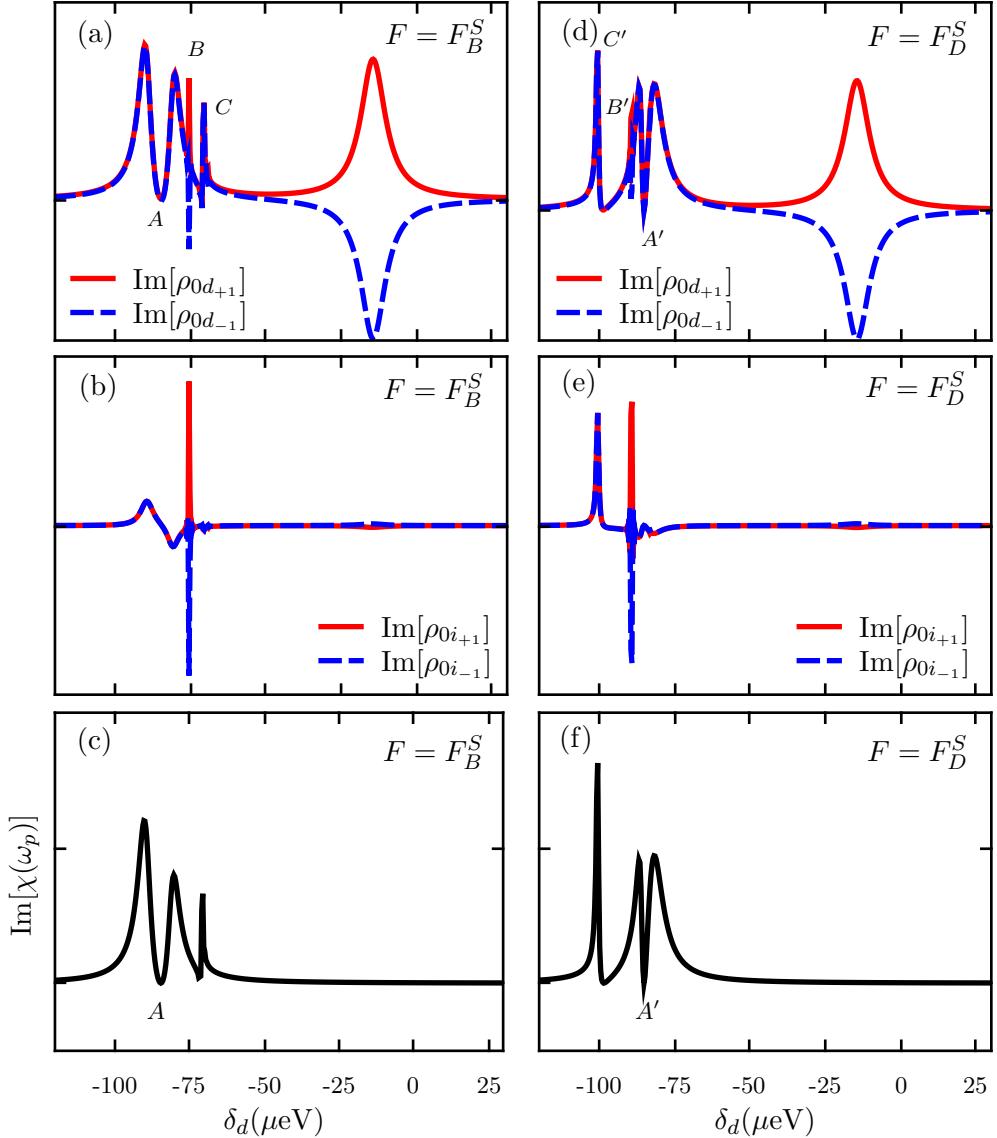


Figura 28: Parte imaginária dos elementos de matriz densidade que contribuem para a absorção total $\chi(\omega_p)$, sob a incidência de luz polarizada circularmente à direita ($\phi = 0$). Nos painéis (a) e (d) são mostradas as contribuições éxitons diretos $\rho_{0d_{\pm 1}}$; em (b) e (e) mostram as contribuições dos éxitons indiretos $\rho_{0i_{\pm 1}}$. (c) e (f) mostram a parte imaginária total da susceptibilidade óptica $\text{Im}\chi$, que descreve a absorção do sistema. Os painéis da esquerda foram calculados para o valor de campo $F = F_B^S$, enquanto os painéis da direita para $F = F_D^S$. As regiões denotadas por A e A' indicam as janelas de transparência induzidas pelo tunelamento T_h e T_h^f , respectivamente.

devido à presença do acoplamento T_h , que acopla os estados $|d_B^S\rangle$ e $|i_B^S\rangle$, onde esta mistura fornece um caminho de interferência destrutiva criando a janela de transparência A . Neste caso, onde a absorção foi calculada para $F = F_B^S$ (o que implica que, $\delta_{d,B}^S = \delta_{i,B}^S$) os estados $|d_B^S\rangle$ e $|i_B^S\rangle$ são misturados, de tal forma que devido à interação T_h , as combinações entre estes dois estados são separados em energia por $2T_h$. De uma maneira simplificada, se considerarmos por exemplo um hamiltoniano 2×2 que descreve o acoplamento entre esses dois níveis temos que:

$$H'' = \begin{pmatrix} \delta & T_h \\ T_h & \delta \end{pmatrix}, \quad (9.4)$$

onde o hamiltoniano foi escrito no ordenamento $|d_B^S\rangle$ e $|i_B^S\rangle$. Assim, os autoestados de H'' são combinações lineares dadas por: $|\pm\rangle = (|d_B^S\rangle \pm |i_B^S\rangle)/\sqrt{2}$. Nesta configuração de parâmetros, passam a existir dois caminhos nos quais o laser de prova pode ser absorvido $|0\rangle \rightarrow |+\rangle$ e $|0\rangle \rightarrow |-\rangle$ e, como $T_h < \Gamma_D$ os dois caminhos são indistinguíveis, o que possibilita a ocorrência de interferência destrutiva, cancelando a absorção do laser de prova.

Além da janela de transparência, notamos também na Fig. 28 dois picos laterais, denotados por B e C que ocorrem para valores de δ_d muito próximos e aparecem devido ao acoplamento do estado $|d_B^S\rangle$ com outros estados quase ressonantes quando $F = F_B^S$. O pico lateral C , em $\delta_d \approx -70 \mu\text{eV}$ é especialmente uma contribuição aditiva de $\rho_{0d_{\pm 1}}$ devido ao acoplamento T_h^f entre $|d_B^S\rangle$ e $|i_D^S\rangle$, e fornece uma assinatura óptica da ocorrência do processo de tunelamento do buraco entre os pontos invertendo seu spin. É importante mencionar que apesar da Fig. 28(c) ter sido calculada para o valor de campo elétrico $F = F_B^S$, onde a mistura entre os estados brilhantes $|d_B^S\rangle$ e $|i_B^S\rangle$ afeta a resposta óptica do sistema resultando na janela de transparência; o estado $|d_B^S\rangle$ acopla também com o estado $|i_D^S\rangle$ através de T_h^f . O valor do campo onde estes estados brilhante e escuro se misturam é $F = F_D^S$, e para os parâmetros escolhidos em nosso modelo a diferença entre estes campos é de 17.5 V/cm o que corresponde a uma diferença de energia bem pequena de $14 \mu\text{eV}$.

As contribuições denotadas por B na Fig. 28(a) aparecem devido à contribuição de estados antissimétricos, porém não modifica a resposta óptica total do sistema já que se cancelam. Em relação ao pico lateral B , é necessário uma análise mais detalhada.

O acoplamento óptico do estado fundamental com os estados de excitons diretos e indiretos induz um acoplamento efetivo entre os estados de diferentes simetrias. Tal acoplamento não pode ser visto no hamiltoniano H' (9.2), onde pode-se notar que não há nenhum termo de acoplamento entre os estados de diferentes blocos de simetrias, sendo

aparentemente desconectados entre si. Porém, termos de acoplamento efetivo entre os estados do diferentes blocos aparecem nos termos de segunda ordem, que podem por sua vez serem obtidos projetando fora o estado fundamental do hamiltoniano total H' . Desta forma, nós obtivemos um hamiltoniano efetivo 8×8 , utilizando o método descrito no apêndice A, no qual fica evidente o acoplamento entre os estados de diferentes simetrias através do estado de vácuo $|0\rangle$. Os elementos do hamiltoniano efetivo H_{ef} é dado por:

$$\begin{aligned} \langle d_B^{S(A)} | H_{ef} | d_B^{S(A)} \rangle &= \delta_{d,B}^{S(A)} + \frac{\left(\Omega_d^{S(A)}\right)^2}{\delta_{d,B}^{S(A)}}, \\ \langle i_B^{S(A)} | H_{ef} | i_B^{S(A)} \rangle &= \delta_{i,B}^{S(A)} + \frac{\left(\Omega_i^{S(A)}\right)^2}{\delta_{i,B}^{S(A)}}, \\ \langle d_D^{S(A)} | H_{ef} | d_B^{S(A)} \rangle &= \delta_{d,D}^{S(A)}, \\ \langle i_D^{S(A)} | H_{ef} | i_B^{S(A)} \rangle &= \delta_{i,D}^{S(A)}, \end{aligned} \quad (9.5)$$

$$\langle d_B^S | H_{ef} | i_B^S \rangle = T_h + \frac{\Omega_d^S \Omega_i^S}{2} \left(\frac{1}{\delta_{d,B}^S} + \frac{1}{\delta_{i,B}^S} \right),$$

$$\langle d_B^S | H_{ef} | d_D^S \rangle = \langle i_B^S | H_{ef} | i_D^S \rangle = 0,$$

$$\langle d_B^S | H_{ef} | i_D^S \rangle = \langle i_B^S | H_{ef} | d_D^S \rangle = T_h^f,$$

$$\langle d_D^S | H_{ef} | i_D^S \rangle = T_h, \quad (9.6)$$

$$\langle d_B^A | H_{ef} | i_B^A \rangle = T_h + \frac{\Omega_d^A \Omega_i^A}{2} \left(\frac{1}{\delta_{d,B}^A} + \frac{1}{\delta_{i,B}^A} \right),$$

$$\langle d_B^A | H_{ef} | d_D^A \rangle = \langle i_B^A | H_{ef} | i_D^A \rangle = 0,$$

$$\langle d_B^A | H_{ef} | i_D^A \rangle = \langle i_B^A | H_{ef} | d_D^A \rangle = -T_h^f,$$

$$\langle d_D^A | H_{ef} | i_D^A \rangle = T_h, \quad (9.7)$$

$$\langle d_B^S | H_{ef} | d_B^A \rangle = \frac{\Omega_d^S \Omega_d^A}{2} \left(\frac{1}{\delta_{d,B}^S} + \frac{1}{\delta_{d,B}^A} \right),$$

$$\langle d_B^S | H_{ef} | i_B^A \rangle = \frac{\Omega_d^S \Omega_i^A}{2} \left(\frac{1}{\delta_{d,B}^S} + \frac{1}{\delta_{i,B}^A} \right),$$

$$\langle i_B^S | H_{ef} | d_B^A \rangle = \frac{\Omega_i^S \Omega_d^A}{2} \left(\frac{1}{\delta_{d,B}^A} + \frac{1}{\delta_{i,B}^S} \right),$$

$$\langle i_B^S | H_{ef} | i_B^A \rangle = \frac{\Omega_i^S \Omega_i^A}{2} \left(\frac{1}{\delta_{i,B}^S} + \frac{1}{\delta_{i,B}^A} \right),$$

$$\langle d_B^S | H_{ef} | d_D^A \rangle = \langle d_B^S | H_{ef} | i_D^A \rangle = \langle i_B^S | H_{ef} | d_D^A \rangle = \langle i_B^S | H_{ef} | i_D^A \rangle = 0,$$

$$\langle d_D^S | H_{ef} | d_B^A \rangle = \langle d_D^S | H_{ef} | i_B^A \rangle = \langle d_D^S | H_{ef} | d_D^A \rangle = \langle d_D^S | H_{ef} | i_D^A \rangle = 0,$$

$$\langle i_D^S | H_{ef} | d_B^A \rangle = \langle i_D^S | H_{ef} | i_B^A \rangle = \langle i_D^S | H_{ef} | d_D^A \rangle = \langle i_D^S | H_{ef} | i_D^A \rangle = 0, \quad (9.8)$$

onde o primeiro bloco de elementos de matriz (9.5) se refere aos termos diagonais, o segundo e terceiro blocos de elementos (9.6 e 9.7) estão associados aos estados simétricos e antissimétricos, respectivamente e, o quarto bloco (9.8) são os termos associados aos acoplamentos efetivos entre os estados de diferentes simetrias, que aparecem nos estados brilhantes devido ao acoplamento óptico com o estado fundamental.

Neste hamiltoniano efetivo, nota-se claramente um acoplamento entre os estados de diferentes simetrias, que embora tenha termos fracos de segunda ordem em Ω (que pode ser $\Omega_d^{S(A)}$ ou $\Omega_i^{S(A)}$), são diferentes de zero. Por exemplo, os estados diretos brilhantes $|d_B^S\rangle$ e $|d_B^A\rangle$, são acoplados efetivamente por um termo proporcional à $\Omega_d^S \Omega_d^A$, que não era evidenciado no hamiltoniano H' (9.2). O efeito desses acoplamentos efetivos, sobre os elementos dos excitons diretos é o pico identificado como B na Fig. 28(a). No hamiltoniano

H_{ef} aparece um acoplamento efetivo não-nulo entre os estados $|d_B^S\rangle$ e $|d_B^A\rangle$. Este último estado por sua vez, está acoplado através dos acoplamentos T_h e T_h^f aos estados $|i_B^A\rangle$ e $|i_D^A\rangle$, respectivamente. Neste caso, o pico B aparece devido à T_h , que por sua vez não tem contribuição na absorção total, já que $\text{Im}[\rho_{0d_{\pm 1}}]$ se cancelam.

Um comportamento similar no espectro de absorção é obtido para $F = F_D^S$, onde a condição de ressonância $\delta_d + \delta_0^d + \delta_1^d = (\delta_i - \Delta_F) - \delta_0^i + \delta_2^i$ é satisfeita e os estados $|d_B^S\rangle$ e $|i_D^S\rangle$ se misturam. Assim como no caso anterior, Figs. 28(d) e 28(e) mostram a contribuição dos quatro elementos de matriz associados à absorção total. Nós observamos neste caso que para este valor de campo específico F_D^S , a janela de transparência observada no espectro de absorção Fig. 28(f) é devido a T_h^f (denotada na figura por A') em $\delta_d \approx -85 \mu\text{eV}$, sendo portanto mais estreita do que a janela denotada por A . A largura da janela de transparência é diretamente proporcional à magnitude do acoplamento que induz o processo de interferência destrutiva, que neste modelo são os acoplamentos T_h e T_h^f . Como o esperado, nós temos assumido que $T_h > T_h^f$ e portanto a diferença na largura janela de transparência é evidente no buraco observado no espectro de absorção induzido por diferentes tipos de acoplamentos. Neste caso, a presença do pico lateral C' observado na absorção total Fig. 28(f), é devido à T_h que acopla $|d_B^S\rangle$ e $|i_B^S\rangle$. Em ambos os casos nós observamos uma forte assimetria na altura dos picos induzida pela contribuição dos estados indiretos ($\text{Im}[\rho_{0i_{\pm 1}}]$) no acoplamento óptico. O pico B' na Fig. 28(d) é analogamente uma assinatura do acoplamento efetivo entre estados de diferentes simetrias mostrado no hamiltoniano H_{ef} , e é resultado do acoplamento entre os estados $|d_B^A\rangle$ e $|i_D^A\rangle$, devido ao acoplamento T_h^f .

Os anticruzamentos que ocorrem entre os estados antissimétricos para os valores de campo F_B^A e F_D^A (mostrados na Fig. 27(c)) também afetam as estruturas dos diferentes elementos de matriz densidade que contribuem para a absorção. Contudo, como mostrado para outros valores de campo em que os estados diretos e indiretos acoplam, as contribuições dos elementos $\rho_{0d_{+1}}$ e $\rho_{0d_{-1}}$ estão fora de fase e não contribuem para a absorção total do sistema. Isto significa que nestes valores de campo ou próximo a eles, não é possível observar o efeito de transparência induzida no espectro de absorção.

Nas Fig. 29(a) e Fig. 29(b) mostramos as contribuições dos elementos de matrizes dos estados diretos e indiretos, respectivamente, e a absorção total do sistema para o valor de campo $F = F_B^A$ (Fig. 29(c)). Notemos então um comportamento similar ao observado na Fig. 28, porém na absorção total é observado somente um pico de absorção quando o laser é ressonante com o estado $|d_B\rangle$ ao redor de $\delta_d \approx -85 \mu\text{eV}$. Os efeitos de interferência

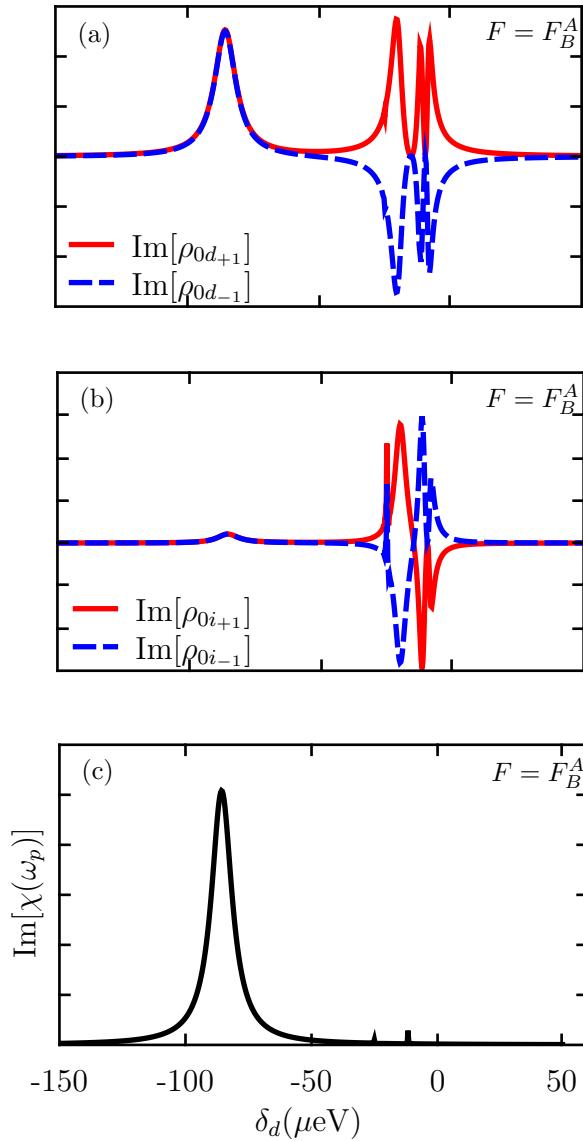


Figura 29: Parte imaginária dos elementos de matriz densidade que contribuem para a absorção total $\chi(\omega_p)$, sob a incidência de luz polarizada circularmente à direita ($\phi = 0$), para um valor de campo de $F = F_B^A$. Nos painéis (a) e (b) são mostradas as contribuições excitons diretos $\rho_{0d\pm 1}$ e indiretos $\rho_{0i\pm 1}$ e; em (c) mostra a parte imaginária total da susceptibilidade óptica $\text{Im}\chi$, que descreve a absorção do sistema.

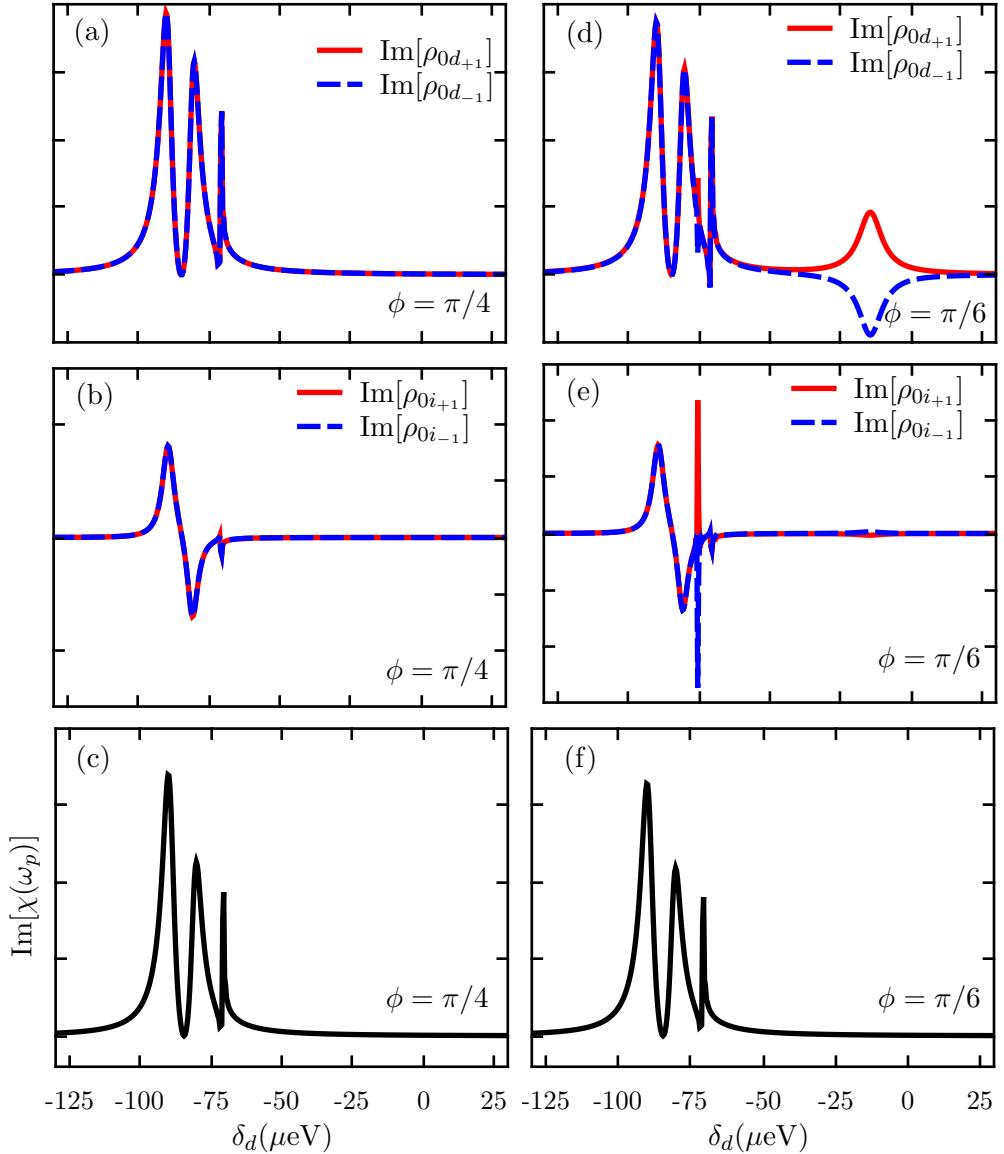


Figura 30: Parte imaginária dos elementos de matriz densidade que contribuem para a susceptibilidade total $\chi(\omega_p)$ como função de δ_d para diferentes condições de polarização do laser de prova. Os painéis da esquerda são para $\phi = \pi/4$ (polarização linear) e os painéis da direita são para $\phi = \pi/6$ (polarização elíptica). Em todos as situações foi considerado $F = F_B^S$.

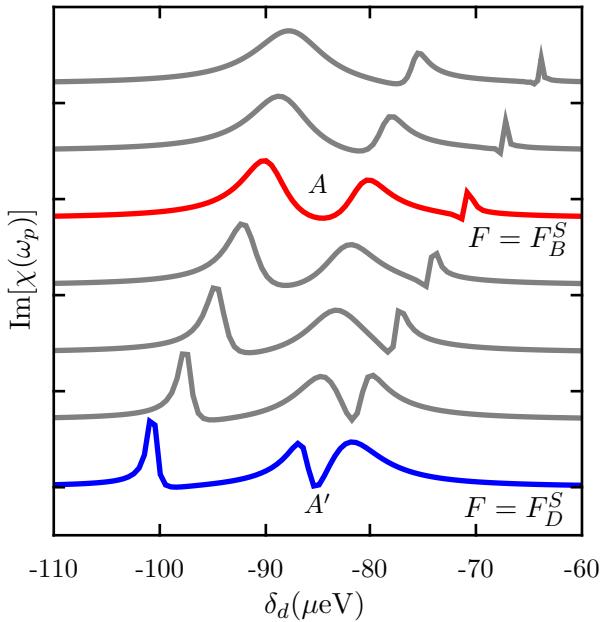


Figura 31: A parte imaginária da função de susceptibilidade $\chi(\omega_p)$, como função da desintonia δ_d , considerando valores de campo espaçados por uma quantidade de 4.375 V/cm.

destrutiva aparecem na região de $\delta_d \approx -15 \mu\text{eV}$ (Figs. 29(a) e 29(b)) devido aos processos de tunelamento, porém não pode ser vistos no espectro de absorção total.

Outro parâmetro que pode ser facilmente controlado experimentalmente é a polarização do laser incidente. Na Fig. 30 mostramos o espectro de absorção considerando as quatro contribuições dos elementos de matriz densidade que compõem $\text{Im}[\chi(\omega_p)]$, para dois diferentes valores de ϕ , $\phi = \phi/4$ (polarização linear) e $\phi = \pi/6$ (polarização elíptica), para $F = F_B^S$.

Em total acordo com o hamiltoniano H' (9.2), na Fig. 30(a) é observado que quando o laser de prova é polarizado linearmente, $\pi_x = (\sigma_+ + \sigma_-)/\sqrt{2}$ que corresponde à condição $\phi = \pi/4$, há o acoplamento óptico somente entre o estado fundamental e o estado $|d_B^S\rangle$. Deste modo, observamos nesta figura somente as características associadas à absorção do laser de prova para o estados simétricos, em $\delta_d = -85 \mu\text{eV}$. Quando o laser incidente é polarizado elipticamente $\phi = \pi/6$ (Fig. 30(d)), os acoplamentos ópticos são diferentes $\Omega_+^{d(i)} > \Omega_-^{d(i)}$, o que resultará em um pico de amplitude menor associado ao estado $|d_B^A\rangle$ na parte imaginária de $\rho_{0d_{\pm 1}}$. Contudo, o espectro de absorção total exibe o mesmo comportamento para diferentes condições de polarização, Fig. 30(c) e 30(f), já que a principal diferença ocorre nos picos associados aos estados assimétricos em $\delta_d = -15 \mu\text{eV}$.

Como a presença do pico lateral (C e C') e a janela de transparência (A e A') são

diretamente relacionados aos acoplamentos T_h e T_h^f , nós graficamos na Fig. 31 a absorção total como função da dessintonia δ_d para diferentes valores de campos elétricos, em um intervalo de 26 V/cm que inclui os valores de campos F_B^S e F_D^S , onde os principais anticruzamentos entre os estados de exciton diretos e indiretos ocorrem. A parte imaginária de $\chi(\omega_p)$ calculada para os valores de campo F_B^S e F_D^S é evidenciada no gráfico. Além disso, na Fig. 31 a escala horizontal foi expandida em relação às Figs. 28(c) e 28(f) para que as características importantes no espectro de absorção possa ser evidenciada e vistas com maiores detalhes. A supressão na absorção do laser de prova, evidenciada pelos buracos denotados por A e A' devido à interferência destrutiva por intermédio do tunelamento são indicados na Fig. 31. Verificamos ainda que assim como a posição da janela de transparência, a posição do pico lateral no espectro de absorção são modificados com o campo elétrico.

9.4 Conclusões

Neste capítulo nossos resultados mostram que através do controle apropriado do campo elétrico externo e polarização da luz incidente, o tunelamento entre estados de mesmo momento angular total (T_h) e entre estados brilhantes e escuros (T_h^f) estabelece eficientes caminhos de interferência quântica destrutiva, criando janelas de transparência no espectro de absorção com controláveis posições e amplitudes. Este efeito pode ser inversamente usado para caracterizar a magnitude dos diferentes acoplamentos da interação de troca entre elétron-buraco na molécula de pontos quânticos, já que a polarização e deslocamentos de energias causados pelo efeito Stark podem ser independentemente controlado, enquanto o espectro de absorção é investigado experimentalmente. Superposição coerente de estados com simetrias similares e a ocorrência de caminhos de interferência podem ser eficientemente explorados quando outros estados excitônicos são considerados, por exemplo, estados de biéxciton e excitons carregados. Estes estados podem fornecer habilidade de controlar a polarização dos fôtons emitidos, já que parâmetros físicos como o campo elétrico e dessintonia do laser incidente podem ser apropriadamente ajustados.

10 *Emaranhamento em pontos quânticos acoplados*

Neste capítulo investigamos teoricamente a dinâmica dissipativa e as correlações quânticas existentes entre pares elétron-buraco, confinados na molécula de pontos quânticos. Consideramos um único laser incidente que excita simultaneamente ambos os pontos quânticos que formam a molécula. Neste sistema, é possível manipular o tunelamento de portadores usando o efeito Stark, através da diferença de potencial aplicada sobre o diodo de Schottky. Usamos inicialmente a entropia de von Neumann como medida de emaranhamento para estudar o sistema fechado, sem interação com o ambiente. Ao considerar o sistema aberto, consideramos a negatividade como medida, já que quantifica de forma eficiente o emaranhamento neste tipo de sistema.

10.1 Sistema e Modelo Físico

Pontos quânticos semicondutores acoplados sob incidência de radiação coerente são sistemas escaláveis que podem ser amplamente usados na implementação de dispositivos de processamento quântico de informação e computação quântica (ECONOMOU et al., 2012). Correlações quânticas, tais como o emaranhamento, têm um papel fundamental no processamento quântico de informação, em particular porque são fundamentais na implementação de algoritmos quânticos (BENNETT; DIVINCENZO, 2000). Devido aos inúmeros mecanismos de decoerência causados pelo inevitável acoplamento destes sistemas de estado sólido com os graus de liberdade do ambiente ao seu redor, o tempo de vida do emaranhamento é na maioria das vezes extremamente curto (CHAVES; DAVIDOVICH, 2010).

Afim de investigar o emaranhamento bipartite entre elétron e buraco dos estados de excitons diretos e indiretos criados nos pontos quânticos, modelamos nosso sistema utilizando um sistema de seis níveis. Representamos as diferentes configurações excitônicas

na molécula quântica através da notação $|X_{e_B, h_B}^{e_T, h_T}\rangle$, onde $e_{T(B)}$, $h_{T(B)}$ referem-se ao número de ocupação de elétrons (e) e buracos (h) de cada nível no ponto da camada superior (T) ou da camada inferior (B) da nanoestrutura. Consideramos aqui um laser incidente de baixa intensidade, de tal modo que somente são criados estados de excitons no estado fundamental (GOSHIMA et al., 2009). Definimos o número de ocupação usando a base binária, onde o valor 0 (ou 1) representa a ausência (ou a presença) do portador dentro ponto quântico.

No estudo das propriedades de emaranhamento, é necessário definirmos o subsistema de interesse. Aqui, queremos determinar o grau de emaranhamento entre elétron e buraco, e o nosso sistema é bipartite (BESTER; SHUMWAY; ZUNGER, 2004). No nosso tratamento, os estados possíveis de um portador são quatro: o elétron ou o buraco podem estar localizados no ponto da camada inferior $|X_0^0\rangle$ ou superior $|X_0^1\rangle$, assim como podem estar presente $|X_1^1\rangle$ ou ausente $|X_0^0\rangle$ em ambos os pontos da molécula. Na Fig. 32 é mostrada uma representação esquemática dos quatro estados possíveis de cada subsistema: os estados do elétron na banda de condução e do buraco na banda de valência. As cores azul e cinza representam os pontos da camada inferior e superior, enquanto as letras c e v se referem às banda de condução e valência, respectivamente. O número da direita representa a ocupação do ponto da camada superior enquanto o número da esquerda está associado à ocupação do ponto da camada inferior.

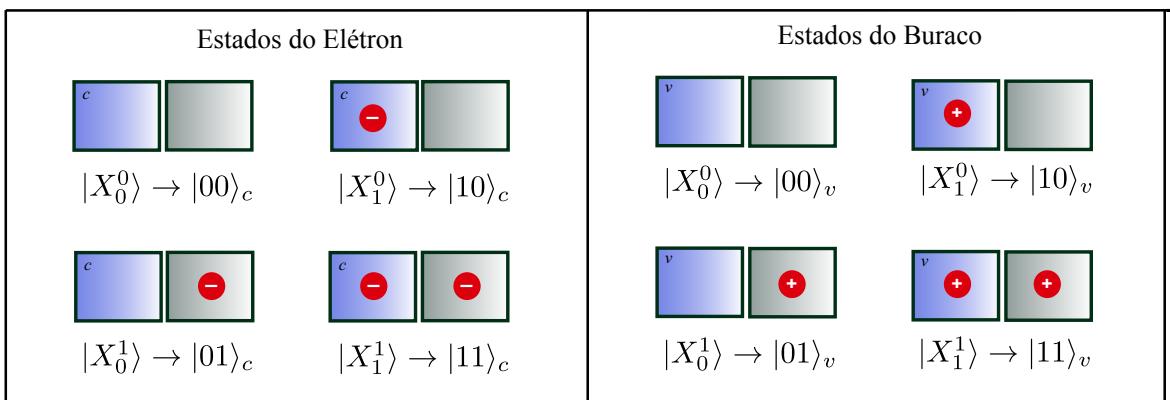


Figura 32: Representação esquemática dos estados do elétron e buraco nas bandas de condução e valência respectivamente, baseados na base de número de ocupação, onde $|0\rangle$ está associado a ausência e $|1\rangle$ a presença do portador em cada ponto quântico.

O espaço de Hilbert do sistema completo é definido pelo produto $\mathcal{H} = \mathcal{H}_A \otimes \mathcal{H}_B$ com uma base de dezesseis estados. Desta forma, como estamos interessados em investigar o emaranhamento entre elétron e buraco, o sistema global considerando todas as ocupações possíveis terão dezesseis níveis. Em nosso modelo temos então um sistema bipartite onde,

cada subsistema tem dimensão quatro e portanto pode ser chamado de qudit.

Ao considerarmos as transições opticamente ativas e os efeitos de tunelamento do elétron (T_e) e do buraco (T_h) e, assumindo que os pontos quânticos estavam descarregados no instante inicial, somente seis estados do espaço de Hilbert do sistema composto ($\mathcal{H}_e \otimes \mathcal{H}_h$) participam efetivamente da dinâmica. Dentre estes estados estão: o estado fundamental $|X_{00}^{00}\rangle$, os estados de éxcitons diretos $|X_{11}^{00}\rangle$ e $|X_{00}^{11}\rangle$, os estados de éxcitons indiretos $|X_{10}^{01}\rangle$ e $|X_{01}^{10}\rangle$ e o estado de dois éxcitons acoplados $|X_{11}^{11}\rangle$, conhecido também como estado de biéxciton molecular. A Fig. 33 representa esquematicamente os níveis de energias excitônicos e os acoplamentos presentes em nosso modelo.

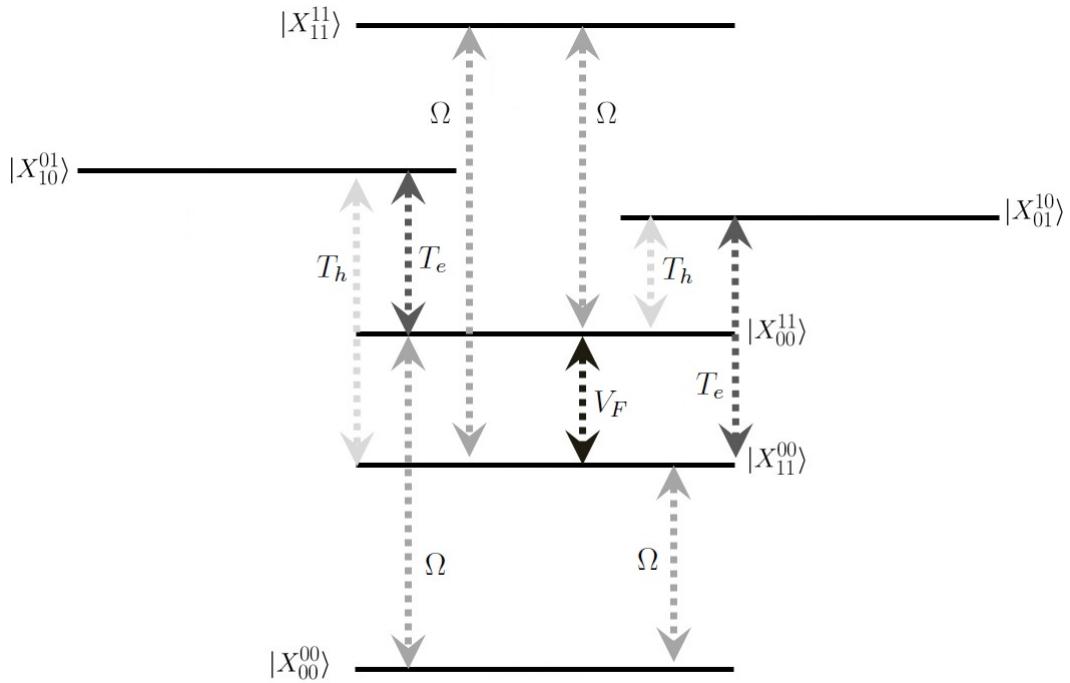


Figura 33: Diagrama de níveis dos seis estados excitônicos e seus acoplamentos. Os parâmetros Ω , V_F , $T_{e(h)}$ representam a frequência de Rabi do laser incidente, o acoplamento de Föster e as taxas de tunelamento dos portadores entre os pontos, respectivamente.

Utilizando as aproximações de dipolo elétrico e de onda-girante (SCULLY; ZUBAIRY, 2001), e aplicando a transformação unitária:

$$\begin{aligned} U = & \exp [i\omega_L t (|X_{00}^{00}\rangle\langle X_{00}^{00}| + |X_{11}^{00}\rangle\langle X_{11}^{00}| + |X_{01}^{10}\rangle\langle X_{01}^{10}| + |X_{00}^{11}\rangle\langle X_{00}^{11}| + |X_{10}^{01}\rangle\langle X_{10}^{01}|)] \\ & + \exp [2i\omega_L t (|X_{11}^{11}\rangle\langle X_{11}^{11}|)] , \end{aligned}$$

o hamiltoniano do sistema, seguindo a equação (8.2) pode ser escrito na base excitônica

como:

$$H = \begin{pmatrix} 0 & \Omega & 0 & \Omega & 0 & 0 \\ \Omega & \delta_{00} & T_e & V_F & T_h & \Omega \\ 0 & T_e & \delta_{01} - \Delta_F & T_h & 0 & 0 \\ \Omega & V_F & T_h & \delta_{00} & T_e & \Omega \\ 0 & T_h & 0 & T_e & \delta_{01} + \Delta_F & 0 \\ 0 & \Omega & 0 & \Omega & 0 & \delta_{11} + V_{XX} \end{pmatrix}, \quad (10.1)$$

onde a origem coincide como o estado fundamental e foi considerado por simplicidade $\hbar = 1$. Aqui, δ_{e_T, h_T} é a dessintonia entre a energia de cada estado e a energia do laser incidente ($E_L = \hbar\omega_L$) e, $\Delta_F = eFd$ é um deslocamento nas energias dos excitons indiretos devido ao efeito Stark quântico de confinamento. Os acoplamentos $T_{e(h)}$, V_F , V_{XX} descrevem o tunelamento do elétron (buraco), o mecanismo de Föster e a energia de ligação direta de Coulomb entre pares de excitons, respectivamente. O acoplamento óptico é dado pela frequência de Rabi Ω , que depende da intensidade do campo eletromagnético aplicado e da estrutura eletrônica da nanoestrutura semicondutora.

10.2 Emaranhamento excitônico

Nesta seção iremos investigar o grau de emaranhamento excitônico modelado pelo sistema de seis níveis descrito acima, considerando diferentes regimes. Primeiramente consideraremos o sistema fechado e investigaremos o grau de emaranhamento dos estados de excitons através de diferentes medidas como entropia de von Neumann e *concurrence*. Posteriormente, incluiremos processos de decoerência sobre a dinâmica do sistema e estudaremos o efeito da interação com o meio externo sobre o grau de emaranhamento excitônico, que para o caso de sistema aberto será quantificado através da negatividade.

10.2.1 Sistema Fechado

Iniciamos nossa análise explorando os efeitos do campo elétrico aplicado F ao longo da direção de crescimento, cuja variação possibilita o controle do acoplamento quântico entre os estados de exciton, já que a ocorrência de um anticruzamento é uma assinatura da mistura entre estados do sistema global. O acoplamento entre os diferentes estados de exciton está fortemente relacionado com o grau de emaranhamento exibido pelo sistema (NAZIR; LOVETT; BRIGGS, 2004). É importante ressaltar que os parâmetros estruturais da nanoestrutura semicondutora têm influência direta sobre os valores nu-

méricos de F nos quais os anticruzamentos ocorrem (BESTER; ZUNGER; SHUMWAY, 2005). Neste capítulo utilizamos parâmetros realísticos de uma molécula de pontos quânticos InAs/GaInAs baseados na amostra da referência (CHU; ZHU, 2006). Devido ao efeito Stark, os níveis de energia dos estados de éxitons indiretos variam fortemente com o campo F , deslocando-os por uma quantidade dada por $\Delta_F = edF$, enquanto os éxitons diretos praticamente não sofrem alteração com a variação do campo. Na Fig. 34(a), graficamos os autovalores correspondentes ao hamiltoniano de seis níveis (9.1) como função do campo elétrico externo. Vários anticruzamentos entre diferentes níveis excitônicos são exibidos no espectro, sendo uma assinatura clara do acoplamento entre tais níveis. Como mostrado em alguns trabalhos, os anticruzamentos observados no espectro de energia para diferentes valores de campo elétrico influenciarão o grau de emaranhamento existente entre elétron e buraco (CHU; ZHU, 2006).

A fim de comprovar a relação existente entre as misturas dos níveis do nosso modelo com o emaranhamento dos estados excitônicos, calculamos a entropia de von Neumann (NEUMANN, 1996; BENNETT et al., 1996),

$$S(\rho_{eh}) = -\text{Tr}\rho_e \log_2 \rho_e = -\text{Tr}\rho_h \log_2 \rho_h, \quad (10.2)$$

sendo, $\rho_{e(h)} = \text{Tr}_{h(e)}(\rho_{eh})$ a matriz reduzida do elétron (buraco).

Como discutido no capítulo 7, a entropia de von Neumann é uma boa medida para sistemas puros bipartites que depende somente dos autovalores da matriz densidade $\rho_{e(h)}$ (PLENIO; VIRMAMI, 2007). Deste modo, para cada valor de campo há um valor máximo de $S(\rho_{eh})$ correspondente a um autoestado do sistema. Na Fig. 34(b) apresentamos os nossos resultados do comportamento de $S(\rho_{eh})$, obtida calculando o seu valor considerando a matriz densidade construída com cada um dos seis autoestados do hamiltoniano (10.1). Verificamos que o valor máximo da entropia de von Neumann como função do campo elétrico externo exibe vários picos, cujos máximos ocorrem para os mesmos valores de F onde os anticruzamentos são observados. Portanto, nas regiões de F associadas ao acoplamento excitônico, os estados apresentam um alto grau de emaranhamento. A característica que se destaca aqui é que o maior grau de emaranhamento neste sistema é encontrando para o valor de campo elétrico dado por:

$$F = F_I = \frac{E_{10}^{01} - E_{01}^{10}}{2ed} \sim 0.65 \text{ kV/cm}, \quad (10.3)$$

obtido através da condição $\delta_{01}^{10} - \Delta_F = \delta_{10}^{01} + \Delta_F$. O valor de campo F_I , é portanto o valor de campo específico em que os estados $|X_{01}^{10}\rangle$ e $|X_{10}^{01}\rangle$ são ressonantes. Na Fig. 35 é

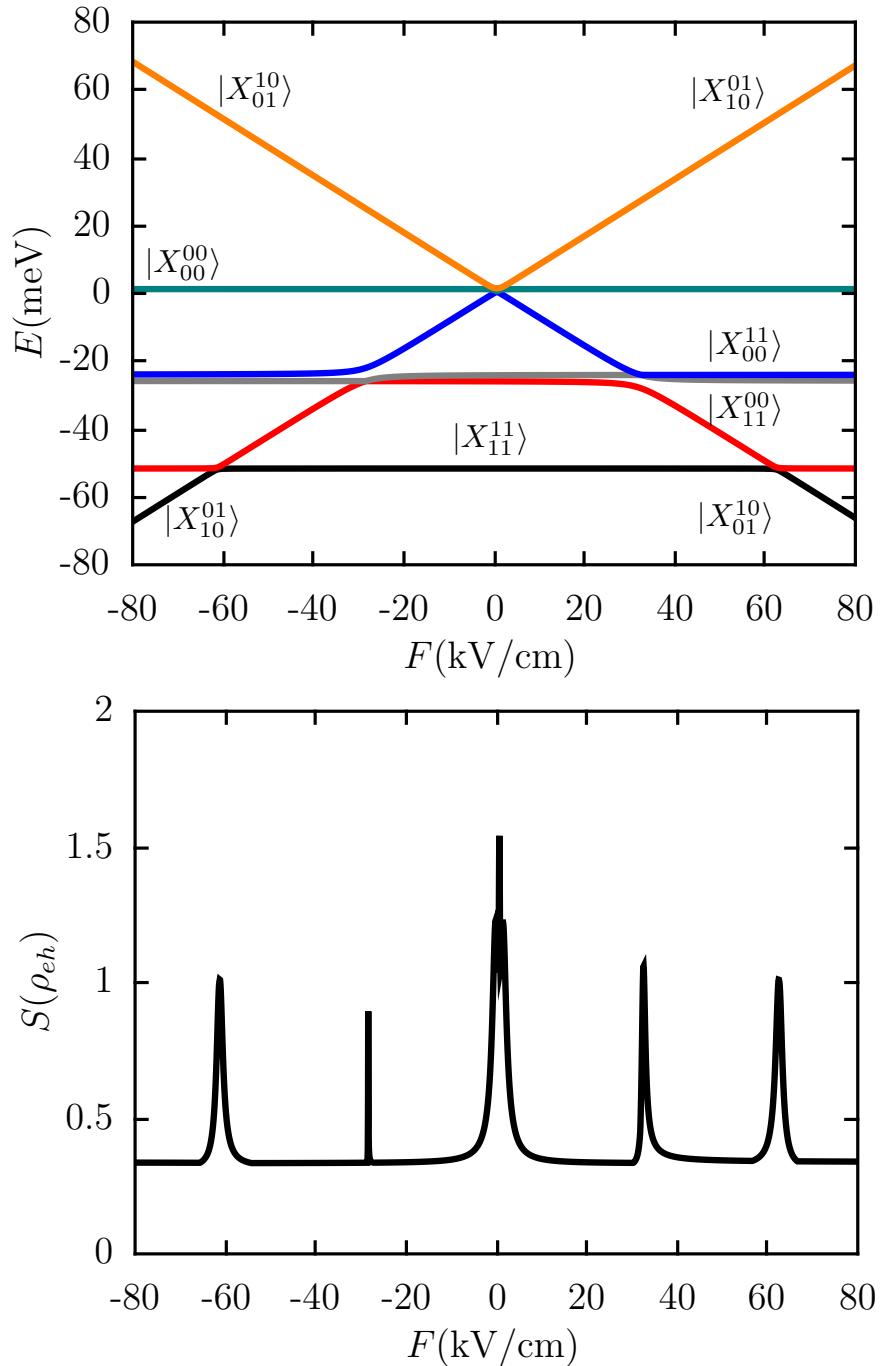


Figura 34: (a) Espectro de energia dos níveis excitônicos e (b) entropia de von Neumann como função do campo elétrico aplicado, considerando $\Omega = 4$ meV e $\hbar\omega_L = E_{10}^{01} = 1315.4$ meV. Em ambos gráficos foi considerado $V_F = 0.08$ meV, $T_e = 20T_h = 2$ meV, $V_{XX} = -5$ meV, $d = 8.4$ nm.

mostrado o espectro nesta região de campo afim de evidenciar o anticruzamento entre os estados indiretos. Os estados restantes estão energeticamente muito separados e não são mostrados aqui.

Podemos usar o procedimento para a obtenção de um hamiltoniano efetivo mostrado

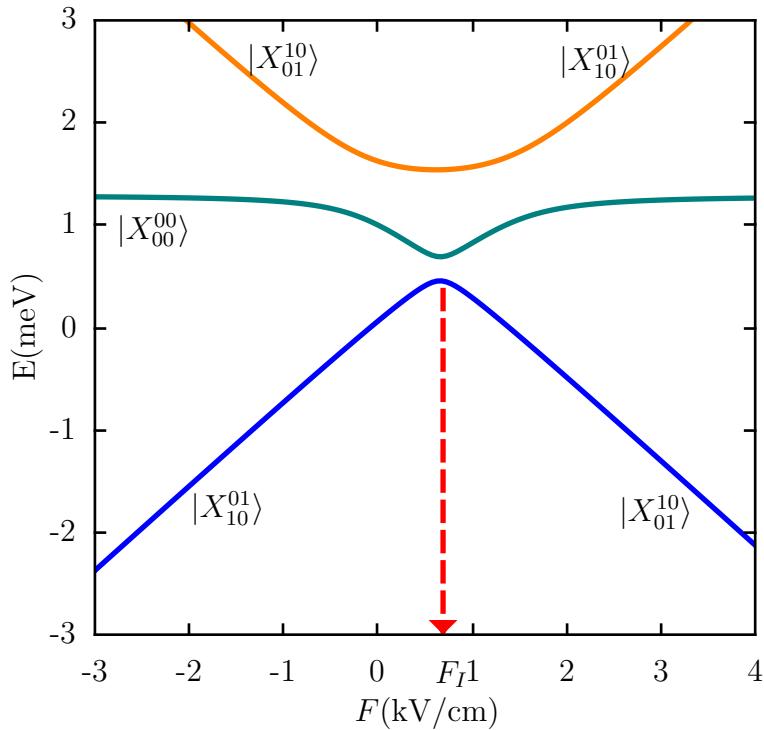


Figura 35: Espectro de energia como função do campo elétrico aplicado, evidenciando os anticruzamentos na região de F_I . Foram considerados os mesmos parâmetros da Fig. 34.

no Apêndice A onde neste caso projetamos fora do hamiltoniano (10.1) os estados de excitons diretos e o estado de biéxiton molecular, para reduzir esta matriz 6×6 , em um hamiltoniano 3×3 . É possível mostrar claramente os termos efetivos que originam os anticruzamentos mostrados na Fig. 35, entre os estados indiretos e entre cada uma destes estados excitônicos com o estado fundamental. Os elementos de matriz do hamiltoniano efetivo que evidencia tais acoplamentos, são dados por:

$$\langle X_{00}^{00} | \tilde{H} | X_{00}^{00} \rangle = -\Omega^2 \left(\frac{1}{\delta_{11}^{00}} + \frac{1}{\delta_{00}^{11}} \right)$$

$$\langle X_{00}^{00} | \tilde{H} | X_{01}^{10} \rangle = \frac{\Omega T_e}{2} \left(-\frac{1}{\delta_{11}^{00}} + \frac{1}{\delta_{01}^{10} - \Delta_F - \delta_{11}^{00}} \right) + \frac{\Omega T_h}{2} \left(-\frac{1}{\delta_{00}^{11}} + \frac{1}{\delta_{01}^{10} - \Delta_F - \delta_{00}^{11}} \right)$$

$$\langle X_{00}^{00} | \tilde{H} | X_{10}^{01} \rangle = \frac{\Omega T_h}{2} \left(-\frac{1}{\delta_{11}^{00}} + \frac{1}{\delta_{01}^{10} + \Delta_F - \delta_{11}^{00}} \right) + \frac{\Omega T_e}{2} \left(-\frac{1}{\delta_{00}^{11}} + \frac{1}{\delta_{01}^{10} + \Delta_F - \delta_{00}^{11}} \right)$$

$$\begin{aligned}
\langle X_{01}^{10} | \tilde{H} | X_{01}^{10} \rangle &= \delta_{01}^{10} - \Delta_F + T_e^2 \left(\frac{1}{\delta_{01}^{10} - \Delta_F - \delta_{11}^{00}} \right) + T_h^2 \left(\frac{1}{\delta_{01}^{10} - \Delta_F - \delta_{00}^{11}} \right) \\
\langle X_{01}^{10} | \tilde{H} | X_{10}^{01} \rangle &= \frac{T_e T_h}{2} \left(\frac{1}{\delta_{01}^{10} - \Delta_F - \delta_{11}^{00}} + \frac{1}{\delta_{10}^{01} + \Delta_F - \delta_{11}^{00}} \right) \\
&\quad + \frac{T_e T_h}{2} \left(\frac{1}{\delta_{01}^{10} - \Delta_F - \delta_{00}^{11}} + \frac{1}{\delta_{10}^{01} + \Delta_F - \delta_{00}^{11}} \right) \\
\langle X_{10}^{01} | \tilde{H} | X_{10}^{01} \rangle &= \delta_{10}^{01} + \Delta_F + T_e^2 \left(\frac{1}{\delta_{10}^{01} - \Delta_F - \delta_{11}^{00}} \right) + T_h^2 \left(\frac{1}{\delta_{10}^{01} - \Delta_F - \delta_{00}^{11}} \right) \quad (10.4)
\end{aligned}$$

Através do hamiltoniano efetivo \tilde{H} (10.4), demonstramos que há um acoplamento efetivo entre os estados $|X_{00}^{00}\rangle$, $|X_{10}^{01}\rangle$ e $|X_{01}^{10}\rangle$, onde termos de tunelamento T_e e T_h são os responsáveis pelo acoplamento entre os estados de exicitons indiretos.

Como mencionado no capítulo anterior (7), medidas quânticas como a I-concurrence e a negatividade permitem quantificar o emaranhamento de sistemas puros bipartites constituídos por subsistemas de dimensões maiores que 2. A negatividade por sua vez, é uma boa medida de emaranhamento para sistemas puros ou mistos, e é baseada no critério de separabilidade de Peres-Horodecki (ZYCZKOWSKI et al., 1998). Seu valor é calculado através da soma dos autovalores negativos da matriz transposta parcial do operador densidade ρ , que descreve um estado quântico. Esta medida mede portanto, o quanto um dado estado ρ falha ao satisfazer ao critério de separabilidade de Peres-Horodecki, e pode ser calculada através da expressão (7.17). Em nosso modelo a negatividade pode ser calculada a partir da matriz transposta parcial do elétron (ou do buraco), $\rho^{T_e(T_h)}$.

Em relação ao valor máximo da negatividade associado a um estado maximamente emaranhado, é bem conhecido na literatura que para um sistema de dois qubits, a concorrência $C(\rho)$ e a negatividade $\mathcal{N}(\rho)$ são iguais e têm o valor máximo 1 (MIRANOWICZ; GRUDKA, 2004). Contudo, para subsistemas de dimensões maiores que 2, o valor máximo de $\mathcal{N}(\rho)$ e $C(\rho)$ dependem da dimensão d de cada um dos subsistemas emaranhados (GAO; FEI, 2008). No caso da medida I-concurrence, sabemos que ela exibe um valor máximo de $C_I^{max} = \sqrt{2(1 - \frac{1}{d})}$, onde converge para um valor de $\sqrt{2}$, para sistemas de grandes dimensões (RAI; LUTHRA, 2005). Deste modo, como no modelo aqui descrito $dim = 4$, o valor da concurrence para um estado maximamente emaranhado em nosso sistema é $C_I(\rho_{eh}) = \sqrt{3/2} \sim 1.225$. A medida C_I pode ser facilmente calculada se a matriz reduzida de uma das partes constituintes é conhecida, cuja fórmula é dada pela

equação (7.15).

Com o objetivo de quantificar o emaranhamento excitônico obtido para o sistema de seis níveis, em relação a um estado maximamente emaranhado computado através da negatividade quando $dim = 4$, calculamos através da equação (7.15), a *concurrence* para o sistema aqui descrito. Como não está bem definido na literatura qual o valor máximo da negatividade quando $dim > 2$, calculamos $C(\rho_{eh})$ e $\mathcal{N}(\rho_{eh})$ como função do tempo para um regime de parâmetros no qual é possível obter um estado maximamente emaranhado e assim, comparamos qual o valor de negatividade está associado ao valor máximo de $\sqrt{3/2}$ para *concurrence*.

A matriz densidade do sistema quântico global, neste caso dada por:

$$\rho_{eh} = \rho_e \otimes \rho_h,$$

descreve um estado maximamente emaranhado sempre que as matrizes reduzidas $\rho_{e(h)}$ obtidas através do traço parcial de ρ_{eh} , $\rho_{e(h)} = \text{Tr}_{h(e)}[\rho_{eh}]$, descreverem uma mistura estatística. Neste modelo onde $dim = 4$, quando o sistema global estiver em um estado maximamente emaranhado, $\rho_{e(h)} = \mathbb{1}/4$. Isto significa que o estado do sistema global de dois qudits está em um estado puro, ou seja é exatamente conhecido, porém não se pode obter nenhuma informação a respeito do estado quântico de qualquer um dos subsistemas individuais. Para nosso sistema, um exemplo de estado maximamente emaranhado, é dado por:

$$\begin{aligned} |\phi^+\rangle &= \frac{1}{4} (|00\rangle_c \otimes |00\rangle_v + |01\rangle_c \otimes |10\rangle_v + |10\rangle_c \otimes |01\rangle_v + |11\rangle_c \otimes |11\rangle_v) \\ &= \frac{1}{4} (|X_{00}^{00}\rangle + |X_{01}^{10}\rangle + |X_{10}^{01}\rangle + |X_{11}^{11}\rangle) \end{aligned} \quad (10.5)$$

Nas Fig. 36(a) e 36(c) apresentamos nossos resultados da evolução temporal das probabilidades de ocupação para cada um dos seis níveis, considerando como estado inicial do sistema, o estado fundamental $|X_{00}^{00}\rangle$ e o estado maximamente emaranhado $|\phi^+\rangle$ (10.5), respectivamente. Já nas Figs. 36(b) e 36(d) foram graficados as medidas de emaranhamento $C(\rho_{eh})$ e $\mathcal{N}(\rho_{eh})$ como função do tempo (linhas vermelhas e pretas respectivamente). Em ambos os casos, Figs. 36(a) e 36(c), observamos oscilações de Rabi entre os estados dos sistema, contudo os valores de ocupação de cada um dos níveis dependem do estado inicial considerado. Nas Figs. 36(b) e 36(d) notamos que $C(\rho_{eh})$ e $\mathcal{N}(\rho_{eh})$ oscilam coerentemente com o tempo e que apesar de assumirem valores máximos diferentes, como é o esperado já que $dim = 4$, as medidas de emaranhamento apresentam valores máximos para os mesmos valores de tempo e exibem uma dependência bem similar com o tempo. Como

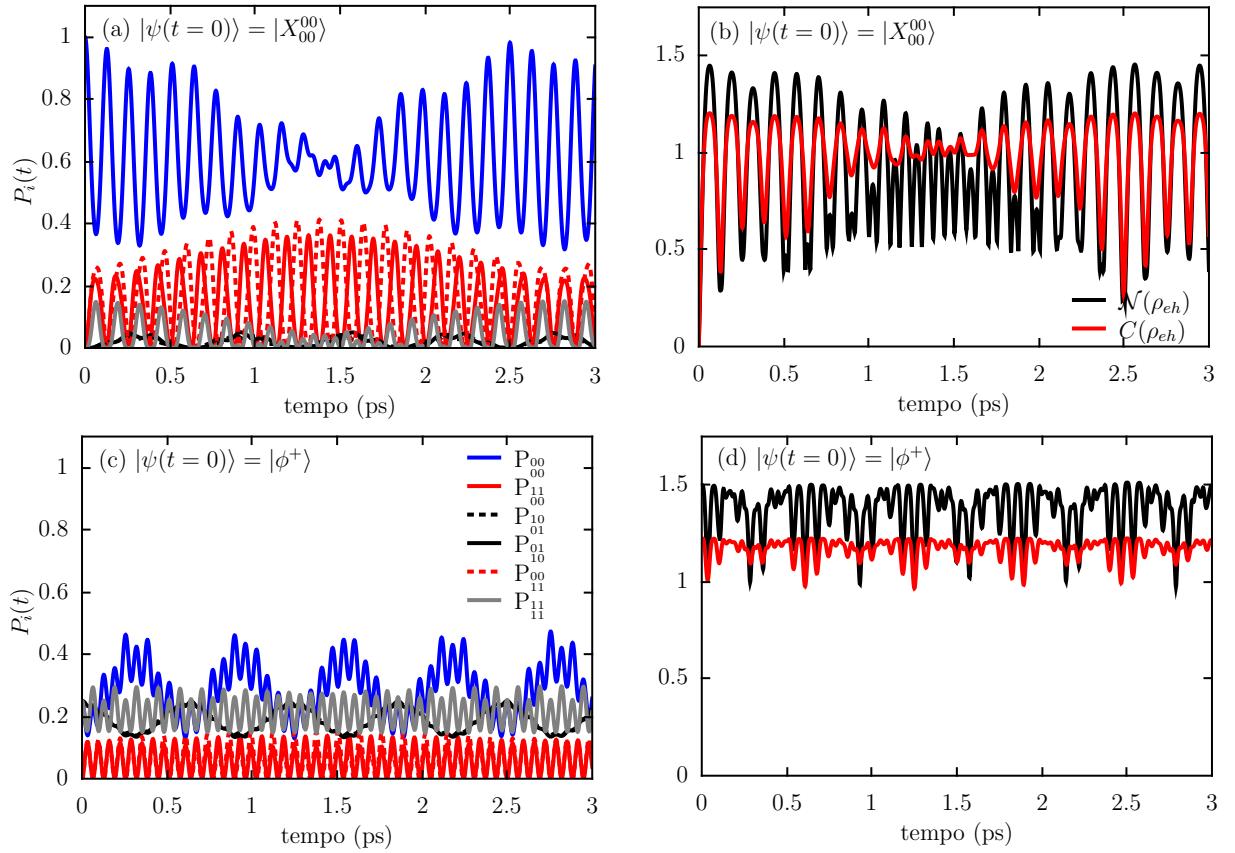


Figura 36: Probabilidade de ocupação dos seis níveis excitônicos como função do tempo, considerando diferentes estados iniciais $|\psi(t=0)\rangle$. Em (a) $|\psi(t=0)\rangle = |X_{00}^{00}\rangle$ e (c) $|\psi(t=0)\rangle = |\phi^+\rangle$. Nos gráficos (b) e (d) foram ilustradas $C(\rho_{eh})$ (linha vermelha) e $\mathcal{N}(\rho_{eh})$ (linha preta) como função do tempo considerando respectivamente os estados iniciais das Figs. 36(a) e (c). Em todos estes resultados consideramos o valor de campo $F = F_I$ e o laser ressonante com o estado $|X_{01}^{10}\rangle$. Em relação aos parâmetros do hamiltoniano foram usados $\Omega = 10$ meV, $T_e = 20T_h = 0.02$ meV, $V_F = 0.08$ meV.

mentionado anteriormente, verificamos que o valor máximo de $C(\rho_{eh})$ é de $\sqrt{3/2} \sim 1.22$ (como pode ser verificado na Fig. 36(d), $C(t=0)$, onde o estado inicial é maximamente emaranhado), enquanto \mathcal{N} tem o valor máximo de 1.5.

Quando a interação do sistema com o ambiente externo é considerada, sua evolução e consequentemente o grau de emaranhamento existente são diretamente afetados por processos de decoerência, que passa a ser descrito por um sistema aberto. É importante ressaltar que devido ao fato do nosso modelo descrever um sistema bipartite de dois qudits, medidas comumentes usadas na literatura para quantificar o emaranhamento de sistemas mistos bipartites, como *concurrence* (dada pela expressão (7.11)), não podem ser usadas em nosso caso. Neste contexto, investigaremos na seção 10.2.2 o grau de emaranhamento excitônico quando processos dissipativos são considerados na dinâmica do sistema, através

da negatividade $\mathcal{N}(\rho_{eh})$.

10.2.2 Sistema Aberto

Com o intuito de investigar os efeitos do ambiente sobre os estados de éxcitons confinados em pontos quânticos assim como quantificar seu emaranhamento quando os processos de decoerência estão presentes, consideramos como fontes de decoerência canais de *dephasing* puro (γ_i) e recombinação radiativa do par elétron-buraco (Γ_0^i). Calculamos a evolução da população para cada um dos níveis através da equação mestra escrita na forma de Von-Nemman Lindblad (8.5). O operador de Lindblad que descreve os processos dissipativos considerados em nosso modelo é da seguinte forma:

$$\hat{L}(\rho) = \sum_j \frac{\Gamma_0^D}{2} \left(2\sigma_-^j \rho \sigma_+^j - \sigma_+^j \sigma_-^j \rho - \rho \sigma_+^j \sigma_-^j \right) + \gamma_D (2\sigma_z^j \rho \sigma_z^j - \sigma_z^j \sigma_z^j \rho - \rho \sigma_z^j \sigma_z^j) + \sum_k \frac{\Gamma_0^I}{2} \left(2\sigma_-^k \rho \sigma_+^k - \sigma_+^k \sigma_-^k \rho - \rho \sigma_+^k \sigma_-^k \right) + \gamma_I (2\sigma_z^k \rho \sigma_z^k - \sigma_z^k \sigma_z^k \rho - \rho \sigma_z^k \sigma_z^k), \quad (10.6)$$

sendo $\Gamma_0^{D(I)}$ a taxa de decaimento radioativo dos estados de éxcitons diretos (indiretos) e $\gamma_{D(I)}$ está associado ao processo de *dephasing* puro associado a cada um dos níveis excitônicos. Os operadores σ_+^j , σ_-^j e σ_z^j são: $|j\rangle\langle X_{00}^{00}|$, $|X_{00}^{00}\rangle\langle j|$ e $|j\rangle\langle j|$ respectivamente, onde $|j\rangle$ representa os estados diretos ($|X_{11}^{00}\rangle$, $|X_{11}^{00}\rangle$) e o estado de biéxciton molecular ($|X_{11}^{11}\rangle$). Enquanto que os operadores σ_+^k , σ_-^k e σ_z^k são: $|k\rangle\langle X_{00}^{00}|$, $|X_{00}^{00}\rangle\langle k|$ e $|k\rangle\langle k|$ respectivamente, sendo $|k\rangle$ cada um dos estados de éxcitons indiretos ($|X_{01}^{10}\rangle$, $|X_{10}^{01}\rangle$).

Em nosso prévio trabalho (BORGES et al., 2010) mostramos que sob um apropriado conjunto de parâmetros, ao incluir efeitos de perda há a formação de um estado assintótico com alta população no estado de éxciton indireto. Este estado por sua vez, tem um tempo de vida muito maior do que de um estado de éxciton direto ($\Gamma_I \approx 10^{-3}\Gamma_D$) e se apresenta protegido contra processos de decoerência. Afim de investigar se é possível obter um estado protegido ao incluir processos dissipativos, investigamos a dinâmica dos estados excitônicos para o valor específico de campo F_I , no qual os estados de éxcitons indiretos estão fortemente acoplados.

Na Figs. 37(a) e 37(b) graficamos a população de cada um dos seis níveis excitônicos como função do tempo para $F = F_I$, considerando dois regimes diferentes, $\Omega = 4$ meV e $\Omega = 10$ meV. Podemos verificar através deste resultado, que para tempos suficientemente longos ($t \gg 1/\Gamma_D$) as ocupações dos seis níveis tornam-se estacionárias. Como o valor do

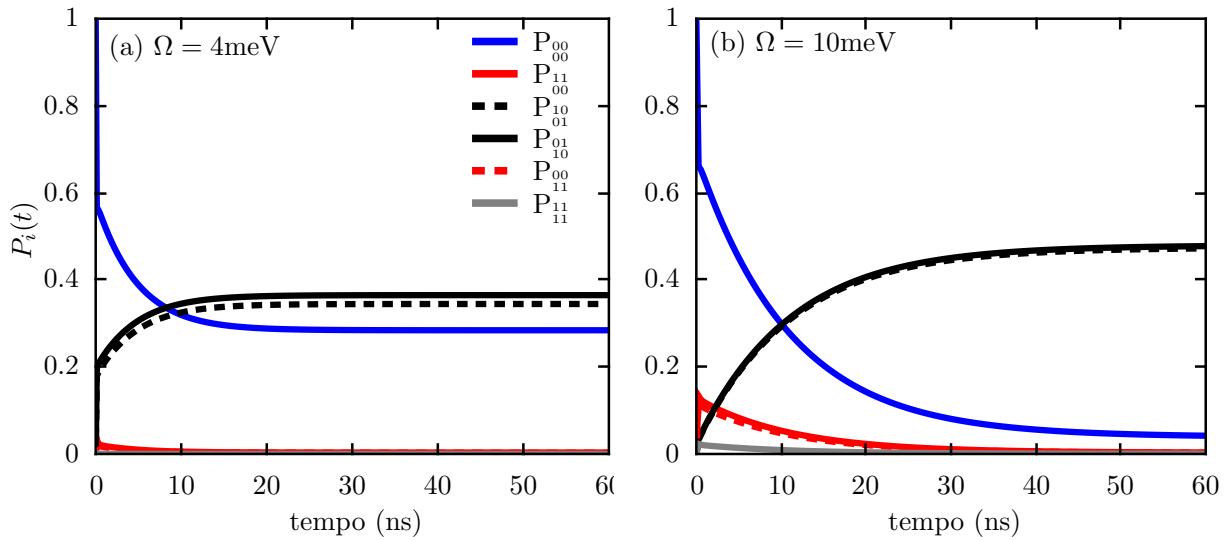


Figura 37: População dos estados de excitons como função do tempo, considerando (a) $\Omega = 4$ meV e (b) $\Omega = 10$ meV. Ambos os gráficos foram calculados para $F = F_I$ e $\Gamma_D = 10^3\Gamma_I = 10 \mu\text{eV}$. Os outros parâmetros do hamiltoniano foram os mesmos usados na Fig. 34.

campo elétrico $F = F_I$ garante que os excitons indiretos sejam ressonantes, verificamos que ambos são significativamente populados. Além disso, comprovamos na Fig. 37(b), onde o acoplamento óptico é consideravelmente maior que as taxas de tunelamento ($\Omega > T_e, T_h$) que os valores das probabilidades de ocupação associadas aos estados $|X_{01}^{10}\rangle$ e $|X_{10}^{01}\rangle$ são praticamente iguais, e o estado assintótico do sistema possui uma alta população dos estados de exciton indiretos $P_{01} = P_{10} \sim 0.48$, e uma pequena contribuição do estado fundamental. Esta característica é bastante interessante, já que o estado assintótico do sistema pode ser escrito como uma mistura de dois estados protegidos em relação aos processos de decoerência considerados.

Analizando ainda a matriz densidade para esta configuração de parâmetros, verificamos que o estado assintótico do sistema apresenta uma fidelidade de 96 % em relação ao estado puro escrito como a superposição, $|\psi_a\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|X_{10}^{01}\rangle + |X_{01}^{10}\rangle)$. Neste caso, a medida de fidelidade em relação ao $|\psi_a\rangle$ pode ser calculada por:

$$\mathcal{F} = \text{Tr}(\rho_a, \rho_i), \quad (10.7)$$

onde $\rho_a = |\psi_a\rangle\langle\psi_a|$ e ρ_i correspondem ao operador densidade do sistema no regime estacionário, sob as condições da Fig. 37(b).

Desta forma, temos particular interesse no grau de emaranhamento entre os estados de exciton quando este valor de F_I é considerado, já que na região de campo elétrico próxima

a este valor há a formação de um estado assintótico, que dependendo da razão entre os outros parâmetros do hamiltoniano (10.1), pode ser representado como uma superposição apenas de estados indiretos, os quais têm um longo tempo de vida.

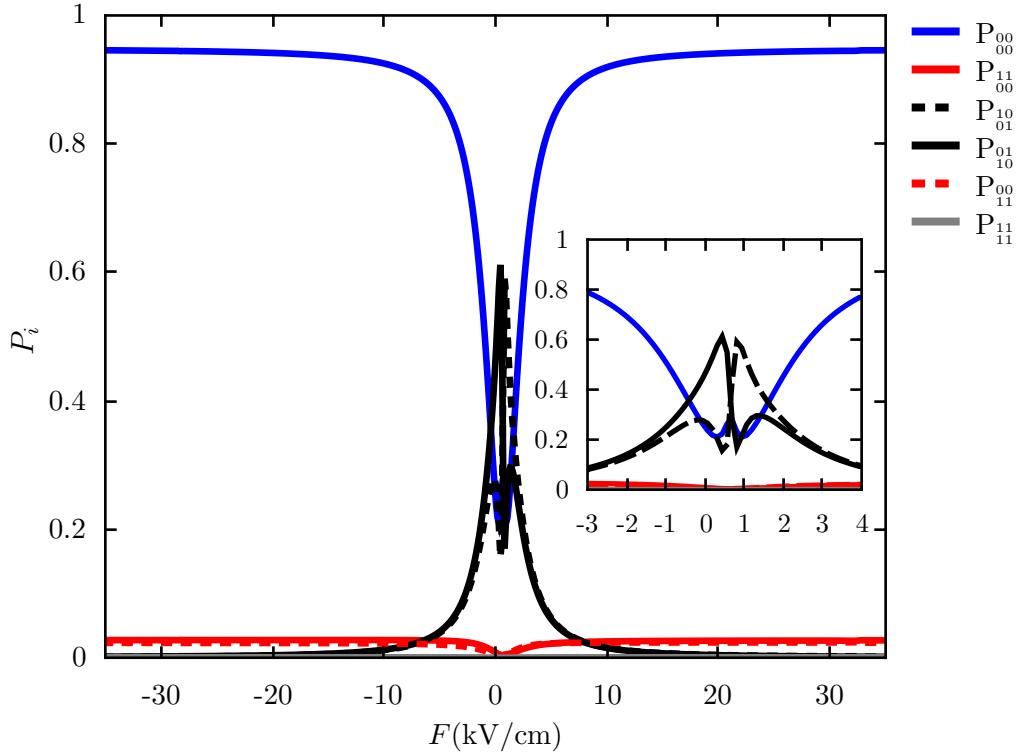


Figura 38: Probabilidade de ocupação no regime estacionário como função do campo elétrico, considerando o mesmo regime de parâmetros do hamiltoniano usados na Fig. 34 e $\Gamma_D = 10^3 \Gamma_I = 10 \mu eV$.

Com o objetivo de investigar com mais detalhes o estado assintótico no sistema aberto, denotado por $|\psi_a\rangle$, graficamos na Fig. 38 a probabilidade de ocupação para cada um dos estados da base excitônica no regime estacionário, como função do campo elétrico. Neste figura consideramos $\Omega = 4$ meV, que por sua vez corresponde ao mesmo regime óptico da Fig. 34, na qual foi mostrado o grau de emaranhamento dos autoestados do sistema. Podemos identificar claramente dois diferentes regimes. No intervalo de campo $-6 \text{ kV/cm} < F < 8 \text{ kV/cm}$ os estados com maior ocupação são os estados de éxcitons indiretos e o estado fundamental possui um baixo valor de ocupação. Verificamos ainda que exatamente para valor de campo F_I , os estados de éxcitons indiretos apresentam iguais probabilidades de ocupação.

Para valores de campo fora deste intervalo, o estado fundamental é significativamente ocupado ($P_{00} \sim 0.95$), enquanto os estados de éxcitons diretos possuem uma pequena população. Afim de investigar se o estado estacionário exibe alguma assinatura dos autoestados do hamiltoniano (10.1), calculamos a fidelidade dada pela equação (10.7), onde é

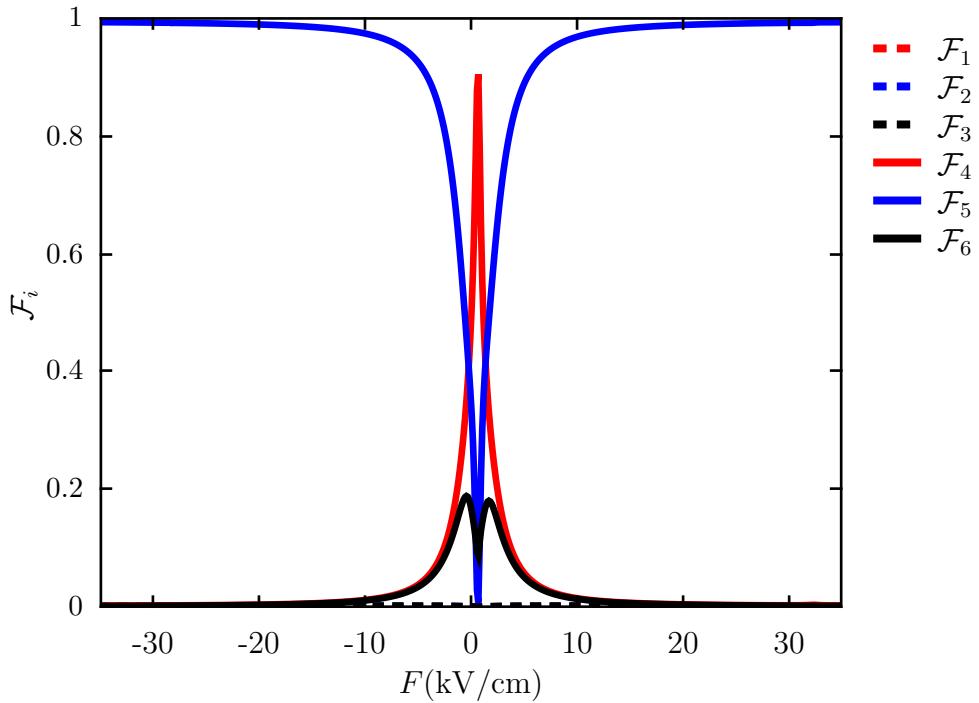


Figura 39: Fidelidade do sistema no regime estacionário em relação a cada um dos seis autoestado como função do campo elétrico, considerando o mesmo regime de parâmetros do hamiltoniano usados na Fig. 34 e $\Gamma_D = 10^3 \Gamma_I = 10 \mu eV$.

possível mensurar o quão próximo o sistema misto no regime estacionário, dado pelo operador densidade ρ_a , está dos autoestados do sistema ($|\psi_i\rangle$). Neste caso, ρ_i é o operador densidade associado a cada um dos seis autoestados, $\rho_i = |\psi_i\rangle\langle\psi_i|$. As fidelidades de ρ_a em relação a cada um dos autoestados do sistema são mostradas na Fig. 39.

Verificamos através da Fig. 39 que assim como no resultado anterior, Fig. 38, há uma mudança significativa no comportamento da fidelidade na região de campo compreendida no intervalo $-6 \text{ kV} < F < 8 \text{ kV}$. Fora deste intervalo, observamos que ao incluir processos de decoerência o sistema evolui para um dos autoestados do sistema apresentando uma fidelidade máxima, $\mathcal{F} = 1$. Analisando nossos resultados, verificamos que este autoestado denotado por $|\psi_5\rangle$, é escrito como uma combinação linear dos estados da base dado por:

$$|\psi_5\rangle = c_1^{(5)}|X_{00}^{00}\rangle + c_2^{(5)}|X_{00}^{11}\rangle + c_3^{(5)}|X_{11}^{00}\rangle,$$

onde $|c_1^{(5)}| \gg |c_2^{(5)}|, |c_3^{(5)}|$. Portanto, o estado assintótico nesta região é um dos autoestados do sistema que apresenta uma amplitude de probabilidade alta associada ao estado fundamental $|X_{00}^{00}\rangle$, o que está de completo acordo com o resultado mostrado na Fig. 38.

Analisando agora a fidelidade no regime de campo compreendido no intervalo $-6 \text{ kV} < F < 8 \text{ kV}$, verificamos que a fidelidade em relação ao autoestado $|\psi_5\rangle$ diminui enquanto

a fidelidade associada ao autoestados $|\psi_4\rangle$ e $|\psi_6\rangle$ aumenta. Para o valor de campo F_I no qual \mathcal{F}_4 possui seu valor máximo, temos que estes autoestados podem ser escritos como:

$$|\psi_4\rangle = c_1^{(4)}|X_{00}^{00}\rangle + c_2^{(4)}|X_{01}^{10}\rangle + c_3^{(4)}|X_{10}^{01}\rangle,$$

$$|\psi_6\rangle = c_1^{(6)}|X_{00}^{00}\rangle + c_2^{(6)}|X_{01}^{10}\rangle + c_3^{(6)}|X_{10}^{01}\rangle.$$

Neste caso temos que no autoestado $|\psi_4\rangle$, os estados de éxcitons indiretos possuem uma amplitude de probabilidade maior, enquanto que em $|\psi_6\rangle$ o estado que possui maior contribuição é o estado fundamental $|X_{00}^{00}\rangle$. Nesta região portanto, o estado assintótico do sistema é uma combinação dos autoestados $|\psi_4\rangle$ e $|\psi_6\rangle$ que por sua vez, são combinações lineares do estado fundamental e dos estados de éxcitons indiretos. Desta forma, podemos concluir que na região de campo F_I , onde ocorre o anticruzamento entre os estados $|X_{01}^{10}\rangle$ e $|X_{10}^{01}\rangle$, o sistema evolui para um estado assintótico que possui uma significativa contribuição dos estados de éxcitons indiretos e apresenta por sua vez, uma alta fidelidade em relação a um dos autoestados do sistema.

O que é relevante é observar se o grau de emaranhamento é protegido dos efeitos da decoerência, quando o sistema se encontra no regime assintótico. Para quantificar e caracterizar o grau de emaranhamento excitônico sob o efeito de processos associados a emissão espontânea e *dephasing* puro, utilizamos uma medida que quantifica o emaranhamento para sistemas puros e mistos, conhecida como negatividade $\mathcal{N}(\rho_{eh})$.

Como as populações no regime estacionário são também bastante influenciadas pela razão entre os acoplamentos ópticos e tunelamento dos portadores entre os pontos $\Omega/T_{e(h)}$, consideramos $T_e = 20T_h = 2$ meV e representamos graficamente na Fig. 40 a negatividade do sistema no regime estacionário para diferentes valores de Ω como função de F , considerando a mesma configuração de parâmetros daqueles considerados na Fig. 34 (BORGES et al., 2010). É importante ressaltarmos, que para $|F| > 35$ kV/cm, a amostra estudada atinge o regime de fotocorrente onde os portadores tendem a escapar da molécula tunelando para fora da nanoestrutura. Na Fig. 40 é mostrado o grau de emaranhamento excitônico através da negatividade em um intervalo de -35 kV/cm $\leq F \leq 35$ kV/cm, que apresenta um pico central para o valor de campo elétrico F_I . Comparando com os resultados obtidos da análise do emaranhamento dos autoestados do sistema fechado, calculado através da entropia de von Neumann (Fig. 34), concluímos que como o estado assintótico é uma superposição dos estados de éxcitons indiretos, o pico associado ao alto grau de emaranhamento em F_I é também robusto aos processos de decoerência e portanto, está presente no resultado mostrado na Fig. 40. Este comportamento portanto, explica o fato

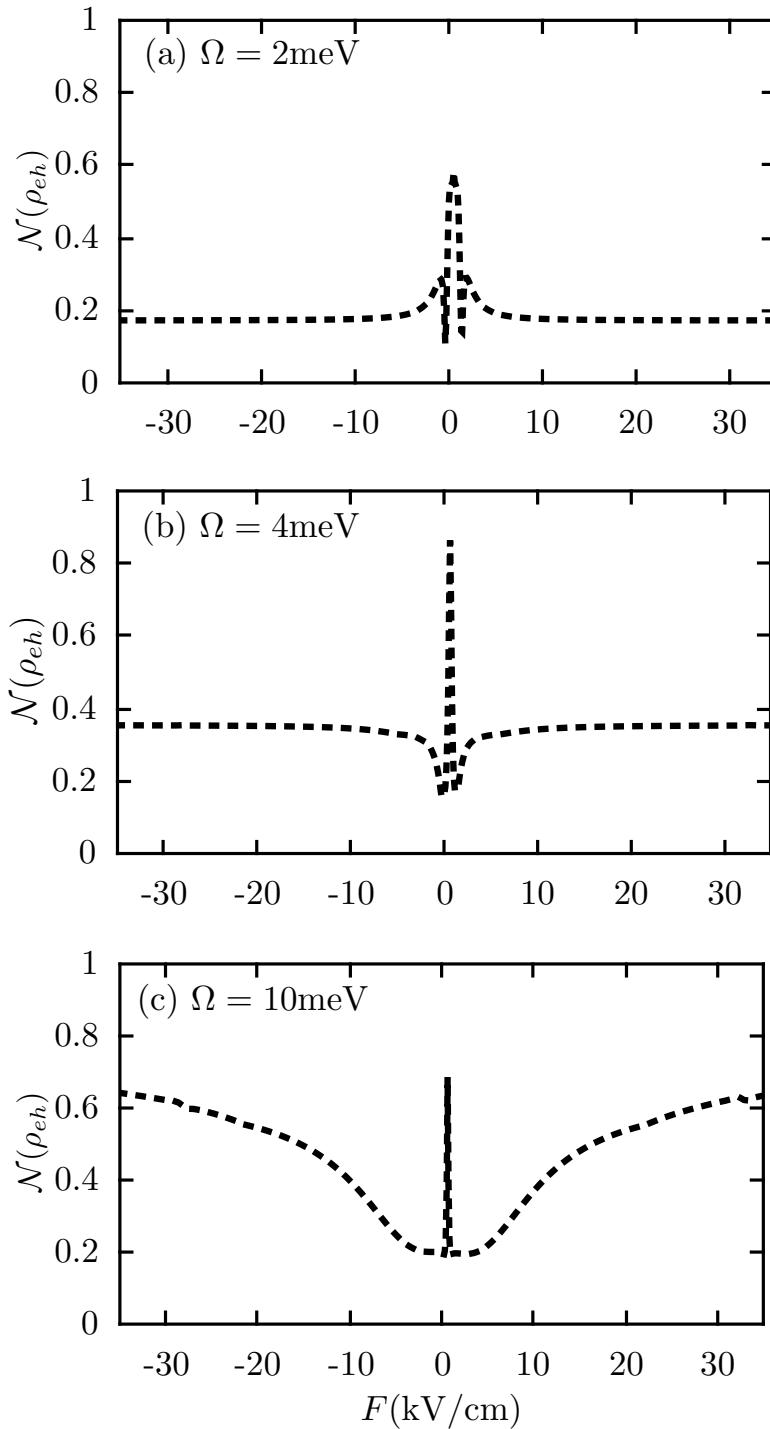


Figura 40: Negatividade como função do campo elétrico no regime estacionário, considerando: (a) $\Omega = 2$ meV, (b) $\Omega = 4$ meV e (c) $\Omega = 10$ meV. Foram usados os mesmos parâmetros da Fig. 34.

de que o grau de emaranhamento calculado para o regime assintótico através de $\mathcal{N}(\rho_{eh})$, exibe o mesmo pico central para os autoestados através de $S(\rho_{eh})$, no campo F_I .

Definido o valor do campo de interesse, F_I , exploramos a dependência do valor da

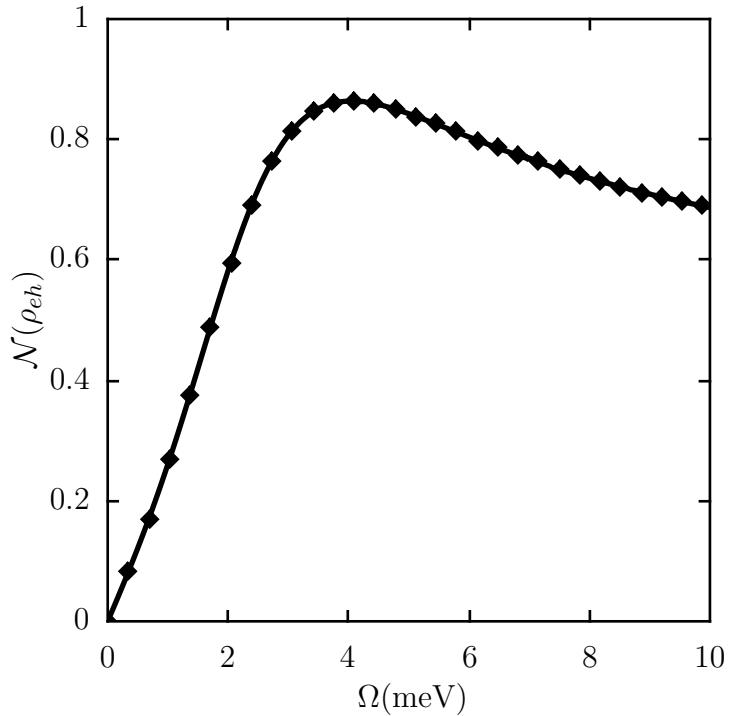


Figura 41: Negatividade como função da frequência de Rabi Ω no regime estacionário, para $F = F_I$. Nesta figura consideramos os mesmos parâmetros da Fig. 34.

negatividade como função do acoplamento Ω . Na Fig. 41, mostramos os nossos resultados, onde verificamos que a negatividade assume seu valor máximo para $\Omega \sim 4$ meV. É interessante observar que, mesmo considerando valores baixos de Ω (laser de baixa intensidade), o grau de emaranhamento não é nulo.

Deste modo, comparando este valor máximo obtido $\mathcal{N} = 1.5$, com o valor máximo de \mathcal{N} obtido no regime estacionário mostrado na Fig. 41 ($\mathcal{N} \sim 0.88$, para $\Omega \sim 4$ meV), encontramos como resultado uma configuração de parâmetros onde o estado assintótico é significativamente emaranhado, cerca de 60 % do valor máximo possível de emaranhamento para um sistema de $\text{dim} = 4$.

Até agora investigamos o emaranhamento excitônico no regime estacionário para o valor de campo $F = F_I$, onde os estados indiretos se anticruzam. De acordo com a equação (10.3), este valor de campo depende inversamente da distância d entre os pontos. As taxas de tunelamento T_e e T_h , que são responsáveis pelo anticruzamento entre $|X_{01}^{10}\rangle$ e $|X_{10}^{01}\rangle$, também dependem fortemente da distância entre os pontos. Deste modo, afim de encontrar uma configuração de parâmetros na qual o grau de emaranhamento é o maior possível no regime assintótico, analisamos o comportamento da negatividade considerando diferentes valores de d . Experimentalmente, isso significa avaliar o grau de emaranhamento para amostras com diferentes espessuras da barreira entre os pontos.

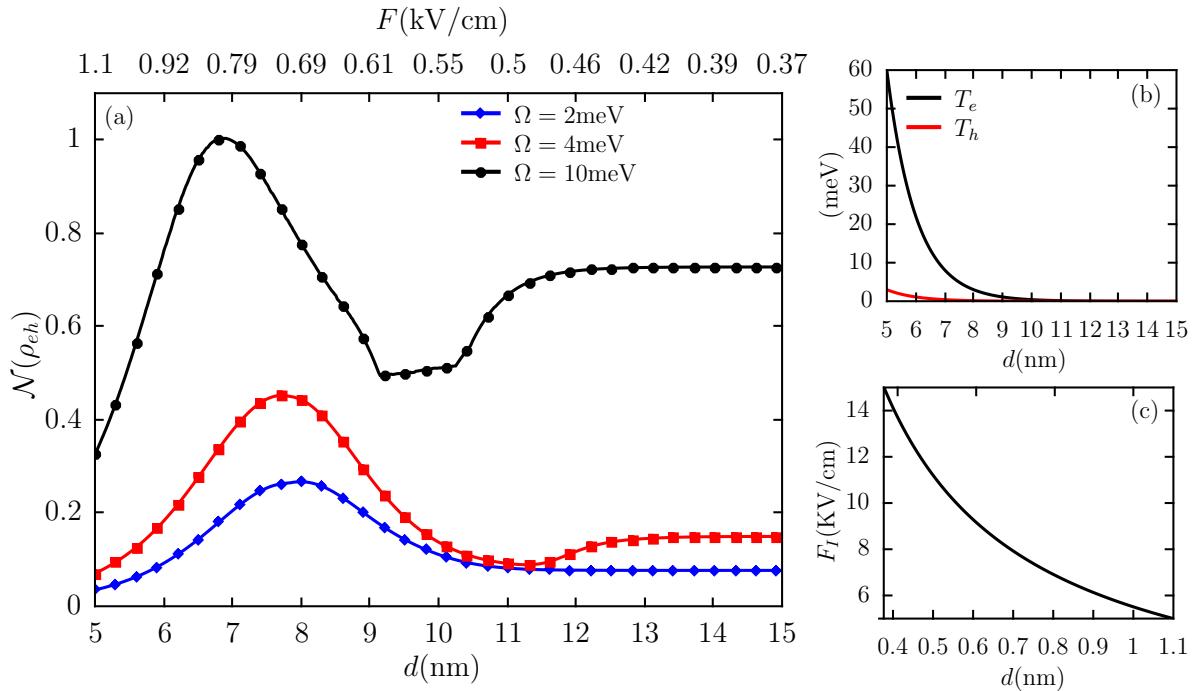


Figura 42: (a) Negatividade como função da espessura d da barreira entre os pontos para o valor de campo elétrico onde os estados $|X_{01}^{10}\rangle$ e $|X_{10}^{01}\rangle$ se anticruzam. No eixo superior estão os valores de campo F_I correspondentes para cada valor de d . (b) Dependência das taxas de tunelamento T_e linha preta, e T_h linha vermelha com d . (c) Valores de campo elétrico nos quais os estados indiretos se anticruzam como função de d .

Na Fig. 42(a) é mostrado o valor da negatividade $\mathcal{N}(\rho_{eh})$ como função da espessura da barreira entre os pontos considerando diferentes valores de Ω , para o valor de campo elétrico no qual os estados de exciton indireto $|X_{01}^{10}\rangle$ e $|X_{10}^{01}\rangle$ se anticruzam. Como para cada valor de d , há um valor de F_I e as taxas de tunelamento dependem fortemente da distância entre os pontos, mostramos nas Figs. 42(b) e 42(c) F_I , T_h e T_e como função de d . Verificamos através da Fig. 42(a) que para $d \sim 7$ nm e $\Omega = 10$ meV que a negatividade assume um valor igual a $\mathcal{N}(\rho_{eh}) \sim 1$, que corresponde cerca de 67 % do valor máximo da negatividade para um sistema de $dim = 4$.

A fim de verificar para quais regimes de parâmetros o emaranhamento entre elétron-buraco é optimizado, é mostrado graficamente na Fig. 43 uma mapa de cores associado ao valor de $\mathcal{N}(\rho_{eh})$ como função de Ω e da separação d entre os pontos. Nesta figura foi calculado o valor da negatividade para os valores de F_I , e das taxas de tunelamento T_e e T_h correspondente com cada distância d .

Através deste resultado (Fig. 43), é possível identificar uma região relativamente ampla (região de cor amarelo mais claro) no qual o emaranhamento atinge valores alto (~ 1) para este sistema. Assim, nossos resultados mostram que exatamente quando os estados

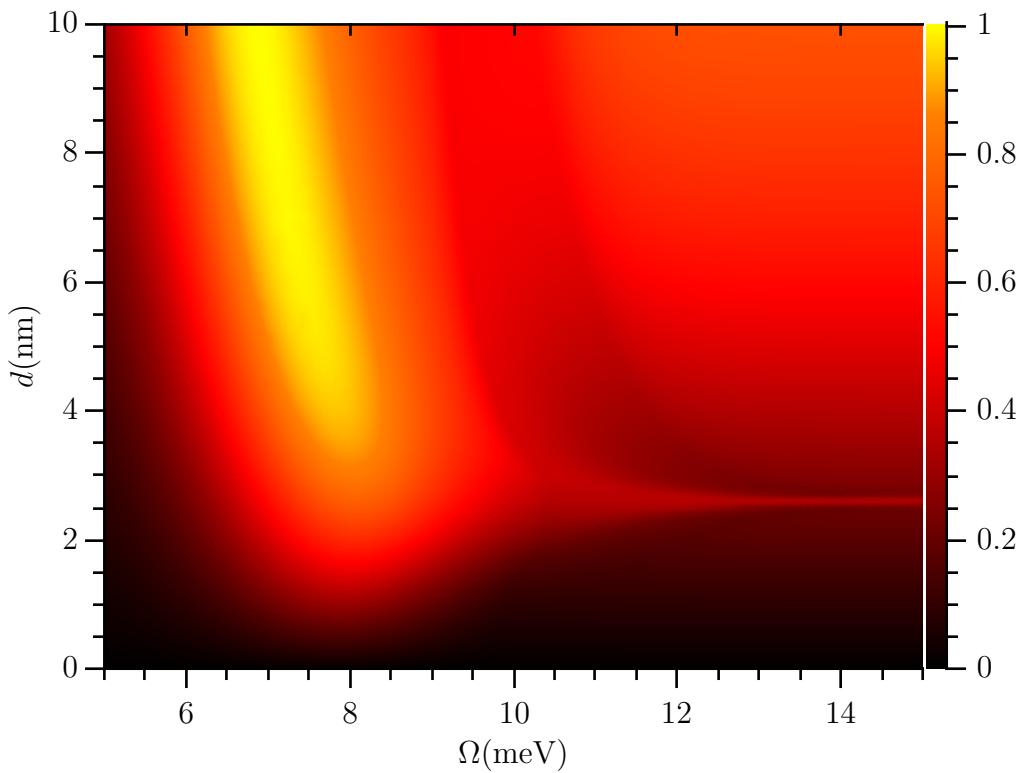


Figura 43: Negatividade como função de Ω e da espessura, d da barreira entre os pontos para o valor de campo elétrico onde os estados $|X_{01}^{10}\rangle$ e $|X_{10}^{01}\rangle$ se anticruzam.

$|X_{10}^{01}\rangle$ e $|X_{01}^{10}\rangle$ são ressonantes, o sistema vai para um estado assintótico que apresenta um alto grau de emaranhamento quantificado através de $\mathcal{N}(\rho_{eh})$.

10.3 Conclusões

Nossos resultados associados ao emaranhamento excitônico da molécula mostram que controlando parâmetros como: a frequência do laser incidente e o campo elétrico externo, o sistema evolui para o regime estacionário onde os estados assintóticos induzidos pelos mecanismos dissipativos são os estados de excitons indiretos. Estes estados por sua vez, apresentam um tempo de vida apreciável e são robustos contra processos de decoerência. Investigando o emaranhamento excitônico deste sistema, nós identificamos regimes baseados em condições realísticas onde este estado estacionário dado pela sobreposição dos estados de excitons indiretos possui um alto grau de emaranhamento.

11 Conclusões gerais e perspectivas futuras

Neste trabalho nós investigamos as propriedades ópticas e correlações quânticas em um sistema formado por dois pontos quânticos assimétricos verticalmente crescidos. Através de um campo elétrico aplicado na direção de crescimento da nanoestrutura é possível selecionar o tipo de portados que tunela, resultando na formação de estados de éxcitons indiretos nos quais a função de onda do portador (elétron ou buraco) é delocalizada sobre os dois pontos quânticos. Desta forma, pontos quânticos duplos sob incidência de radiação coerente constitui um sistema no qual é possível criar uma estrutura de muitos níveis excitônicos.

Descrevemos teoricamente a dinâmica dissipativa dos estados de éxcitons de caráter direto e indireto através da equação mestra escrita na forma de Von-Neumann Lindblad, e consideramos como processos de decoerência o decaimento espontâneo da população excitônica devido à recombinação do par elétron-buraco, e processos de *dephasing* puro causados pela interação de Coulomb dos portadores confinados nos pontos com outros portadores delocalizados na barreira do material.

Afim de investigarmos as propriedades ópticas do sistema devido a incidência de campos eletromagnéticos, calculamos a função de susceptibilidade óptica linear como função da frequência do campo de prova, que por sua vez, foi obtida a partir dos elementos da matriz densidade associados às transições ópticas envolvidas no regime estacionário. Nossos resultados mostraram a aparição de um regime de transparência óptica induzida pelo tunelamento entre os pontos (TIT) e demonstramos o controle de diversos regimes ópticos como dubletos de Autler-Townes, TIT e tripletos tipo Mollow. Identificamos ainda para qual regime de parâmetros o índice de refração experimenta uma mudança acentuada, acarretando na redução da velocidade de grupo exatamente na região que os pontos quânticos se tornam transparentes ao laser de prova. Além disso, no mesmo sistema investigamos a resposta óptica devido à ação de laser polarizado e considerando a interação

de troca que é intrínseca ao sistema. Já que a interação de troca remove os diversos níveis de degenerescência entre os estados excitônicos brilhantes e escuros, mostramos a aparição de novos canais de interferência quântica estabelecidos pelo tunelamento de buracos entre os pontos. Deste modo, nossos resultados mostram que este sistema semicondutor tem uma rica e controlável resposta óptica, onde através do controle apropriado de parâmetros como o campo elétrico externo, polarização e intensidade do laser incidente, o tunelamento coerente de portadores entre os pontos pode estabelecer eficientemente processos de interferência destrutiva entre caminhos ópticos.

No contexto de correlações quânticas, quantificamos o emaranhamento excitônico através das medidas entropia de von Neumann e negatividade, para o sistema fechado e misto, respectivamente. Demostramos a relação entre os anticruzamentos observados no espectro de autovalores dos estados excitônicos como função do campo elétrico, com o grau de emaranhamento entre elétron e buraco. Evidenciamos uma região de campo, associada à mistura entre os estados de excitons indiretos no qual o grau de emaranhamento se apresenta robusto aos processos de decoerência. Através da análise de nossos resultados identificamos regimes de parâmetros onde o estado assintótico do sistema é um dos seus autoestados que possui, por sua vez, e um significativo grau de emaranhamento.

Naturalmente, o passo seguinte na investigação do controle óptico para processamento quântico de informação em moléculas artificiais é incluir os efeitos do acoplamento hiperfino com o ensemble de spins nucleares. Além disso, como perspectiva futura pretendemos demonstrar a implementação de memórias quânticas ópticas neste sistema utilizando o efeito luz lenta no regime de transparência induzida, e mapear indiretamente através da interação hiperfina, estados quânticos de fôtons em estados de spins nucleares presentes na rede da nanoestrutura semicondutora. Ainda no contexto de informação e computação quântica este sistema pode ser usado para a implementação de portas lógicas através da incidência de pulsos ultra-rápidos, tanto no regime de fotoluminescência como no regime de fotocorrente.

APÊNDICE A - Hamiltoniano efetivo

Consideremos um hamiltoniano escrito da seguinte forma:

$$H = H_0 + \lambda V, \quad (\text{A.1})$$

onde H_0 corresponde a um hamiltoniano não perturbado independente do tempo, enquanto λV representa o acoplamento descrito como uma pequena perturbação (λ é um parâmetro adimensional).

Neste apêndice consideramos a situação na qual H_0 tem seus diversos níveis de energia $E_{i\alpha}$ agrupados, onde i representa os diferentes níveis de energia pertencente a cada subgrupo α , que são por sua vez bem separados em energia (COHEN-TANNOUDJI; DUPONT-ROC; GRYNBERG, 2004). Deste modo, temos a seguinte equação de autova-lores:

$$H_0|i, \alpha\rangle = E_{i\alpha}|i, \alpha\rangle. \quad (\text{A.2})$$

Assumindo diferentes subgrupos de níveis de energia α e β , temos a relação:

$$|E_{i\alpha} - E_{j\alpha}| \ll |E_{i\alpha} - E_{i\beta}|, \quad (\text{A.3})$$

com $\alpha \neq \beta$.

O acoplamento expresso pelo operador V acopla os níveis dos diferentes subgrupos. Assim, se λ é suficientemente pequeno, a condição (A.2) pode ser escrita em termos da perturbação da seguinte forma:

$$\langle i, \alpha | \lambda V | j, \beta \rangle \ll |E_{i\alpha} - E_{j\beta}|. \quad (\text{A.4})$$

Com o intuito de construir um hamiltoniano efetivo H_{ef} que descreve o acoplamento entre níveis do mesmo subgrupo α projetando fora os estados associados a um outro subgrupo β bem separados em energia dos níveis $E_{i\alpha}$, ou seja, $\langle j, \alpha | H_{ef} | i, \beta \rangle = 0$ para

$\alpha \neq \beta$, usamos a transformação unitária,

$$H_{ef} = e^{iS} H e^{-iS}, \quad (\text{A.5})$$

sendo $S = S^\dagger$ e H o hamiltoniano expresso na equação (A.1). Expandindo S em termos da perturbação λ :

$$S = \lambda S^{(1)} + \lambda^2 S^{(2)} + \dots + \lambda^n S^{(n)}, \quad (\text{A.6})$$

onde nós assumimos que H_0 é diagonal na base $\{|i, \alpha\rangle\}$.

Usando o Lemma de *Baker-Hausdorff*, temos que (SAKURAI, 1994):

$$H_{ef} = H + [iS, H] + \frac{1}{2!}[iS, [iS, H]] + \frac{1}{3!}[iS, [iS, [iS, H]]] + \dots \quad (\text{A.7})$$

Por fim, substituindo a equação (A.6) na equação (A.7) obtemos a seguinte expressão para H_{eff} em termos de λ ,

$$H_{ef} = H_0 + W, \quad (\text{A.8})$$

$$\text{sendo } W = \lambda H_{ef}^{(1)} + \lambda^2 H_{ef}^{(2)} + \dots + \lambda^p H_{ef}^{(p)} + \dots$$

Deste modo, afim de calcular S nós igualamos os termos das equações (A.7) e (A.8) com mesmo ordem de λ . Considerando os termos de primeira ordem em λ , temos a seguinte equação:

$$\langle i, \alpha | \lambda H_{ef}^{(1)} | i, \beta \rangle = \langle i, \alpha | ([iS^{(1)}, H_0]) | i, \beta \rangle + \langle i, \alpha | \lambda V | i, \beta \rangle = 0, \quad (\text{A.9})$$

já que os elementos de matrizes $H_{ef}^{(1)}$ entre dois estados de diferentes subgrupos $\alpha \neq \beta$ são iguais a zero. Usando a equação de autovalores (A.2), temos que:

$$\langle i, \alpha | \lambda S^{(1)} | j, \beta \rangle = \begin{cases} \frac{\langle i, \alpha | \lambda V | j, \beta \rangle}{E_{i\alpha} - E_{j\alpha}}, & \text{para } \alpha \neq \beta \\ 0, & \text{para } \alpha = \beta \end{cases}$$

Deste modo, temos que os elementos de matriz de H_{ef} para um dado subgrupo α , até segunda ordem em λ é dado por:

$$\begin{aligned} \langle i, \alpha | H_{ef} | j, \alpha \rangle &= E_{i\alpha} \delta_{ij} + \langle i, \alpha | \lambda V | j, \alpha \rangle \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{k, \gamma \neq \alpha} \langle i, \alpha | \lambda V | k, \gamma \rangle \langle k, \gamma | \lambda V | i, \alpha \rangle \left[\frac{1}{E_{i\alpha} - E_{k\gamma}} + \frac{1}{E_{j\alpha} - E_{k\gamma}} \right] + \mathcal{O}(\lambda^3), \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

onde os estados representados por $|k, \gamma\rangle$ são os estados que são projetados fora do hamiltoniano (A.1). O primeiro termo do lado direito da equação (A.10) descreve os níveis de

energia $E_{i\alpha}$ não perturbados, o segundo termo representa o acoplamento direto entre os níveis $|i, \alpha\rangle$ e $|i, \alpha\rangle$, enquanto o último termo descreve o acoplamento indireto entre estes dois níveis devido a todos os níveis $|k, \gamma\rangle$ do outro subgrupo γ . Este último termo por sua vez, tem a mesma estrutura de um termo de perturbação de segunda ordem.

Referências

- ABI-SALLOUM, T. Y. Electromagnetically induced transparency and autler-townes splitting: Two similar but distinct phenomena in two categories of three-level atomic systems. *Phys. Rev. A*, v. 81, n. 053836, p. 1–6, 2010.
- AKIMOV, I. A.; ANDREWS, J. T.; HENNEBERGER, F. Stimulated emission from the biexciton in a single self-assembled II-VI quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, v. 96, n. 067401, p. 1–4, 2006.
- ASSUNCAO, M. et al. Thermal effects on photon-induced quantum transport in a single quantum dot. *JOURNAL OF PHYSICS-CONDENSED MATTER*, v. 25, n. 135301, p. 1–6, 2013.
- BARDOT, C. et al. Exciton lifetime in InAs/GaAs quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 72, n. 035314, p. 1–7, 2005.
- BAYER, M. et al. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled InGaAs/AlGaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, v. 65, n. 195315, p. 1–23, 2002.
- BENENTI, G.; CASAT, G.; STRINI, G. *Principles of Quantum Computation and Information Vol. 2*. Singapore: World Scientific, 2007.
- BENNETT, C. H. et al. Concentrating partial entanglement by local operations. *Phys. Rev. A*, v. 53, n. 4, p. 2046–2052, 1996.
- BENNETT, C. H.; DIVINCENZO, D. P. Quantum information and computation. *Nature*, v. 404, n. 6775, p. 247–255, 2000.
- BEREZOVSKY, J. et al. Picosecond coherent optical manipulation of a single electron spin in a quantum dot. *Science*, v. 320, n. 5874, p. 349–352, 2008.
- BESTER, G.; SHUMWAY, J.; ZUNGER, A. Theory of excitonic spectra and entanglement engineering in dot molecules. *Phys. Rev. Lett.*, v. 93, n. 047401, p. 1–4, 2004.
- BESTER, G.; ZUNGER, A.; SHUMWAY, J. Broken symmetry and quantum entanglement of an exciton in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dot. *Phys. Rev. B*, v. 71, p. 1–13, 2005.
- BORGES, H. S.; ALCALDE, A. M.; ULLOA, S. E. Exchange interaction and tunneling induced transparency in coupled quantum dots. *cond-mat.mes-hall*, v1, n. arXiv:1405.0946, p. 1–7, 2014.
- BORGES, H. S. et al. Robust states in semiconductor quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 81, n. 075322, p. 1–6, 2010.

- BORGES, H. S. et al. Tunneling induced transparency and slow light in quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 85, n. 115425, p. 1–7, 2012.
- BORGES, H. S. et al. Quantum interference and control of the optical response in quantum dot molecules. *Appl. Phys. Lett.*, v. 103, n. 222101, p. 1–4, 2013.
- BORRI, P. et al. Exciton dephasing in quantum dot molecules. *Phys. Rev. Lett.*, v. 91, n. 267401, p. 1–4, 2003.
- BOYLE, S. J. et al. Two-qubit conditional quantum-logic operation in a single self-assembled quantum dot. *Phys. Rev. B*, v. 78, n. 075301, p. 1–6, 2008.
- BRACKER, A. S.; GAMMON, D.; KORENEV, V. L. Fine structure and optical pumping of spins in individual semiconductor quantum dots. *Semicond. Sci. Technol.*, v. 23, n. 114004, p. 1–17, 2008.
- BRACKER, A. S. et al. Engineering electron and hole tunneling with asymmetric InAs quantum dot molecules. *Appl. Phys. Lett.*, v. 89, n. 233110, p. 1–3, 2006.
- BRUB, D. Characterizing entanglement. *J. Math. Phys.*, v. 43, n. 9, p. 4237–4251, 2002.
- BRUNNER, D. et al. A coherent single-hole spin in a semiconductor. *Science*, v. 325, n. 5936, p. 70–72, 2009.
- BRUUS, H.; FLENSBERG, K. *Many-Body Quantum Theory in Condensed Matter Physics: An Introduction*. Oxford: Oxford University Press, 2004.
- BUTOV, L. V. et al. Condensation of indirect excitons in coupled AlAs/GaAs quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, v. 73, n. 2, p. 304–307, 1994.
- CARMICHAEL, H. *An Open Systems Approach to Quantum Optics*. New York: Springer-Verlag, 1991.
- CHAVES, R.; DAVIDOVICH, L. Robustness of entanglement as a resource. *Phys. Rev. A*, v. 82, n. 052308, p. 1–10, 2010.
- CHEKHOVICH, E. A. et al. Nuclear spin effects in semiconductor quantum dots. *Nature Materials*, v. 12, n. 6, p. 494–504, 2013.
- CHU, W.; ZHU, J.-L. Entangled exciton states and their evaluation in coupled quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, v. 89, n. 053122, p. 1–3, 2006.
- CLEVE, R. et al. Quantum algorithms revisited. *Proceedings of the royal society a mathematical physical and engineering sciences*, v. 454, n. 1969, p. 339–354, 1998.
- COHEN-TANNOUDJI, C.; DIU, B.; LALOE, F. *Quantum Mechanics Vol.1*. [S.l.]: John Wiley, 1978.
- COHEN-TANNOUDJI, C.; DUPONT-ROC, J.; GRYNBERG, G. *Atom-Photons Interactions*. Weinheim: Wile-VCH, 2004.
- CROOKER, S. A. et al. Spectrally resolved dynamics of energy transfer in quantum-dot assemblies: Towards engineered energy flows in artificial materials. *Phys. Rev. B*, v. 89, n. 186802, p. 1–4, 2002.

- DIVINCENZO, D. P. The physical implementation of quantum computation. *Fortschritte Der Physik-Progress of Physics*, v. 48, n. 9, p. 771–783, 2000.
- DOTY, M. F. et al. Hole-spin mixing in InAs quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 81, n. 035308, p. 035308, 2010.
- DOTY, M. F. et al. Antibonding ground states in inas quantum-dot molecules. *Phys. Rev. Lett.*, v. 102, n. 047401, p. 1–4, 2009.
- DOTY, M. F. et al. Optical spectra of doubly charged quantum dot molecules in electric and magnetic fields. *Phys. Rev. B*, v. 78, n. 115316, p. 1–20, 2008.
- ECONOMOU, S. E. et al. Scalable qubit architecture based on holes in quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 86, n. 085319, p. 1–13, 2012.
- ECONOMOU, S. E.; REINECKE, T. L. Optically induced spin gates in coupled quantum dots using the electron-hole exchange interaction. *Phys. Rev. B*, v. 78, n. 115306, p. 1–5, 2008.
- EFROS, A. L. et al. Band-edge in quantum dots of semiconductors with a degenerate valence band: Dark and bright exciton states. *Phys. Rev. B*, v. 54, n. 7, p. 4843–4856, 1996.
- EMARY, C.; SHAM, L. J. Optically controlled logic gates for two spin qubits in vertically coupled quantum dots. *Phys. Rev. B*, v. 75, n. 125317, p. 1–11, 2007.
- FINDEIS, F. et al. Optical excitations of a self-assembled artificial ion. *Phys. Rev. B*, v. 63, n. 121309(R), p. 1–4, 2001.
- FLEISCHHAUER, M.; IMAMOGLU, A.; MARANGOS, J. P. Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media. *Rev. Mod. Phys.*, v. 77, n. 2, p. 633–673, 2005.
- GAO, X. H.; FEI, S. M. Estimation of concurrence for multipartite mixed state. *Eur. Phys. J. Special Topics*, v. 159, n. 1, p. 71–77, 2008.
- GERARDOT, B. D. et al. Dressed excitonic states and quantum interference in a three-level quantum dot ladder system. *New Jurnal of Physics*, v. 11, n. 013028, p. 1–11, 2009.
- GERARDOT, B. D. et al. Photon statistics from coupled quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, v. 95, n. 137403, p. 1–4, 2005.
- GERRY, C.; KNIGHT, P. *Introductory Quantum Optics*. United Kingdom: Cambridge University Press, 2005.
- GOSHIMA, K. et al. Formation and control of a correlated exciton two-qubit system in a coupled quantum dot. *Phys. Rev. B*, v. 79, n. 205313, p. 1–7, 2009.
- GOVOROV, A. O. Spin-föster transfer in optically excited quantum dots. *Phys. Rev. B*, v. 71, n. 155323, p. 1–9, 2005.
- GREILICH, A. et al. Optical control of one and two hole spins in interacting quantum dots. *Nature Photonics*, v. 5, n. 237, p. 703–709, 2011.

- GREILICH, A. et al. Ultrafast optical rotations of electron spins in quantum dots. *Nature Physics*, v. 5, n. 1226, p. 262–266, 2009.
- GROVER, L. K. Quantum computers can search rapidly by using almost any transformation. *Phys. Rev. Lett.*, v. 80, n. 19, p. 4329–4332, 1998.
- GU, Y. et al. Coherent population trapping and electromagnetically induced transparency in a five-level M-type atom. *Journal Physics B*, v. 39, n. 0953, p. 463–471, 2006.
- HAU, L. V. et al. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, v. 64, n. 10, p. 1107–1110, 1990.
- HAU, L. V. et al. Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas. *Nature*, v. 397, n. 6720, p. 594–598, 1999.
- HEISS, D. et al. Optically monitoring electron spin relaxation in a single quantum dot using a spin memory device. *Phys. Rev. B*, v. 82, n. 245316, p. 1–6, 2010.
- HENNESSY k. et al. Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system. *Nature*, v. 445, n. 7130, p. 896, 2007.
- HILL, S.; WOOTTERS, W. K. Entanglement of a pair of quantum bits. *Phys. Rev. Lett.*, v. 78, n. 26, p. 5022–5025, 1997.
- HORODECKI, M.; HORODECKI, P.; HORODECKIC, R. Separability of mixed states: necessary and sufficient conditions. *Physics Letters A*, v. 223, n. 1, p. 1–8, 1996.
- IMAMOGLU, A.; YAMAMOTO, Y. *Mesoscopic Quantum Optics*. New York: John Wiley and Sons, 1999.
- JACAK, L.; HAWRYLAK, P.; WOJS, A. *Quantum Dots*. Berlin: Springer-Verlag, 1998.
- KAGAN, C. R.; MURRAY, C. B.; BAWENDI, M. G. Long-range resonance transfer of electronic excitations in close-packed CdSe quantum-dot solids. *Phys. Rev. B*, v. 54, n. 12, p. 8633–8643, 1996.
- KIM, J. et al. Slow light using semiconductor quantum dots. *J. Phys: Condens. Matter*, v. 16, n. 35, p. S3727–S3735, 2004.
- KIM SAMUEL G. CARTER, A. G. A. S. B. D.; GAMMON, D. Ultrafast optical control of entanglement between two quantum-dot spins. *Nature Physics*, v. 7, n. 1863, p. 223–229, 2010.
- KITTEL, C. *Introduction to Solid State Physics*. USA: John Wiley and Sons, 2005.
- KODRIANO, Y. et al. Optical control of single excitons in semiconductor quantum dots. *Semicond. Sci. Technol.*, v. 29, n. 053001, p. 1–23, 2014.
- KRENNER, H. J. et al. Direct observation of controlled coupling in an individual quantum dot molecule. *Phys. Rev. Lett.*, v. 94, n. 057402, p. 1–4, 2005.
- KRENNER, H. J. et al. Recent advances in exciton-based quantum information processing in quantum dot nanostructures. *New Journal of Physics*, v. 7, n. 184, p. 1–27, 2005.

- LADD, T. D. et al. Quantum computers. *Nature*, v. 464, n. 7285, p. 45–53, 2010.
- LAUCHT, A. et al. Dephasing of exciton polaritons in photoexcited InGaAs quantum dots in GaAs nanocavities. *Phys. Rev. Lett.*, v. 103, n. 087405, p. 1–4, 2009.
- LI, X. et al. An all-optical quantum gate in a semiconductor quantum dot. *Science*, v. 301, n. 5634, p. 809–811, 2003.
- LINDBLAD, G. On the generators of quantum dynamical semigroups. *Commun. math. Phys*, v. 48, n. 2, p. 119–130, 1976.
- LOSS, D.; DIVINCENZO. Quantum computation with quantum dots. *Phys. Rev. A*, v. 57, n. 1, p. 120–126, 1998.
- MEIER, T.; THOMAS, P.; KOCH, S. W. *Coherent Semiconductor Optics*. Berlin: Springer, 2007.
- MEYSTRE, P.; III, M. S. *Elements os Quantum Optics*. USA: Springer, 2007.
- MICHLER, P. *Single Quantum Dots: Fundamentals, Applications, and New Concepts*. New York: Springer, 2003.
- MIRANOWICZ, A.; GRUDKA, A. Ordering two-qubit states with concurrence and negativity. *Phys. Rev. A*, v. 70, n. 032326, p. 1–4, 2004.
- MOLLOW, B. R. Power spectrum of light scattered by two-levels system. *Phys. Rev.*, v. 188, n. 5, 1969.
- MUCKE, M. et al. Electromagnetically induced transparency with single atoms in a cavity. *Nature*, v. 465, n. 7299, p. 755–758, 2010.
- MULLER, A. et al. Determination of anisotropic dipole moments in self-assembled quantum dots using rabi oscillations. *Appl. Phys. Lett.*, v. 84, n. 6, p. 981–983, 2004.
- MULLER, K. et al. Electrical control of interdot electron tunneling in a double InGaAs quantum-dot nanostructure. *Phys. Rev. Lett.*, v. 108, n. 197402, p. 1–5, 2012.
- MULLER, K. et al. Probing ultrafast carrier tunneling dynamics in individual quantum dots and molecules. *Ann. Phys.*, v. 525, n. 1, p. 49–58, 2013.
- MULLER, K. et al. All optical quantum control of a spin-quantum state and ultrafast transduction into an electric current. *Scientific Report*, v. 3, n. 1906, p. 1–7, 2013.
- MULLER, K. et al. Excited state quantum couplings and optical switching of an artificial molecule. *Ann. Phys.*, v. 84, n. 081302(R), p. 1–4, 2011.
- NAZIR, A. et al. Anticrossings in förster coupled quantum dots. *Phys. Rev. B*, v. 71, n. 045334, p. 1–11, 2005.
- NAZIR, A.; LOVETT, B. W.; BRIGGS, G. A. D. Creating excitonic entanglement in quantum dots through the optical stark effect. *Phys. Rev. A*, v. 70, n. 052301, p. 1–5, 2004.

- NEUMANN, J. von. *Mathematical Foundations of Quantum Mechanics*. United Kingdom: Princeton University Press, 1996.
- NIELSEN, I. L. C. M. A. *Quantum Computation and Quantum Information*. New York: Cambridge University Press, 2000.
- OULTON, R. et al. Manipulation of the homogeneous linewidth of an individual InGaAs quantum dot. *Phys. Rev. B*, v. 66, n. 045313, p. 1–4, 2002.
- PERES, A. Separability criterion for density matrices. *Phys. Rev. Lett.*, v. 77, n. 8, p. 1413–1415, 1996.
- PLENIO, M. B.; VIRMANI, S. An introduction to entanglement measures. *Quantum computation and Computation*, v. 7, n. 1, p. 1–51, 2007.
- PRESKILL, J. *Lecture Notes for Physics 229: Quantum Information and Computation*. California: California Institute of Technology, 1998.
- PRESS, D. et al. Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses. *Nature*, v. 456, n. 7219, p. 218–221, 2008.
- PURI, R. R. *Mathematical Methods of Quantum Optics*. USA: Springer, 2001.
- RAI, S.; LUTHRA, J. R. Negativity and concurrence as complete entanglement measures for two arbitrary qudits. *arXiv:quant-ph*, v1, n. 0508045, p. 1–5, 2005.
- REISS, P.; PROTIERE, M.; LI, L. Core/Shell semiconductor nanocrystals. *Small*, v. 5, n. 2, p. 154–168, 2009.
- RIBEIRO, F. J. et al. Quantum dots under electric and magnetic fields: Impurity-related electronic properties. *J. Appl. Phys.*, v. 82, n. 1, p. 270–274, 1997.
- ROBLEDO, L. et al. Conditional dynamics of interacting quantum dots. *Science*, v. 320, n. 1155374, p. 772–775, 2008.
- ROLON, J. E.; ULLOA, S. E. Förster energy-transfer signatures in optically driven quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 79, n. 245309, p. 1–6, 2009.
- ROLON, J. E.; ULLOA, S. E. Coherent control of indirect excitonic qubits in optically driven quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 82, n. 115307, p. 1–10, 2010.
- RUNGTA, P. et al. Universal state inversion and concurrence in arbitrary dimensions. *Phys. Rev. A*, v. 64, n. 042315, p. 1–13, 2001.
- SAKURAI, J. J. *Advanced Quantum Mechanics*. USA: Addison-Wesley, 1967.
- SAKURAI, J. J. *Modern Quantum Mechanics*. USA: Addison-Wesley Publishing Company, 1994.
- SCHEIBNER, M. et al. Essential concepts in the optical properties of quantum dot molecules. *Solid State Communications*, v. 149, n. 35, p. 1427–1435, 2009.
- SCHEIBNER, M. et al. Spin fine structure of optically excited quantum dot molecules. *Phys. Rev. B*, v. 75, n. 245318, p. 1–9, 2007.

- SCHEIBNER, M. et al. Photoluminescence spectroscopy of the molecular biexciton in vertically stacked InAs-GaAs quantum dot pairs. *Phys. Rev. Lett.*, v. 99, n. 197402, p. 1–4, 2007.
- SCHLOSSHAUER, M. *Decoherence and the quantum-to-classical transition*. New York: Springer, 2007.
- SCULLY, M. O.; ZUBAIRY, M. S. *Quantum Optics*. United Kingdom: Cambridge University Press, 2001.
- SHOR, P. W. Polynomial-time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer. *Siam Review*, v. 41, n. 2, p. 303–332, 1999.
- SINGH, J. *Physics of Semiconductors and Their Heterostructures*. New York: McGraw-Hill, 1993.
- SPILLER, T. P. Quantum information processing: Cryptography, computation, and teleportation. *Proceedings of the IEEE*, v. 84, n. 12, p. 1719–1746, 1997.
- STINAFF, E. A. et al. Optical signatures of coupled quantum dots. *Science*, v. 311, n. 5761, p. 636–639, 2006.
- TACKEUCHI, A. et al. Dynamics of carrier tunneling between vertically aligned double quantum dots. *Phys. Rev. B*, v. 62, n. 3, p. 1568–1571, 2000.
- TAKAGAHARA, T. *Quantum Coherence, Correlation and Decoherence in Semiconductor Nanostructures*. United Kingdom: Elsevier Science Ltd, 2003.
- TOGAN, E. et al. Quantum entanglement between an optical photon and a solid-state spin qubit. *Nature*, v. 466, n. 7307, p. 730–735, 2010.
- TROIANI, F.; HOHENESTER, U.; MOLINARI, E. Exploiting exciton-exciton interactions in semiconductor quantum dots for quantum-information processing. *Phys. Rev. B*, v. 62, n. 4, p. R2263–R2266, 2000.
- VALLE, E. del. Steady-state entanglement of two coupled qubits. *J. Opt. Soc. Am. B*, v. 28, n. 2, p. 228–235, 2011.
- VEDRAL, V. *Introduction to Quantum Information Science*. New York: Oxford University Press, 2006.
- VEDRAL, V. et al. Quantifying entanglement. *Phys. Rev. Lett.*, v. 78, p. 2275–2279, 1997.
- VIDAL, G.; WERNER, R. F. Computable measure of entanglement. *Phys. Rev. A*, v. 65, n. 032314, p. 1–7, 2002.
- VILLAS-BOÅS, J. M.; ULLOA, S. E.; GOVOROV, A. O. Spin polarized photocurrent from quantum dots. *Phys. Rev. B*, 2007.
- WARBURTON, R. J. et al. Giant permanent dipole moments of excitons in semiconductor nanostructures. *Phys. Rev. B*, v. 65, n. 113303, p. 1–4, 2002.

- WARE, M. E. et al. Polarized fine structure in the photoluminescence excitation spectrum of a negatively charged quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, v. 95, n. 177403, p. 1–4, 2005.
- WIJESUNDARA, K. C. et al. Tunable exciton relaxation in vertically coupled semiconductor inas quantum dots. *Phys. Rev. B*, v. 84, n. 081404(R), p. 1–4, 2011.
- WOOTTERS, W. K. Entanglement of formation of an arbitrary state of two qubits. *Phys. Rev. Lett.*, v. 80, n. 10, p. 2245–2248, 1998.
- XU, X. et al. Strong optical field study of a single self-assembled quantum dot. *Solid State Communications*, v. 149, n. 35, p. 1479–1484, 2009.
- XU, X. et al. Coherent optical spectroscopy of a strongly driven quantum dot. *Science*, v. 317, n. 5840, p. 929–932, 2007.
- YANG, L. et al. Autler-townes effect in a strongly driven electromagnetically induced transparency resonance. *Phys. Rev. A*, v. 72, n. 053801, p. 1–8, 2005.
- YU, P. Y.; CARDONA, M. *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties*. Berlin: Springer, 2003.
- ZYCZKOWSKI, K. et al. Volume of the set of separable states. *Phys. Rev. A*, v. 58, n. 2, p. 883–892, 1998.