

Maryzaura de Oliveira Assunção

***Efeitos térmicos em fotodiodos de pontos quânticos
semicondutores***

Uberlândia

2012

Maryzaura de Oliveira Assunção

***Efeitos térmicos em fotodiodos de pontos quânticos
semicondutores***

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de Uberlândia, como requisito parcial para obtenção do título de mestre em Física.

Orientador:

Fabício Macedo de Souza

UNIVERSIDADE FEDERAL DE UBERLÂNDIA
INSTITUTO DE FÍSICA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

Uberlândia

2012

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

A851e Assunção, Maryzaura de Oliveira, 1987-
2012 Efeitos térmicos em fotodiodos de pontos quânticos semiconduto-
res / Maryzaura de Oliveira Assunção. - 2012.
89 f. : il.

Orientador: Fabrício Macedo de Souza.

Dissertação (mestrado) ó Universidade Federal de Uberlândia, Pro-
grama de Pós-Graduação em Física.

Inclui bibliografia.

1. Física - Teses. 2. Pontos quânticos - Teses. 3. Green, Funções de
- Teses. 4. Oscilações - Teses. I. Souza, Fabrício Macedo de. II. Uni-
versidade Federal de Uberlândia. Programa de Pós-Graduação em
Física. III. Título.

CDU: 53

Maryzaura de Oliveira Assunção

“Efeito térmicos em fotodiodos de pontos quânticos semicondutores”

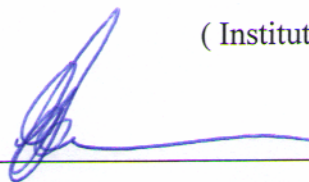
Dissertação apresentada ao Programa de Pós-graduação em Física da Universidade Federal de Uberlândia, como requisito parcial para obtenção do título de mestre em Física.

Uberlândia, 16/07/2012.

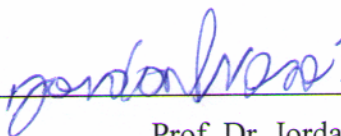
Banca Examinadora:



Prof. Dr. Fabrício Macedo de Souza – Orientador
(Instituto de Física/UFU)



Prof. Dr. Edson Vernek
(Instituto de Física/UFU)



Prof. Dr. Jordan Del Nero
(Universidade Federal do Pará - UFPA)

À memória de Sebastiana Cândida de Oliveira

Agradecimentos

A Deus, pela minha vida.

Ao meu orientador, Prof. Fabrício Macedo de Souza, pela confiança depositada, pelos ensinamentos teóricos e práticos e por me mostrar tantas vezes que o resultado sempre pode ser melhor.

Aos meus colegas do Grupo de Nanociências: Gisele, Bruno, Renato, Taís, Irisnei, pela amizade, por cada auxílio prestado e, principalmente, pela paciência com esse meu jeitão falador...

Aos meus pais, Jarbas e Eni, por sempre me guiarem ao caminho dos estudos, me ensinarem a ter respeito pelo próximo, responsabilidade, comprometimento e amor pelo que se faz. Aos meus irmãos, Myller, Danielle e Daniel, pelo apoio e amizade.

Ao meu namorado, Wellington, pela paciência, amor e companheirismo de tantos anos. E por tentar me ensinar eletrônica tantas vezes...

A minha amiga Silésia, por sempre me motivar.

A todos os amigos e colegas de Graduação e Mestrado em Física, pelos conhecimentos e companheirismo compartilhados.

A Universidade Federal de Uberlândia por, além de me oportunizar formação acadêmica de qualidade, ser minha verdadeira casa todos esses anos.

Ao Instituto de Física e ao Programa de Pós-Graduação em Física, seus professores, técnicos e secretários, por tudo que fazem pelos cursos de Física e, consequentemente, por nós, estudantes.

As agências de fomento: CAPES, CNPq e FAPEMIG, pelo apoio financeiro, desde a Iniciação Científica.

Resumo

O recente progresso na fabricação de sistemas de pontos quânticos semicondutores (PQ) tem tornado possível o controle coerente de estados quânticos em PQs utilizando técnicas ópticas ou elétricas. Pulsos de laser têm sido recentemente utilizados para controlar coerentemente a população de éxcitons em PQs. A manipulação coerente de estados quânticos é uma tarefa de alta prioridade para o desenvolvimento da informação e computação quântica. Uma assinatura particular de coerência em estados quânticos são as oscilações de Rabi, as quais foram recentemente observadas em trabalhos experimentais. Neste trabalho estudamos, teoricamente, um sistema composto por um PQ semicondutor, túnel-acoplado a reservatórios de elétrons. Na presença de um campo de laser um par elétron-buraco é criado no PQ. Uma tensão fonte-dreno (*bias*) permite que elétrons e buracos tunelem para os reservatórios. O estudo foi desenvolvido através da técnica de funções de Green de não-equilíbrio. Resolvemos numericamente um conjunto de equações diferenciais acopladas para as funções de Green retardada e menor. Estas fornecem a probabilidade de ocupação dos dois níveis no PQ e a fotocorrente induzida por laser. Concentramos nossa atenção nos efeitos da temperatura sobre as oscilações de Rabi. Nossos principais resultados incluem um bloqueio de Pauli termicamente ativado na fotocorrente. Estes resultados sugerem a habilidade de medir temperatura via sinais quânticos coerentes, sugerindo, assim, a possibilidade de um novo termômetro baseado em pontos quânticos.

Palavras-Chave: pontos quânticos, fotocorrente, funções de Green, efeitos térmicos, oscilações de Rabi.

Abstract

The recent progress in the manufacturing of semiconductor quantum dots (QD) systems has made possible the coherent control of quantum states in QDs using optical or electrical techniques. Laser pulses have been recently used to coherently control the exciton population in QDs. The coherent manipulation of quantum states is a high priority task to the development of quantum information and quantum computation. One particular signature of coherency in quantum systems is the Rabi oscillations, which were recently observed in a few experimental works. Here we theoretically study a system composed of a semiconductor QD, tunnel coupled to electron reservoirs. In the presence of a laser field an electron-hole pair is created in the QD. An external source-drain (bias) voltage allows electrons and holes to tunnel to the reservoirs. The study was developed via the non-equilibrium Green's function technique. We solve numerically a set of coupled differential equations to the retarded and lesser Green functions. This gives the occupation probabilities of the two levels of the QD and the laser-induced photocurrent as a function of time. We focus our attention on the effects of temperature on the Rabi oscillations. Our main findings encompass a thermal activated Pauli blockade of the Rabi oscillations that can be controlled via the reservoirs temperature. We also discussed the effects of this thermal activation of Pauli blockade on the photocurrent. These results suggest that ability to measure temperatures via quantum coherent signals, thus suggesting the possibility of a new quantum-dot based thermometer.

Keywords: quantum dots, photocurrent, Green's functions, thermal effects, Rabi oscillations.

Sumário

Lista de Figuras

1	Introdução	p. 13
1.1	Semicondutores	p. 17
1.1.1	Pontos Quânticos	p. 19
1.1.2	Fotodiodos	p. 22
2	Sistema Físico - Modelo	p. 25
2.1	Ponto quântico semiconductor em um fotodiodo	p. 25
2.2	Hamiltoniano do sistema	p. 26
2.3	Laser	p. 27
3	Formalismo	p. 30
3.1	Fundamentos matemáticos	p. 30
3.2	Funções de Green	p. 32
3.3	Corrente elétrica	p. 35
3.4	Cálculo de $G'_{22}(tt')$ e $G^<_{22}(tt)$ para laser CW	p. 38
3.4.1	Função de Green retardada	p. 38
3.4.2	Função de Green menor	p. 40
3.5	Funções de Green para um sistema de dois níveis sem reservatório	p. 44
3.6	Funções de Green para um único nível acoplado a um reservatório, sem interação com a radiação	p. 46
3.7	Cálculo de $G^<_{ij}(tt)$ e de $G^r_{ij}(tt')$ para laser pulso delta	p. 47

4	Resultados numéricos	p. 49
4.1	Parâmetros e Unidades	p. 49
4.2	Sistema de dois níveis	p. 50
4.3	Um nível acoplado a um reservatório	p. 53
4.4	Ponto quântico semiconductor em uma estrutura de fotodiodo	p. 59
4.4.1	Ocupação eletrônica dos níveis	p. 60
4.4.2	Fotocorrente	p. 64
5	Conclusões	p. 73
	Referências Bibliográficas	p. 75
	Apêndice A – Expressão da função de Green retardada para um laser com pulso $\delta(t)$	p. 78
	Apêndice B – Expressão da função de Green menor para um laser com pulso $\delta(t)$	p. 82
	Apêndice C – Runge-Kutta de 2ª ordem (RK2)	p. 87

Lista de Figuras

- 1 Evolução temporal das probabilidades de ocupação $|c_0|^2$ e $|c_1|^2$ dos estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$, respectivamente, em um sistema perturbado por um potencial oscilatório. O padrão observado é conhecido como ‘oscilações de Rabi’. p. 14
- 2 Perfil de potencial (b) da região intrínseca do dispositivo mostrado, esquematicamente, em (c): um fotodiodo de um único ponto quântico (PQ). Figura retirada da referência (19). p. 15
- 3 Formação da estrutura de bandas do sódio, como função da distância interatômica. Figura retirada da referência (23). p. 17
- 4 Formação de pontos quânticos auto-organizados (*self-assembled*) pelo modo de Stranski-Krastanow. p. 19
- 5 Gaps de energia de alguns semicondutores III-V e II-VI (VB = banda de valência e CB = banda de condução). Figura retirada da referência (25). . . . p. 20
- 6 Potencial de confinamento vertical de um PQ semiconductor auto-organizado. p. 21
- 7 Formação de éxcitons em um PQ semiconductor através da incidência de uma radiação ressonante com a transição da banda de valência para a banda de condução. p. 22
- 8 Demonstração esquemática do processo de formação da barreira de potencial em uma homojunção semicondutora p-n. Figura retirada da referência (23). . p. 23
- 9 Vista lateral esquematizada de uma estrutura comum de um fotodiodo de junção p-n. O contato metálico superior possui aberturas que permitem a entrada de radiação. Figura retirada da referência (23). p. 24
- 10 Esquema da estrutura de bandas de um fotodiodo de um único PQ. Um par elétron-buraco é formado quando uma radiação é incidida sobre o mesmo. Cada nível no PQ se acopla a um reservatório através de barreiras de tunelamento. Uma tensão fonte-dreno aplicada força os portadores a tunelarem para os contatos formando uma corrente de portadores no dispositivo. p. 25

11	Formação de dubletos em um sistema de dois níveis com forte acoplamento radiação-matéria. Figura retirada da referência (31).	p. 29
12	Sistema de dois níveis, desacoplado de reservatórios sob a incidência de uma radiação laser de energia $\hbar\omega$	p. 45
13	Sistema de um nível acoplado a um único reservatório, sem incidência de radiação.	p. 47
14	Ocupação eletrônica dos níveis no PQ como função do tempo, para o sistema desacoplado dos reservatórios, para diferentes frequências de laser. Em (a) a frequência do laser está em ressonância com o sistema, ou seja, $\omega = E_2 - E_1$; em (b) $\omega = 2 * (E_2 - E_1)$; (c) $\omega = (E_2 - E_1)/2$. Com $\hbar = 1.0$	p. 51
15	Ocupação eletrônica dos níveis como função do tempo, para o sistema desacoplado dos reservatórios, para diferentes intensidades de laser. (a) $\gamma = 0.0$ (sem interação) (b) $\gamma = 0.5$ (ocupações calculadas com a fórmula de Rabi estão demonstradas); (c) $\gamma = 1.5$; (d) $\gamma = 3.0$; (e) $\gamma = 5.0$ e (f) $\gamma = 7.0$	p. 52
16	Ocupação eletrônica em função do tempo, para um sistema de um nível acoplado a um reservatório, sem incidência de radiação. Em (a) varia-se a temperatura e em (b) a taxa de tunelamento (Γ).	p. 54
17	Esquema da densidade de estados (ocupados/desocupados) de um nível (representados pela lorentziana) e dos estados (ocupados/desocupados) do reservatório acoplado ao nível (representados pela função distribuição de Fermi). A superposição entre estes determinaria a ocupação do nível de acordo com $k_B T$, que cresce de (a) para (c). Azul representa estados preenchidos no nível; vermelho, estados com maior probabilidade de serem desocupados; preto, estados com maior probabilidade de ocupação.	p. 55
18	Esquema semelhante ao da figura (17) (página 55). Nesta ilustração, a temperatura é fixa. Γ_1 aumenta de (a) para (c). As áreas pretas indicam probabilidade de ocupação inicial do nível. As áreas claras indicam regiões sob influência da temperatura.	p. 56
19	Ocupação do nível 1 em função da diferença energética $E_F - E_1$, para três temperaturas diferentes (cores).	p. 58
20	Esquema semelhante ao da figura (17) (página 55). Neste caso, a temperatura está fixa. A energia do nível, E_1 , aumenta de (a) para (c).	p. 59

- 21 Configuração de níveis no PQ para o sistema completo. Definimos $\Delta_2 = E_2 - E_F$ (E_F é a energia de Fermi do reservatório da esquerda). Em (a), $\Delta_2 = 2.0$ e em (b) $\Delta_2 = 10.0$. A energia do nível 1 é mantida nos dois casos. p. 60
- 22 Ocupação eletrônica dos níveis como função do tempo, para o sistema completo, quando $\Delta_2 = 2.0$. As temperaturas diferentes são indicadas na legenda interna e as intensidades (γ) do laser são quatro: (a) 0.5; (b) 1.0; (c) 3.0; (d) 8.5. p. 61
- 23 Ocupação eletrônica dos níveis como função do tempo, para o sistema completo, quando $\Delta_2 = 10.0$. As temperaturas diferentes são indicadas na legenda interna e as intensidades (γ) do laser são quatro: (a) 0.5; (b) 1.0; (c) 3.0; (d) 8.5, tal qual na figura (22). p. 63
- 24 Curvas estacionárias como função de γ para: fotocorrente (azul), I_{in} (preto), I_{out} (vermelho) e ocupação do nível 2 (laranja). Os valores utilizados para $k_B T$ estão identificados pelos símbolos (legenda interna). Em (a) $\Delta_2 = 2.0$ e em (b) $\Delta_2 = 10.0$ p. 65
- 25 (Esquemas) Relação da corrente I_{in} com a temperatura do reservatório 2. O acoplamento da radiação com a matéria provoca o desdobramento do nível 2 em um dubleto (combinação de níveis em $E_2 \pm \gamma$). Na figura (a), $\gamma \approx \Delta_2$. Em (b) $\gamma > \Delta_2$. Nos dois esquemas $\Delta_2 = 2.0$ p. 66
- 26 (Esquema) Relação da corrente I_{in} com a temperatura do reservatório 2. Na figura, $\gamma \ll \Delta_2$ e $\Delta_2 = 10.0$ p. 66
- 27 Evolução temporal da (a) ocupação eletrônica dos níveis 1 e 2 e (b) fotocorrente. As temperaturas são indicadas pelas cores em (a) e (b). Aqui: $\Delta_2 = 2.0$ e $\gamma = 7.0$ p. 68
- 28 Fotocorrente em função do tempo (azul); I_{in} (preto); I_{out} (vermelho) e ocupação do nível 2 (n_2) (laranja). Parâmetros: $\Delta_2 = 2.0$, $\gamma = 7.0$ e $k_B T = 0.1$ p. 68
- 29 (a) Ocupação eletrônica dos níveis e (b) fotocorrente, em função do tempo, para três temperaturas diferentes (cores), com $\Delta_2 = 10.0$ e $\gamma = 7.0$ p. 70
- 30 Fotocorrente em função do tempo (azul); I_{in} (preto); I_{out} (vermelho) e ocupação do nível 2 (n_2) (laranja). Parâmetros: $\Delta_2 = 10.0$, $\gamma = 7.0$ e $k_B T = 2.0$ p. 70
- 31 Fotocorrente em função do tempo para diferentes energias do nível 2. No inset, é mostrada I_{in} como função do tempo, para cada valor de energia do nível 2. Parâmetros: $k_B T = 2.0$ e $\gamma = 5.0$ p. 71

- 32 Transformada de Fourier da fotocorrente para as configurações de níveis (a) $\Delta_2 = 2.0$ e, (b) $\Delta_2 = 10.0$, em função de três temperaturas diferentes (indicadas na legenda interna da figura). Em (a) e (b), $\gamma = 7.0$ p. 72

1 *Introdução*

O transporte elétrico em nanoestruturas tem despertado enorme atenção dos pesquisadores nos últimos anos. Por um lado, sistemas de baixa dimensionalidade, como os pontos quânticos (PQs), permitem o estudo de aspectos fundamentais da mecânica quântica (*e.g.*, coerência de estados) e de interações de muitos corpos como, por exemplo, a interação elétron-elétron (1), elétron-fônon (2) e radiação-matéria (3). Como todos os processos interagentes e coerentes repercutem diretamente nas propriedades de transporte, a corrente elétrica nesses sistemas constitui uma forma indireta de se observar e medir fenômenos físicos. Por outro lado, dispositivos nanoestruturados apresentam enorme potencial para aplicações tecnológicas em eletrônica e optoeletrônica, que vão desde diodos emissores de luz (LEDs) (4) até dispositivos para a computação quântica (5).

No que diz respeito à Física básica, PQs constituem um excelente sistema para se estudar seus aspectos fundamentais. Devido a grande facilidade com que se controlam as propriedades eletrônicas de um ponto quântico, suas dimensões e seu acoplamento com o ambiente, tornou-se possível estudar uma enorme variedade de novos efeitos físicos em diferentes regimes. Por exemplo: o acoplamento de um PQ a eletrodos metálicos leva ao aparecimento do Efeito Kondo, em regime de baixa temperatura (6). Além de efeitos relacionados como: *Underscreened* Kondo (7), Interferência Fano-Kondo (8) e Kondo de Dois Estágios (9). Uma vasta lista de novos efeitos envolvendo outros tipos de interação, tais como a interação elétron-fônon (2), o acoplamento spin-órbita (10), o emaranhamento quântico (11), etc., também só foram possíveis de se observar em função dessas nanoestruturas.

Pontos quânticos constituem um excelente sistema para implementação de portas lógicas usando *qubits* (bits quânticos) (12). O spin eletrônico em um PQ, por exemplo, forma naturalmente um qubit através de uma superposição de estados up e down (13). Por este motivo, tem-se observado na literatura crescente atenção pelo estudo da coerência quântica dos estados de spin. Atualmente, já é possível iniciar, controlar coerentemente e ler os spins eletrônicos de um único elétron ou de pares de elétrons confinados (14).

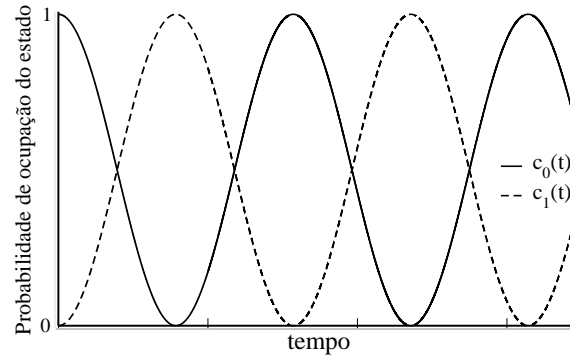


Figura 1: Evolução temporal das probabilidades de ocupação $|c_0|^2$ e $|c_1|^2$ dos estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$, respectivamente, em um sistema perturbado por um potencial oscilatório. O padrão observado é conhecido como ‘oscilações de Rabi’.

Sistemas excitônicos também constituem uma base para geração de qubits em PQs (15). Utilizando um laser em ressonância com a energia excitônica, geram-se pares elétron-buraco ligados (éxcitons) no interior do ponto quântico. Estados de zero $|0\rangle$ ou de um éxciton $|1\rangle$ podem produzir qubits da forma $(\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle)$. Através de técnicas tipo *pump-probe*, onde um primeiro pulso de laser excita o sistema e, um segundo pulso atrasado, mede o resultado dessa excitação, vêm-se gerando e controlando de forma coerente a dinâmica de portadores no PQ. A principal assinatura de coerência na evolução temporal do sistema são as **oscilações de Rabi**. Sabe-se que um sistema de dois níveis, quando perturbado por um campo externo sinusoidal, em ressonância com a energia de transição $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$, desenvolve oscilações nas probabilidades do sistema estar em $|0\rangle$ ou $|1\rangle$ de acordo com o tempo (16). A figura (1) ilustra a evolução temporal das probabilidades $|c_0|^2$ e $|c_1|^2$, correspondentes aos estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$, respectivamente.

Naturalmente, nenhum sistema físico é totalmente isolado do ambiente. A partir da interação do sistema com este surgem, então, mecanismos de decoerência que, eventualmente, suprimem as oscilações de Rabi. Como exemplo típico de um mecanismo causador de decoerência, temos o acoplamento do par elétron-buraco ao vácuo eletromagnético, o qual origina o processo de recombinação dos pares e, conseqüentemente, o amortecimento das oscilações de Rabi. Em sistemas de PQs acoplados a reservatórios de carga, outras fontes de decoerência também estão presentes. Mostrou-se (17) que o acoplamento de estados excitônicos ao contínuo de estados da *wetting layer* (camada molhada) dá origem ao decaimento das oscilações observadas na fotocorrente. Outras fontes de decoerência podem estar presentes, como o acoplamento, por tunelamento, dos elétrons e buracos aos terminais que conectam o ponto quântico a um circuito. Mais recentemente, oscilações de Rabi também foram reportadas em diodos poliméricos emissores de luz (18).

Foi originalmente demonstrado por Zrenner *et al.* (19) que as oscilações de Rabi em um

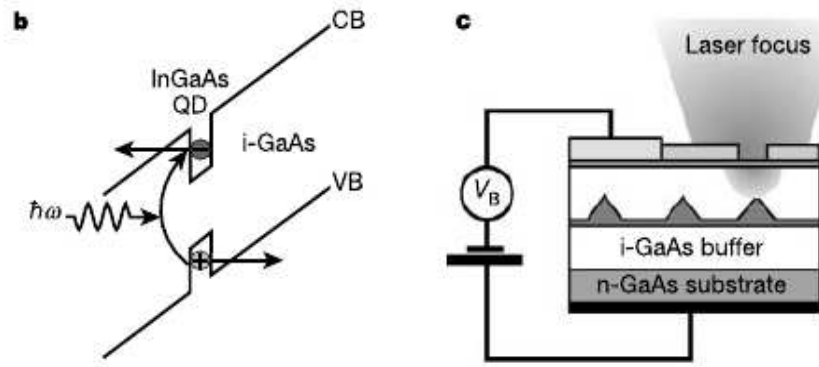


Figura 2: Perfil de potencial (b) da região intrínseca do dispositivo mostrado, esquematicamente, em (c): um fotodiodo de um único ponto quântico (PQ). Figura retirada da referência (19).

sistema de dois níveis de um PQ, excitado por um laser e acoplado a eletrodos (fotodiodo), também aparecem na fotocorrente. A figura (2) mostra um esquema da estrutura de bandas (b) e de uma vista lateral (c), também esquematizada, do sistema estudado por esses pesquisadores. Ele constitui-se de um fotodiodo de um único ponto quântico semiconductor. Um único PQ, selecionado opticamente através de uma ‘máscara de sombra’ depositada sobre o contato superior por técnicas litográficas, é excitado por um laser, gerando pares elétron-buraco. Devido à presença de uma tensão fonte-dreno (bias, V_B), após a geração do par os elétrons tunelam para os reservatórios adjacentes, dando origem a uma corrente elétrica (fotocorrente). Também se mostrou que essa fotocorrente pode eventualmente ser spin-polarizada devido a uma interação de troca via estados de biexciton (20). Este último resultado indica a potencialidade de fotodiodos de pontos quânticos para a eletrônica dependente de spin.

Arranjos de PQs, ou moléculas artificiais, também vêm sendo investigados visando aplicações em computação quântica. Por exemplo, mostrou-se a viabilidade de se controlar, através de oscilações de Rabi, o tunelamento eletrônico entre PQs adjacentes (21). Também se observou que o decaimento espontâneo e a geração de éxcitons diretos em moléculas de dois PQs leva a estados de éxciton indireto com tempos de decoerência mais longos (15).

Apesar da literatura envolvendo geração de oscilações coerentes em fotodiodos de PQs já ter aproximadamente dez anos (considerando o trabalho pioneiro de Zrenner *et al.*), não há estudos discutindo efeitos térmicos nas oscilações de Rabi e na fotocorrente. No presente trabalho iremos analisar, teoricamente, como a temperatura dos reservatórios de carga, nas proximidades do ponto quântico, pode afetar a coerência quântica do sistema e a fotocorrente. Nosso sistema será constituído de dois níveis (bandas de valência e condução) acoplados entre si através de uma radiação incidente. Esses níveis também se acoplam a reservatórios de carga, correspon-

dentess a camadas de semicondutor dopado tipo n ou a contatos metálicos. Esse acoplamento dá origem à decoerência no nosso modelo. Através do formalismo de funções de Green de não-equilíbrio (NEGF, na sigla em inglês) calcularemos a dinâmica da população de elétrons e de buracos no PQ na presença de um laser contínuo. Mostramos que as ocupações oscilam temporalmente, apresentando um decaimento devido ao tunelamento dos portadores para os reservatórios. Tanto a amplitude de oscilação quanto o valor inicial (antes da incidência do laser) das ocupações eletrônicas são fortemente afetados pela temperatura dos reservatórios. Do mesmo modo, a fotocorrente apresenta oscilações amortecidas. Duas componentes da corrente no sistema serão analisadas: (i) a corrente elétrica gerada, primordialmente, por elétrons foto-excitados que saem do ponto quântico e (ii) a corrente proveniente dos elétrons do reservatório, que têm probabilidade finita de tunelar para dentro do ponto quântico (*backwards current*). Essa última componente, em particular, depende fortemente da temperatura. Como essas componentes têm sentidos opostos, dependendo dos valores de temperatura, intensidade do laser e posição energética dos níveis, a fotocorrente pode ser maximizada ou suprimida. A fotocorrente apresenta, portanto, um comportamento não-linear como função da intensidade do laser.

Esta dissertação está dividida da seguinte forma: ainda neste capítulo introdutório, alguns conceitos necessários para uma compreensão mais ampla do assunto serão melhor apresentados. O sistema físico é descrito em sequência, no capítulo 2. Os conceitos formais da teoria de não-equilíbrio, bem como sua aplicação ao sistema, são apresentados no capítulo 3. Os resultados principais, apresentados no capítulo 4 estão divididos em três principais: populações eletrônicas em um sistema de dois níveis sob a incidência de radiação, sem acoplamento com os reservatórios; população eletrônica de um único nível acoplado a um reservatório, sem incidência de radiação. Por último, consideramos o sistema formado por um ponto quântico, acoplado a reservatórios, sob a incidência de um laser contínuo. O capítulo 5 contém nossas conclusões. Adicionalmente, mas não menos importantes, os apêndices A e B, também fazem parte de nossos resultados. Nestas seções finais, apresentamos o desenvolvimento de expressões analíticas para as funções de Green *Retardada* (A) e *Menor* (B), utilizando não um laser contínuo, mas um pulso de laser tipo delta. A tecnicidade e extensão deste desenvolvimento nos fez optar por apresentá-lo em apêndices ao invés do texto principal. Acreditamos na importância deste resultado pois ele será útil quando se desejar estudar outras formas de pulsos (como os gaussianos, mais utilizados experimentalmente), em que soluções analíticas não são possíveis (no plano real).

1.1 Semicondutores

A partir do trabalho de Bohr (22), o modelo atômico existente naquela época foi, de certa forma, revolucionado pela incorporação dos conceitos quânticos que, não havia muito, tinham sido lançados por Max Planck. No modelo de Bohr, o elétron só poderia ser encontrado em órbitas circulares fixas em torno do núcleo atômico. Ou seja, os elétrons dos átomos, nesse modelo, estariam distribuídos em níveis de energia discretos de modo que, entre esses níveis, existiriam energias não permitidas aos elétrons. Este modelo descreveu com precisão o espectro de energia do átomo de hidrogênio. Comumente, o intervalo entre duas energias permitidas ao elétron é chamados pelo termo, em inglês, *gap*.

Os modelos atômicos considerados atualmente são bem mais complexos, baseando-se no conceito de orbitais atômicos que, basicamente, são uma forma diferente de distribuição dos elétrons, que não em órbitas circulares. Entretanto, a ideia de discretização permanece: cada orbital possui uma energia diferente e se distancia dos demais energeticamente, formando um *gap*.

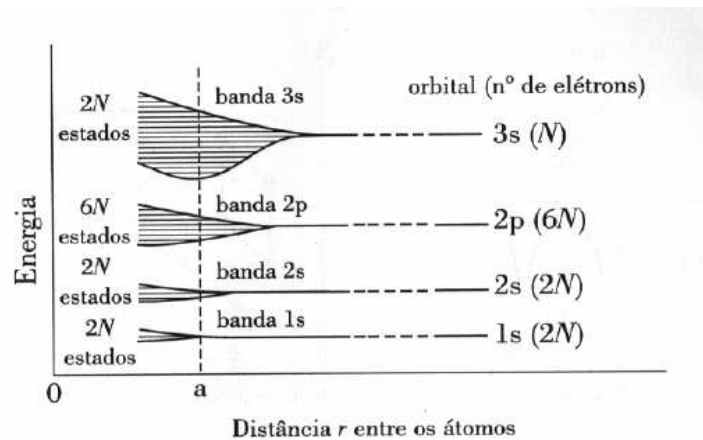


Figura 3: Formação da estrutura de bandas do sódio, como função da distância interatômica. Figura retirada da referência (23).

Quando se agregam para formar os materiais sólidos, os átomos têm seus níveis de energia distorcidos devido às interações decorrentes da aproximação. De maneira simplificada, os níveis atômicos se desdobram à medida que os átomos se aproximam, formando bandas de energia. A figura (3) mostra a relação entre as distâncias interatômicas e a formação da estrutura de bandas para o sódio (Na).

O preenchimento das bandas é o que determina a natureza isolante ou condutora de um material. O nível de Fermi E_F é um valor de energia que indica que, à temperatura 0K, todos os estados com energia inferior estão ocupados, indicando assim o preenchimento das bandas de

energia no chamado estado fundamental. A última banda preenchida em um material, no estado fundamental, é chamada banda de valência (em analogia à camada de valência nos átomos no estado fundamental, que também abriga os elétrons mais energéticos). Ela pode estar cheia ou não. A próxima banda desocupada acima do nível de Fermi é chamada banda de condução. Também tratamos como *gap* a diferença entre o topo de uma banda e a base da seguinte.

Os materiais condutores tem a sua última banda semipreenchida. O nível de Fermi, nesse caso, está posicionado no meio da banda. De maneira oposta, os materiais isolantes têm a banda de valência completamente preenchida. O nível de Fermi dos isolantes, no estado fundamental, se encontra acima da banda de valência e abaixo da de condução. Adicionalmente, o *gap* entre a banda de valência e a banda de condução é o que decidirá se um material será isolante ou semicondutor.

Ao aumentarmos a temperatura de um material, que é isolante a $T=0K$, seus elétrons irão adquirir uma energia $k_B T$. Se $k_B T \ll E_{gap}$ os elétrons não alcançarão a banda de condução e o sistema então será isolante. Nesse caso, possivelmente teríamos que aumentar a temperatura do material até ele se fundir para conseguirmos que conduza alguma corrente; e já não teríamos mais um sólido. Finalmente, podemos compartilhar uma definição simples, porém razoável, do que é um material semicondutor. Semicondutores são materiais isolantes no estado fundamental que, quando submetidos a temperaturas diferentes de $0K$, podem se tornar condutores, dado o pequeno *gap* entre as bandas de condução e valência, que torna possível o aparecimento de portadores de carga na banda de condução.

Os semicondutores podem ser divididos principalmente em: intrínsecos, formados de material puro e nos quais a condutividade varia, de forma predominante, com a temperatura; extrínsecos, que possuem impurezas (outros átomos ou moléculas) adicionadas, intencionalmente, a sua estrutura (cristalina ou não), por um processo conhecido como dopagem, o qual diminui, drasticamente, a dependência da condutividade com a temperatura. Existem vários métodos experimentais para se dopar um semicondutor, tais como a difusão em alta temperatura, que é o método mais comum, e a implantação iônica (23). Fato é que a dopagem faz com que o semicondutor tenha uma maior concentração de portadores de carga, o que certamente influencia a condutividade elétrica do material.

Os elementos químicos, de acordo com a distribuição dos elétrons na camada de valência, são classificados em famílias ou grupos na tabela periódica. Se pretendemos obter um semicondutor com excesso de elétrons, chamados de semicondutores *tipo n*, devemos inserir alguma concentração de um elemento dopante que, quando substituir alguns átomos na rede cristalina, um ou mais de seus elétrons não participem da ligação química, se tornando disponíveis para

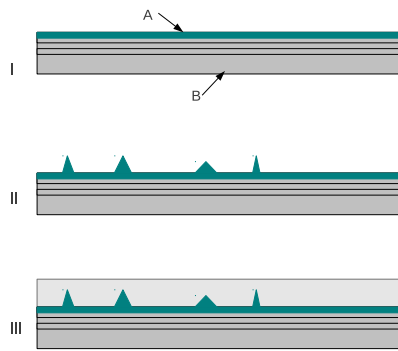


Figura 4: Formação de pontos quânticos auto-organizados (*self-assembled*) pelo modo de Stranski-Krastanow.

a condução de carga. Se quisermos que um material como o silício, do grupo IV (4 elétrons na valência), tenha excesso de elétrons, devemos dopá-lo com elementos do grupo V (cinco elétrons na valência). Para obter um semiconductor *tipo p*, que apresente escassez de elétrons, deve-se dopar o semiconductor com elementos que, quando inseridos no material por determinado processo, ‘roubem’ elétrons da rede para completar as ligações químicas necessárias à estabilidade do material; desta forma, são criadas vacâncias na rede, chamadas de *buracos* e, por possuírem carga elétrica positiva, também formam uma corrente. Se doparmos materiais do grupo IV (Si, Ge) com materiais do grupo III, teremos semicondutores tipo p. As impurezas que doam elétrons livres à rede e as que os retiram são chamadas, respectivamente, doadoras e aceitadoras.

A implantação de impurezas faz com que surjam níveis de energia discretos (relacionados à impureza) entre o gap do semiconductor. Para impurezas doadoras este nível (ou níveis) aparecerá mais próximo à energia mínima da banda de condução; para as aceitadoras em geral ele surge próximo ao topo da banda de valência. Estes níveis discretos vão provocar um deslocamento do nível de Fermi para próximo de cada banda, conforme o tipo de impureza.

1.1.1 Pontos Quânticos

Pontos quânticos são heteroestruturas semicondutoras de baixa dimensionalidade (zero, no caso ideal) que conseguem confinar os elétrons nas três dimensões espaciais. Esse confinamento espacial faz com que os elétrons no ponto quântico sejam distribuídos em níveis de energia discretos, semelhantemente aos dos átomos (embora os PQs sejam compostos por uma grande quantidade de átomos). Por este motivo os PQs também são chamados de átomos artificiais.

Existem diversas formas de se produzir um ponto quântico. Por exemplo: através de técnicas litográficas, pode-se depositar eletrodos metálicos sobre uma superfície semicondutora sob

a qual reside um gás de elétrons bidimensional. Ao se aplicar uma tensão negativa nestes contatos, o gás de elétrons se depleta, deixando uma região vazia de portadores que corresponde ao ponto quântico. O tamanho típico de um PQ varia de alguns nanômetros até centenas de nanômetros. O seu tamanho, formato e interações podem ser controlados através de tensões elétricas aplicadas. Os PQs podem ser crescidos ou sintetizados de forma auto-organizada. Um dos modos de crescimento de pontos quânticos mais conhecidos é o Stranski-Krastanow (24).

A figura (4) ilustra de maneira esquemática a formação de pontos quânticos auto-organizados. Uma camada semicondutora é crescida sobre outra de parâmetro de rede ligeiramente diferente (I) - por exemplo, InAs sobre GaAs. A medida que a camada de InAs é crescida, surge uma tensão na rede cristalina desse material, devido ao descasamento dos parâmetros de rede. Eventualmente, quando uma certa espessura crítica é atingida, a camada de InAs relaxa, dando origem a ilhas nanoscópicas (PQs) (II). Para fins de estabilidade do sistema e aplicações em dispositivos por fim, cresce-se uma segunda camada semicondutora sobre os pontos quânticos, a chamada *capping layer* (III). Os pontos quânticos também podem ser crescidos em meios não sólidos, tais quais os colóides (24).

Conforme dito anteriormente, os semicondutores apresentam *gaps* entre suas bandas de energia. A figura (5) (Ref.: (25)) ilustra os *gaps* de energia de diferentes semicondutores e seus respectivos alinhamentos uns com os outros. Observando esta figura é possível relacioná-la, de modo particular, à formação da heteroestrutura GaAs-InAs(PQ)-GaAs, cujo perfil de potencial está ilustrado na figura (6).

Esse perfil de potencial leva ao confinamento eletrônico nas três direções espaciais, dando origem a níveis discretos de energia. No presente estudo iremos considerar apenas um nível em cada banda no interior do ponto quântico.

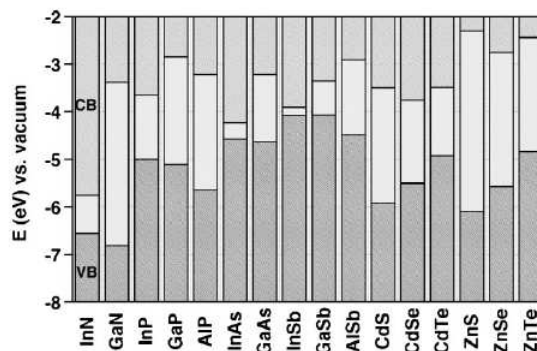


Figura 5: Gaps de energia de alguns semicondutores III-V e II-VI (VB = banda de valência e CB = banda de condução). Figura retirada da referência (25).

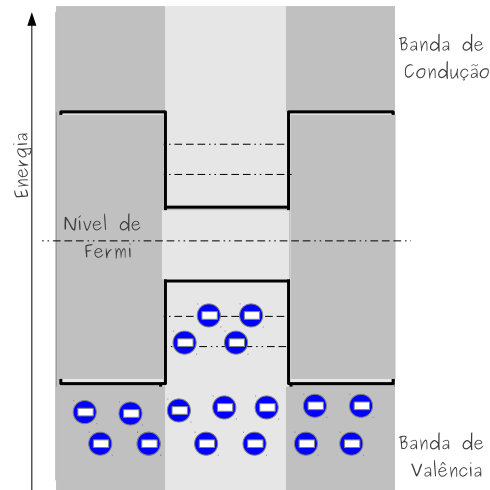


Figura 6: Potencial de confinamento vertical de um PQ semiconductor auto-organizado.

Os dispositivos optoeletrônicos semicondutores estão bastante presentes em nossa vida diária. Como exemplo, temos os diodos emissores de luz (LED), utilizados em displays, por exemplo, e os fotodiodos, que convertem energia luminosa em corrente elétrica. Esses dispositivos são baseados principalmente na criação ou recombinação de pares elétron-buraco.

A geração de pares elétron-buraco se faz através da promoção de um elétron da banda de valência para a banda de condução do semiconductor, criando, dessa forma, um buraco na banda de valência. Em geral, esse processo é feito através da incidência de uma radiação eletromagnética com energia igual ou maior do que o *gap* do semiconductor. Fótons com energia suficiente são absorvidos provocando a transição interbandas. Este processo denomina-se absorção. O processo reverso é chamado de recombinação. Nesse caso, elétrons e buracos se aniquilam mutuamente de maneira radiativa ou não-radiativa. No caso não-radiativo a energia liberada é transferida para fônons e, conseqüentemente, dissipada na forma de calor. No caso radiativo, tem-se a emissão de fótons com energia igual ao *gap* do material, dando origem a um processo de luminescência.

No sistema considerado neste trabalho, a transição óptica se dará entre os estados das bandas de valência e condução do ponto quântico. A figura (7) ilustra a incidência de um fóton com energia $\hbar\nu$ em ressonância com a diferença de energia dos níveis, dando origem a um par elétron-buraco no PQ. Aqui, $\hbar = h/2\pi$ onde h é a constante de Planck e ν é a frequência do fóton.

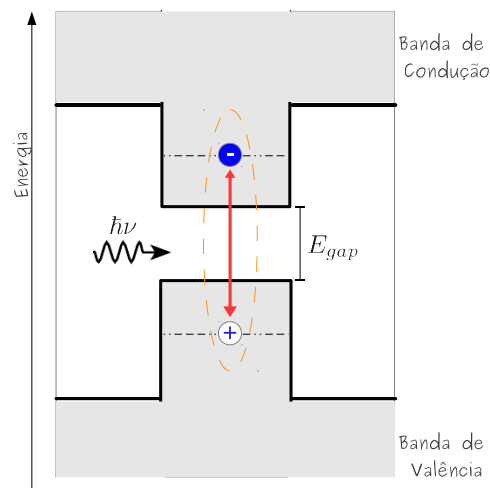


Figura 7: Formação de éxcitons em um PQ semiconductor através da incidência de uma radiação ressonante com a transição da banda de valência para a banda de condução.

1.1.2 Fotodiodos

Dependendo da técnica de dopagem utilizada é possível criar um material semiconductor que apresente dopagem **tipo n** e **tipo p** na mesma amostra. Essa capacidade técnica permite que uma camada fina de transição seja formada entre cada uma das regiões dopadas. Essa camada é chamada **junção p-n**, e a partir dela são construídos diversos tipos de dispositivos, destacadamente os diodos (23).

Diodo é um componente de circuitos eletrônicos que apenas permite a passagem de corrente elétrica em um sentido. O funcionamento do diodo está baseado na existência de uma barreira de potencial que surge na junção entre as regiões dopadas.

Como vimos na seção 1.1, nos semicondutores tipo n o nível de Fermi está próximo à banda de condução e nos tipo p, próximo à banda de valência. Entretanto, é esperado que o nível de Fermi seja o mesmo nos dois lados da junção formada em um mesmo material. Os portadores em excesso de cada lado se difundem de um lado para o outro no intuito de equilibrar esse excesso. No entanto, essa difusão produz camadas carregadas na região de transição que acabam formando um campo elétrico de n para p. Este campo se opõe à difusão de ambas as cargas até que as correntes se anulem e o sistema entre em equilíbrio. Essa região em que as cargas não estão compensadas é mais conhecida por camada de depleção. O campo criado nesta região corresponde a uma diferença de potencial entre os dois lados. Isso forma o que conhecemos por barreira de potencial, já que as cargas não podem ser transportadas nos dois sentidos. A figura (8) esquematiza a formação da barreira de potencial em uma junção p-n de semicondutores.

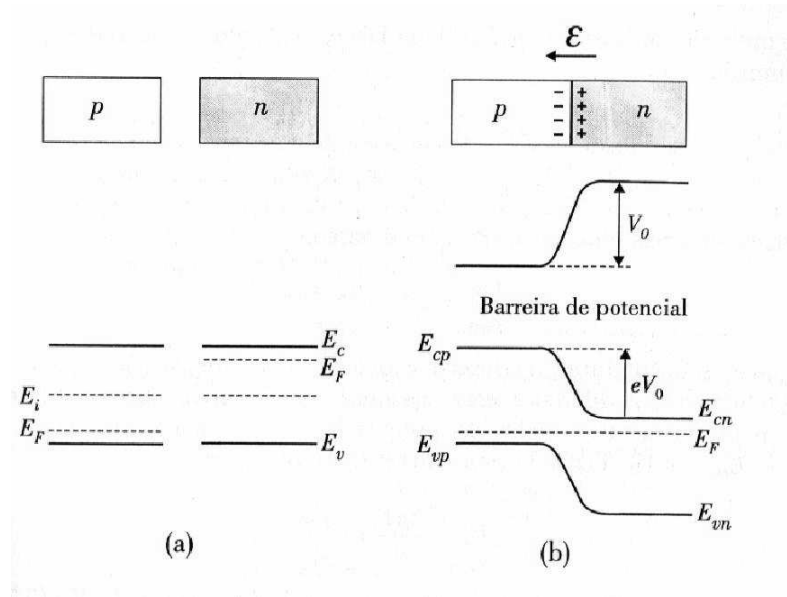


Figura 8: Demonstração esquemática do processo de formação da barreira de potencial em uma homojunção semicondutora p-n. Figura retirada da referência (23).

As junções formadas por um mesmo material são **homojunções**. Quando a junção é formada por dois materiais diferentes temos uma **heterojunção**. As heterojunções podem ser formadas por semicondutores diferentes ou por um metal e um semicondutor.

A junção metal-semicondutor resulta em uma barreira de potencial conhecida por barreira Schottky. Quando colocamos estes dois materiais em contato, ocorre o mesmo deslocamento de cargas que na homojunção, no entanto, não há como os buracos se deslocarem pelo metal. O acúmulo de carga nos dois lados da junção dá origem à barreira Schottky, que é um tanto quanto diferente da barreira na junção p-n.

Utilizando contatos metal-semicondutor, portanto, podemos construir os diodos de barreira Schottky. Os diodos Schottky não suportam correntes elevadas e por este motivo sua maior aplicação é em circuitos de detecção, que exigem respostas em alta frequência e alta sensibilidade (chaveamento rápido).

Os **fotodiodos** são estruturas detetoras de luz, que convertem a mesma em corrente elétrica. Em fotodiodos de junção p-n, isso se dá através da absorção de fótons na região próxima a camada de depleção, que agora está exposta para permitir a passagem de luz, tal qual mostrado na figura (9). Com a absorção, um par elétron-buraco é formado e cada portador é acelerado em um sentido diferente pelo campo elétrico da junção.

Existem dois modos de operação dos fotodiodos: fotovoltaico e fotocondutivo. No fotocondutivo uma tensão externa é aplicada e, nesse caso, quando o dispositivo é iluminado, uma

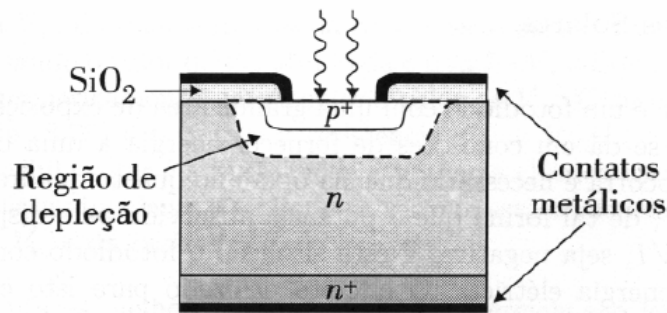


Figura 9: Vista lateral esquematizada de uma estrutura comum de um fotodiodo de junção p-n. O contato metálico superior possui aberturas que permitem a entrada de radiação. Figura retirada da referência (23).

corrente flui no sentido oposto à corrente aplicada. Na operação fotovoltaica, o circuito está aberto e a iluminação da junção faz surgir a tensão que gerará a corrente elétrica.

Pontos quânticos e Fotodiodos

Após um certo tempo da fotoexcitação ilustrada na figura (7), o par elétron-buraco deverá recombinar radiativamente, produzindo um espectro fotoluminescente. Alternativamente a isso, poderia-se gerar uma fotocorrente no sistema. Para isso acoplam-se dois reservatórios de carga a esquerda e a direita do sistema utilizando, por exemplo, um contato Schottky. Na presença de uma tensão fonte-dreno surge uma deformação do perfil de potencial, conforme ilustrado na figura (2). Com isso os elétrons na banda de condução e os buracos na banda de valência do ponto quântico podem tunelar para os reservatórios de carga, dando origem, assim, a uma corrente fotoinduzida no sistema.

Um aplicação importante dos fotodiodos semicondutores é a fabricação de células solares (23). Estas são reconhecidamente chamadas de células fotovoltaicas por se tratarem de fotodiodos operando no modo fotovoltaico. Na referência (26), os autores discutem, dentre várias outras aplicações possíveis, a utilização de PQs na fabricação de células solares híbridas inorgânicas-orgânicas.

2 Sistema Físico - Modelo

2.1 Ponto quântico semiconductor em um fotodiodo

Neste trabalho estudamos um sistema formado por PQ semiconductor inserido na estrutura de um fotodiodo, tal qual o experimento de Zrenner *et al.* (19). Um esquema do dispositivo construído por estes pesquisadores pode ser visto na figura (2) (c). No experimento, uma amostra contendo PQs semicondutores auto-organizados de InGaAs, crescidos sobre camadas de GaAs, é acoplada a contatos metálicos, formando essencialmente um diodo Schottky (ver seção 1.1.2). Um esquema possível da estrutura de bandas deste fotodiodo de um único ponto quântico é mostrado na (figura 10).

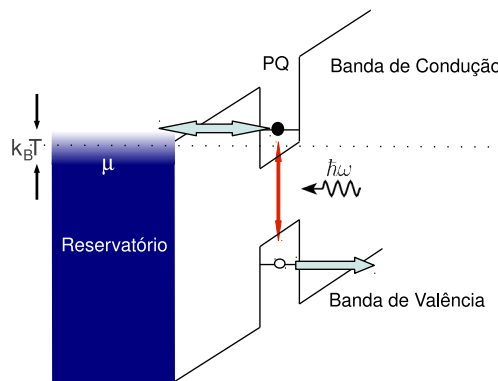


Figura 10: Esquema da estrutura de bandas de um fotodiodo de um único PQ. Um par elétron-buraco é formado quando uma radiação é incidida sobre o mesmo. Cada nível no PQ se acopla a um reservatório através de barreiras de tunelamento. Uma tensão fonte-dreno aplicada força os portadores a tunelarem para os contatos formando uma corrente de portadores no dispositivo.

A seleção de um único PQ para o fotodiodo é feita através de máscaras de abertura nanométrica (*shadow masks*), construídas através de sofisticadas técnicas litográficas, que deixam apenas um único PQ exposto à incidência de radiação. Nesse tipo de experimento, foram utilizados pulsos de laser para criar um par elétron-buraco no ponto quântico. Uma tensão fonte-dreno

(bias) aplicada cria a diferença de potencial necessária para que os portadores possam tunelar do PQ para os contatos, através das barreiras de potencial (neste caso, as camadas de GaAs), e assim formar uma corrente de portadores no dispositivo.

Pela figura, notamos ainda que o elétron no nível localizado na banda de condução do PQ deve tunelar para o contato da esquerda devido ao estreitamento da barreira de tunelamento nesse sentido. Devido à oposição das cargas, o buraco no nível localizado na banda de valência deve tunelar para fora do PQ em sentido contrário ao elétron, portanto, para o contato da direita. Em nosso trabalho, os contatos são, na realidade, reservatórios de elétrons. Isso quer dizer que quando um elétron entra ou sai do contato o potencial químico do mesmo se mantém, devido à presença da tensão de fonte-dreno que funciona como uma bateria alimentando esse sistema indefinidamente. Por este motivo, precisamente, temos um problema de não-equilíbrio.

É importante dizer que, neste estudo, ainda não consideraremos a interação Coulombiana no sistema. Além disso, como veremos adiante, a interação da radiação com a matéria será tratada em um modelo semi-clássico (sem quantização da luz).

2.2 Hamiltoniano do sistema

Tomando a discussão acima sobre o sistema, podemos descrevê-lo, matematicamente, pelo seu operador hamiltoniano total H , no formalismo de segunda quantização (seção 3.1) que é composto por três termos principais:

$$H = H_d + H_t + H_l \quad (2.1)$$

H_d é o hamiltoniano que contém os termos correspondentes ao ponto quântico ('d' do inglês *dot*):

$$H_d = \varepsilon_1 d_1^\dagger d_1 + \varepsilon_2 d_2^\dagger d_2 \quad (2.2)$$

aqui, os níveis 1 (na banda de valência) e 2 (na banda de condução) tem energias ε_1 e ε_2 , respectivamente. O operador d_i^\dagger (d_i) cria (aniquila) um elétron no nível i ($i = 1, 2$) do ponto quântico. Para efeitos de cálculo utilizamos a notação de que um buraco desocupando a banda de valência é equivalente a um elétron ocupando-a. Os dois termos presentes nesse hamiltoniano são associados à energia cinética das partículas nos níveis. Também fica claro que não é considerada nenhuma interação entre as partículas nos dois níveis.

Em nosso modelo os contatos são essencialmente tratados como reservatórios (27). O tu-

nelamento das partículas para os reservatórios, portanto, está descrito em H_I :

$$H_I = \sum_{k_1} (t_1 d_{k_1}^\dagger d_1 + H.c.) + \sum_{k_2} (t_2 d_{k_2}^\dagger d_2 + H.c.) + \sum_{k_1} \varepsilon_{k_1} d_{k_1}^\dagger d_{k_1} + \sum_{k_2} \varepsilon_{k_2} d_{k_2}^\dagger d_{k_2} \quad (2.3)$$

Os índices $d_{k_1}^\dagger$ (d_{k_1}) e $d_{k_2}^\dagger$ (d_{k_2}) criam (aniquilam) elétrons nos reservatórios 1 (direita, que se acopla ao nível 1, bv) e 2 (esquerda, que se acopla ao nível 2, bc), respectivamente. t_1 e t_2 são as constantes de acoplamento entre os reservatórios e os respectivos níveis. $H.c.$ são os hermitianos conjugados desses termos. As duas últimas somas são os termos cinéticos relacionados aos elétrons de cada reservatório, não-interagentes. Essencialmente, através deste hamiltoniano estamos tratando o sistema tal qual um diodo (neste caso, um diodo foto-ativado, ou fotodiodo): os elétrons do reservatório 1 só podem tunelar para o nível 1 no PQ. A mesma condição é observada nas expressões para o nível 2 e o reservatório 2.

H_I modela o acoplamento dos níveis através da radiação incidente (é equivalente à descrição de um processo de absorção e emissão da luz):

$$H_I = E^*(t)(\mu_{21} d_2^\dagger d_1) + E(t)(\mu_{12} d_1^\dagger d_2) \quad (2.4)$$

μ_{ij} é o elemento de matriz do dipolo elétrico. $E(t)$ é uma função clássica que descreve a radiação. Na próxima seção apresentamos a forma como essa radiação foi descrita em nossos cálculos.

2.3 Laser

Uma onda eletromagnética que interage com um material semicondutor em sua forma *bulk* provoca a transição dos elétrons da banda de valência para a banda de condução. Também na nanoestrutura de um PQ ocorre este efeito, embora se tenha certo controle sobre a energia dos níveis onde ocorrem as transições - através de técnicas experimentais de fabricação e controle destas estruturas.

A radiação em nosso modelo é tratada de forma clássica (sem quantização). Sabemos que a onda eletromagnética possui uma componente elétrica e outra magnética. No entanto, a interação do campo elétrico com o material é muito mais expressiva que a interação do campo magnético, a qual, portanto, desprezaremos.

Nos trabalhos experimentais a radiação incidida sobre o sistema está comumente na forma de laser (do inglês: *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*). A radiação laser é

escolhida pois as intensidades e frequências utilizadas podem ser controladas facilmente. Além disso, através deste tipo de radiação, a intensidade produzida pode chegar a valores bem altos. Utilizando pulsos de laser ultra-rápidos, processos eletrônicos podem ser monitorados em escalas de tempo comparáveis aos tempos de interação típicos entre excitações eletrônicas (28). Também é possível investigar a dinâmica de um sistema de muitas partículas coerentemente excitado em escalas inferiores aos tempos de decoerência típicos. Uma função de onda é dita coerente se podemos dizer sua amplitude e fase, em todos os outros pontos do espaço e do tempo, conhecendo essas variáveis em um dado ponto (29).

Para trabalhar nosso modelo físico, inicialmente, utilizamos um laser contínuo, mais conhecido pela abreviação “CW” (do inglês, *continuous wave*), ao invés de um pulso de laser.

Descrevemos o campo eletromagnético da radiação na forma de ondas planas monocromáticas:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 \cos(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) \quad (2.5)$$

Onde \vec{k} é o vetor de onda associado à onda luminosa, \vec{r} é o vetor associado ao deslocamento espacial da onda e ω é sua frequência.

Como discutido na ref. (30), nos PQs a amplitude de deslocamento do elétron (\vec{r}) é da ordem de algumas dezenas de nanômetros. Simultaneamente, essa amplitude é consideravelmente menor que o comprimento de onda associado à transição óptica entre os dois níveis no PQ. Isso faz com que $\vec{k} \cdot \vec{r} \ll 1$ e, portanto, utilizamos a aproximação de dipolo onde $e^{\pm \vec{k} \cdot \vec{r}} \approx 1$. Assim, ficamos com:

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_0 \cos(\omega t) \quad (2.6)$$

Neste ponto, outra aproximação pode ser feita: pela *Rotating Wave Approximation* (aproximação de onda girante) os termos ditos contra-girantes (envolvendo exponenciais que contém a soma $\pm(\omega + \omega_{21})$), que surgem no hamiltoniano de interação com o campo eletromagnético H_I , podem ser desprezados pois, por oscilarem muito rapidamente, não contribuem de maneira relevante com as interações ocorridas no sistema. Após alguns passos matemáticos (ver, por exemplo, ref. (30)) teremos:

$$H_I = \gamma e^{-i\omega t} (d_2^\dagger d_1) + \gamma e^{+i\omega t} (d_1^\dagger d_2) \quad (2.7)$$

Onde $\gamma \propto \frac{E_0 \mu}{2}$ e, para nós, portanto, refletirá a intensidade do laser aplicado. O que caracteriza a radiação, neste caso, como contínua, é o fato de que γ não depende do tempo. Trabalhando a dependência temporal de γ podemos modelar os *pulsos de laser*, que serão alvo de investigação futura.

Por último, devemos incluir uma rápida discussão sobre o efeito da intensidade do laser aplicado ($\propto \gamma$) sobre os níveis do PQ. Nas referências (31) e (32) encontramos discussões sobre este assunto. Em ambas, os autores discutem a formação de **dubletos**. Em um sistema com forte acoplamento da radiação com a matéria, estes dubletos representam o desdobramento dos níveis em uma combinação de outros dois distanciados dos níveis principais, simetricamente, por um valor $\propto \pm \gamma$. Lembrando que isto ocorre quando o laser é intenso e sua frequência está, aproximadamente, em ressonância com a frequência associada à transição entre os níveis 1 e 2 (ω_{21}).

Um gráfico deste efeito é mostrado na figura (11) (Ref.: (31)).

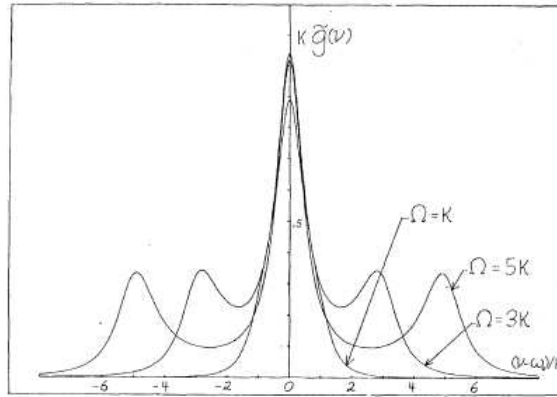


Figura 11: Formação de dubletos em um sistema de dois níveis com forte acoplamento radiação-matéria. Figura retirada da referência (31).

3 *Formalismo*

Iniciaremos este capítulo revisando alguns conceitos matemáticos fundamentais de mecânica quântica, indispensáveis para introduzirmos, logo em seguida, as funções de Green de não-equilíbrio. Com esta técnica matemática, escrevemos uma expressão geral para a corrente elétrica. Mostraremos como são obtidas as funções de Green $G_{22}^r(tt')$ e $G_{22}^<(tt')$, necessárias para calcular a corrente na presença de um laser contínuo e reservatórios. Ainda neste capítulo, encontraremos as funções de Green para dois casos particulares de nosso sistema (*toy models*): (i) um sistema de dois níveis com incidência de laser, mas sem acoplamento com os reservatórios; (ii) um sistema de um único nível acoplado a um reservatório, sem incidência de laser. Por fim, discutiremos a obtenção de expressões analíticas para as funções de Green supracitadas, no caso de um laser de pulso delta aplicado sobre o PQ.

3.1 Fundamentos matemáticos

A descrição mais usual da mecânica quântica assume que os vetores de estado evoluem no tempo e que os operadores são independentes do tempo. Esta forma usual é conhecida como representação (*picture*, em inglês) de Schrödinger. Nesta representação, a equação de Schrödinger é escrita na forma ‘original’:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = H |\Psi(t)\rangle \quad (3.1)$$

H é o operador hamiltoniano do sistema associado à energia total, que não apresenta uma dependência temporal explícita (33). Através desta equação, pode ser determinada a evolução temporal do vetor de estado $|\Psi(t)\rangle$.

Devido ao fato de que a equação de Schrödinger é uma diferencial de primeira ordem, a condição de contorno oferecida pelo estado inicial em t_0 determina o comportamento subsequente do sistema, de modo que podemos escrever, sendo H um operador hermitiano ($H = H^\dagger$):

$$|\Psi(t)\rangle = e^{-iHt/\hbar}|\Psi_0\rangle \quad (3.2)$$

A representação de maior interesse em nosso trabalho é a de Heisenberg, onde os operadores, correspondentes aos observáveis físicos, evoluem no tempo, mas os vetores de estado não. A dependência temporal de um operador nesta representação é obtida através de uma transformação unitária:

$$A_H(t) \equiv e^{+iHt/\hbar} A e^{-iHt/\hbar} \quad (3.3)$$

Onde A está na representação de Schrödinger. Derivando a expressão acima e usando determinadas relações entre os operadores (demonstração pode ser encontrada em (16)) chegaremos à equação da evolução temporal dos operadores (conhecida por Equação de Heisenberg):

$$\dot{A}_H(t) = i/\hbar [H, A(t)] \quad (3.4)$$

Outra representação possível na Mecânica Quântica é a de Interação. Nesta representação, tanto os vetores de estado como os operadores apresentam dependência temporal. A ideia é separar o hamiltoniano H em duas partes: uma contendo as partes não-perturbativas, H_0 , com solução conhecida e outra contendo todas as diferentes perturbações que podem ocorrer no sistema, $V(t)$. Vetores de estado e operadores usualmente são denotados na representação de interação por um acento circunflexo. Assim:

$$|\hat{\Psi}(t)\rangle \equiv e^{-iH_0t/\hbar} |\Psi(t)\rangle, \quad (3.5)$$

onde $|\Psi(t)\rangle$ é o vetor de estado na representação de Schrödinger. Um operador A , pode ser escrito nesta representação através de uma transformação unitária que dependerá apenas da parte não-perturbativa H_0 :

$$\hat{A}(t) = e^{+iH_0t/\hbar} A e^{-iH_0t/\hbar} \quad (3.6)$$

Frequentemente, na Mecânica Quântica, fazemos uso da linguagem de segunda quantização para trabalhar nas representações de Heisenberg e de Interação. A quantização do movimento das partículas, através das funções de onda, é feita utilizando uma linguagem que chamamos primeira quantização. É utilizada a notação de bras $\langle i|$ e kets $|i\rangle$ para os vetores de estado e os

operadores que atuam sobre eles. Com a teoria quântica de campos e a eletrodinâmica quântica, o campo eletromagnético e as partículas passaram a ser descritos por campos quantizados. A linguagem matemática utilizada na teoria de campos é chamada segunda quantização (34).

A física de muitos corpos e as funções de Green, de maneira mais especificamente, estão formuladas sobre a linguagem da segunda quantização. As partículas nesse caso estão representadas pelos operadores de campo:

$$\psi(x) = \sum_k u_k(x) c_k \quad (3.7)$$

$$\psi^\dagger(x) = \sum_k u_k^*(x) c_k^\dagger \quad (3.8)$$

O operador c_k aniquila uma partícula no estado k e c_k^\dagger cria uma partícula no estado k .

Os operadores para férmions e bósons obedecem relações de anticomutação (+) e comutação (-), respectivamente, essenciais para o desenvolvimento do formalismo:

$$[c_k, c_{k'}^\dagger]_\pm = \delta_{k,k'} \quad (3.9)$$

$$[c_k, c_{k'}]_\pm = [c_k^\dagger, c_{k'}^\dagger]_\pm = 0 \quad (3.10)$$

3.2 Funções de Green

Na física clássica, as funções de Green são comumente encontradas no eletromagnetismo clássico, nos auxiliando a solucionar a equação de Poisson. Isto é, funções de Green é, essencialmente, um método matemático que nos auxilia a resolver equações diferenciais ordinárias e parciais.

Na Mecânica Quântica, elas são particularmente úteis na obtenção de soluções para os problemas de teoria de perturbação. Para sistemas de muitos corpos, seja em expansões de equilíbrio ou não-equilíbrio da teoria de perturbação, é uma técnica extremamente poderosa para obtermos determinadas propriedades destes sistemas. Note que, pela técnica de Funções de Green, não obtemos a função de onda do sistema, mas apenas algumas propriedades relacionadas à solução da equação de Schrödinger, que é uma equação de diferencial parcial.

A principal diferença entre os tratamentos de ‘equilíbrio’ ou ‘não-equilíbrio’ de um sistema é que, na situação de equilíbrio, podemos assumir que o sistema retorna ao seu estado funda-

mental, ou a um estado de equilíbrio termodinâmico a temperaturas finitas) quando $t \rightarrow -\infty$. Essa hipótese não é válida nas expansões de não-equilíbrio, onde processos irreversíveis quebram a simetria entre $t = -\infty$ e $t = +\infty$ (35).

Tratando problemas de equilíbrio podemos definir a função de Green com ordenamento temporal ou causal (consideraremos apenas a coordenada temporal da função por uma questão objetividade: poderíamos certamente tratar a coordenada espacial porém, como não a aplicaremos em nosso problema, ela não se faz necessária):

$$G(tt') = -i\langle T e(t) e^\dagger(t') \rangle \quad (3.11)$$

$e(t)$ são operadores dependentes do tempo (isto é, na representação de Heisenberg) e sua evolução é dada pela equação (3.4). T é o operador de ordenamento temporal. Sua função é mover o operador que possui o menor argumento de tempo para a direita. Este operador é definido por:

$$Ta(t)b(t') = \theta(t-t')a(t)b(t') \mp \theta(t'-t)b(t')a(t) \quad (3.12)$$

O sinal superior é aplicado para férmions e o inferior para bósons. $\theta(t-t')$ é a função Heaviside, definida por:

$$\theta(t-t') = \begin{cases} 0, & t' > t \\ 1, & t' < t \end{cases} \quad (3.13)$$

Existem outras formas das funções de Green:

$$G^r(tt') = -i\theta(t-t')\langle \{e(t), e^\dagger(t')\} \rangle \quad (3.14)$$

$$G^a(tt') = +i\theta(t'-t)\langle \{e(t), e^\dagger(t')\} \rangle \quad (3.15)$$

$$G^<(tt') = +i\langle e^\dagger(t')e(t) \rangle \quad (3.16)$$

$$G^>(tt') = -i\langle e(t)e^\dagger(t') \rangle \quad (3.17)$$

A expressão (3.14) é da função de Green *Retardada*, que só é diferente de zero quando

$t \geq t'$. A função de Green *Avançada* (expressão (3.15)) é o complexo conjugado da função de Green retardada, com os índices temporais trocados. Isto é: só é finita para tempos $t \leq t'$. As funções de Green *Menor* (ou ‘menor que’) e *Maior* (ou ‘maior que’) apresentadas nas equações (3.16) e (3.17), respectivamente, têm a ordem dos operadores trocada.

Estas quatro funções obedecem a seguinte relação:

$$G^r - G^a = G^> - G^< \quad (3.18)$$

Em equilíbrio, todas as funções [(3.14)-(3.17)] podem ser escritas em termos da função ordenada no contorno (equação (3.11)), de modo que, a princípio, elas não seriam necessárias. No entanto, em situações de não-equilíbrio, a diferença (3.18) se acentua e todas as funções se tornam muito importantes.

O formalismo de funções de Green de não-equilíbrio também é conhecido como formalismo de Keldysh. Não obtem-se a função de onda mas, esta técnica permite calcular propriedades relacionadas a um sistema interagente de muitos corpos, como por exemplo, a população eletrônica de estados e a própria corrente elétrica. A principal forma de se obter a expressão das funções de Green dependentes do tempo é pela *técnica da equação de movimento*. Essa consiste em se gerar um conjunto de equações diferenciais acopladas. Para tanto, encontramos as equações de movimento das funções de Green envolvidas no processo derivando-as uma série de vezes. Dependendo do sistema estudado, o conjunto de equações se fecha e o problema apresentará alguma solução sem que seja necessária uma aproximação. Opostamente, o conjunto pode não se fechar, dadas as correlações consideradas, e será necessário tomar algum argumento físico para truncar o processo de geração das equações diferenciais (34).

As funções de Green de não-equilíbrio são ordenadas no contorno. Este contorno vai de um tempo passado, no qual o sistema estava em equilíbrio, até o tempo presente mais relevante para o problema e de volta para o tempo inicial no passado. Essa forma de escrever as funções de Green de não-equilíbrio as tornam formalmente iguais às funções de equilíbrio. Para obter as funções de Green associadas a observáveis físicos, *e.g.* G^r , $G^<$, utilizamos o procedimento chamado continuação analítica e podemos encontrar uma tabela com as regras de transformação, derivadas do teorema de Langreth, na ref. (36) ou mesmo na ref. (35).

Neste trabalho nosso sistema se fecha em um pequeno conjunto de equações acopladas.

3.3 Corrente elétrica

O principal objetivo de nosso trabalho é estudar o comportamento da corrente elétrica fotogerada no sistema (Fotocorrente). Desejamos então, obter uma expressão para a corrente elétrica entre o nível localizado na banda de condução do ponto quântico e o respectivo reservatório acoplado a este. Para isto, seguimos o desenvolvimento apresentado por Haug e Jauho na referência (35). Para simplificar a notação, vamos omitir os índices temporais dos operadores de criação e aniquilação de elétrons ($d_i^\dagger(t)$ ou $d_i(t)$) quando for possível. A corrente de portadores, em sua forma mais geral, é dada pela carga elétrica do portador vezes a taxa de variação do número de portadores no tempo. Essa variação no número de portadores é calculada através da equação de Heisenberg (3.4). O operador número de elétrons é definido por $N = \sum_{k'_2} d_{k'_2}^\dagger d_{k'_2}$, em que k'_2 é o índice de um portador na banda do reservatório. Calculamos o comutador de $[H, N]$ - apenas os termos de tunelamento do nível 2 em H (equação (2.1)) não comutam com N , e fazemos $\hbar = 1.0$. Sumarizando:

$$I(t) = -e\langle \dot{N} \rangle = \frac{-ei}{\hbar} \langle [H, N] \rangle \quad (3.19)$$

$$I(t) = e \left\{ \sum_{k_2} \left(t_2 i \langle d_{k_2}^\dagger d_2 \rangle - t_2^* i \langle d_2^\dagger d_{k_2} \rangle \right) \right\} \quad (3.20)$$

Na expressão acima, definimos: $G_{k_2,2}^<(tt') \equiv i \langle d_{k_2}^\dagger(t') d_2(t) \rangle$ e $G_{2,k_2}^<(tt') \equiv i \langle d_2^\dagger(t') d_{k_2}(t) \rangle$. Devido à propriedade $G_{k_2,2}^<(tt) = -[G_{2,k_2}^<(tt)]^*$, obtemos a seguinte expressão para a corrente elétrica:

$$I(t) = 2e\Re \left\{ \sum_{k_2} t_2 G_{2,k_2}^<(t,t) \right\} \quad (3.21)$$

Se a função de Green com ordenamento temporal é dada por (3.11), então a equação de movimento para $G_{2,k_2}(tt')$ será

$$i \frac{\partial}{\partial t'} G_{2,k_2}(tt') = \langle T d_2(t) d_{k_2}^\dagger(t') \rangle \quad (3.22)$$

Novamente utilizamos a equação de Heisenberg, agora para calcular a evolução temporal do operador $d_{k_2}^\dagger(t')$:

$$\begin{aligned}
d_{k_2}^\dagger(t') &= i[H, d_{k_2}^\dagger] = i \sum_{k_2} \left([t_2^* d_2^\dagger d_{k_2}, d_{k_2}^\dagger] + [\varepsilon_{k_2} d_{k_2}^\dagger d_{k_2}, d_{k_2}^\dagger] \right) \\
d_{k_2}^\dagger(t') &= i \sum_{k_2} \left\{ t_2^* (d_2^\dagger (\delta_{k_2 k_2'} - d_{k_2'}^\dagger d_{k_2}) - d_{k_2}^\dagger d_2^\dagger d_{k_2}) + \varepsilon_{k_2} (d_{k_2}^\dagger (\delta_{k_2 k_2'} - d_{k_2'}^\dagger d_{k_2}) - d_{k_2}^\dagger d_{k_2}^\dagger d_{k_2}) \right\} \\
d_{k_2}^\dagger(t') &= i \{ t_2^* d_2^\dagger + \varepsilon_{k_2} d_{k_2}^\dagger \}
\end{aligned} \tag{3.23}$$

Substituindo o resultado (3.23) na equação de movimento (3.22) teremos:

$$\begin{aligned}
i \frac{\partial}{\partial t'} G_{2,k_2}(tt') &= t_2^* i \langle T d_2(t) d_{k_2}^\dagger(t') \rangle + \varepsilon_{k_2} i \langle T d_2(t) d_{k_2}^\dagger(t') \rangle \\
(i \frac{\partial}{\partial t'} + \varepsilon_{k_2}) G_{2,k_2}(t_1 t') &= -t_2^* G_{22}(tt')
\end{aligned} \tag{3.24}$$

Sabendo que $(i \frac{\partial}{\partial t'} + \varepsilon_{k_2}) g_{k_2}(t_1 t') = -\delta(t_1 - t')$, onde ε_{k_2} é a energia de um nível na banda do reservatório. É possível passar (3.24) para a forma integral. Escrevemos essa forma integral da função de Green ordenada no contorno e, procedendo o prolongamento analítico (ver discussão na seção 3.2) chegamos à função de Green Menor ordenada no eixo real. Sumarizando:

$$\begin{aligned}
G_{2,k_2}(tt') &= t_2^* \int dt_1 G_{22}(tt_1) g_{k_2}(t_1 t') \\
G_{2,k_2}(\tau \tau') &= t_2^* \int_C d\tau_1 G_{22}(\tau \tau_1) g_{k_2}(\tau_1 \tau') \\
G_{2,k_2}^<(tt') &= t_2^* \int dt_1 [G_{22}^r(tt_1) g_{k_2}^<(t_1 t') + G_{22}^<(tt_1) g_{k_2}^a(t_1 t')]
\end{aligned} \tag{3.25}$$

As funções $g_{k_2}^a(t_1 t')$ e $g_{k_2}^<(t_1 t')$ são calculadas utilizando os operadores na representação de interação:

$$g_{k_2}^<(t_1 t') = i \langle \hat{d}_{k_2}^\dagger(t') \hat{d}_{k_2}(t_1) \rangle \tag{3.26}$$

$$g_{k_2}^a(t_1 t') = i \theta(t' - t_1) \langle \{ \hat{d}_{k_2}(t_1), \hat{d}_{k_2}^\dagger(t') \} \rangle \tag{3.27}$$

Pela equação de Heisenberg, sabemos que $\dot{\hat{d}}_{k_2}(t) = i[H_0, \hat{d}_{k_2}]$. Resolvendo este comutador teremos: $\dot{\hat{d}}_{k_2}(t) = -i\varepsilon_{k_2} \hat{d}_{k_2}(t)$. Uma solução possível para esta equação diferencial é $\hat{d}_{k_2}(t) = e^{-i\varepsilon_{k_2} t} c$ onde ‘c’ é uma constante. Aplicando as condições de contorno para $t = 0$ e $t = t_1$ teremos: $\hat{d}_{k_2}(t_1) = e^{-i\varepsilon_{k_2} t_1} \hat{d}_{k_2}(0)$. Semelhantemente, $\hat{d}_{k_2}^\dagger(t') = e^{-i\varepsilon_{k_2} t'} \hat{d}_{k_2}^\dagger(0)$. Substituindo estes operadores nas equações (3.26) e (3.27). Obteremos:

$$g_{k_2}^<(t_1 t') = i e^{i \epsilon_{k_2}(t' - t_1)} f_2(\epsilon_{k_2}) \quad (3.28)$$

$$g_{k_2}^a(t_1 t') = i \theta(t' - t_1) e^{i \epsilon_{k_2}(t' - t_1)} \quad (3.29)$$

Onde $f_2(\epsilon_{k_2})$ é a função distribuição de Fermi-Dirac, definida através da média $\langle \hat{d}_{k_2}^\dagger(0) \hat{d}_{k_2}(0) \rangle$ ((37) pág. 219). Em (3.29), $\{\hat{d}_{k_2}(0), \hat{d}_{k_2}^\dagger(0)\} = 1.0$.

Com os resultados (3.25), (3.28) e (3.29) podemos retornar à expressão da corrente (3.21), reescrevendo-a:

$$\begin{aligned} I(t) &= 2e \Re \left\{ \sum_{k_2} t_2 t_2^* \int dt_1 e^{i \epsilon_{k_2}(t' - t_1)} [G_{22}^r(tt_1) i f_2(\epsilon_{k_2}) + G_{22}^<(tt_1) i \theta(t' - t_1)] \right\} \\ I(t) &= 2e \Re \left\{ i \sum_{k_2} t_2 t_2^* \int_{-\infty}^t dt_1 e^{i \epsilon_{k_2}(t - t_1)} [G_{22}^r(tt_1) f_2(\epsilon_{k_2}) + G_{22}^<(tt_1)] \right\} \end{aligned} \quad (3.30)$$

Podemos aproximar as somatórias, na expressão acima, por integrais (como foi feito, anteriormente, em diversas passagens) e escrevermos uma nova expressão:

$$\begin{aligned} I(t) &= 2e \Re \left\{ i \Gamma_2 \left[\int_{-\infty}^t dt_1 G_{22}^r(tt_1) \int \frac{d\epsilon}{2\pi} e^{i \epsilon(t - t_1)} f_2(\epsilon) + \int_{-\infty}^t dt_1 G_{22}^<(tt_1) \delta(t - t_1) \right] \right\} \\ I(t) &= 2e \Re \left\{ \int_{-\infty}^t dt_1 G_{22}^r(tt_1) \phi_2(t_1 t) \right\} + e \Gamma_2 \Re \{ i G_{22}^<(tt) \} \end{aligned} \quad (3.31)$$

$$\text{Onde } \phi_2(t_1 t) = i \Gamma_2 \int \frac{d\epsilon}{2\pi} e^{i \epsilon(t - t_1)} f_2(\epsilon_k).$$

A expressão (3.30) fornece a corrente líquida entre o reservatório 2 e o nível 2, localizado na banda de condução do Ponto Quântico. Por se tratar de um sistema quântico, essencialmente probabilístico, entendemos esta corrente líquida como a soma das probabilidades de termos uma corrente do reservatório para o PQ (corrente de entrada ou ‘In’) e uma corrente do PQ para o reservatório (corrente de saída ou ‘Out’). A corrente ‘In’ é proveniente do termo que contém $G_{22}^r(tt')$ na expressão acima, e é positiva. Já a corrente ‘Out’ é negativa e relaciona-se ao termo de $G_{22}^<(tt')$.

3.4 Cálculo de $G_{22}^r(tt')$ e $G_{22}^<(tt')$ para laser CW

Conhecendo agora a expressão da corrente (3.31) para nosso sistema, vamos calcular as funções de Green relacionadas, através das técnicas discutidas na seção 3.2.

3.4.1 Função de Green retardada

A função de Green retardada $G_{22}^r(tt')$ pode ser obtida através da expressão geral dada em (3.14):

$$G_{22}^r(tt') = -i\theta(t-t')\langle\{d_2(t), d_2^\dagger(t')\}\rangle \quad (3.32)$$

Aqui, $d_2^\dagger(t')$ ($d_2(t)$) cria (aniquila) um elétron no nível 2 no tempo t' (t). Escrevendo a equação de movimento de (3.32):

$$\begin{aligned} i\frac{\partial}{\partial t'}G_{22}^r(tt') &= -\delta(t-t')\langle d_2(t)d_2^\dagger(t')\rangle + \theta(t-t')\langle d_2(t)\dot{d}_2^\dagger(t')\rangle + \\ &\quad -\delta(t-t')\langle \dot{d}_2^\dagger(t')d_2(t)\rangle + \theta(t-t')\langle \dot{d}_2^\dagger(t')d_2(t)\rangle \\ i\frac{\partial}{\partial t'}G_{22}^r(tt') &= -\delta(t-t')\langle\{d_2(t), d_2^\dagger(t')\}\rangle - \theta(t-t')\langle\{d_2(t), \dot{d}_2^\dagger(t')\}\rangle \end{aligned} \quad (3.33)$$

A evolução temporal do operador $\dot{d}_2^\dagger(t')$ é dada pela equação de Heisenberg (3.4), de modo que:

$$\dot{d}_2^\dagger(t') = \frac{i}{\hbar}[H, d_2^\dagger] = \frac{i}{\hbar}(\epsilon_2 d_2^\dagger + \gamma e^{i\omega t'} d_1^\dagger + \sum_{k_2} t_2 d_{k_2}^\dagger) \quad (3.34)$$

(3.34) substituída em (3.33) resultará em:

$$i\hbar\dot{G}_{22}^r(tt') = -\delta(t-t')\hbar - \epsilon_2 G_{22}^r(tt') - \gamma e^{i\omega t'} G_{21}^r(tt') - \sum_{k_2} t_2 G_{2k_2}^r(tt') \quad (3.35)$$

Observamos que uma nova função de Green retardada, com dependência em k_2 , surgiu. A seguir identificamos esta função utilizando novamente a técnica da equação de movimento.

$$\begin{aligned}
G_{2k_2}^r(tt') &= -i\theta(t-t')\langle\{d_2(t), d_{k_2}^\dagger(t')\}\rangle \\
i\frac{\partial}{\partial t'}G_{2k_2}^r(tt') &= -\delta(t-t')\langle\{d_2(t), d_{k_2}^\dagger(t')\}\rangle + \theta(t-t')\langle\{d_2(t), d_{k_2}^\dagger(t')\}\rangle \quad (3.36)
\end{aligned}$$

De forma semelhante a (3.34) temos: $d_{k_2}^\dagger(t') = \frac{i}{\hbar}(t_2^*d_2^\dagger + \varepsilon_{k_2}d_{k_2}^\dagger)$. Substituíremos este resultado em (3.36) para obter a próxima expressão, já reescrita em termos das funções de Green retardadas:

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t'} + \varepsilon_{k_2}\right)G_{2k_2}^r(tt') = -t_2^*G_{22}^r(tt') \quad (3.37)$$

Para a função de Green das partículas não-interagentes do reservatório temos: $(i\hbar\partial/\partial t' + \varepsilon_{k_2})g_{k_2}^r(tt') = -\delta(t-t')$. Escrevemos (3.37) na forma integral. Multiplicando $\sum_{k_2} t_2$ nos dois lados da equação obtida teremos:

$$\sum_{k_2} t_2 G_{2k_2}^r(tt') = \int dt_1 G_{22}^r(tt_1) \sum_{k_2} t_2 t_2^* g_{k_2}^r(t_1 t') \quad (3.38)$$

Sabendo que $G_{22}^r(tt')$ não apresenta dependência em k_2 e que os estados eletrônicos no reservatório formam, aproximadamente, um contínuo, fazemos a seguinte transformação:

$$\begin{aligned}
\sum_{k_2} t_2 t_2^* g_{k_2}^r(t_1 t') &= \int d\varepsilon \rho(\varepsilon) |t_2(\varepsilon)|^2 (-i)\theta(t_1 - t') e^{-i\varepsilon(t_1 - t')} \\
&= \rho |t_2|^2 (-i)\theta(t_1 - t') \underbrace{\int d\varepsilon e^{-i\varepsilon(t_1 - t')}}_{= \frac{-i}{2}\Gamma_2 \delta(t_1 - t')} \\
&= \frac{-i}{2}\Gamma_2 \delta(t_1 - t') \quad (3.39)
\end{aligned}$$

Acima temos $\Gamma_2 = 2\pi\rho|t_2|^2$, se pudermos considerar que a densidade de estados (ρ) do reservatório e a constante de acoplamento com o nível (t_2) não apresentam dependência com a energia (ε). O resultado (3.39) é substituído em (3.38), de onde obtemos:

$$\begin{aligned}
\sum_{k_2} t_2 G_{2k_2}^r(tt') &= \frac{-i}{2} \Gamma_2 \int dt_1 G_{22}^r(tt_1) \delta(t_1 - t') \\
\sum_{k_2} t_2 G_{2k_2}^r(tt') &= \frac{-i}{2} \Gamma_2 G_{22}^r(tt')
\end{aligned} \tag{3.40}$$

Este resultado é enfim substituído em (3.35), para obtermos a primeira equação de um sistema de equações diferenciais ordinárias (EDOs):

$$i\hbar \dot{G}_{22}^r(tt') = -(\epsilon_2 - i\Gamma_2/2)G_{22}^r(tt') - \gamma e^{i\omega t'} G_{21}^r(tt') - \delta(t - t')\hbar \tag{3.41}$$

Como podemos perceber na equação (3.41), esta função de Green depende de uma outra, a função $G_{21}^r(tt')$, relacionada ao acoplamento entre os níveis 1 e 2, provocado pela incidência de radiação. Sendo assim, repetimos o procedimento utilizado para encontrar $G_{22}^r(tt')$ e obtemos as demais equações do sistema (a necessidade das demais equações é justificada pela dependência que a função de Green Menor ($G_{ij}^<(tt)$) apresenta com as funções retardadas como veremos na próxima seção):

$$i\hbar \dot{G}_{11}^r(tt') = -(\epsilon_1 - i\Gamma_1/2)G_{11}^r(tt') - \gamma e^{-i\omega t'} G_{12}^r(tt') - \delta(t - t')\hbar \tag{3.42}$$

$$i\hbar \dot{G}_{12}^r(tt') = -\gamma e^{+i\omega t'} G_{11}^r(tt') - (\epsilon_2 - i\Gamma_2/2)G_{12}^r(tt') \tag{3.43}$$

$$i\hbar \dot{G}_{21}^r(tt') = -(\epsilon_1 - i\Gamma_1/2)G_{21}^r(tt') - \gamma e^{-i\omega t'} G_{22}^r(tt') \tag{3.44}$$

3.4.2 Função de Green menor

$G_{ij}^<(tt) = i\langle d_j^\dagger(t)d_i(t) \rangle$ é uma expressão geral para a função de Green Menor, já utilizada no cálculo da corrente elétrica (seção 3.3) neste capítulo. Assim como para o caso da função de Green retardada, a partir desta expressão, obteremos quatro funções que se interrelacionam: $G_{22}^<, G_{21}^<, G_{12}^<$ e $G_{11}^<$. Explicitamos somente a obtenção de $G_{22}^<(tt)$.

Escrevendo o termo $G_{22}^<(tt)$ e sua equação de movimento:

$$\begin{aligned}
G_{22}^<(tt) &= i\langle d_2^\dagger(t)d_2(t) \rangle \\
i\frac{\partial}{\partial t}G_{22}^<(tt) &= -\langle \dot{d}_2^\dagger(t)d_2(t) \rangle - \langle d_2^\dagger(t)\dot{d}_2(t) \rangle
\end{aligned} \tag{3.45}$$

Aqui, precisamos conhecer a evolução temporal dos operadores de criação e aniquilação correspondentes. $d_2^\dagger(t)$ foi obtido na página 38, precisaremos apenas trocar t' por t . $d_2(t)$ é:

$$d_2(t) = \frac{i}{\hbar}[H, d_2] = -\frac{i}{\hbar} \left(\varepsilon_2 d_2 + \gamma e^{-i\omega t} d_1 + \sum_{k_2} t_2^* d_{k_2} \right) \quad (3.46)$$

Substituindo estes dois resultados em (3.45) e reescrevendo as médias termodinâmicas em termos das funções de Green menores, temos:

$$i\hbar \dot{G}_{22}^<(tt) = \gamma e^{-i\omega t} G_{12}^<(tt) - \gamma e^{i\omega t} G_{21}^<(tt) - \sum_{k_2} t_2 G_{2k_2}^<(tt) + \sum_{k_2} t_2^* G_{k_22}^<(tt) \quad (3.47)$$

Semelhantemente, escreveremos as equações de movimento das demais funções:

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{G}_{12}^<(tt) &= (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) G_{12}^<(tt) + \gamma e^{i\omega t} (G_{22}^<(tt) - G_{11}^<(tt)) \\ &\quad + \sum_{k_1} t_1^* G_{k_12}^<(tt) - \sum_{k_2} t_2 G_{1k_2}^<(tt) \end{aligned} \quad (3.48)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{G}_{21}^<(tt) &= -(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) G_{21}^<(tt) - \gamma e^{-i\omega t} (G_{22}^<(tt) - G_{11}^<(tt)) \\ &\quad - \sum_{k_1} t_1 G_{2k_1}^<(tt) + \sum_{k_2} t_2^* G_{k_21}^<(tt) \end{aligned} \quad (3.49)$$

$$i\hbar \dot{G}_{11}^<(tt) = \gamma e^{i\omega t} G_{21}^<(tt) - \gamma e^{-i\omega t} G_{12}^<(tt) - \sum_{k_1} t_1 G_{1k_1}^<(tt) + \sum_{k_1} t_1^* G_{k_11}^<(tt) \quad (3.50)$$

O próximo passo é eliminar as dependências em k_1 e k_2 . Desta vez utilizaremos dois exemplos ao invés de um. É importante frisar que encontraremos expressões para $G_{2k_2}^<(tt')$ e para $G_{k_12}^<(tt')$ e, ao fim do desenvolvimento, faremos $t' = t$. Escolhemos estes dois termos pois exemplificam bem as duas expressões ‘básicas’ encontradas para as funções de Green menores, com dependência em k . Utilizaremos as formas com ordenamento temporal dessas funções de Green para obter as funções menores. O primeiro termo ($G_{2k_2}(tt')$) foi desenvolvido anteriormente no cálculo da corrente elétrica (página 36) até a equação (3.25). Assim, evoluiremos $G_{k_12}^<(tt')$ até um ponto semelhante:

$$\begin{aligned}
G_{k_1 2}(tt') &= -i\langle T d_{k_1}(t) d_2^\dagger(t') \rangle \\
i\frac{\partial}{\partial t} G_{k_1 2}(tt') &= \langle T \dot{d}_{k_1}(t) d_2^\dagger(t') \rangle
\end{aligned} \tag{3.51}$$

$$\dot{d}_{k_1}(t) = \frac{i}{\hbar} [H, d_{k_1}] = -\frac{i}{\hbar} (t_1 d_1 + \varepsilon_{k_1} d_{k_1}) \tag{3.52}$$

Substituindo o resultado (3.52) na equação de movimento (3.51), temos então:

$$\begin{aligned}
i\hbar \dot{G}_{k_1 2}(tt') &= -t_1 i\langle T d_1(t) d_2^\dagger(t') \rangle - \varepsilon_{k_1} i\langle T d_{k_1}(t) d_2^\dagger(t') \rangle \\
(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - \varepsilon_{k_1}) G_{k_1 2}(tt') &= t_1 G_{12}(tt')
\end{aligned} \tag{3.53}$$

Repetindo o procedimento utilizado para passar da forma (3.24) para (3.25), chegamos a:

$$G_{k_1 2}^<(tt') = t_1 \left[\int dt'_1 g_{k_1}^r(tt'_1) G_{12}^<(t'_1 t') + \int dt'_1 g_{k_1}^<(tt'_1) G_{12}^a(t'_1 t') \right] \tag{3.54}$$

Aqui podemos dizer que os resultados (3.25) e (3.54) estão em um mesmo ponto do desenvolvimento que pretendemos concluir. Em cada uma dessas equações, aplicamos as somas em k_1 e k_2 , já multiplicadas pelos termos de acoplamento t_1^* e t_2 , conforme o caso. Compreendendo a não-dependência em k_2 e k_1 de G_{22}^r e $G_{22}^<$ temos:

$$\sum_{k_2} t_2 G_{2k_2}^<(tt') = \int dt_1 G_{22}^r(tt_1) \sum_{k_2} t_2 t_2^* g_{k_2}^<(t_1 t') + \int dt_1 G_{22}^<(tt_1) \sum_{k_2} t_2 t_2^* g_{k_2}^a(t_1 t') \tag{3.55}$$

$$\sum_{k_1} t_1^* G_{k_1 2}^<(tt') = \int dt'_1 \sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^r(tt'_1) G_{12}^<(t'_1 t') + \int dt'_1 \sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^<(tt'_1) G_{12}^a(t'_1 t') \tag{3.56}$$

Da mesma forma, que para encontrar o resultado (3.39), as expressões das funções de Green não-interagentes ($g_{k_2}^<$, $g_{k_2}^a$, $g_{k_1}^r$ e $g^{<k_1}$) acima, resultam em:

$$\sum_{k_2} t_2 t_2^* g_{k_2}^<(t_1 t') = i\Gamma_2 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} e^{-i\varepsilon(t_1-t')} f_2(\varepsilon) = \phi_2(t_1 t') \quad (3.57)$$

$$\sum_{k_2} t_2 t_2^* g_{k_2}^a(t_1 t') = \frac{i}{2} \Gamma_2 \delta(t' - t_1) \quad (3.58)$$

$$\sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^r(tt') = \frac{-i}{2} \Gamma_1 \delta(t' - t) \quad (3.59)$$

$$\sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^<(tt') = i\Gamma_1 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} e^{-i\varepsilon(t-t')} f_1(\varepsilon) = \phi_1(tt') \quad (3.60)$$

Substituindo estes resultados nas equações (3.55) e (3.56) e resolvendo a integral da função delta obteremos:

$$\sum_{k_2} t_2 G_{2k_2}^<(tt) = \int dt_1 G_{22}^r(tt_1) \phi_2(t_1 t) + i \frac{\Gamma_2}{2} G_{22}^<(tt) \quad (3.61)$$

$$\sum_{k_1} t_1^* G_{k_1 2}^<(tt) = \int dt_2 \phi_1(tt_2) G_{12}^a(t_2 t) - i \frac{\Gamma_1}{2} G_{12}^<(tt) \quad (3.62)$$

Estes resultados, bem como os calculados de maneira semelhante para as outras funções de Green com dependência em k_1 ou k_2 (que são oito, no total), são substituídos nas equações [(3.47)-(3.50)] e, fazendo t igual a t' , finalmente chegamos ao sistema de equações diferenciais ordinárias que nos permitirá encontrar as funções de Green menores (numericamente):

$$i\hbar \dot{G}_{22}^<(tt) = \gamma e^{-i\omega t} G_{12}^<(tt) - \gamma e^{i\omega t} G_{21}^<(tt) - (I_{22}^r(t) - I_{22}^a(t)) - i\Gamma_2 G_{22}^<(tt) \quad (3.63)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{G}_{12}^<(tt) &= (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) G_{12}^<(tt) + \gamma e^{+i\omega t} (G_{22}^<(tt) - G_{11}^<(tt)) \\ &\quad - (I_{12}^r(t) - I_{12}^a(t)) - \frac{i}{2} (\Gamma_1 + \Gamma_2) G_{12}^<(tt) \end{aligned} \quad (3.64)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{G}_{21}^<(tt) &= -(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) G_{21}^<(tt) - \gamma e^{-i\omega t} (G_{22}^<(tt) - G_{11}^<(tt)) \\ &\quad - (I_{21}^r(t) - I_{21}^a(t)) - \frac{i}{2} (\Gamma_1 + \Gamma_2) G_{21}^<(tt) \end{aligned} \quad (3.65)$$

$$i\hbar \dot{G}_{11}^<(tt) = \gamma e^{i\omega t} G_{21}^<(tt) - \gamma e^{-i\omega t} G_{12}^<(tt) - (I_{11}^r(t) - I_{11}^a(t)) - i\Gamma_1 G_{11}^<(tt) \quad (3.66)$$

Onde $I_{ij}^r(t) = \int dt_1 G_{ij}^r(tt_1) \phi_j(t_1 t)$ e $I_{ij}^a(t) = \int dt_1 \phi_i(tt_1) G_{ij}^a(t_1 t)$.

3.5 Funções de Green para um sistema de dois níveis sem reservatório

Como discutido por Sakurai na ref. (16), problemas de potenciais dependentes do tempo, em mecânica quântica, com solução exata, são extremamente raros. Uma das exceções que mais se destaca, por suas propriedades de coerência, é o problema de um sistema de dois níveis sob ação de um potencial oscilatório. Sakurai define este problema através do seguinte hamiltoniano:

$$H = \varepsilon_1|1\rangle\langle 1| + \varepsilon_2|2\rangle\langle 2| + \gamma e^{i\omega t}|1\rangle\langle 2| + \gamma e^{-i\omega t}|2\rangle\langle 1| \quad (3.67)$$

Acima, γ (\propto intensidade do campo) e ω (frequência de oscilação do campo) são reais e positivos; $\varepsilon_2 > \varepsilon_1$ (energia de cada nível) e os kets $|1\rangle$ e $|2\rangle$ representam os estados possíveis do sistema.

Este problema possui solução exata, ou seja, conseguimos determinar a evolução temporal da função de onda do sistema. Esta função de onda é definida por uma combinação linear dos estados possíveis, com coeficientes da soma variáveis no tempo:

$$|\Psi(t)\rangle = c_1(t)|1\rangle + c_2(t)|2\rangle \quad (3.68)$$

Para encontrar a probabilidade do sistema estar no estado $|2\rangle$, por exemplo, fazemos a seguinte operação, utilizando apenas a propriedade de ortogonalidade dos estados:

$$\begin{aligned} \langle 2|\Psi(t)\rangle &= c_1(t)\langle 2|1\rangle + c_2(t)\langle 2|2\rangle \\ \langle 2|\Psi(t)\rangle &= c_1(t)0 + c_2(t)1 \\ |\langle 2|\Psi(t)\rangle|^2 &= |c_2(t)|^2 \end{aligned} \quad (3.69)$$

Logo, a probabilidade de o sistema estar no estado $|2\rangle$, em função do tempo, é dada pelo módulo quadrado do coeficiente $c_2(t)$ e, similarmente, a de estar no estado $|1\rangle$ é dada por $|c_1(t)|^2$. Tomando como condição inicial (a $t = 0$) que o sistema está no estado $|1\rangle$, ou $c_1(0) = 1$, e que, portanto, $c_2(0) = 0$. A probabilidade de um elétron ser encontrado em cada um desses níveis (estados), como função do tempo, é dada pela fórmula de Rabi:

$$\begin{aligned}
H &= \varepsilon_1 d_1^\dagger d_1 + \varepsilon_2 d_2^\dagger d_2 + E^*(t) d_2^\dagger d_1 + E(t) d_1^\dagger d_2 \\
i\hbar \dot{G}_{22}^<(tt) &= E^*(t) G_{12}^<(tt) - E(t) G_{21}^<(tt) \\
i\hbar \dot{G}_{12}^<(tt) &= (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) G_{12}^<(tt) + E(t) (G_{22}^<(tt) - G_{11}^<(tt)) \\
i\hbar \dot{G}_{21}^<(tt) &= -(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) G_{21}^<(tt) - E^*(t) (G_{22}^<(tt) - G_{11}^<(tt)) \\
i\hbar \dot{G}_{11}^<(tt) &= E(t) G_{21}^<(tt) - E^*(t) G_{12}^<(tt)
\end{aligned} \tag{3.71}$$

Onde $E(t) = \gamma e^{i\omega t}$ e $E^*(t) = \gamma e^{-i\omega t}$, modelando a radiação aplicada ao sistema. Fica evidente, por comparação, que temos aqui uma particularização do sistema [(3.63)-(3.66)], sem os termos que provocam decoerência (associados a Γ_1 e Γ_2).

Sabemos (35) que a ocupação eletrônica de um nível pode ser obtida através da função de Green Menor. Para obter a ocupação dos níveis utilizando nosso sistema e, então, compará-la ao resultado de Rabi, apenas precisamos evoluir a referida função. Resolvemos numericamente o sistema de equações utilizando o método RK2 (ver Apêndice C pág. 87). Como a função de Green menor (3.71) no sistema não apresenta dependência em $G_{ij}^r(tt')$ e, não há corrente a ser calculada: não é necessário calcular a função de Green Retardada.

3.6 Funções de Green para um único nível acoplado a um reservatório, sem interação com a radiação

Tomando aqui uma outra particularização de nosso sistema, obteremos as funções de Green necessárias para estudarmos esse subsistema. Desacoplando um dos reservatórios e também deixando de incidir qualquer radiação sobre o sistema, de modo a não acoplar os níveis 1 e 2 no PQ, o hamiltoniano principal (2.1) se reduziria a:

$$H = \varepsilon_i d_i^\dagger d_i + \sum_{k_i} (t_i d_{k_i}^\dagger d_i + t_i^* d_i^\dagger d_{k_i}) + \sum_{k_i} \varepsilon_{k_i} d_{k_i}^\dagger d_{k_i} \tag{3.72}$$

Onde i é o índice que identifica o nível.

Neste modelo também não teremos passagem de corrente elétrica. Neste caso, porém, isto se deve a ausência de um campo gerador da mesma. O sistema considerado aqui está ilustrado na figura (13). Apenas o nível E_1 na banda de valência do PQ se acopla ao reservatório da

direita. O nível permanece desacoplado do nível superior na banda de condução devido à não-incidência da radiação eletromagnética.

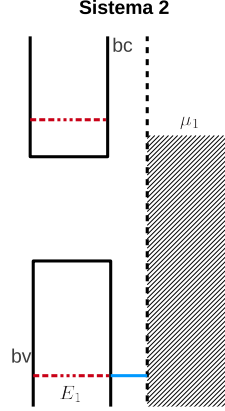


Figura 13: Sistema de um nível acoplado a um único reservatório, sem incidência de radiação.

Semelhante à seção 3.5, vamos obter valores de ocupação deste nível utilizando as funções de Green.

Tal qual na seção 3.4.2, a função de Green menor depende explicitamente da função de Green retardada. Apresentamos as equações diferenciais obtidas para as duas funções pelos mesmos métodos daquela seção:

$$i\hbar\dot{G}_{ii}^r(tt') = -(\epsilon_i - i\Gamma_i/2)G_{ii}^r(tt') - \delta(t-t')\hbar \quad (3.73)$$

$$i\hbar\dot{G}_{ii}^<(tt) = -(I_{ii}^r(t) - I_{ii}^a(t)) - i\Gamma_i G_{ii}^<(tt) \quad (3.74)$$

Em que: $I_{ii}^r(t) = \int dt_2 G_{ii}^r(tt_2)\phi_i(t_2t)$ e $I_{ii}^a(t) = \int dt_2 \phi_i(tt_2)G_{ii}^a(t_2t)$.

Observando que as equações de (3.73) e (3.74) diferem de (3.41) e (3.63), respectivamente, apenas pelos termos de acoplamento óptico (termos que contém γ).

3.7 Cálculo de $G_{ij}^<(tt)$ e de $G_{ij}^r(tt')$ para laser pulso delta

Assim como para o caso do laser CW (seção (3.4)), para evoluir a equação da corrente - (3.31) - para um laser tipo pulso delta, devemos encontrar expressões adequadas para G_{22}^r e $G_{22}^<$. Para esta forma de pulso, mostramos como é possível obter um resultado analítico para as funções de Green retardada e menor e, conseqüentemente, para a corrente elétrica. Poderemos

utilizar este resultado, para um pulso delta, como um caso limite, quando quisermos estudar outras formas de pulso tal qual o gaussiano. Este tipo de pulso é muito mais comum experimentalmente, mas não possui solução analítica no eixo real devido a forma final das integrais. Devido à extensão e especificidade desses cálculos decidimos apresentá-los em apêndices: (A) para a função de Green Retardada pág. (78); (B) para a função de Green Menor, a partir da pág. (82).

4 *Resultados numéricos*

Essencialmente, neste capítulo, apresentaremos nossos resultados acerca da interação de um laser CW com o sistema descrito na seção 2, composto por um ponto quântico semiconductor inserido em uma estrutura de fotodiodo. Todos os resultados foram obtidos através de cálculos numéricos, desenvolvidos em linguagem FORTRAN, com base nos formalismos matemáticos apresentados no capítulo 3. Primeiramente, porém, nas seções 4.2 e 4.3, serão apresentados alguns resultados para dois modelos simplificados de nosso sistema principal, discutidos nas seções 3.5 e 3.6, respectivamente: um sistema de dois níveis sob a ação de um potencial oscilatório e um sistema formado por um único nível acoplado a um reservatório. Apresentando desta forma os resultados desejamos discutir a complicada dinâmica de níveis de nosso sistema de maneira mais didática, compreendendo melhor a observação de processos coerentes e os mecanismos que provocam a perda de coerência.

4.1 Parâmetros e Unidades

Visando uma análise mais geral dos resultados, no que diz respeito às escalas de energia e tempo, nos gráficos subsequentes: o tempo será expresso em unidades de $t_0 = \hbar/\Gamma_0$, a energia em unidades de Γ_0 e a corrente elétrica, portanto, em unidades de $I_0 = e\Gamma_0/\hbar$. Vale lembrar que Γ_0/\hbar é a taxa de tunelamento entre PQ e reservatórios. Essa grandeza fornece a largura de linha dos níveis do PQ e pode ser calculada pela regra de ouro de Fermi.

Para fins de aplicação, podemos notar que em pontos quânticos semicondutores a ordem de grandeza de Γ_0 varia de $0.1\mu eV$ a algumas centenas de μeV (30) (38) (39). Já no contexto de eletrônica molecular, encontraremos larguras de linha para orbitais HOMO e LUMO de moléculas acopladas a semicondutores na faixa de $1.0meV$ a centenas de meV (40) (41). A tabela 1 lista valores típicos para t_0 , I_0 e T_0 para diferentes Γ_0 (tomando $k_B = 8.6 \times 10^{-5} eV/K$ (42)):

Como é possível verificar na tabela, para PQs, podem ser observadas fotocorrentes, no

Sistema	Γ_0	t_0	I_0	T_0
Ponto Quântico	$1.0\mu eV$	$1.0ns$	$0.24nA$	$11.6mK$
Ponto Quântico	$100.0\mu eV$	$10.0ps$	$24.0nA$	$1.16K$
Molécula	$1.0meV$	$1.0ps$	$0.24\mu A$	$11.6K$
Molécula	$100.0meV$	$10.0fs$	$24.0\mu A$	$1160.0K$

Tabela 1: Valores possíveis das unidades de tempo (t_0), corrente elétrica (I_0) e temperatura (T_0) considerando-se valores típicos da taxa de tunelamento (Γ_0) em sistema de pontos quânticos ou moleculares encontrados na literatura.

máximo, da ordem de nA ($10^{-9}A$). Em alguns artigos experimentais ((43) e (19), por exemplo) são apresentadas fotocorrentes, como função da intensidade do laser aplicado, da ordem de pA ($10^{-12}A$). Pelos os valores de $k_B T$ utilizados nas simulações computacionais de nosso trabalho e, dados os valores possíveis dessa tabela para a unidade T_0 , vemos que as temperaturas tratadas nestes resultados variarão de mK a alguns K , portanto, temperaturas baixas considerando-se a temperatura ambiente.

4.2 Sistema de dois níveis

Como discutido na seção 3.6, as duas expressões apresentadas em (3.70) (fórmula de Rabi) determinam a evolução temporal da probabilidade de ocupação de cada nível, em um sistema de dois níveis sob a ação de uma radiação incidente, de caráter oscilatório. Estudando a primeira expressão de (3.70), percebemos que a probabilidade de ocupação do nível 2, apresenta um caráter oscilatório - indicado pelo quadrado da função \sin . A frequência em que estas oscilações ocorrem (conhecida como frequência de Rabi), é função direta da intensidade da radiação aplicada, e da diferença entre a frequência característica do sistema $\hbar\omega_{21} = E_2 - E_1$ e a frequência de oscilação da radiação (ω). A frequência de Rabi na equação, portanto, é dada pelo argumento da função seno ($[\frac{\gamma^2}{\hbar^2} + \frac{(\omega - \omega_{21})^2}{4}]^{1/2}$) e a diferença $(\omega - \omega_{21})$ é uma quantidade mais conhecida pelo termo, em inglês, *detuning*. Adicionalmente, podemos notar que a amplitude destas oscilações, definida pelo termo que multiplica a função seno na fórmula de Rabi ($\frac{\gamma^2/\hbar^2}{\gamma^2/\hbar^2 + (\omega - \omega_{21})^2/4}$), também apresenta dependência com a intensidade do laser e o *detuning*.

Nos gráficos seguintes vamos comparar nossos cálculos via funções de Green com o resultado analítico dado pela equação (3.70), para o sistema de um PQ sem acoplamento a reservatórios.

O primeiro estudo que fizemos consiste em alterar o *detuning*. No gráfico apresentado na figura (14) fizemos essa alteração variando a frequência do laser como função da diferença de

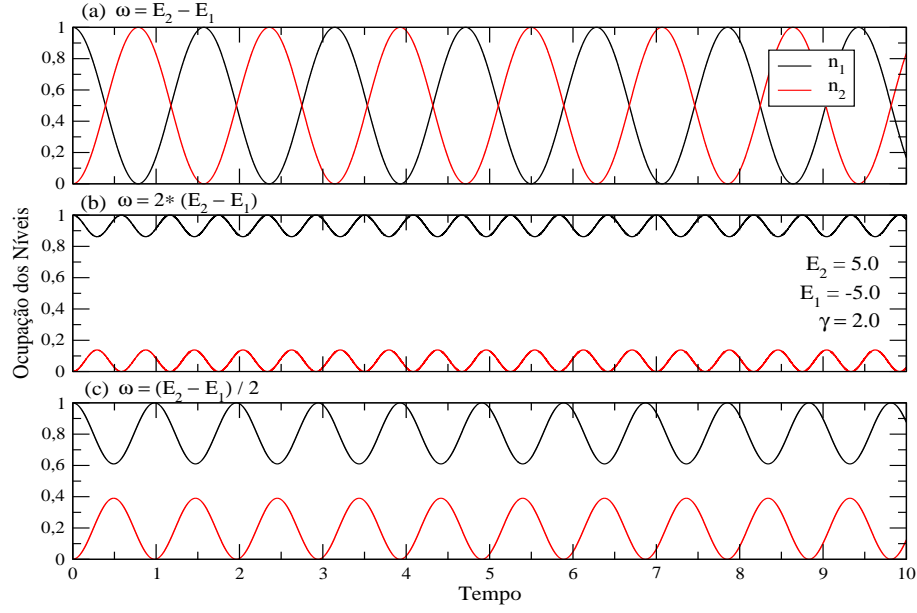


Figura 14: Ocupação eletrônica dos níveis no PQ como função do tempo, para o sistema desacoplado dos reservatórios, para diferentes frequências de laser. Em (a) a frequência do laser está em ressonância com o sistema, ou seja, $\omega = E_2 - E_1$; em (b) $\omega = 2 * (E_2 - E_1)$; (c) $\omega = (E_2 - E_1) / 2$. Com $\hbar = 1.0$

energia entre os níveis (tomamos $\hbar = 1.0$). É pertinente dizer que, teoricamente, é muito simples ‘sintonizar’ um laser na exata frequência excitônica ω_{21} do sistema. Experimentalmente, essa tarefa não é tão trivial; embora seja possível atingir valores muito próximos da ressonância. A ressonância ocorre quando o sistema evolui com *detuning* nulo, isto é, com a radiação oscilando na mesma frequência do sistema. Ao invés da frequência do laser, para modificar o *detuning*, é possível alterar a diferença de energia entre os níveis em cada banda de um PQ, alterando o *gap* de energia através de ajustes experimentais (30).

Na figura (14) portanto, apresentamos as probabilidades de ocupação dos dois níveis, como função do tempo, para três frequências diferentes da radiação aplicada. As curvas pretas indicam nível 1 e as vermelhas, nível 2. Na figura (14), item (a), o *detuning* é nulo, ou seja, $\omega - \omega_{21} = 0.0$. Percebemos que a inversão da população eletrônica entre os níveis é completa para este caso: a radiação excita o elétron do nível 1 para o nível 2 (absorção), e após certo tempo, este elétron apresenta probabilidade de retornar ao nível 1, de menor energia (emissão). Matematicamente, *detuning* nulo implica em amplitude de oscilação máxima: $\omega - \omega_{21} = 0.0$. Logo, $\frac{\gamma^2 / \hbar^2}{\gamma^2 / \hbar^2 + (\omega - \omega_{21})^2 / 4} = 1.0$. Já a frequência de oscilação, para um detuning nulo terá um valor que só dependerá da intensidade da radiação aplicada, γ , o que discutiremos melhor no resultado seguinte.

Em (b) e (c) demonstramos o que ocorre com as ocupações nos casos não ressonantes -

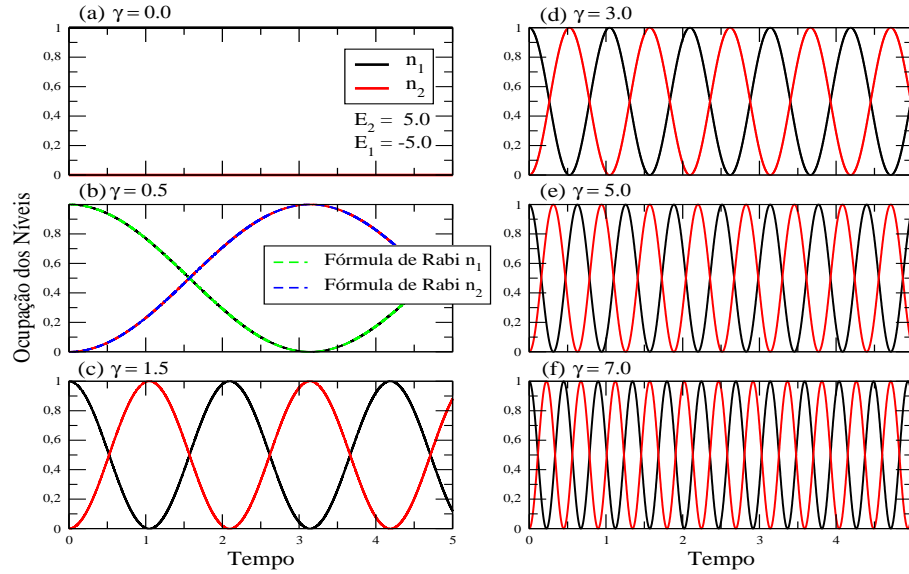


Figura 15: Ocupação eletrônica dos níveis como função do tempo, para o sistema desacoplado dos reservatórios, para diferentes intensidades de laser. (a) $\gamma = 0.0$ (sem interação) (b) $\gamma = 0.5$ (ocupações calculadas com a fórmula de Rabi estão demonstradas); (c) $\gamma = 1.5$; (d) $\gamma = 3.0$; (e) $\gamma = 5.0$ e (f) $\gamma = 7.0$.

detuning diferente de zero. Em (b) a frequência de oscilação do laser é $\omega = 2\omega_{21}$. Como consequência, a frequência das oscilações é bem maior que para o caso ressonante, já que essa frequência é diretamente proporcional ao *detuning*. Entretanto, *detuning* elevado implica numa amplitude de oscilação baixa. Conforme podemos concluir através da equação (3.70). Em (c) a frequência do laser é metade de ω_{21} , no entanto, a frequência das oscilações ainda é maior que a do caso (a). Isso ocorre porque, o *detuning* sempre aparece na fórmula de Rabi elevado ao quadrado, ou seja, estamos somando na amplitude e na frequência um valor positivo, não nulo. Pelo mesmo motivo, a amplitude nesse caso também será menor que no caso (a).

Outro estudo a ser considerado é a variação da intensidade do laser incidido γ , apenas para o caso ressonante. Na figura (15), apresentamos a probabilidade de ocupação dos níveis, como função do tempo, para seis valores diferentes desta intensidade. De (a) para (f) acompanhamos um aumento no número de oscilações ocorridas em um mesmo intervalo de tempo. Se a frequência de oscilação é dada por $[\frac{\gamma^2}{\hbar^2} + \frac{(\omega - \omega_{21})^2}{4}]^{1/2}$ e o *detuning* é zero, obviamente, este valor fica diretamente dependente apenas da intensidade da radiação. Aumentando γ aumentaremos, portanto, a frequência das oscilações de Rabi. No item (a) da figura temos o caso sem incidência do laser, em que não é possível ocorrer oscilação, pois não existe acoplamento entre os níveis. No item (b), para uma pequena intensidade, já é possível observar algumas oscilações, e assim sucessivamente, até o caso (f), que apresenta o maior número de oscilações no intervalo de tempo considerado.

Adicionalmente ao resultado obtido via Funções de Green em (b), incluímos curvas geradas analiticamente pelas equações (3.70). Comparando os dois resultados (numérico e analítico) vemos que a concordância entre os dois é excelente. Entretanto, essa concordância será perdida, aos poucos, quando acoplarmos os reservatórios ao sistema, pois aparecerão processos de decoerência.

4.3 Um nível acoplado a um reservatório

Apresentamos agora resultados numéricos para o sistema de apenas um nível acoplado a um reservatório, discutido na seção 3.6. Através deste estudo, podemos iniciar nossa compreensão dos mecanismos de decoerência que afetarão um sistema real utilizando pontos quânticos em um circuito.

Deste ponto em diante, nesta seção, sempre que nos referirmos a ‘nível de Fermi’ (ou ‘energia de Fermi’), estamos tratando do nível de Fermi do reservatório. Este reservatório poderia ser, por exemplo, um material semiconductor altamente dopado tipo n ou um contato metálico. Acoplado a este reservatório, através de uma barreira de potencial, temos um nível de energia E_1 , o qual estaria, por exemplo, em um PQ. O nível considerado em nossos resultados possui uma energia relativamente menor que a energia de Fermi do reservatório de modo que, inicialmente, com a temperatura do reservatório igual a 0 K, este nível apresentaria ocupação bem próxima a 1.0. Como um primeiro resultado, temos a figura (16), na qual observamos as probabilidades de ocupação do nível E_1 , em função do tempo para diferentes (a) temperaturas (b) a taxa de tunelamento.

Na figura (16)(a), plotamos a ocupação do nível em função do tempo, para três temperaturas diferentes. Iniciamos nossa discussão observando os valores iniciais ($t = 0s$) para cada temperatura: esses valores são diferentes entre si e diferentes de 1.0.

Primeiramente, é importante dizer que essa é uma escolha pessoal: certamente, poderíamos ter considerado no cálculo computacional o nível totalmente preenchido para as três temperaturas. Entretanto, preferimos considerar que, na prática, ao iniciarmos a contagem do tempo, em $t = 0s$, (fazendo relação aqui com o momento em que um laser é incidido sobre o sistema) o nível já está acoplado ao reservatório, ou seja, os efeitos do reservatório já interferiram sobre a população deste nível. Em nossas simulações, este valor inicial é obtido através de uma expressão matemática que leva em consideração tanto a temperatura dos reservatórios quanto as taxas de tunelamento (Γ_1):

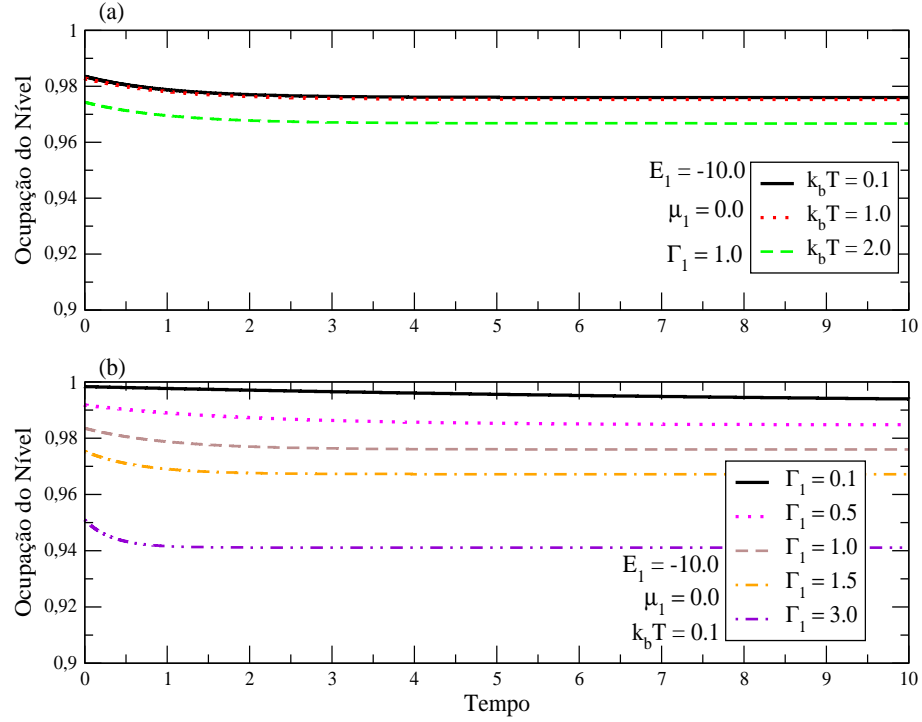


Figura 16: Ocupação eletrônica em função do tempo, para um sistema de um nível acoplado a um reservatório, sem incidência de radiação. Em (a) varia-se a temperatura e em (b) a taxa de tunelamento (Γ).

$$n = \int \frac{d\varepsilon}{2\pi i} G^<(\varepsilon)$$

onde $G^<(\varepsilon)$ é a função de Green Menor para o sistema PQ-Reservatório, sem aplicação de laser.

Com esse valor inicial propagamos as equações numéricas até as ocupações se estabilizarem para uma dada temperatura ou Γ . O pequeno decaimento observado nas ocupações (da ordem de 0,005) vem de erros numéricos na propagação das equações e nos servem como estimativa de acurácia dos cálculos computacionais. É importante ressaltar que a evolução temporal na figura (16) não é uma dinâmica física, visto que ainda não temos campo eletromagnético agindo sobre o sistema.

O aspecto físico a ser levantado é a variação dos valores de equilíbrio de acordo com a temperatura e/ou Γ .

Com o aumento da temperatura, observamos que os valores de ocupação do nível diminuem. Examinando a função distribuição de Fermi, sabemos que ela se ‘deforma’ em torno de E_F com o aumento da temperatura. Essa mudança na forma da função indica, no reservatório,

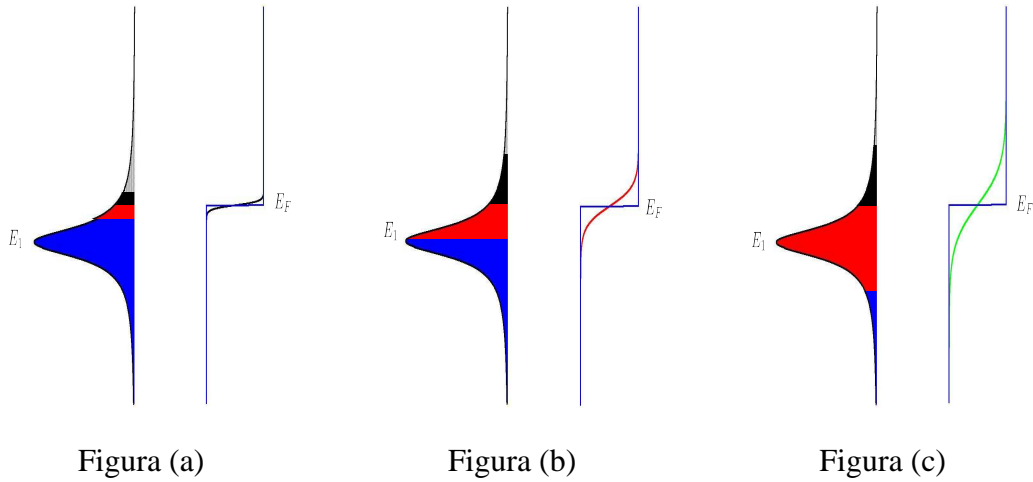


Figura 17: Esquema da densidade de estados (ocupados/desocupados) de um nível (representados pela lorentziana) e dos estados (ocupados/desocupados) do reservatório acoplado ao nível (representados pela função distribuição de Fermi). A superposição entre estes determinaria a ocupação do nível de acordo com $k_B T$, que cresce de (a) para (c). Azul representa estados preenchidos no nível; vermelho, estados com maior probabilidade de serem desocupados; preto, estados com maior probabilidade de ocupação.

que os elétrons em estados ligeiramente abaixo do nível de Fermi estão sendo excitados para estados de maior energia. Dessa forma, como o nível E_1 está abaixo de E_F esse aumento da temperatura leva a uma diminuição da ocupação do nível.

Apresentamos a figura (17), com três esquemas ilustrativos para tentar entender melhor o efeito térmico sobre a ocupação. Representamos o nível e o reservatório em uma escala de energia vertical, ascendente, em que mantivemos o nível a uma energia fixa e variamos a temperatura do reservatório. De (a) para (c) o aumento da temperatura é evidenciado pela função distribuição de Fermi que apresenta uma queda mais suave a cada item. Para efeitos comparativos, a função a $T = 0$ aparece em todos os casos (linha azul). À esquerda da função de Fermi ilustramos o nível em sua forma lorentziana.

Por não estarmos considerando processos inelásticos em nosso sistema (*e.g.* interação elétron-fônon), os elétrons tunelam apenas para estados de mesma energia (no nível ou no reservatório). Com esta característica do nosso modelo em mente, o esquema apresenta algumas partes hachuradas na largura do nível. A parte azul marca, aproximadamente, a faixa de energia em que nível e reservatório estão preenchidos, sem possibilidade de tunelamento dos elétrons. A parte vermelha demonstra para qual faixa de energia seria mais provável que os elétrons tunelassem para o reservatório, devido à presença de estados de mesma energia desocupados pelo efeito da temperatura no reservatório. Por fim, as áreas em preto demarcam os estados que têm mais chances de serem ocupados por aqueles elétrons do reservatório que foram deslocados

termicamente para estados mais energéticos acima de E_F .

Com o esquema da figura (17) podemos entender facilmente a diminuição da ocupação do nível a medida que $k_B T$ aumenta na figura (16). De (a) para (c) aumentam as áreas hachuradas de vermelho, que representam uma possibilidade maior dos elétrons saírem para o reservatório. Por outro lado, apesar do aumento da temperatura, não conseguimos observar um aumento apreciável nas áreas coloridas de preto, que indicariam a probabilidade de entrada de elétrons no nível. Isso ocorre porque os estados acima do nível de Fermi se superpõe a uma faixa energética em que a densidade de estados no nível é muito baixa, fato totalmente influenciado pela posição do nível em relação ao nível de Fermi (essa relação será melhor discutida com a figura (19)). Assim, se a probabilidade de saída de elétrons for maior que a de entrada, a população do nível deve ser menor (caso da curva verde, para $k_B T = 2.0$). Para as outras duas temperaturas consideradas, em que a diferença entre as áreas vermelha e preta não é tão apreciável (esquemas (a) e (b)) o nível terá uma população maior.

Podemos imaginar que a ocupação calculada ao fim desse processo é comparável às áreas azuis dos itens (a), (b) e (c) da figura (17): a medida que aumenta a temperatura, as áreas azuis, que representam a faixa de energia em que os elétrons não apresentam mobilidade nível-reservatório, ficam menores.

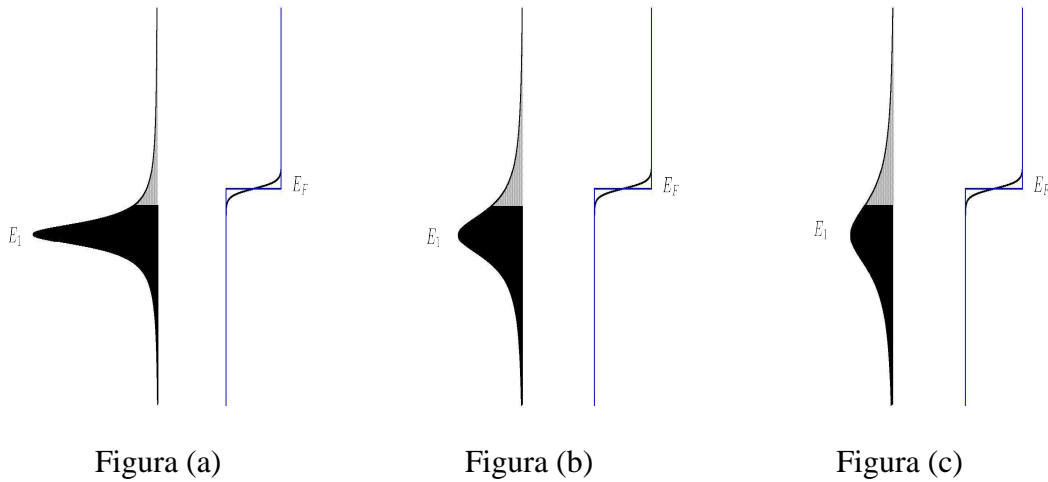


Figura 18: Esquema semelhante ao da figura (17) (página 55). Nesta ilustração, a temperatura é fixa. Γ_1 aumenta de (a) para (c). As áreas pretas indicam probabilidade de ocupação inicial do nível. As áreas claras indicam regiões sob influência da temperatura.

O gráfico (b), da fig. (16), mostra a ocupação do nível em função do tempo, para cinco valores diferentes da taxa de tunelamento Γ_1 , considerando-se uma mesma temperatura e posição dos níveis. Aqui, os valores de equilíbrio também são diferentes para taxas diferentes. Além disso, as curvas também apresentam um pequeno decaimento de origem numérica. A

convergência destas curvas para o valor correto de ocupação, no entanto, é mais rápida para maiores valores de Γ_1 . Na figura (16)(a), as ocupações para diferentes temperaturas atingem valores constantes ao mesmo tempo pois, em todos os casos, trabalhamos com a mesma taxa de tunelamento. A taxa de tunelamento está diretamente ligada com a largura de linha do nível. Essa densidade de estados tem a forma de uma distribuição de Lorentz que, por ser uma função probabilística, tem área interna sempre igual a 1.0. A figura (18) mostra como fica a forma desta distribuição conforme aumentamos a taxa de tunelamento dos elétrons entre o nível e o reservatório.

Neste caso, as regiões preenchidas de preto, que indicam estados preenchidos, - sem mobilidade, de acordo com o que assumimos sobre a ausência de dissipação no sistema- têm a mesma altura porque a temperatura é igual para os três valores de Γ_1 (figura (18), itens (a) menor Γ_1 , (b) e (c) maior Γ_1). Entretanto, as áreas são diferentes, dada a altura (horizontal) da lorentziana que é alterada pela mudança da taxa de tunelamento. As regiões claras dos esquemas, influenciadas pela temperatura, têm suas áreas aumentadas de (a) para (c) pela deformação da função lorentziana com o aumento de Γ_1 . Quanto menor a área escura, menor será a ocupação do PQ. Esse comportamento é claramente observado no resultado apresentado na figura (16)(b).

Fazendo um pequeno adendo, um acoplamento muito forte nível-reservatório, essencialmente, fará com que o sistema entre em equilíbrio muito rapidamente. O tempo de vida de estados fora do equilíbrio, portanto, será muito curto. Em um sistema de dois níveis, em que estados fora do equilíbrio são de sumo interesse, valores altos de Γ ocasionarão perda de coerência quântica, pois o sistema oscilará entre dois estados coerentes por um tempo muito curto, inviabilizando aplicações em informação quântica.

Para concluir estas discussões para um sistema de um único nível, vamos nos aprofundar um pouco mais na influência que o posicionamento do nível E_1 em relação ao nível de Fermi tem na ocupação e, principalmente, nos efeitos de temperatura. Para tanto, construímos um gráfico, figura (19), dos valores de equilíbrio da ocupação como função da diferença (energética) entre E_F e E_1 , para três temperaturas diferentes.

De um modo geral, a ocupação do nível varia de 1.0, quando a diferença de energia entre os níveis é positiva, a 0.0, quando a diferença é negativa; passando por 0.5, quando a diferença é nula. Se pensarmos em cada curva separadamente, os esquemas (a), (b) e (c) da figura (20) são bastante intuitivos. Esses esquemas seguem a mesma ideia da figura (17), mas agora estamos olhando a mudança de posição do nível para uma mesma temperatura. Uma diferença positiva de energia no gráfico da figura (19), para qualquer uma das três curvas, se assemelha à situação mostrada na figura (20)(a): o posicionamento do nível, com energia menor que a de Fermi,

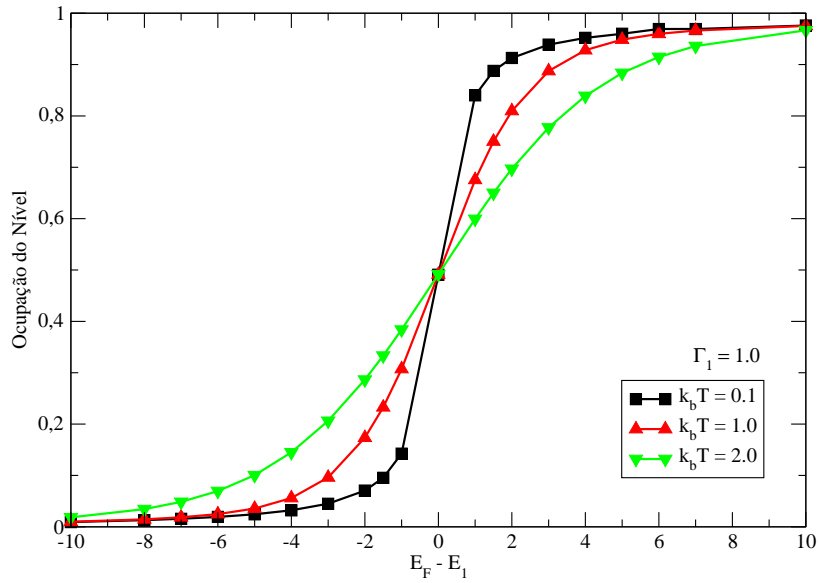


Figura 19: Ocupação do nível 1 em função da diferença energética $E_F - E_1$, para três temperaturas diferentes (cores).

favorece a ocupação do nível E_1 . Assim, quando a diferença cresce positivamente as curvas se aproximam de 1.0. O caso em que a diferença de energia é nula, pode ser comparado ao esquema (b) da figura (20), em que o nível E_1 está centrado em E_F . Tanto a entrada quanto a saída de elétrons são igualmente possíveis. Sendo assim, os valores de ocupação convergem para 0.5 - observe que a área azul (preenchidos) é igual a área clara (vazios). Finalmente, para uma diferença de energia negativa utilizamos o esquema (c) da figura (20) para ilustrar como seria determinada a ocupação do nível. Neste caso, a diferença negativa indica que o nível tem energia maior que a do nível de Fermi, o que favorece a saída de elétrons do nível para o reservatório: quando a diferença cresce negativamente as curvas se aproximam de 0.0 - indicando a desocupação do nível.

A figura (20) ajuda também a compreender os efeitos da temperatura sobre o sistema de acordo com o posicionamento dos níveis. Na figura (19), quando a diferença de energia entre os níveis é nula, as curvas convergem para o mesmo valor, independentemente da temperatura. Em (b) (figura (20)), percebemos que as regiões preta e vermelha possuem, aproximadamente, a mesma área. Devido à simetria da função de Fermi em torno de E_F , a medida que $k_B T$ aumenta a depopulação da área vermelha será compensada pelo aumento da ocupação da área preta. Portanto, o valor permanece inalterado.

Na figura (19) observamos que para $E_1 < E_F$ a ocupação cai com a temperatura. Isso ocorre porque a medida que $k_B T$ aumenta, os níveis abaixo de E_F tendem a se esvaziar. Ao contrário, para $E_1 > E_F$ a ocupação aumenta com $k_B T$. Isso ocorre porque os níveis eletrônicos acima de

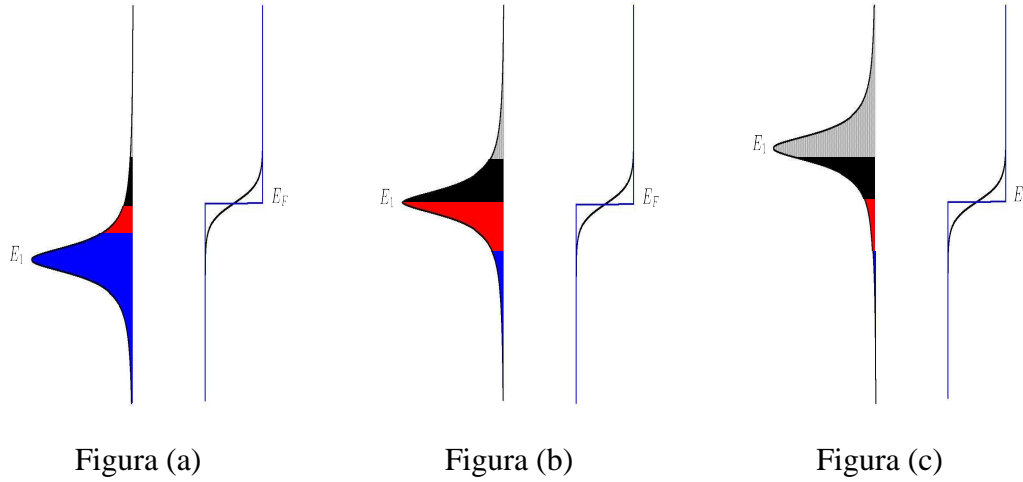


Figura 20: Esquema semelhante ao da figura (17) (página 55). Neste caso, a temperatura está fixa. A energia do nível, E_1 , aumenta de (a) para (c).

E_F tendem a se popular com o aumento da temperatura.

Com base nas discussões das seções 4.2 e 4.3 para sistemas mais simples: sem acoplamento a reservatórios ou sem aplicação de campo; passamos aos resultados para o sistema completo.

4.4 Ponto quântico semiconductor em uma estrutura de fotodiodo

O sistema considerado nestes resultados é formado por um PQ semiconductor inserido na estrutura de um fotodiodo. Um laser CW aplicado sobre a região em que o PQ está inserido gera uma corrente elétrica no circuito. Como discutido na introdução, diversos autores conseguiram observar oscilações coerentes na corrente, semelhantes às oscilações de Rabi para a ocupação, utilizando sistemas com PQs semelhantes ao considerado aqui (ver capítulo 2).

Todos os resultados apresentados foram obtidos numericamente via formalismo de funções de Green de não-equilíbrio. Estes resultados verificam a ocorrência de oscilações coerentes na evolução temporal da fotocorrente e da ocupação dos níveis no PQ. O aspecto mais importante de nossos resultados é a compreensão de efeitos térmicos sobre o sistema, que foi favorecida pelo formalismo utilizado.

Para observar estes efeitos térmicos tivemos de considerar duas configurações energéticas dos níveis no PQ em relação aos reservatórios. Na figura (21) são apresentadas estas duas configurações. O nível 1, na banda de valência do PQ se acopla ao reservatório da direita. Nos dois casos, este nível foi mantido na mesma posição em relação ao nível de Fermi ($E_1 =$

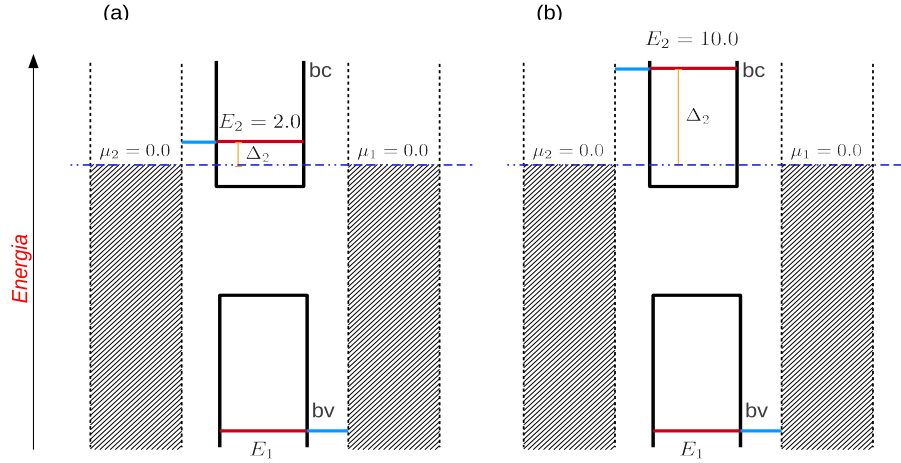


Figura 21: Configuração de níveis no PQ para o sistema completo. Definimos $\Delta_2 = E_2 - E_F$ (E_F é a energia de Fermi do reservatório da esquerda). Em (a), $\Delta_2 = 2.0$ e em (b) $\Delta_2 = 10.0$. A energia do nível 1 é mantida nos dois casos.

–20.0 e, portanto, com energia bem abaixo do nível de Fermi onde ocorrem os efeitos térmicos mais intensos). Em contrapartida, o nível 2, que se acopla ao reservatório da esquerda, foi considerado em duas situações: na figura (21)(a), está próximo ao nível de Fermi, com $E_2 = 2.0$ e em (b) está mais acima, com $E_2 = 10.0$. Como vimos na seção anterior, a posição do nível em relação a E_F determinará a intensidade dos efeitos térmicos. Para tornar mais simples a citação de cada uma das duas configurações, cujos respectivos resultados serão constantemente comparadas nestes capítulo, introduzimos a variável Δ_2 que é dada pela diferença entre a energia do nível 2 na configuração simulada e a energia de Fermi do reservatório 2 (ou à esquerda). Resumindo: na configuração (a) $\Delta_2 = 2.0$ e em (b) $\Delta_2 = 10.0$.

4.4.1 Ocupação eletrônica dos níveis

Nesta seção analisaremos a evolução temporal da ocupação dos níveis, para as duas configurações mostradas na figura (21).

Tomando a primeira configuração, (21) (a), apresentamos a figura (22), em que são mostradas as ocupações dos níveis em função do tempo, para quatro intensidades (γ) diferentes do laser incidido. Nos quatro casos [(a)-(d)], as temperaturas são indicadas pelas cores (ver legenda interna da figura). Adicionalmente, curvas contínuas indicam o nível 1 e tracejadas o nível 2.

Vale ressaltar que n_1 e n_2 são as populações eletrônicas dos níveis e, portanto, a soma $n_1 + n_2$ não está limitada a 1.0 no caso de um ponto quântico acoplado a reservatórios. No

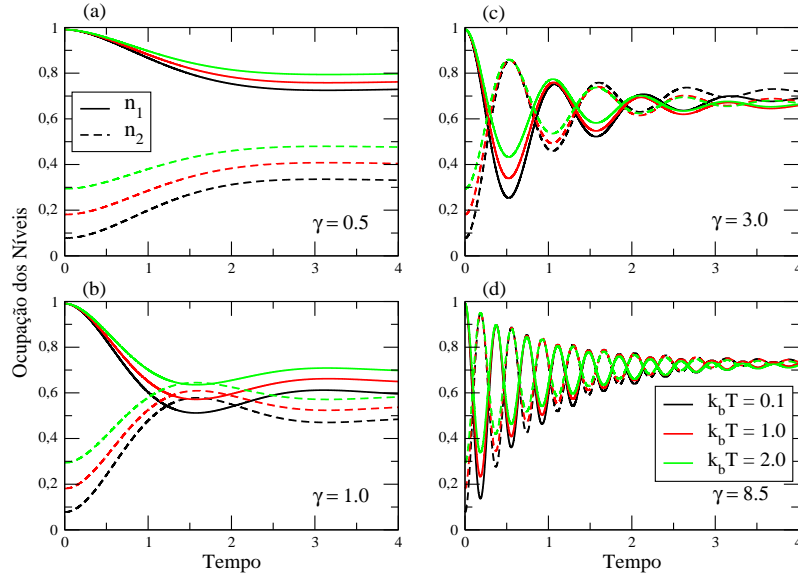


Figura 22: Ocupação eletrônica dos níveis como função do tempo, para o sistema completo, quando $\Delta_2 = 2.0$. As temperaturas diferentes são indicadas na legenda interna e as intensidades (γ) do laser são quatro: (a) 0.5; (b) 1.0; (c) 3.0; (d) 8.5.

caso particular já discutido (seção 4.2), de um ponto quântico isolado, temos $n_1 + n_2 = 1.0$, satisfazendo o critério de normalização da função de onda do sistema.

Nos gráficos mostrados de (a) a (d), o nível 1 está completamente preenchido em $t = 0$ s, independentemente da temperatura. De maneira oposta, os valores iniciais de ocupação do nível 2 variam de acordo com a temperatura em todas as figuras.

Como discutimos, através da figura (20)(a) da seção 4.3, para um nível muito abaixo do nível de Fermi, tal qual o nível 1, os efeitos da temperatura sobre a ocupação inicial são pouco sentidos. Considerando o tunelamento elástico, não é provável que os elétrons deixem o PQ para ocuparem estados de maior energia acima do nível de Fermi. Logo, a ocupação permanece em 1.0, independentemente da temperatura.

Para o nível 2, mais próximo ao nível de Fermi (lembrando que $\Delta_2 = 2.0$), a temperatura faz surgir diferenças nos valores de ocupação em $t = 0$. Como discutimos na seção anterior, a elevação da temperatura excita os elétrons em níveis de energia pouco abaixo de E_F , para estados logo acima. Como E_2 é ligeiramente maior que E_F , os elétrons têm certa probabilidade de tunelar para dentro do PQ e ocupar o nível 2.

Essa probabilidade será maior conforme a temperatura aumenta pois, mais estados acima do nível de Fermi serão ocupados termicamente. Assim a ocupação inicial do nível 2, é diferente

para temperaturas diferente. Além disso, como $\gamma = 0.0$ em $t = 0s$ para todos os gráficos [(a)-(d)], esses valores serão sempre os mesmos de acordo com a temperatura: para $k_B T = 0.1$, a ocupação inicial do nível 2 está em torno de 0.1; para $k_B T = 1.0$ é aproximadamente 0.2 e para $k_B T = 2.0$ a ocupação do nível se aproxima de 0.3.

Quando o laser é acionado e o sistema inicia sua evolução, as probabilidades de ocupação de cada estado se alternam entre valores máximos e mínimos, exibindo o caráter oscilatório reconhecido como Oscilações de Rabi. Essas oscilações porém não são perceptíveis para intensidades baixas do laser conforme observamos na figura (22)(a) devido à decoerência imposta pelo tunelamento. Assim como no sistema sem decoerência discutido na seção (4.2), neste resultado, o aumento da intensidade do laser de (a) para (d) também conduz a um aumento na frequência das oscilações de Rabi, conforme previsto na equação (3.70).

Para qualquer valor de γ , o aumento da temperatura reduz a amplitude das oscilações de Rabi. Esse amortecimento, de origem térmica, permanece até o aparente fim das oscilações. Devido à ocupação térmica do nível 2, a aplicação do princípio de exclusão de Pauli sugere que a probabilidade do elétron em 1 ser conduzido, opticamente, para o nível 2, é reduzida. Esse efeito será maior para maiores temperaturas pois, a população inicial do nível 2 cresce com $k_B T$. Logo, as curvas pretas, para menores temperaturas, terão as maiores amplitudes de oscilação. As curvas verdes, de temperatura maior, apresentam as menores amplitudes de oscilação. Dessa forma, percebemos como o valor inicial da ocupação do nível 2, diferente de zero, altera a dinâmica do sistema.

Apesar do aumento pronunciado na frequência das oscilações, a passagem dos portadores para os reservatórios, culminará na supressão das oscilações em determinado momento. Os níveis, portanto, atingirão uma população de equilíbrio. A grandeza que determina, de forma majoritária, o fim das oscilações é a taxa de tunelamento Γ . No caso da figura (22) essa taxa é a mesma em todos os casos [(a)-(d)]. Portanto, em média, as oscilações terminam ao mesmo tempo para todas as intensidades de γ .

Um último ponto a se destacar sobre os resultados da figura (22) são seus valores de equilíbrio. Em um sistema de dois níveis, sem decoerência, os valores máximos e mínimos das oscilações variam em torno de 0.5. Se a perda de coerência se dever apenas à taxa de tunelamento, e se essa taxa for a mesma para os dois reservatórios, os valores de ocupação também se equilibram em torno de 0.5. Para os resultados apresentados aqui, os valores estão se estabilizando em torno de 0.6. Dado o efeito da temperatura, de popular inicialmente o nível 2, este valor demonstra que o PQ está eletricamente carregado - poderia, ao contrário, estar neutro, se tivéssemos apenas um elétron na condução (carga negativa) e um buraco na valência (carga

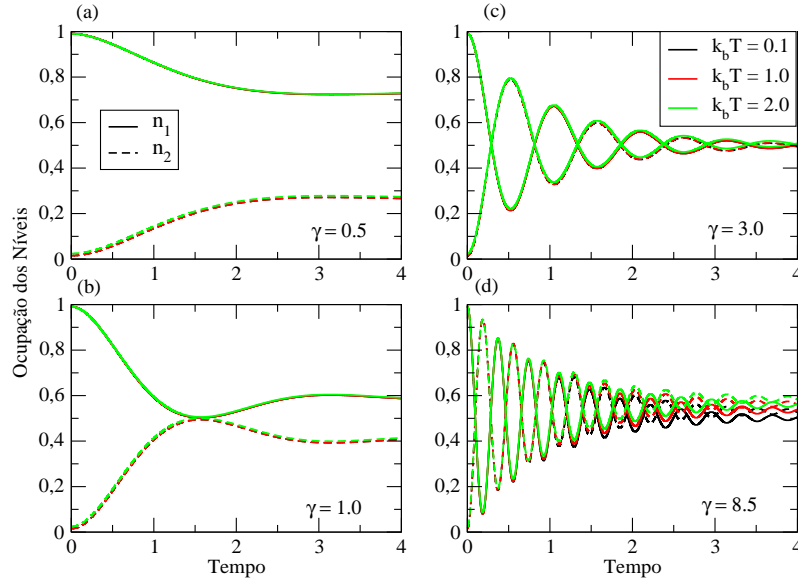


Figura 23: Ocupação eletrônica dos níveis como função do tempo, para o sistema completo, quando $\Delta_2 = 10.0$. As temperaturas diferentes são indicadas na legenda interna e as intensidades (γ) do laser são quatro: (a) 0.5; (b) 1.0; (c) 3.0; (d) 8.5, tal qual na figura (22).

positiva)).

Tomamos agora a configuração de níveis apresentada na figura (21)(b), com $\Delta_2 = 10.0$.

A figura (23) apresenta quatro gráficos da evolução temporal da ocupação dos níveis 1 e 2 para os mesmos valores de temperatura e γ da figura (22). As diferenças observadas entre as curvas das figuras (22) e (23) devem-se apenas ao posicionamento energético do nível 2, que na primeira figura tem energia $E_2 = 2.0$ e na segunda $E_2 = 10.0$.

Observando a figura (23), a primeira diferença para a figura (22) é que os valores de ocupação para o nível 2, em $t = 0$ s, não variam com $k_B T$. Como E_2 agora é muito maior que E_F , o aumento da temperatura não fornece energia suficiente para os elétrons do reservatório alcançarem o nível E_2 . Como o posicionamento do nível 1 não foi alterado, não esperaríamos obter nenhuma modificação na ocupação do nível 1 a $t = 0$, na comparação com a figura (22). De fato, todas as curvas de ocupação para o nível 1 iniciam-se em ≈ 1.0 .

De maneira semelhante, com a incidência da radiação, as oscilações de Rabi também são observadas. E, tal qual na figura (22), a frequência destas oscilações aumenta de acordo com o aumento de γ .

O tempo de decoerência observado nas figuras (22) e (23) são essencialmente os mesmos vistos que $\Gamma_1 = \Gamma_2 = 1.0$ em ambos os casos.

A característica mais importante deste resultado, no entanto, é o desaparecimento da dependência térmica na amplitude das oscilações. Não observamos separação entre as curvas de ocupação em função de $k_B T$, tanto para o nível 1 quanto para o nível 2. Dessa forma, está sendo demonstrado que o aumento da diferença $E_2 - E_F$ (ou de Δ_2) está suprimindo o efeito de amortecimento, causado pela temperatura, sobre a amplitude das oscilações de Rabi.

No item (d) da figura (23), observamos uma ligeira dependência na amplitude das curvas com $k_B T$. Este efeito está relacionado ao alto valor de γ utilizado em (d). Com o intuito de investigar este efeito, vamos observar o comportamento dos valores estacionários da corrente, como função de γ , para as duas posições do nível 2.

4.4.2 Fotocorrente

A fotocorrente em nosso formalismo (3.31) é uma diferença entre dois termos. O termo que contém a função de Fermi relaciona-se a uma corrente de entrada no PQ, de origem térmica. Trataremos esta contribuição como corrente ‘In’ (I_{in}) - do inglês *Incoming*. O outro termo refere-se à corrente elétrica que sai do PQ, relacionada à depopulação do nível. Chamamos esta corrente de ‘out’ (I_{out}) - de *Outgoing*.

Para um tempo suficientemente longo ($t = 9.0$), construímos dois gráficos da corrente em função de γ (figura (24)). São mostrados também os valores estacionários da ocupação do nível 2 e das contribuições ‘in’ e ‘out’ da corrente. Os resultados consideram três valores de temperatura. Em (a) $\Delta_2 = 2.0$. Em (b) $\Delta_2 = 10.0$.

No gráfico da figura (24)(a), observamos que I_{out} , em vermelho, reflete o comportamento da ocupação do nível 2, em laranja. Essa ocupação aumenta com γ . A corrente I_{in} , por outro lado, cresce suavemente para $\gamma < \Delta_2$, para baixas temperaturas ($k_B T = 0.1$). Em torno de $\gamma \approx 2.0$, I_{in} apresenta um crescimento acentuado seguido de uma saturação. Esse aumento súbito de I_{in} pode ser entendido observando-se a figura (25) (a).

É sabido que na presença de um campo óptico intenso o estado E_2 se desdobra em um dubleto ((31) e (32)). A medida que a intensidade do campo aumenta, o desdobramento do nível 2 leva a uma ressonância entre o nível de Fermi do reservatório e o nível $E_2 - \gamma$. Com isso, I_{in} cresce significativamente em torno de $\gamma \approx 2.0$, visto que $\Delta_2 = 2.0$. Decorrente desse aumento súbito de I_{in} , em torno de $\gamma = 2.0$, a fotocorrente apresenta uma queda de seu valor, em módulo. Após essa supressão, a fotocorrente atinge um valor de saturação correspondente aos platôs de I_{in} e I_{out} .

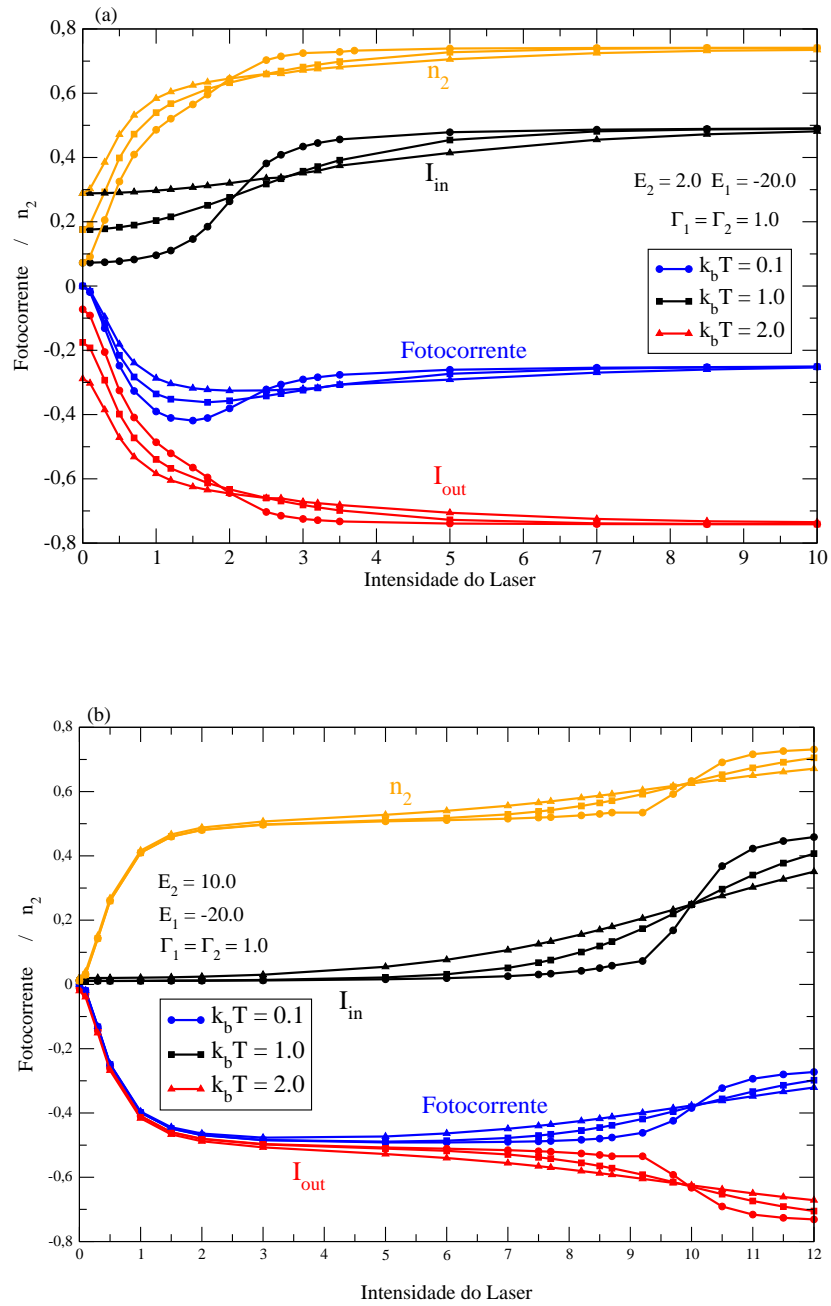


Figura 24: Curvas estacionárias como função de γ para: fotocorrente (azul), I_{in} (preto), I_{out} (vermelho) e ocupação do nível 2 (laranja). Os valores utilizados para $k_b T$ estão identificados pelos símbolos (legenda interna). Em (a) $\Delta_2 = 2.0$ e em (b) $\Delta_2 = 10.0$.

Com relação a temperatura, a medida que $k_B T$ aumenta, tanto I_{in} como I_{out} aumentam, em valores absolutos, para $\gamma < \Delta_2$. Como E_2 é ligeiramente maior que E_F , com o aumento de $k_B T$ a ocupação do nível 2 cresce pois, mais elétrons termicamente excitados conseguem tunelar para dentro do PQ. Com o aumento do fluxo de carga para o interior do PQ a corrente I_{in} aumenta. Além disso, como a componente I_{out} é proporcional a ocupação n_2 , seu valor absoluto também sobe.

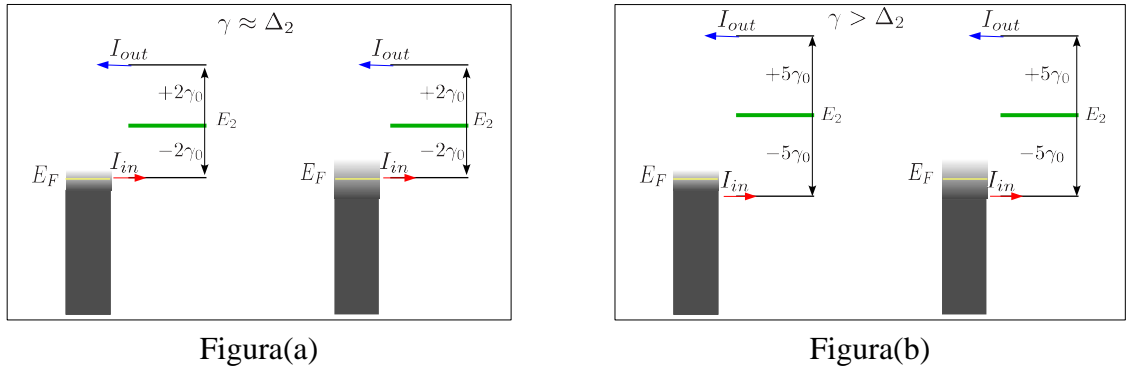


Figura 25: (Esquemas) Relação da corrente I_{in} com a temperatura do reservatório 2. O acoplamento da radiação com a matéria provoca o desdobramento do nível 2 em um dubleto (combinação de níveis em $E_2 \pm \gamma$). Na figura (a), $\gamma \approx \Delta_2$. Em (b) $\gamma > \Delta_2$. Nos dois esquemas $\Delta_2 = 2.0$.

Para $\gamma > \Delta_2$ temos o efeito contrário, isto é, as correntes diminuem, em valores absolutos, a medida que a temperatura sobe. Vale observar que nesse regime de γ , o canal $E_2 - \gamma$ encontra-se por baixo de E_F . Com isso, a elevação de $k_B T$ leva a uma ligeira depopulação do canal, fazendo a ocupação n_2 cair. A figura (25) (b) ilustra bem esse efeito. Com o aumento de $k_B T$, a ocupação eletrônica no reservatório em torno da energia $E_2 - \gamma < E_F$ cai, suprimindo a corrente I_{in} . O comportamento de n_2 com a temperatura reflete-se na corrente I_{out} em virtude da proporcionalidade entre essas duas grandezas.

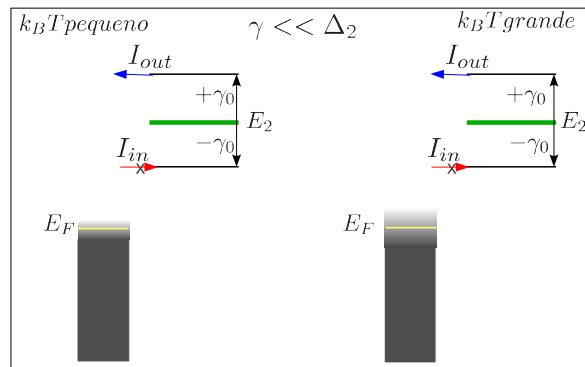


Figura 26: (Esquema) Relação da corrente I_{in} com a temperatura do reservatório 2. Na figura, $\gamma \ll \Delta_2$ e $\Delta_2 = 10.0$.

Enquanto na figura (24)(a) temos E_2 apenas ligeiramente acima de E_F , na figura (24)(b) analisamos o caso $E_2 = 10 \gg E_F$. Nesse regime, os efeitos térmicos só se manifestam para $\gamma \gtrsim 5$. Para $\gamma < 5$ a corrente I_{in} é aproximadamente zero, enquanto I_{out} cresce em módulo com a intensidade do laser, refletindo o comportamento de n_2 . A fotocorrente nesse caso é dada basicamente por I_{out} . No esquema mostrado na figura (26) podemos observar como a corrente de entrada deixa de ser relevante se $\gamma \ll \Delta_2$. Com o aumento de γ , o dubleto inferior $E_2 - \gamma$ começa a se aproximar de E_F . Desse modo, elétrons termicamente excitados começam a “enxergar” este canal, favorecendo o tunelamento de elétrons do reservatório para o PQ e, conseqüentemente, elevando I_{in} . Com o aumento de γ , a ressonância $E_2 - \gamma = E_F$ é eventualmente atingida fazendo com que I_{in} suba rapidamente em torno de $\gamma = 10.0$ seguindo a física discutida na figura (24).

Agora que o papel de γ na dinâmica dos níveis foi compreendido, analisaremos os resultados em que a fotocorrente é descrita como função do tempo. Novamente, os resultados são apresentados de acordo com a configuração de níveis utilizada (figura (21)).

Para o caso em que a energia do nível 2 é próxima a E_F (caso da figura (21)(a)), a evolução temporal da fotocorrente é apresentada na figura (27) (b) (página 68), para três temperaturas diferentes e um valor particular de γ . No painel (a) da figura (27), a ocupação dos níveis é apresentada novamente com o intuito de auxiliar na explanação.

De modo geral, as curvas de fotocorrente na figura (27)(b) acompanham o padrão de evolução das curvas de ocupação para o nível 2, em (a). Esse comportamento era esperado e, é justificado, pelo fato de que a fotocorrente é calculada considerando-se exatamente o fluxo de portadores entre o nível 2 e o reservatório, portanto, deve acompanhar a depopulação/população deste nível.

A fotocorrente apresenta oscilações com picos coincidindo (em módulo) com os máximos de ocupação do nível 2 (ver $t \approx 0.25$, por exemplo). Nos mínimos de n_2 (por exemplo, $t \approx 0.5$), em que as ocupações apresentam separação de acordo com a temperatura, a fotocorrente apresenta seus valores mínimos, em módulo, também separados de acordo com a temperatura. A fotocorrente atinge um valor de equilíbrio não-nulo ao mesmo tempo em que o equilíbrio populacional dos níveis é atingido. Verificamos que, para temperaturas maiores, a amplitude das oscilações é menor, tal qual ocorre para as ocupações.

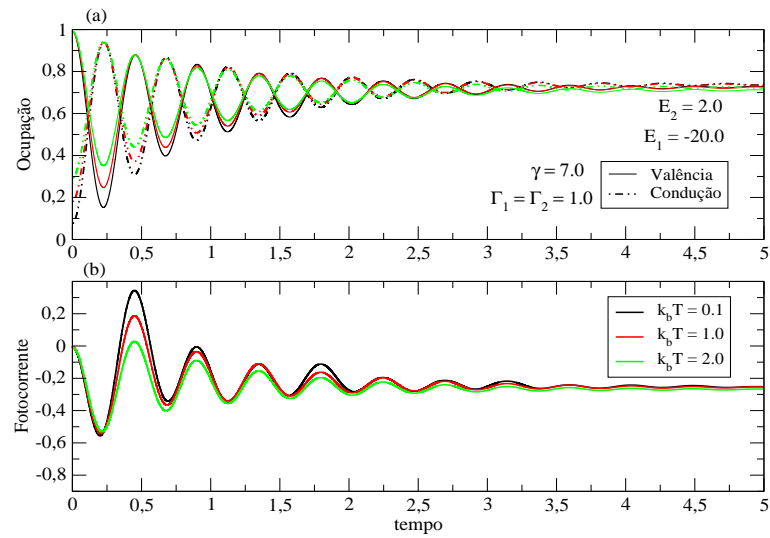


Figura 27: Evolução temporal da (a) ocupação eletrônica dos níveis 1 e 2 e (b) fotocorrente. As temperaturas são indicadas pelas cores em (a) e (b). Aqui: $\Delta_2 = 2.0$ e $\gamma = 7.0$.

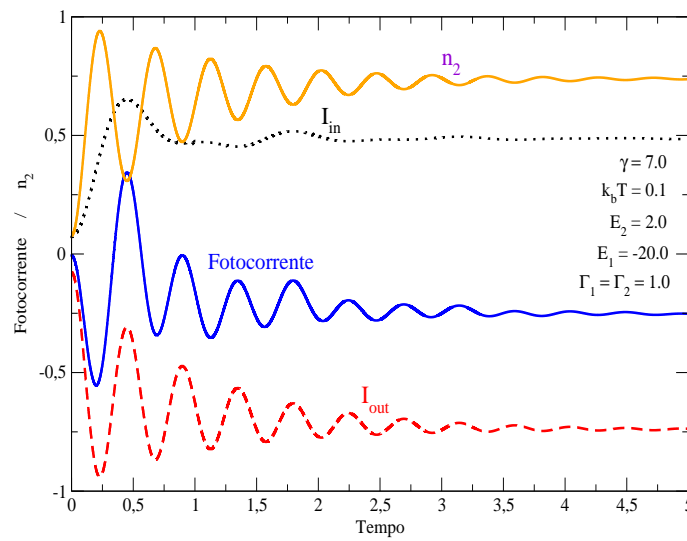


Figura 28: Fotocorrente em função do tempo (azul); I_{in} (preto); I_{out} (vermelho) e ocupação do nível 2 (n_2) (laranja). Parâmetros: $\Delta_2 = 2.0$, $\gamma = 7.0$ e $k_B T = 0.1$.

É interessante notar que, para tempos menores que $t = 1.0$, a fotocorrente que, pela convenção adotada é negativa, nas curvas com menor $k_B T$, atinge picos positivos. Isto sugere que, neste intervalo, a corrente de entrada (I_{in}) está superando a corrente de saída (I_{out}). Para observar melhor este efeito, apresentamos a figura (28) em que são mostradas as contribuições das correntes I_{in} e I_{out} para a corrente total (fotocorrente) em função do tempo. Adicionalmente é mostrada a ocupação do nível 2.

A fotocorrente representada pela linha azul na figura (28) é a mesma mostrada na figura (27)(b) pela linha preta. Assim como nos casos em função de γ (figura (24)), I_{out} reflete a evolução da curva de ocupação do nível 2.

Atentando para o fato de que o valor de γ nas figuras (27) e (28) é maior que a diferença $E_F - E_2$, sabemos da discussão sobre a figura (24)(a), que I_{in} será maior para menores valores de $k_B T$. Este fato se comprova na observação da figura (28) em que I_{in} atinge um valor muito alto, tanto que supera I_{out} , trazendo a fotocorrente para um valor positivo.

Temos agora duas figuras em paralelo com as anteriores, (27) e (28). Para o caso em que $\Delta_2 = 10.0$, (figura (21)(b)), apresentamos novamente a evolução temporal da fotocorrente em (29)(b) (página 70), para três temperaturas diferentes. Na figura (29)(a) as ocupações são apresentadas para auxiliar o entendimento da dinâmica.

Inicialmente percebemos que para este valor de γ , dada a configuração de níveis, os efeitos de temperatura são pouco visíveis. Aqui, o sistema ainda se encontra no regime de $\gamma < \Delta_2$. Logo, a curva de maior temperatura (verde) aparece um pouco acima das demais, indicando uma fotocorrente ligeiramente menor. Opostamente ao que foi discutido para a figura (27)(b), os valores mínimos da fotocorrente neste caso estão bem acima dos anteriores. Adicionalmente, o pico máximo da fotocorrente aqui atinge um valor ≈ -0.8 em comparação ao valor máximo da fotocorrente na figura (27) que não ultrapassa -0.6 . Se olharmos para as curvas de ocupação na figura (29)(a) vemos que, novamente, a fotocorrente acompanha também o perfil de ocupação do nível 2.

As contribuições In e Out da fotocorrente, para $\Delta_2 = 10.0$, são mostradas na figura (30). Aqui mostramos a curva de maior temperatura do gráfico anterior. Para esta intensidade do laser, $\gamma = 7.0$, observamos como a corrente de entrada não está contribuindo significativamente com a corrente total por ser muito pequena. Portanto, a fotocorrente (azul) praticamente acompanha, em toda a sua evolução, o comportamento de I_{out} . Esse comportamento era esperado porque, aumentando a energia do nível 2, diminuimos o acesso dos elétrons do reservatório ao nível, via temperatura, mesmo para essa intensidade do laser. Essa, como discutimos, ainda não é suficiente para colocar o pico satélite inferior em ressonância com elétrons do reservatório.

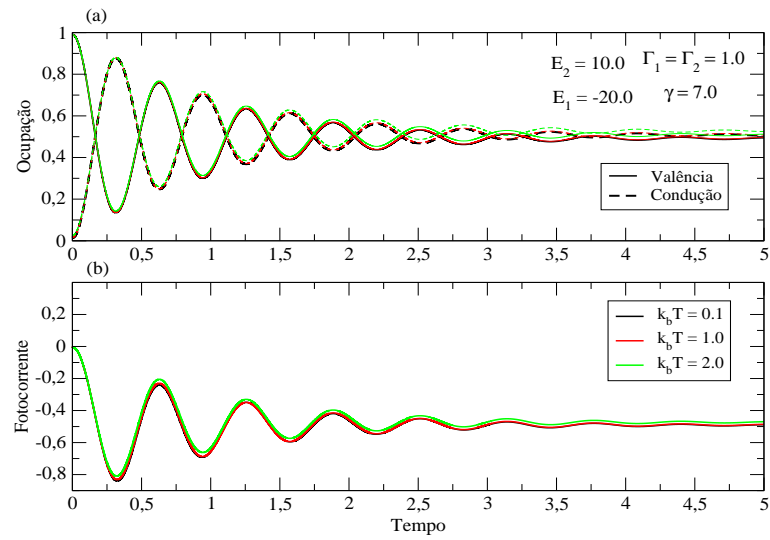


Figura 29: (a) Ocupação eletrônica dos níveis e (b) fotocorrente, em função do tempo, para três temperaturas diferentes (cores), com $\Delta_2 = 10.0$ e $\gamma = 7.0$.

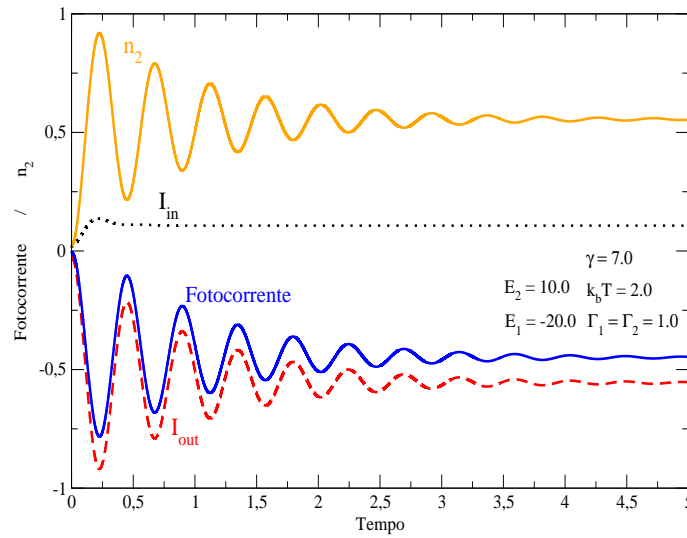


Figura 30: Fotocorrente em função do tempo (azul); I_{in} (preto); I_{out} (vermelho) e ocupação do nível 2 (n_2) (laranja). Parâmetros: $\Delta_2 = 10.0$, $\gamma = 7.0$ e $k_B T = 2.0$.

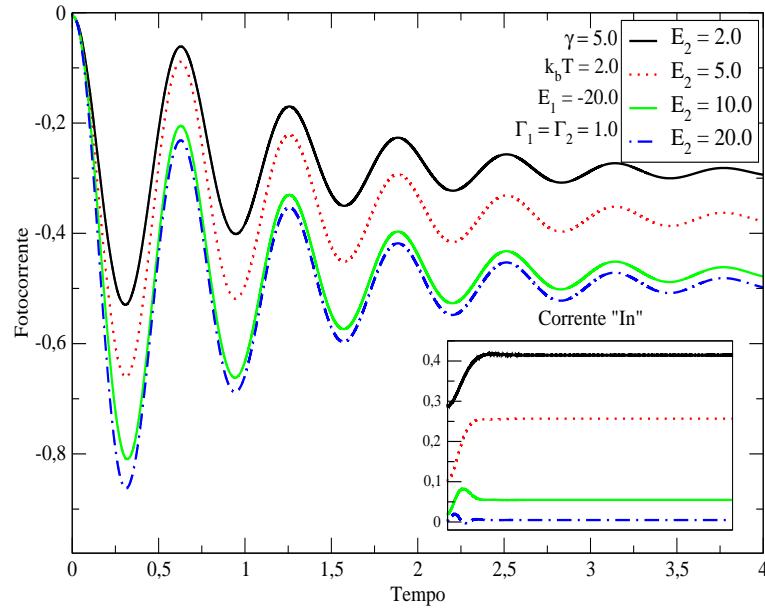


Figura 31: Fotocorrente em função do tempo para diferentes energias do nível 2. No inset, é mostrada I_{in} como função do tempo, para cada valor de energia do nível 2. Parâmetros: $k_B T = 2.0$ e $\gamma = 5.0$.

Para concluir as discussões sobre a influência da configuração de níveis sobre os efeitos térmicos na fotocorrente, apresentamos a figura (31). Esta figura mostra a fotocorrente variando no tempo, como função de quatro valores de energia do nível 2. As oscilações na fotocorrente, apresentam máximos com valores maiores, para os casos em que o nível 2 tem energia bem maior que a de Fermi (os valores aumentam, em valores absolutos da curva preta para a azul). O inset justifica esse comportamento, mostrando como a corrente de entrada no PQ é reduzida com o aumento de E_2 .

Finalmente, como um último resultado, apresentamos na figura (32) a transformada de Fourier da fotocorrente, para três temperaturas diferentes, quando $\gamma = 7.0$. Em (a) $\Delta_2 = 2.0$ e em (b) $\Delta_2 = 10.0$. O objetivo desta figura é ilustrar uma possível aplicação dos efeitos observados nos resultados deste trabalho.

Em geral, ao estudarmos as propriedades de um sistema físico, seja por via teórica ou experimental, tentamos evitar o surgimento de efeitos térmicos sobre o sistema pois eles tendem a atrapalhar a observação de outros efeitos. No caso deste trabalho isso se verifica, principalmente, por estarmos estudando a temperatura como mecanismo de ampliação da decoerência de um sistemas quântico.

No entanto, a temperatura é uma variável presente em praticamente todos os sistemas reais, clássicos ou quânticos e, por muitas vezes, medi-la é um desafio. Aparentemente, o fato de po-

dermos medir (teórica e experimentalmente) a fotocorrente neste sistema de fotodiodo sugere a possibilidade de criarmos uma maneira de aferir a temperatura dos reservatórios nestes sistemas mesóscopos.

No item (a) da figura (32), é mostrada a transformada para o caso em que $\Delta_2 = 2.0$ e, como vimos no estudo realizado, os efeitos térmicos sobre a fotocorrente são evidenciados. Em (32)(b), é mostrada a transformada para uma corrente em função do tempo quando $\Delta_2 = 10.0$. Em (a) aparecem três picos, de alturas distintas. Em (b), os três picos caem uns sobre os outros, considerando-se a mesma escala de (a). Podemos traçar uma relação entre a temperatura do reservatório e a amplitude dos picos no espectro de Fourier no caso (a). Vale citar que a amplitude de picos de condutância em pontos quânticos já é utilizada, corriqueiramente, como medida indireta de temperatura de reservatórios em um dispositivo conhecido como “termômetro de Bloqueio de Coulomb” (44).

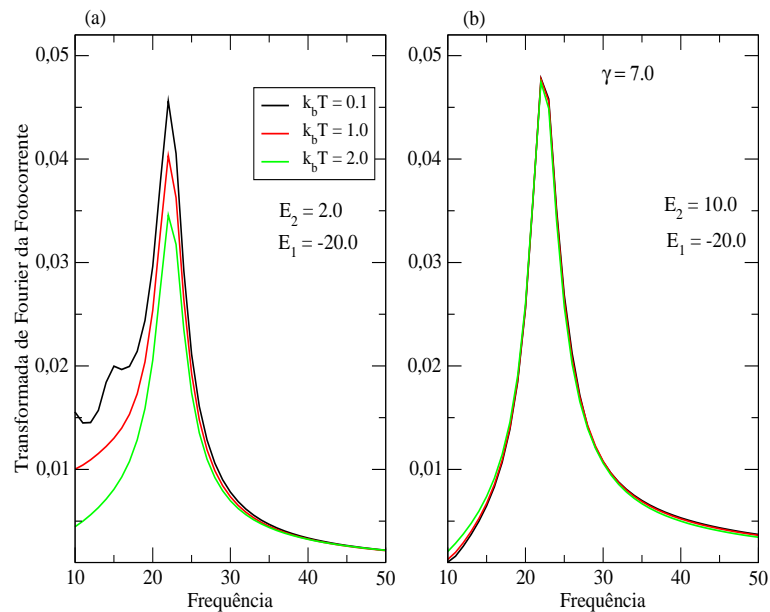


Figura 32: Transformada de Fourier da fotocorrente para as configurações de níveis (a) $\Delta_2 = 2.0$ e, (b) $\Delta_2 = 10.0$, em função de três temperaturas diferentes (indicadas na legenda interna da figura). Em (a) e (b), $\gamma = 7.0$.

5 *Conclusões*

Neste trabalho estudamos transporte quântico em pontos quânticos semicondutores acoplados a reservatórios na presença de uma radiação eletromagnética. Nossos cálculos utilizaram a técnica de funções de Green de não-equilíbrio. Com esse formalismo foi possível analisar os efeitos térmicos sobre o transporte. Mais especificamente, calculamos ocupação e corrente elétrica como função do tempo e da intensidade do laser. Iniciamos o estudo com dois modelos simplificados: (i) sistema de dois níveis na presença de radiação e sem acoplamento com reservatórios e (ii) um nível acoplado a um reservatório sem incidência de laser. Tais modelos particulares serviram de base para o entendimento físico do sistema completo, isto é, dois níveis acoplados a reservatórios e interagentes com um campo de radiação.

Nossos principais resultados incluem dependência térmica das amplitudes das oscilações de Rabi. A medida que a temperatura aumenta nos reservatórios o nível excitado do ponto quântico começa a ser termicamente populado. Isso torna a transição da banda de valência para a banda de condução mais improvável, devido ao bloqueio de Pauli. Consequentemente, a amplitude da oscilação de Rabi tende a diminuir. Esse efeito também é observado na fotocorrente, que apresenta uma supressão na sua amplitude de oscilação com o aumento de $k_B T$. Os efeitos térmicos são mais apreciáveis quando γ (intensidade do laser) é da ordem da separação energética entre o potencial químico do reservatório e o nível da banda de condução do ponto quântico. Além disso, as amplitudes de oscilação da ocupação e da fotocorrente decrescem ao longo da evolução temporal. Esse decaimento se deve ao tunelamento incoerente entre ponto quântico e reservatórios.

Observamos ainda uma competição entre a corrente fotoinduzida e a corrente termicamente ativada. Essa competição resulta num valor absoluto máximo da fotocorrente quando a intensidade do laser é comparável à diferença entre o nível de Fermi do reservatório e o nível do ponto quântico. Esse efeito de maximização da fotocorrente porém, desaparece a medida que a temperatura aumenta. Quando a diferença $E_2 - E_F$ é bem maior que $k_B T$ e γ é suficientemente pequeno, os efeitos térmicos são suprimidos, resultando no comportamento padrão da fotocorrente.

As perspectivas futuras desse trabalho consistem no cálculo de transporte na presença de pulsos de laser e também a inclusão de interações de muitos corpos, tais como a interação de Coulomb. O caso particular de um pulso delta, que foi iniciado no presente trabalho também será alvo de maiores investigações.

Referências Bibliográficas

- 1 FU, H.-H.; YAO, K.-L. Fano antiresonance and perfect spin-filtering in a diamondlike quantum network device: nonequilibrium Green's function approach. *Journal Of Applied Physics*, v. 111, p. 094512, 2012.
- 2 HU, X. Two-spin dephasing by electron-phonon interaction in semiconductor double quantum dots. *Physical Review B*, v. 83, p. 165322, 2011.
- 3 BORRI, P. et al. Coherent light-matter interaction in InGaAs quantum dots : Dephasing time and optical rabi oscillations. *Physica Status Solidi b*, v. 233, n. 3, p. 391–400, 2002.
- 4 JANG, E. et al. White-light-emitting diodes with quantum dot color converters for display backlights. *Advanced Materials*, v. 22, p. 3076–3080, 2010.
- 5 BENNY, Y. et al. Coherent optical writing and reading of the exciton spin state in single quantum dots. *Physical Review Letters*, v. 106, p. 040504, January 2011.
- 6 HEWSON, A. C. *The Kondo problem to heavy fermions*. [S.l.]: Cambridge University Press, 1997. (Cambridge Studies in Magnetism: 2).
- 7 WEYMANN, I.; BORDA, L. Underscreened Kondo effect in quantum dots coupled to ferromagnetic leads. *Physical Review B*, v. 81, p. 115445, 2010.
- 8 SERIDONIO, A. C.; SOUZA, F. M.; SHELKHY, I. A. Spin-polarized stm for a Kondo adatom. *Journal Of Physics: Condensed Matter*, v. 21, p. 095003, 2009.
- 9 FERREIRA, I. L. et al. Capacitively coupled double quantum dot system in the Kondo regime. *Physical Review B*, v. 84, p. 205320, 2011.
- 10 BEDNAREK, S.; PAWLOWSKI, J.; SKUBIS, A. Manipulation of a single electron spin in a quantum dot without magnetic field. *Applied Physics Letters*, v. 100, p. 203103, 2012.
- 11 NAZMITDINOV, R. G.; CHIZHOV, A. V. Quantum entanglement in a two-electron quantum dot in magnetic field. *Optics and Spectroscopy*, v. 112, n. 3, p. 319–322, 2012.
- 12 BULUTA, I.; ASHHAB, S.; NORI, F. Natural and artificial atoms for quantum computation. *Reports on Progress in Physics*, v. 74, p. 104401 (16pp), 2011.
- 13 LOSS, D.; DIVICENZO, D. P. Quantum computation with quantum dots. *Physical Review A*, v. 57, n. 120, 1998.
- 14 ELZERMAN, J. M. et al. Single-shot read-out of an individual electron spin in a quantum dot. *Nature*, v. 430, p. 431, 2004.
- 15 BORGES, H. S. et al. Robust states in semiconductor quantum dot molecules. *Physical Review B*, v. 81, p. 075322, 2010.

- 16 SAKURAI, J. J. *Modern Quantum Mechanics*. Revised. [S.l.]: Addison-Wesley Publishing Company, 1994. 500 p.
- 17 VILLAS-BÔAS, J.; ULLOA, S.; GOVOROV, A. O. Decoherence of Rabi oscillations in a single quantum dot. *Physical Review Letters*, v. 94, n. 057404, p. 057404, 2005.
- 18 MCCAMEY, D. R. et al. Spin Rabi flopping in the photocurrent of a polymer light-emitting diode. *Nature Materials*, v. 7, p. 723, September 2008.
- 19 ZRENNER, A. et al. Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode. *Nature*, v. 418, p. 612 – 614, August 2002.
- 20 VILLAS-BÔAS, J. M.; GOVOROV, A. O.; ULLOA, S. E. Spin polarized photocurrent from quantum dots. *Physical Review B*, v. 75, p. 155334, 2007.
- 21 VILLAS-BÔAS, J. M.; GOVOROV, A. O.; ULLOA, S. E. Coherent control of tunneling in a quantum dot molecule. *Physical Review B*, v. 69, n. 125342, p. 1–4, March 2004.
- 22 BOHR, N. On the constitution of atoms and molecules. *Philos. Mag.*, v. 26, n. 1, p. 24, 1913.
- 23 REZENDE, S. M. *Materiais e Dispositivos Eletrônicos*. 2. ed.. ed. São Paulo: Editora Livraria da Física, 2004. 547 p.
- 24 STOKES, E. B.; STIFF-ROBERTS, A. D.; DAMERON, C. T. Quantum dots in semiconductor optoelectronic devices. *The Electrochemical Society Interface*, p. 23, Winter 2006.
- 25 REISS, P.; PROTIERE, M.; LI, L. Core/shell semiconductor nanocrystals. *Small Journal*, v. 5, n. 2, p. 154–168, 2009.
- 26 BERA, D. et al. Quantum dots and their multimodal applications: A review. *Materials*, v. 3, n. 4, p. 2260–2345, 2010.
- 27 DATTA, S. *Quantum Transport: Atom to Transistor*. Nova York: Cambridge University Press, 2005. 418 p.
- 28 AWSCHALOM, D. D.; KIKKAWA, J. M. Electron spin and optical coherence in semiconductors. *Physics Today*, v. 55, p. 33–39, 1999.
- 29 THOMAS, P.; KOCH, S. W.; MEIER, T. *Coherent Semiconductor Optics. From Basic Concepts to Nanostructure Applications*. [S.l.]: Springer, 2007. 321 p.
- 30 BORGES, H. S. *Controle coerente de estados quânticos em nanoestruturas semicondutoras*. Dissertação (Mestrado) — Universidade Federal de Uberlândia, Uberlândia, 2010.
- 31 MOLLOW, B. R. Power spectrum of light scattered by two-level systems. *The Physical Review*, v. 188, n. 5, p. 1969–1975, December 1969.
- 32 KAMADA, H. et al. Exciton Rabi oscillation in a single quantum dot. *Physical Review Letters*, v. 87, n. 24, p. 4, November 2001.

- 33 FETTER, A. L.; WALECKA, J. D. *Quantum Theory of Many-Particle Systems*. Nova York: McGraw - Hill Book Company, 1991.
- 34 BRUUS, H.; FLENSBERG, K. *Introduction to Many-body Quantum Theory in Condensed Matter Physics*. New York: Oxford University Press, 2002. 352 p.
- 35 HAUG, H. J. W.; JAUHO, A.-P. *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors*. Second, substantially revised. [S.l.]: Springer, 2008. 360 p. (Springer Series in Solid-State Sciences 123).
- 36 LIMA, I. C. C. *Manual Prático de Funções de Green em Física da Matéria Condensada*. [S.l.], 2011.
- 37 VENTRA, M. D. *Electrical Transport In Nanoscale Systems*. [S.l.]: Cambridge University Press, 2008. 493 p.
- 38 TAKAGAHARA, T. Theory of exciton coherence and decoherence in semiconductor quantum dots. *Physica Status Solidi B*, v. 234, p. 115–119, 2002.
- 39 CHEN, P.; PIERMAROCCHI, C.; SHAM, L. J. Control of exciton dynamics in nanodots for quantum operations. *Physical Review Letters*, v. 87, p. 067401, July 2001.
- 40 MATTIOLI, G. et al. Theoretical design of coupled organic-inorganic systems. *Physical Review Letters*, v. 101, p. 126805, September 2008.
- 41 NERO, J. D.; SOUZA, F. M. de; CAPAZ, R. B. Molecular electronics devices: Short review. *Journal of Computational and Theoretical Nanoscience*, v. 7, n. 3, p. 503, 2010.
- 42 COHEN-TANNOUDJI, C.; DIU, B.; LALOE, F. *Quantum Mechanics*. [S.l.]: John Wiley, 1977. 914 p.
- 43 MAR, J. D. et al. Electrically tunable hole tunnelling from a single self-assembled quantum dot embedded in an n-i-Schottky photovoltaic cell. *Applied Physics Letters*, v. 99, p. 031102, 2011.
- 44 KAUPPINEN, J. P. et al. Coulomb blockade thermometer: Tests and instrumentation. *Review of Scientific Instruments*, v. 69, n. 12, p. 4166, September 1998.
- 45 SCHERER, C. *Métodos computacionais da física*. 1. ed.. ed. [S.l.]: Editora Livraria da Física, 2005.
- 46 PRESS, W. H. et al. *Numerical Recipes in C*. Second. [S.l.]: Cambridge University Press, 1992. The Art of Scientific Computing.

APÊNDICE A – Expressão da função de Green retardada para um laser com pulso $\delta(t)$

Nesse apêndice, encontramos uma expressão para a função de Green retardada, quando a radiação incidente no ponto quântico do fotodiodo é descrita por um pulso de laser tipo delta. Escrevemos a função de Green correspondente da função retardada, na forma com ordenamento temporal. Derivando essa equação e apresentando-a na forma integral, estamos resumindo vários passos matemáticos que foram repetidos, exaustivamente, no capítulo 3:

$$\begin{aligned}
 G_{22}(tt') &= -i\langle T d_2(t) d_2^\dagger(t') \rangle \\
 i\frac{\partial}{\partial t} G_{22}(tt') &= \delta(t-t') + \langle T \dot{d}_2(t) d_2^\dagger(t') \rangle \\
 (i\frac{\partial}{\partial t} - \varepsilon_2) G_{22}(tt') &= \delta(t-t') + \sum_{k_2} t_2^* G_{k_22}(tt') + E^*(t) G_{12} \\
 G_{22}(tt') &= g_2(tt') + \sum_{k_2} t_2^* \int dt_1 g_2(tt_1) G_{k_22}(t_1 t') + \int dt_1 g_2(tt_1) E^*(t_1) G_{12}(t_1 t')
 \end{aligned} \tag{A.1}$$

Repetindo o processo matemático utilizado anteriormente, a função G_{k_22} fica:

$$\begin{aligned}
 G_{k_22}(tt') &= -i\langle T d_{k_2}(t) d_2^\dagger(t') \rangle \\
 i\frac{\partial}{\partial t} G_{k_22}(tt') &= \langle T \dot{d}_{k_2}(t) d_2^\dagger(t') \rangle \\
 (i\frac{\partial}{\partial t} - \varepsilon_{k_2}) G_{k_22}(tt') &= t_2 G_{22}(tt') \\
 G_{k_22}(tt') &= t_2 \int dt_1 g_{k_2}(tt_1) G_{22}(t_1 t')
 \end{aligned} \tag{A.2}$$

Esta equação é substituída em (A.1) de modo que:

$$G_{22}(tt') = g_2(tt') + \sum_{k_2} t_2^* t_2 \int \int dt_1 dt_2 g_2(tt_1) g_{k_2}(t_1 t_2) G_{22}(t_2 t') + \int dt_1 g_2(tt_1) E^*(t_1) G_{12}(t_1 t') \quad (\text{A.3})$$

Dos vários termos a serem conhecidos na expressão (A.3), começamos explicitando $G_{12}(tt')$, na forma integral:

$$G_{12}(tt') = \sum_{k_1} t_1^* \int dt_1 g_1(tt_1) G_{k_1 2}(t_1 t') + \int dt_1 g_1(tt_1) E(t_1) G_{22}(t_1 t') \quad (\text{A.4})$$

Neste caso, similarmente, $G_{k_1 2}(t_1 t')$:

$$G_{k_1 2}(t_1 t') = t_1 \int dt_2 g_{k_1}(t_1 t_2) G_{12}(t_2 t') \quad (\text{A.5})$$

Este resultado é substituído na equação (A.4). Esta, por sua vez, através do procedimento de continuação analítica, é convertida em uma função de Green Retardada:

$$G_{12}^r(tt') = \sum_{k_1} t_1^* t_1 \int \int dt_1 dt_2 g_1^r(tt_1) g_{k_1}^r(t_1 t_2) G_{12}^r(t_2 t') + \int dt_1 g_1^r(tt_1) E(t_1) G_{22}^r(t_1 t') \quad (\text{A.6})$$

Aqui, o procedimento diferirá do que foi utilizado no capítulo 3. Com o intuito de ir o mais longe possível em nosso resultado analítico (ao invés de utilizar o sistema de equações diferenciais acopladas), utilizaremos processos de iteração para obter uma expressão mais compacta de G_{12}^r (e de outras funções de Green que surgirão a seguir). Assim, iterando duas vezes a expressão (A.6) - processo aqui omitido por questão de espaço - escrevemos a referida função na forma:

$$G_{12}^r(tt') = \int d\tilde{t} \tilde{g}_1^r(\tilde{t}) E(\tilde{t}) G_{22}^r(\tilde{t} t') \quad (\text{A.7})$$

Na equação (A.7), a função de Green $\tilde{g}_1^r(\tilde{t})$ é dada por uma equação de Dyson:

$$\bar{g}_1^r(t\tilde{t}) = g_1^r(t\tilde{t}) + \int \int dt_1 dt_2 g_1^r(tt_1) \Sigma_1^r(t_1 t_2) \bar{g}_1^r(t_2 \tilde{t}) \quad (\text{A.8})$$

onde $\Sigma_1^r(t_1 t_2) = \sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^r(t_1 t_2)$ é uma expressão que calculamos da mesma forma que (3.59). Ou seja: $\Sigma_1^r(t_1 t_2) = \frac{-i}{2} \Gamma_1 \delta(t_1 - t_2)$.

Agora, retornamos à expressão de $G_{22}(tt')$ (A.3) e a escrevemos na forma retardada; incluindo a substituição de $G_{12}^r(tt')$ (A.7) temos:

$$\begin{aligned} G_{22}^r(tt') &= g_2^r(tt') + \int \int dt_1 dt_2 g_2^r(tt_1) \sum_{k_2} t_2^* t_2 g_{k_2}^r(t_1 t_2) G_{22}^r(t_2 t') + \\ &\quad \int \int dt_1 dt_2 g_2^r(tt_1) E^*(t_1) \bar{g}_1^r(t_1 t_2) E(t_2) G_{22}^r(t_2 t') \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Onde a soma $\sum_{k_2} t_2^* t_2 g_{k_2}^r(t_1 t_2)$ (observando o cálculo da equação (3.39)) pode ser dada por $-i\Gamma_2/2\delta(t_1 - t_2)$. Pelo mesmo processo de iteração utilizado anteriormente (e posterior agrupamento de termos) chegamos a uma equação de Dyson para (A.9):

$$G_{22}^r(tt') = \tilde{g}_2^r(tt') + \int \int dt_1 dt_2 \tilde{g}_2^r(tt_1) E^*(t_1) \bar{g}_1^r(t_1 t_2) E(t_2) G_{22}^r(t_2 t') \quad (\text{A.10})$$

O termo $\tilde{g}_2^r(tt')$ é expresso pela soma infinita

$$g_2^r(tt') + \alpha \int dt_1 g_2^r(tt_1) g_2^r(t_1 t') + \alpha^2 \int \int dt_1 dt_2 g_2^r(tt_1) g_2^r(t_1 t_2) g_2^r(t_1 t_2) g_2^r(t_2 t') + \dots \quad (\text{A.11})$$

Onde $\alpha = -i\Gamma_2/2$. Procedendo as multiplicações entre as funções de Green sem interação ($g_i^r(tt')$, a qual conhecemos bem), para os primeiros quatro termos e, resolvendo as integrais, podemos perceber que o agrupamento dos resultados converge para o seguinte resultado:

$$\tilde{g}_2^r(tt') = -i\theta(t - t') e^{-i(\varepsilon_2 - i\Gamma_2/2)(t - t')} \quad (\text{A.12})$$

O termo $\bar{g}_1^r(tt')$ é o análogo de \tilde{g}_2^r para a banda de valência. Calculado da mesma forma: iterando-se (A.8) algumas vezes e resolvendo os primeiros termos da série teremos:

$$\bar{g}_1^r(tt') = -i\theta(t-t')e^{-i(\varepsilon_1 - i\Gamma_1/2)(t-t')} \quad (\text{A.13})$$

Agora que conhecemos todos os termos da expressão (A.10), conforme discutido no capítulo (2), substituímos em $E^*(t_1)$ e $E(t_2)$ as expressões que descrevem matematicamente um laser pulsado, cuja forma é descrita por uma função delta de Dirac. Assim encontramos uma expressão analítica para $G_{22}^r(tt')$:

$$\begin{aligned} G_{22}^r(tt') &= \tilde{g}_2^r(tt') + \int \int dt_1 dt_2 \tilde{g}_2^r(tt_1) E_0 \delta(t_1) \cos(\omega t_1) \bar{g}_1^r(t_1 t_2) E_0 \delta(t_2) \cos(\omega t_2) G_{22}^r(t_2 t') \\ G_{22}^r(tt') &= \tilde{g}_2^r(tt') + E_0^2 \tilde{g}_2^r(t_0) \bar{g}_1^r(00) G_{22}^r(0t') \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

A própria expressão (A.14) é utilizada para encontrar $G_{22}^r(0t')$.

$$G_{22}^r(tt') = \tilde{g}_2^r(tt') + \frac{E_0^2 \tilde{g}_2^r(t_0) \bar{g}_1^r(00) \tilde{g}_2^r(0t')}{1 - E_0^2 \tilde{g}_2^r(00) \bar{g}_1^r(00)} \quad (\text{A.15})$$

Com as expressões encontradas para \tilde{g}_2^r (A.12) e \bar{g}_1^r (A.13) calculamos os termos correspondentes e, finalmente, podemos escrever:

$$G_{22}^r(tt') = \tilde{g}_2^r(tt') \left[1 - \frac{2E_0^2 \theta(t) \theta(-t')}{4 + E_0^2} \right] \quad (\text{A.16})$$

APÊNDICE B – Expressão da função de Green menor para um laser com pulso $\delta(t)$

No apêndice A, encontramos a função de Green Retardada $G_{22}^r(tt')$. Esta função é necessária para evoluirmos temporalmente a expressão que determina a corrente elétrica fotogerada no sistema (ver capítulo 2), quando é utilizado um pulso de laser modulado por uma função delta de Dirac. Como discutido, a expressão da corrente elétrica no formalismo de Keldysh apresenta dependência com a função $G_{22}^r(tt')$ e também com a função $G_{22}^<(tt)$ (ver equação (3.31) da página 37). Portanto, nesse segundo apêndice, apresentamos o procedimento utilizado para obter-se a função de Green menor $G_{22}^<(tt)$, para este caso particular, baseando-nos nos procedimentos utilizados no capítulo 3 e no apêndice A.

Iniciamos esta demonstração recuperando um resultado do apêndice A: a equação (A.10). Esta equação, apesar de trabalhada explicitamente para a função de Green retardada, através de iterações, é semelhante para o caso da função de Green ordenada no contorno. Podemos reescrever:

$$G_{22}(\tau\tau') = \tilde{g}_2(\tau\tau') + \int \int d\tau_1 d\tau_2 \tilde{g}_2(\tau\tau_1) E^*(\tau_1) \tilde{g}_1(\tau_1\tau_2) E(\tau_2) G_{22}(\tau_2\tau') \quad (\text{B.1})$$

Para escrever a função de Green menor associada, utilizaremos a equação abaixo, conhecida como equação de Keldysh (ref.: (35)):

$$G^< = G_0^< + G_0^r \Sigma^r G^< + G_0^r \Sigma^< G^a + G_0^< \Sigma^a G^a \quad (\text{B.2})$$

As integrais nos termos da equação acima foram omitidas. Aplicando então a fórmula (B.2) para a equação (B.1), teremos a seguinte expressão (omitindo os índices temporais, por enquanto):

$$G_{22}^< = \tilde{g}_2^< + \tilde{g}_2^r \Phi_1^r G_{22}^< + \tilde{g}_2^r \Phi_1^< G_{22}^a + \tilde{g}_2^< \Phi_1^a G_{22}^a \quad (\text{B.3})$$

Onde explicitamos:

$$\begin{aligned} \Phi_1^r(t_1 t_2) &= E^*(t_1) \tilde{g}_1^r(t_1 t_2) E(t_2) \\ \Phi_1^a(t_1 t_2) &= E^*(t_1) \tilde{g}_1^a(t_1 t_2) E(t_2) \\ \Phi_1^<(t_1 t_2) &= E^*(t_1) \tilde{g}_1^<(t_1 t_2) E(t_2) \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Dessa forma, primeiramente, devemos encontrar as funções de Green não-interagentes $\tilde{g}_1(t_1 t_2)$. O resultado para o caso da função retardada é o mesmo obtido no Apêndice A, mostrado na equação (A.13). A função de Green avançada é obtida fazendo-se o complexo conjugado da função retardada:

$$\tilde{g}_1^a(t_1 t_2) = +i\theta(t_2 - t_1) e^{-i(\epsilon_1 + i\Gamma_1/2)(t_1 - t_2)} \quad (\text{B.5})$$

A função $\tilde{g}_1^<(t_1 t_2)$ deve ser obtida também através da equação de Keldysh (B.2). Novamente temos uma equação que foi explicitamente desenvolvida para a função de Green retardada, porém, o resultado é semelhante para a função de Green ordenada no contorno. Aplicando essa formulação sobre a equação (A.8), teremos, de forma equivalente:

$$\tilde{g}_1^< = (1 + \tilde{g}_1^r \Sigma_1^r) g_1^< (1 + \Sigma_1^a \tilde{g}_1^a) + \tilde{g}_1^r \Sigma_1^< \tilde{g}_1^a \quad (\text{B.6})$$

As funções \tilde{g}_1^r e \tilde{g}_1^a são dadas nas equações (A.13) e (B.5), respectivamente. A função de Green menor não-interagente pode ser calculada através da definição: $g_{k\alpha}^<(t, t') \equiv i\langle c_{k\alpha}^\dagger(t') c_{k\alpha}(t) \rangle$ (no mesmo processo matemático utilizado na página 37 para obter a equação (3.28)). Assim,

$$g_1^< = ie^{i\epsilon_1(t_1 - t_2)} \langle \hat{d}_1^\dagger(0) \hat{d}_1(0) \rangle \quad (\text{B.7})$$

As auto-energias na equação (B.6) são calculadas aproximando-se as somatórias por integrais sobre a variável energia (procedimento semelhante foi também utilizado na página 39):

$$\begin{aligned}
\Sigma_1^r(t_1 t_2) &= \sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^r(t_1 t_2) = -\frac{i}{2} \Gamma_1 \delta(t_1 - t_2) \\
\Sigma_1^a(t_1 t_2) &= \sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^a(t_1 t_2) = +\frac{i}{2} \Gamma_1 \delta(t_1 - t_2) \\
\Sigma_1^<(t_1 t_2) &= \sum_{k_1} t_1^* t_1 g_{k_1}^<(t_1 t_2) = +i \Gamma_1 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} e^{-i\varepsilon(t_1 - t_2)} f_1(\varepsilon)
\end{aligned}$$

onde $f_1(\varepsilon) = \langle d_{k_1}^\dagger(0) d_{k_1}(0) \rangle$ é a função distribuição de Fermi-Dirac associada à temperatura do reservatório da direita (cujos elétrons são diferenciados dos elétrons do ponto quântico pelo índice k_1).

Assim, todos os termos da equação (B.6) são conhecidos, individualmente. Distribuindo os termos dessa equação e recuperando as integrais e os índices temporais que acopam as funções de Green temos:

$$\begin{aligned}
\bar{g}_1^<(tt') &= g_1^<(tt') + \int \int dt_1 dt_2 \bar{g}_1^r(tt_1) \Sigma_1^r(t_1 t_2) g_1^<(t_2 t') + \int \int dt_1 dt_2 g_1^<(tt_1) \Sigma_1^a(t_1 t_2) \bar{g}_1^a(t_2 t') \\
&+ \int \int \int \int dt_1 dt_2 dt_3 dt_4 \bar{g}_1^r(tt_1) \Sigma_1^r(t_1 t_2) g_1^<(t_2 t_3) \Sigma_1^a(t_3 t_4) \bar{g}_1^a(t_4 t') \\
&+ \int \int dt_1 dt_2 \bar{g}_1^r(tt_1) \Sigma_1^<(t_1 t_2) \bar{g}_1^a(t_2 t')
\end{aligned} \tag{B.8}$$

Calculando estas integrais obteremos:

$$\bar{g}_1^<(tt') = i \Gamma_1 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{e^{-i\varepsilon(t-t')}}{(\varepsilon - \varepsilon_1)^2 + (\frac{\Gamma_1}{2})^2} f_1(\varepsilon) \tag{B.9}$$

Sendo assim, definimos as funções $\Phi_1(t_1 t_2)$ na equação da função de Green $G_{22}^<(tt)$ (equação B.3). Além destes termos já calculados, para encontrarmos a expressão de $G_{22}^<(tt)$, é necessário também definir os termos $\bar{g}_2^<$, \bar{g}_2^r , e G_{22}^a .

A expressão de $\bar{g}_2^r(tt_1)$ foi desenvolvida no apêndice anterior apartir da soma infinita na equação (A.11) e, é dada pela equação (A.12). A soma em (A.11) foi escrita para a função de Green retardada não-interagente (g^r), mas pode ser generalizada para a função de Green de equilíbrio escrita no contorno, de modo que teríamos:

$$\begin{aligned}
\tilde{g}_2(\tau\tau') &= g_2(\tau\tau') + \int \int d\tau_1 d\tau_2 g_2(\tau\tau_1) \alpha_2(\tau_1\tau_2) g_2(\tau_2\tau') \\
&+ \int \int \int \int d\tau_1 d\tau_2 d\tau_3 d\tau_4 g_2(\tau\tau_1) \alpha_2(\tau_1\tau_2) g_2(\tau_2\tau_3) \alpha_2(\tau_3\tau_4) g_2(\tau_4\tau') \\
&+ \dots
\end{aligned} \tag{B.10}$$

Pois, diferente do caso para a função \tilde{g}_2^r , α agora apresenta dependência temporal. Essa função pode ser escrita na forma de uma equação de Dyson:

$$\tilde{g}_2(\tau\tau') = g_2(\tau\tau') + \int \int d\tau_1 d\tau_2 g_2(\tau\tau_1) \alpha_2(\tau_1\tau_2) \tilde{g}_2(\tau_2\tau') \tag{B.11}$$

A partir da equação (B.11) podemos utilizar a equação de Keldysh (B.2) para encontrar uma expressão para $\tilde{g}_2^<$:

$$\begin{aligned}
\tilde{g}_2^<(tt') &= g_2^<(tt') + \int \int dt_1 dt_2 g_2^r(tt_1) \alpha_2^r(t_1t_2) \tilde{g}_2^<(t_2t') + \int \int dt_1 dt_2 g_2^r(tt_1) \alpha_2^<(t_1t_2) \tilde{g}_2^a(t_2t') \\
&+ \int \int dt_1 dt_2 g_2^<(tt_1) \alpha_2^a(t_1t_2) \tilde{g}_2^a(t_2t')
\end{aligned} \tag{B.12}$$

Explicitando os termos $\alpha_2(t_1t_2)$:

$$\begin{aligned}
\alpha_2^r(t_1t_2) &= \sum_{k_2} t_2^* t_2 g_{k_2}^r(t_1t_2) = -\frac{i}{2} \Gamma_2 \delta(t_1 - t_2) \\
\alpha_2^a(t_1t_2) &= \sum_{k_2} t_2^* t_2 g_{k_2}^a(t_1t_2) = +\frac{i}{2} \Gamma_2 \delta(t_1 - t_2) \\
\alpha_2^<(t_1t_2) &= \sum_{k_2} t_2^* t_2 g_{k_2}^<(t_1t_2) = +i\Gamma_2 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} e^{-i\varepsilon(t_1-t_2)} f_2(\varepsilon)
\end{aligned}$$

Os outros termos que devem ser definidos na equação (B.10) são $\tilde{g}_2^<(tt')$, $\tilde{g}_2^r(tt_1)$ e $\tilde{g}_2^a(t_2t')$. Temos por definição:

$$g_2^r(tt_1) = -i\theta(t-t_1)e^{-i\varepsilon_1(t-t_1)} \tag{B.13}$$

$$g_2^<(tt_1) = +i\theta(t-t_1)e^{-i\varepsilon_2(t-t_1)} \langle \hat{d}_1^\dagger(0) \hat{d}_1(0) \rangle \tag{B.14}$$

Além disso, $\tilde{g}_2^a(t_2 t') = [\tilde{g}_2^r(t' t_2)]^*$. Esta informação, os resultados (B.13), (B.14) e as expressões $\alpha_2(t_1 t_2)$ são substituídos nas integrais de (B.12). Resolvendo essas integrais temos:

$$\tilde{g}_2^<(tt') = i\Gamma_2 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{e^{-i\varepsilon(t-t')}}{(\varepsilon - \varepsilon_2)^2 + (\frac{\Gamma_2}{2})^2} f_1(\varepsilon) \quad (\text{B.15})$$

Por último, temos $G_{22}^a(tt')$, a qual é dada pelo complexo conjugado de $G_{22}^r(t't)$, obtida no apêndice anterior (equação (A.16)):

$$G_{22}^a(tt') = \tilde{g}_2^a(tt') \left[1 - \frac{2E_0^2 \theta(-t) \theta(t')}{4 + E_0^2} \right] \quad (\text{B.16})$$

Finalmente, podemos substituir os resultados (B.15), (A.12), (B.16) na equação (B.3). Temos ainda que as expressões (B.4) também podem ser desenvolvidas, pois os termos $\tilde{g}_1^r(t_1 t_2)$, $\tilde{g}_1^a(t_1 t_2)$ e $\tilde{g}_1^<(t_1 t_2)$ já estão explicitados em (A.13), (B.5) e (B.9), respectivamente.

A descrição matemática do campo eletromagnético foi realizada no cálculo da função de Green retardada, (A.16), no apêndice A. Adicionalmente, teremos nas equações (B.4) a seguinte construção (exemplificando):

$$\Phi_1^a(t_1 t_2) = E^*(t_1) \tilde{g}_1^a(t_1 t_2) E(t_2) = E_0 \delta(t_1) \cos(\omega t_1) \tilde{g}_1^a(t_1 t_2) E_0 \delta(t_2) \cos(\omega t_2) \quad (\text{B.17})$$

Solucionando então as integrais associadas aos vários termos da equação (B.3) e agrupando esses resultados (um procedimento bastante extenso, embora não tão complexo, motivo de sua omissão), chegamos enfim à expressão para a função de Green menor ordenada no tempo $G_{22}^<(tt)$ - onde fizemos $t' = t$:

$$\begin{aligned} G_{22}^<(tt) &= i\Gamma_2 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{f_2(\varepsilon)}{(\varepsilon - \varepsilon_2)^2 + (\frac{\Gamma_2}{2})^2} \\ &\quad \left\{ 1 - \frac{E_0^2}{2} \theta(t) e^{-\Gamma_2 t/2} \left(1 - \frac{E_0^2 \theta(t)}{4 + E_0^2} \right) 2 \cos(\varepsilon - \varepsilon_2)t + \frac{E_0^4}{4} \theta(t) e^{-\Gamma_2 t} \left(1 - \frac{E_0^2 \theta(t)}{4 + E_0^2} \right) \right\} \\ &+ i\Gamma_1 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{f_1(\varepsilon)}{(\varepsilon - \varepsilon_1)^2 + (\frac{\Gamma_1}{2})^2} \left\{ E_0^2 \theta(t) e^{-\Gamma_2 t} \left(1 - \frac{E_0^2 \theta(t)}{4 + E_0^2} \right)^2 \right\} \end{aligned} \quad (\text{B.18})$$

APÊNDICE C – Runge-Kutta de 2ª ordem (RK2)

Uma equação diferencial ordinária tem a forma básica:

$$\frac{dx}{dt} \equiv \dot{x} = f(x, t) \quad (\text{C.1})$$

Em um procedimento numérico, o primeiro passo para se resolver a equação (C.1) é discretizar a variável t . Isso pode ser feito da seguinte forma:

$$t_i = t_{i-1} + \Delta t \quad (\text{C.2})$$

onde Δt é uma diferença finita do tipo: $(t_{\text{final}} - t_{\text{inicial}})/N$ com N sendo o número total de vezes em que se deseja discretizar o intervalo.

Para agora discretizar a derivada da função podemos utilizar a definição da derivada na forma centrada:

$$\frac{f(x + \Delta x) - f(x - \Delta x)}{2\Delta x} = \dot{x}_j = \frac{x_{i+1} - x_{i-1}}{2\Delta t} \quad (\text{C.3})$$

Unindo esta expressão à forma original da definição de derivada, encontraremos que:

$$x_{j+1} = x_j + \Delta t f(x_j, t) \quad (\text{C.4})$$

Aqui utilizamos o método de Euler para encontrar a solução da equação diferencial. Este método é do tipo de Runge-Kutta, embora de 1ª ordem. Se agora tivermos de resolver um sistema de equações diferenciais no lugar de (C.1), é aconselhável utilizar um método um pouco mais avançado.

Os métodos de Runge-Kutta de mais alta ordem, por exemplo, trabalham com médias ponderadas dos valores das funções calculadas. Colocando em equações, a versão de segunda ordem seria:

$$x_{j+1} = x_j + \Delta t f \left(x_j + \frac{\Delta t f(x_j, t_j)}{2}, t_j + \frac{\Delta t}{2} \right) \quad (\text{C.5})$$

Ou seja: calculamos a função em um tempo t_j para um argumento x_j e, em seguida, utilizamos este resultado como argumento para o novo cálculo da função (agora em um tempo $t_j + 0.5\Delta t$). Se repetirmos este procedimento por n vezes teremos a função de mais alta ordem.

Por exemplo, para o RK de 4ª ordem teríamos (em ref. (45)):

$$F_1 = f(x_j, t_j) \quad (\text{C.6})$$

$$F_2 = f(x_j + \Delta t F_1, t_j + \Delta t) \quad (\text{C.7})$$

$$F_3 = f(x_j + \Delta t F_2, t_j + \Delta t) \quad (\text{C.8})$$

$$F_4 = f(x_j + \Delta t F_3, t_j + \Delta t) \quad (\text{C.9})$$

A solução do sistema seria dada através de:

$$x_{j+1} = x_j + \frac{\Delta t}{6}(F_1 + 2F_2 + 2F_3 + F_4) \quad (\text{C.10})$$

Na solução de nossos sistemas de equações, por exemplo [(3.63)-(3.66)], utilizamos a versão de 2ª ordem do método de RK. Implantar a versão de 4ª ordem, uma versão mais utilizada e mais precisa, não traria nenhuma dificuldade, em termos de programação. Entretanto, os métodos de Runge-Kutta são conhecidos por não serem muito velozes (46). As limitações impostas pela capacidade computacional de nossas máquinas nos fizeram optar por continuar com o método de 2ª, o que certamente não é o ideal. Embora, futuramente, pretendamos alterar estes cálculos para a versão de 4ª ordem e ganhar um pouco mais em precisão, nossos resultados possuem um erro numérico aceitável (da ordem de milésimos).