

DECOERÊNCIA DE SPIN ELETRÔNICO EM PONTOS QUÂNTICOS

Maya Paola Cerro Vergara

Orientador: Dr. Harry Westfahl Jr.

Dissertação apresentada ao Instituto de Física “Gleb Wataghin”, da Universidade Estadual de Campinas, como requisito para a obtenção do título de Mestra em Física.

Banca Examinadora:

Dr. Harry Westfahl Jr. LNLS (Orientador)

Dr. Nelson Studart, IF/UFCAR

Dr. Peter Schulz, IFGW/UNICAMP

Dr. Marcelo Maialle (Suplente)

Dr. Luis Eduardo de Oliveira, IFGW/UNICAMP (Suplente)

Universidade Estadual de Campinas

Instituto de Física “Gleb Wataghin”

30 de Julho-2003

A Panchi, Doña Chínca, Tati e Caro.

Agradecimentos

Quero começar agradecendo ao Harry por sua orientação, enorme paciência, sua boa vontade para me ensinar, e pelas inúmeras lições que dele recebi neste dois anos. Gracias Harry!

Minha família, como em todas as etapas de vida, foi fundamental. Ainda na distância contei com eles para me ajudar, me dar força e pôr direitos meus passos tortos com seu carinho e suas ações. Agradeço de todo coração a Panchi, mi madre, meu anjinho, pelas ligações, tão necessárias para mim, e por estar sempre aí. Ao meu pai, por seu apoio e por preocupar-se tanto por mim. A la Flaca, por ter-me sempre no seu pensamento e orações. E a la Negra por seu carinho.

E falando de família, não posso deixar de falar da Marcelita, minha irmãzinha. Foram muitas choco-aventuras e coisas compartilhadas e muitos favores recebidos, meu agradecimento e carinho de todo coração.

E falando de uma múmia tenho que falar da outra: O Félix. Poderia dizer várias coisas, também foram muitas coisas compartilhadas. Em fim, obrigada por tudo, pela bike, as caronas... melhor esquecer a bike e as caronas, obrigada pela amizade.

A Lili e Nury, minhas super amigas colombianas, agradeço o apoio nos momentos difíceis, o carinho e ter agüentado meus chiliques.

Um agradecimento muito especial a Cláudia e sua família por ter-me acolhido como parte da sua família. A Carol, obrigada por sua amizade.

Agradeço a Marina e Fernando pela amizade. A Oscar muito obrigada por seu carinho e seus correios para morrer de rir. A Luisi e Charlie porque mesmo longe estão sempre comigo.

Um agradecimento muito especial às meninas da república da Meia Lua por ter-me aberto as portas da sua casa.

Um grande Obrigada para tudo o povo do Síncrotron por estar sempre dispostos a fazer minha vida mais fácil. Agradeço à CNPq pelo financiamento.

Agradeço a todas as pessoas que fizeram parte da minha vida nos últimos dois anos e que não mencionei aqui, por que alguma coisa levaram mas também alguma coisa me deixaram.

E finalmente graças a Deus!

Resumo

Na perspectiva da computação quântica, sistemas de dois níveis como o spin eletrônico e o spin do núcleo são vistos como os melhores candidatos para implementar os chamados quantum bits. Com o surgimento de pontos quânticos capazes de armazenar um único elétron a possibilidade do spin eletrônico ser usado com esse objetivo se acrescenta. Porém, uma das principais inquietudes está no tempo que leva o spin eletrônico em perder a coerência. De acordo com a teoria de sistemas dissipativos, decoerência pode ser causada pelo acoplamento com um reservatório. No caso do spin do elétron preso em um ponto quântico o reservatório é conformado pelos fônons da rede cristalina, e o acoplamento ocorre via acoplamento spin-órbita. Especificamente, em pontos quânticos “grandes” (cuja frequência característica é muito menor que a frequência dos modos ópticos) o reservatório é de fônons acústico. Já para o caso de pontos quânticos com frequência próxima à frequência dos fônons ópticos, o acoplamento elétron-fônon óptico é muito relevante nos processos de relaxação do elétron e portanto, a decoerência do spin estará muito ligada a este tipo de interação. Nós estudamos a decoerência em estes sistemas através de um modelo fenomenológico que parte do modelo Caldeira-Leggett, e como resultado encontramos tempos de decoerência da ordem de ms quando o banho é de fônons acústico e da ordem de μs na presença de fônons ópticos.

Abstract

In the perspective of quantum computation, two levels systems are the best candidates to implement the so called quantum bits. In special, the possibility of growing quantum dots capable of storing one electron makes it plausible to use electronic spin for such devices. Nevertheless, one of the big concerns is the time the electron takes to lose coherence. In accordance with dissipative systems theory, decoherence can be caused by the coupling with a *reservoir*. In the case of electronic spin in a quantum dot the *reservoir* is conformed by the phonons of the crystalline lattice which interact with the electronic spin through spin-orbit coupling. In the special case of quantum dots whose characteristic frequency is less than the frequency of optical modes the *reservoir* is made of acoustic phonons. For quantum dots whose confinement frequency is close to the frequency of the optical phonons, the coupling is via electron-optical phonons. We study the decoherence in these systems using a phenomenological model, based on the Caldeira-Leggett model. As a result, we found decoherence times of ms for acoustic phonons bath and of μs in the presence of optical phonons.

Sumário

1. Introdução	1
2. Pontos Quânticos	4
3. Decoerência	8
3.1. Decoerência e Dissipação	9
4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos	13
4.1. Experimentos de Four-Wave mixing (FWM)	15
4.1.1. Descrição de um Experimento	19
4.2. Medidas de Tempos de Coerência de Spin em QD	21
4.2.1. Efeito Faraday	21
4.2.2. Rotação de Faraday Resolvida no Tempo	21
4.2.3. Descrição de um Experimento	22
5. Sistemas Quânticos Dissipativos	26
5.1. Dissipação em Sistemas de Dois Níveis	29
6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos	33
6.1. Interação Spin-Órbita	34
6.2. Interações Elétron-Fônon	36
6.2.1. Interação Piezoelétrica	37
6.2.2. Interação de Fröhlich	39
6.3. Função Espectral da Interação com Fônons Acústicos	39
6.4. Função Espectral da Interação com Fônons Ópticos	44
7. Conclusões	49
A. Processos de Diagonalização	53
A.1. Modos de oscilação de um oscilador harmônico acoplado com um banho de osciladores, mediante transformação canônica	53

Sumário

A.2. Obtenção da função espectral efetiva	57
B. Interação de Fröhlich	60
B.1. Dedução da Interação de Fröhlich	60
B.2. Transformação da Hamiltoniana da interação de Fröhlich em uma Hamiltoniana de interação de dois osciladores harmônicos acoplados	64
B.3. Função Espectral do Elétron-LO	66
C. Método k-p	69

Lista de Figuras

3.1. Dois pacotes de onda gaussianos coerentes, em um potencial harmônico.	9
3.2. Mistura estatística de dois pacotes de onda gaussianos em um potencial harmônico.	10
4.1. Representação esquemática de um experimento de dois feixes [25].	14
4.2. Emissão espontânea amplificada (ASE) a 25K com injeção de corrente entre 0.5 e 20mA [27].	19
4.3. Esquerda: TR-FWM versus tempo de atraso a 50K e $2I_0$. Direita: TI-FWM versus tempo de atraso para diferentes intensidades de excitação [27].	20
4.4. Efeito Faraday.	22
4.5. Espectro de rotação de Faraday tomado a $T = 6K$. Figura superior $\mathbf{H} = 0$ e o diâmetro 40Å. Figura inferior $\mathbf{H} = 0.25T$ e o diâmetro 57Å [33].	23
4.6. Rotação de Faraday em uma amostra de 80Å de diâmetro, a 6K com variação no campo magnético aplicado [33].	24
4.7. Espectro de FR em uma amostra de 57Å, a $\mathbf{H} = 0T$ e $\mathbf{H} = 0.25T$, e $T = 282K$ [33].	24
4.8. Rotação de Faraday resolvida no tempo para uma amostra de 57Å para $\mathbf{H} = 4.0T$ [33].	24
4.9. Freqüência de Larmor contra campo magnético [33].	25
6.1. Curva de dispersão de fônons em GaAs.	34
6.2. Efeito Piezoelétrico	38
6.3. Função Espectral Efetiva.	43
6.4. Sinal de Transmissão em QDs de InGa-GaAs [36].	45
6.5. Medidas de dispersão de campo magnético em QDs de InAs (bolhas). As linhas pontilhadas são resultados teóricos [54].	46
B.1. Deslocamento dos íons.	61

Lista de Tabelas

5.1. Comportamentos de um sistema de dois níveis segundo o tipo de dissipação.	32
6.1. Resumo das interações elétron-fônon em GaAs na banda de condução [45].	34
6.2. Valores da constante γ_c .	35
6.3. Constante piezoelétrica	41
6.4. Tempos de decoerência em GaAs.	44
6.5. Tempo de decoerência em GaAs.	48

1. Introdução

Nos últimos anos, com o surgimento de técnicas capazes de criar e manipular estruturas cada vez menores, da nano-tecnologia, surgem novos desafios que envolvem fenômenos que antes não estavam ao nosso alcance.

Ao falar em nano-tecnologia vem a nossa mente um mundo no qual prevalece a mecânica quântica. É aí onde aparece o grande desafio: dominar essa um nova escala e aproveitar as vantagens que ela oferece. Com a redução de escalas sobre as quais se tem aceso, a mecânica quântica cobra absoluta relevância, e aquelas questões que antes só ficaram no papel adquirem forma e nos obrigam a procurar soluções e respostas.

Falando em redução de tamanhos, obrigatoriamente temos que nos referir aos muito concorridos pontos quânticos [1]. Estruturas como estas, capazes de armazenar um número muito pequeno de elétrons, como nano-capacitores, abrem uma grande possibilidade tecnológica e para poder dar uso a estes sistemas é preciso um conhecimento profundo dos fenômenos que para eles são importantes, tanto para sua criação quanto para sua manipulação. Isso é atualmente um grande foco de atenção da comunidade científica.

A pergunta que nos interessa neste trabalho é importante para pontos quânticos e tem a ver com o delicado passo do mundo quântico ao mundo clássico. É sobre decoerência que queremos falar, especificamente sobre decoerência de spins eletrônicos armazenados em pontos quânticos aproveitando claro, tudo o que já foi dito sobre decoerência. Como conhecemos da mecânica quântica, o meio que envolve um sistema pode “observar” o comportamento do sistema. Como resultado, os auto-estados dos observáveis do sistema perdem coerência e se convertem em sistemas clássicos [2, 3, 4]. Os efeitos de decoerência dependem do acoplamento entre o sistema quântico e os graus de liberdade do resto do universo onde está inserido o sistema. Então ao falar de decoerência de spin em pontos quânticos necessariamente iremos lidar com o meio do qual fazem parte esses pontos quânticos.

Algumas das técnicas desenvolvidas nas últimas duas décadas para produzir pontos quânticos, em particular pontos quânticos auto organizados, permitem “isolar” elétrons (ou buracos) dentro de regiões onde a função envelope do elétron fica altamente confinada [5, 6, 7, 8]. Isolar no sentido que pode se inibir a presença de um outro elétron dentro da

1. Introdução

mesma região. Porém, o elétron fica imerso em um complexo meio e surge naturalmente a pergunta sobre a coerência nesse sistema.

Uma vez que se pode pensar na possibilidade real de armazenar um elétron “isolado” em um ponto quântico, o caminho a seguir é pensar nos possíveis usos que poderia se dar a um sistema com níveis discretizados e que contem um único elétron.

Entretanto, com a proposta de computação quântica [9, 11], surge uma possível aplicação. A computação quântica requer um sistema de dois níveis (os “qubits”) que possa ser preparado como uma superposição quântica de estados (por isso chama-se computação quântica), e entre os candidatos a “qubits” está o spin tanto nuclear como eletrônico.

Para que possa se aproveitar o spin como “qubit”, dentre outros quesitos [11], é preciso que cumpra com um limite de tempo de coerência, o que nos leva a indagar especificamente sobre a decoerência do spin eletrônico em pontos quânticos mas não só por interesses tecnológicos como também pela opção de estabelecer o limite do mundo quântico nestes sistemas [12].

O objetivo deste trabalho é estudar decoerência do spin eletrônico em pontos quânticos, através da interação com fônons ópticos e acústicos. Essa decoerência vem do fato do elétron interagir com um banho de energia: os fônons da rede cristalina.

Embora qualquer estudo na matéria possa partir de um complexo detalhe microscópico, nós adotamos aqui um esquema fenomenológico que parte do modelo Caldeira-Leggett, para nos aproximar do problema. As vantagens são que um estudo deste tipo permite captar a essência da física do problema sem necessidade de investir um enorme esforço, que possivelmente seja inútil, em quanto a cálculos.

Com base nisso, se define o roteiro a seguir: O primeiro é conhecer o sistema de estudo: pontos quânticos. Seguindo com o fenômeno que queremos estudar: decoerência. Depois vem o conhecimento das ferramentas a serem usadas na abordagem do problema: a função espectral do banho de fônons, que é a parte imaginária da transformada de Fourier da susceptibilidade dinâmica retardada do banho. E finalmente a aplicação dessas ferramentas ao nosso problema.

Especificamente estamos interessados em pontos quânticos semicondutores auto-organizados. Os materiais de referência aos quais aplicaremos nossos cálculos são pontos quânticos de InAs sobre GaAs.

O desenvolvimento deste trabalho parte então com uma revisão breve sobre o sistema de interesse: os pontos quânticos e suas propriedades. A seguir introduzimos o fenômeno de decoerência e em particular, decoerência por dissipação. No capítulo quatro daremos uma passada sobre o panorama atual para testar fenômenos coerentes em pontos quânticos. Isto com objeto de fixar um ponto de referência e conhecer as limitações

1. Introdução

experimentais atuais para verificar a validade do nosso resultado.

O capítulo cinco contém as ferramentas sobre dissipação em sistemas de dois níveis, das quais faremos uso, especificamente mostra o raciocínio que conduz à função espectral da qual faremos uso no capítulo seis para responder a questão sobre a decoerência do spin eletrônico em pontos quânticos.

2. Pontos Quânticos

Os pontos quânticos (QD, do inglês *Quantum Dots*) são estruturas zero dimensionais (0D) criadas pelo confinamento eletrônico nas três direções espaciais. Tais estrutura comportam-se como átomos artificiais onde o potencial do núcleo é substituído pelo potencial de confinamento, resultando em uma forte quantização dos níveis de energia.

Atualmente conhecemos vários tipos de pontos quânticos, os quais são obtidos utilizando diferentes técnicas como métodos químicos [13, 14], técnicas litográficas [15] ou mediante os processos de MBE (do inglês *Molecular Beam Epitaxy*) [16] e MOCVD (do inglês *Metal-Organic Chemical Vapor Deposition*) [18]. Dependendo do processo de fabricação os tamanhos dos QDs variam entre dezenas e centos de nanômetros [1, 17], sendo os litográficos os de maior tamanho (tamanho típico característico sde 100nm). Os chamados pontos quânticos auto-formados (SAQDs, do inglês *Self-Assembled Quantum Dots*), são produzidos por MBE ou MOCVD com centenas de Angstroms de base e dezenas de Angstroms de altura (com distribuição de tamanhos de 5-10%). Neste trabalho estamos interessados principalmente nos SAQDs.

Nos últimos anos, os SAQDs têm despertado grande interesse nos âmbitos científicos por suas possíveis aplicações tecnológicas, entre as quais estão sua utilização na fabricação de lasers de alta temperatura [10], ou sua implementação na promessa futura de uma nova forma de computação, a chamada “computação quântica” [11], onde possam-se aproveitar as vantagens que o mundo quântico oferece. Porém, as técnicas utilizadas para produzir QDs não permitem uma homogeneidade no que diz respeito de seus tamanhos e isso é refletido diretamente nas energias do estado fundamental, daí que mesmo que sejam potencialmente úteis falta ainda um caminho a seguir para lograr o aproveitamento das suas características.

Os SAQDs se formam da deposição de um material sobre um substrato com um parâmetro de rede diferente [19]. Com objeto de minimizar energia, o material depositado forma uma superfície rugosa, cujo crescimento é limitado pelo balanço entre o ganho na energia elástica, devido à relaxação do campos de tensão do material nessas rugosidades e o custo adicional na energia de superfície [20].

Neste tipo de QD existe a possibilidade de armazenar um único elétron por ponto quântico com relativa facilidade. Além disso, espera-se que com técnicas de ressonância

2. Pontos Quânticos

de spins possa-se manipular o spin do elétron, constituindo-se um sistema de dois níveis manipulável, a semelhança do spin nuclear. É o spin eletrônico nosso objeto de estudo.

A energia do elétron confinado em um SAQD é fortemente quantizada. E é justamente esta propriedade que leva a pensar em sua aplicação em dispositivos ópticos. Em uma estrutura típica com dimensões características de dezenas de nanômetros, a distância entre níveis de energia próximos é da ordem de alguns meV. Esta quantização da energia do sistema é diretamente refletida na densidade de estados (DOS) [1, 21].

Dependendo do método de fabricação usado para criar o QD, o potencial lateral de confinamento pode-se aproximar de diferentes maneiras. O confinamento vertical se aproxima como um poço quadrado. No caso dos QDs litográficos maiores, o potencial lateral é muito parecido com um poço retangular. No caso dos SAQDs onde o seu raio é comparável com o comprimento característico da variação do potencial lateral perto da borda, pode-se aproximar como um potencial parabólico.

Considerando um potencial de confinamento vertical muito mais forte que o potencial de confinamento lateral, tal que a função de onda vertical esteja “congelada” o movimento de um elétron na banda de condução em presença de um campo magnético externo perpendicular [22] se descreve com a Hamiltoniana de Fock-Darwin:

$$\begin{aligned} H_E &= \frac{1}{2m^*} \left[p^2 - \frac{e}{c} \vec{A} \right]^2 + V(r) \\ &= \frac{p^2}{2m^*} - \frac{\omega_c}{2} L_z + \frac{m^*}{2} \tilde{\omega}^2 (x^2 + y^2), \end{aligned} \quad (2.1)$$

m^* é a massa efetiva. No caso do elétron confinado na banda de condução de um SAQD de InAs/GaAs, esta massa é da ordem de $0.1m_e$ (m_e é a massa do elétron). As auto-energias correspondentes à Hamiltoniana (eq. 2.1) são

$$E = \hbar\tilde{\omega} (n + m + 1) + \frac{\hbar\omega_c}{2} (n - m) \quad (2.2)$$

e auto-estados

$$|n, m\rangle = \frac{(a_d^\dagger)^n (a_g^\dagger)^m}{\sqrt{n!m!}} |0, 0\rangle, \quad (2.3)$$

a_d^\dagger e a_g^\dagger são operadores de criação de quanta de circulação para direita e para esquerda respectivamente. Eles são definidos a partir dos operadores escada da seguinte maneira,

2. Pontos Quânticos

$$\begin{aligned} a_x &= \left(\sqrt{\frac{m^*\tilde{\omega}}{2\hbar}} x + i \frac{p_x}{\sqrt{2m^*\tilde{\omega}\hbar}} \right); & a_x^\dagger &= \left(\sqrt{\frac{m^*\tilde{\omega}}{2\hbar}} x - i \frac{p_x}{\sqrt{2m^*\tilde{\omega}\hbar}} \right) \\ a_y &= \left(\sqrt{\frac{m^*\tilde{\omega}}{2\hbar}} y + i \frac{p_y}{\sqrt{2m^*\tilde{\omega}\hbar}} \right); & a_y^\dagger &= \left(\sqrt{\frac{m^*\tilde{\omega}}{2\hbar}} y - i \frac{p_y}{\sqrt{2m^*\tilde{\omega}\hbar}} \right) \end{aligned} \quad (2.4)$$

$$\begin{aligned} a_d &= \frac{1}{\sqrt{2}} (a_x - ia_y); & a_d^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} (a_x^\dagger + ia_y^\dagger); & N &= a_d^\dagger a_d \\ a_g &= \frac{1}{\sqrt{2}} (a_x + ia_y); & a_g^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} (a_x^\dagger - ia_y^\dagger); & M &= a_g^\dagger a_g \end{aligned} \quad (2.5)$$

N e M são operadores número. ω_c e a frequência de Ciclotron, na qual está contida a dependência com o campo magnético,

$$\omega_c = \frac{eB}{m^*c}, \quad (2.6)$$

e

$$\tilde{\omega} = \sqrt{\left(\frac{\omega_c}{2}\right)^2 + \omega_0^2}. \quad (2.7)$$

Em ausência de campo magnético, a frequência depende só do potencial de confinamento ω_0 do SAQD, na medida que o campo aumenta, essa dependência se faz cada vez menor e o campo magnético adquire maior relevância.

A função de onda $\psi(r)$ do estado fundamental do oscilador harmônico bidimensional é

$$R_{0,0}(r) = e^{-(r^2/2\ell^2)} \quad (2.8)$$

onde $\ell = \sqrt{\frac{\hbar}{2m^*\omega_0}}$ é o comprimento associado ao confinamento lateral. Esta quantidade é muito importante porque vai ser ela quem determina se o ponto quântico é grande ou pequeno. Para ℓ grande, a frequência ω_0 é pequena, na medida que ℓ vai diminuindo a frequência característica vai aumentando. Para SAQDs de InGaAs, a energia característica é de $30meV$ para um comprimento associado de $\ell \sim 35\text{\AA}$.

Outra característica muito importante dos pontos quânticos obtidos por auto organização e de dimensões características pequenas está relacionada com o controle na colocação de um único elétron por ponto quântico, através do fenômeno conhecido com *Coulomb Blockade* [5, 6, 7, 8]. Em uma situação de equilíbrio, o potencial químico do QD é igual ao potencial químico do meio onde está contido, e não há transferência de carga de um sistema para o outro. Para adicionar um segundo elétron ao QD se precisa elevar o potencial químico no QD por uma quantidade igual à energia de Coulomb da interação entre os dois elétrons confinados ali, o qual pode se controlar através da aplicação de um potencial externo. A interação de Coulomb depende do inverso da di-

2. Pontos Quânticos

mensão transversal do QD enquanto que o grau de confinamento quântico depende do inverso do quadrado dessa dimensão. Portanto, no regime de grandes dimensões de QDs temos os efeitos Coulombianos prevalecendo e para pequenas dimensões o confinamento quântico prevalece. Em SAQDs de InGaAs de comprimento $\ell = 35meV$, $V_c = 0.4eV$.

As propriedades descritas anteriormente fazem com que estes sistemas estejam sendo muito estudados na atualidade. Em particular, neste trabalho estamos interessados no fenômeno de decoerência do spin desses “únicos elétrons” confinados nos QDs. Então, a continuação faremos uma breve discussão sobre decoerência.

3. Decoerência

Para falar em decoerência necessitamos lembrar o primeiro postulado da mecânica quântica. De acordo com esse postulado, os estados de um sistema físico pertencem a um espaço linear e portanto se superpõem linearmente. Os estados de um sistema quântico evoluem de acordo com a equação de Schrödinger,

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = H |\psi\rangle. \quad (3.1)$$

Ou seja, dado um estado inicial do sistema e sua Hamiltoniana H , pode-se calcular o estado para qualquer tempo depois. E dada, quase qualquer condição inicial ¹ o sistema descrito por $|\psi\rangle$ evolui num estado que contem simultaneamente muitas alternativas que no mundo clássico não podem co-existir: uma superposição linear de estados. Mas, qual a probabilidade de se observar um desses estados?

Consideremos (por simplicidade) um sistema de dois níveis cujos auto-estados são $|a\rangle$ e $|b\rangle$, e cujas energias são E_a e E_b respectivamente. Como condição inicial vamos impor que o sistema foi preparado no estado $|\psi\rangle = \alpha |a\rangle + \beta |b\rangle$ e definimos seu operador densidade como

$$\begin{aligned} \rho &= |\psi\rangle \langle\psi| \\ &= |\alpha|^2 |a\rangle \langle a| + |\beta|^2 |b\rangle \langle b| \\ &\quad + 2\text{Re}(\alpha\beta^* |a\rangle \langle b|). \end{aligned} \quad (3.2)$$

O resultado anterior contem um termo de interferência entre o estado $|a\rangle$ e o estado $|b\rangle$ que classicamente não existe e que enquanto o sistema esteja “isolado” irá manter oscilante a probabilidade encontrar o sistema em um dos auto-estados. Dizemos então, que o sistema é coerente sempre que apresente esse fenômeno de interferência, que o diferencia de qualquer sistema clássico.

O processo de decoerência induz a transição desde o mundo quântico ao mundo clássico

¹A restrição está em que a condição inicial não pode ser auto-estado da Hamiltoniana.

3. Decoerência

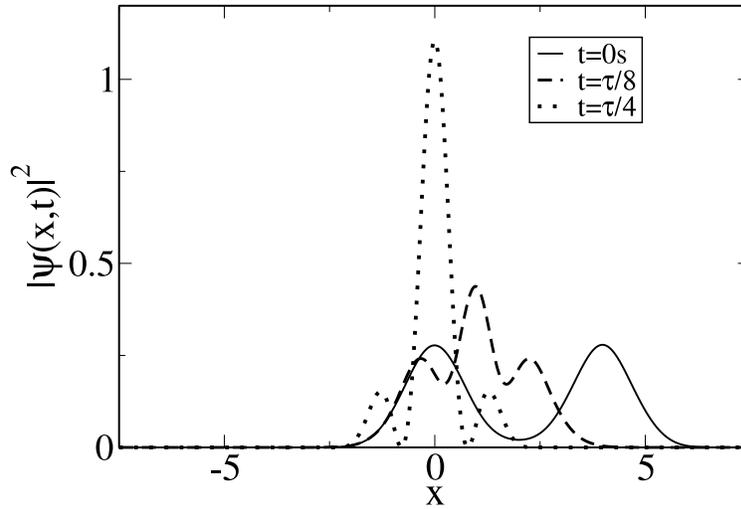


Figura 3.1.: Dois pacotes de onda gaussianos coerentes, em um potencial harmônico.

destruindo a interferência, as correlações quânticas. Converte a superposição linear de estados em uma mistura clássica, através de diferentes mecanismos como a interação com um meio ou com outros graus de liberdade do sistema.

Para representar graficamente o desaparecimento da interferência, pensemos em dois pacotes de onda gaussianos localizados em um potencial harmônico unidimensional. Ou seja, o estado inicial é a soma de dois estados coerentes e sua evolução temporal está determinada pela energia cinética e o potencial harmônico. Como observamos na figura 3.1, quando os dois pacotes se aproximam espacialmente, se cria um padrão de interferência. Uma vez que a coerência do sistema desaparece o padrão também desaparece dando passo as probabilidades clássicas, figura 3.2. Para maior clareza, na seguinte seção examinaremos com cuidado esse exemplo baseado nas ref. [2] e [37].

3.1. Decoerência e Dissipação

Com o objeto de esclarecer a ligação entre decoerência e dissipação consideremos um universo composto por uma partícula sujeita a um potencial harmônico, descrita na base

3. Decoerência

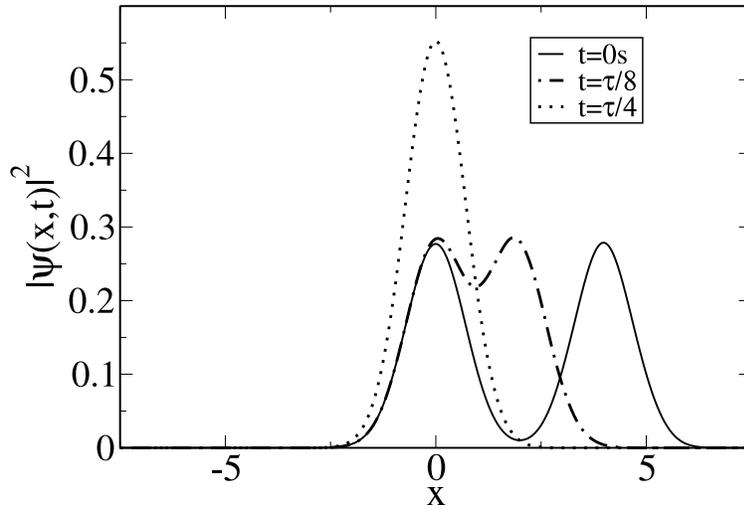


Figura 3.2.: Mistura estatística de dois pacotes de onda gaussianos em um potencial harmônico.

3. Decoerência

de estados $\{|\alpha\rangle\}$, e um seu meio ambiente composto por um conjunto de osciladores harmônicos [23, 24]. Por simplicidade, vamos considerar $T = 0$ e assumir que o sistema e seu meio interagem fracamente.

No instante $t = 0$ vamos supor que o meio ambiente e o sistema não interagem, então o estado do universo se escreve como o produto tensorial do estado do sistema e a base do conjunto de osciladores $|U\rangle = |Sistema\rangle \otimes |Banho\rangle = |\psi\rangle \otimes |n_1 n_2 \dots\rangle$, onde $|n_1 n_2 \dots\rangle$ representa o estado dos osciladores do banho e $|\psi\rangle$ o sistema.

Como estado inicial para o banho escolhemos o estado de mínima energia, ou seja, $|00\dots\rangle$, e para o sistema, uma superposição de dois estados localizados (gaussianos) em um poço harmônico unidimensional, um deles deslocado uma distância x_0 da origem e o outro na origem. Este estado tem energia média de $\langle\psi|H|\psi\rangle \simeq N\hbar\omega$, onde N é número de ocupação,

$$|U_{(t=0)}\rangle = (|\alpha_0\rangle + |\alpha_1\rangle) \otimes |00\dots\rangle. \quad (3.3)$$

Como foi proposto na condição inicial, para o instante $t = 0$ o estado do sistema é uma superposição coerente e para verificar isto calculamos o operador densidade reduzido ρ_r , traçando os graus de liberdade do banho. O operador densidade reduzido se obtém de calcular o traço (Tr_r) do operador densidade, sobre os graus de liberdade do meio. Como resultado, este operador contém só estados do sistema, mas condensa toda informação sobre a influência do meio sobre o sistema.

$$\begin{aligned} \rho_r = Tr_{Banho} |U_{(t=0)}\rangle \langle U_{(t=0)}| &= Tr_{Banho} (|\alpha_0\rangle |00\dots\rangle \langle 00\dots| \langle\alpha_0| + |\alpha_1\rangle |00\dots\rangle \langle 00\dots| \langle\alpha_0| \\ &+ |\alpha_1\rangle |00\dots\rangle \langle 00\dots| \langle\alpha_1| + |\alpha_0\rangle |00\dots\rangle \langle 00\dots| \langle\alpha_1|) \\ &= |\alpha_0\rangle \langle\alpha_0| + |\alpha_1\rangle \langle\alpha_1| + |\alpha_1\rangle \langle\alpha_0| + |\alpha_0\rangle \langle\alpha_1|. \quad (3.4) \end{aligned}$$

A presença dos termos cruzados $|\alpha_1\rangle \langle\alpha_0|$ e $|\alpha_0\rangle \langle\alpha_1|$, os termos de interferência, demonstram a coerência do sistema.

Mas nós queremos testar a coerência do sistema depois de transcorrido um certo tempo. Assumindo que o tempo que leva o pacote $|\alpha_1\rangle$ em perder um quanta de energia, em cair no nível inferior mais próximo, é conhecido e dado por τ e assumindo que este tempo escala linearmente com a energia, o tempo que demora o sistema até atingir seu estado de mínima energia é (aproximadamente) $t = N\tau$.

Depois de transcorrido o tempo τ , o estado do universo é $|U_{(t=\tau)}\rangle = |\alpha_0\rangle \otimes |0\rangle + |\alpha'_1\rangle \otimes |1\rangle$. E para verificar se o sistema se mantém como uma superposição quântica ou se agora é uma mistura clássica basta calcular o operador densidade reduzido nesse

3. Decoerência

instante de tempo,

$$\begin{aligned} Tr_{Banho} |U_{(t=\tau)}\rangle \langle U_{(t=\tau)}| &= Tr_{Banho} \left(|\alpha_0\rangle |0\rangle \langle 0| \langle \alpha_0| + |\alpha'_1\rangle |1\rangle \langle 0| \langle \alpha_0| \right. \\ &+ \left. |\alpha'_1\rangle |1\rangle \langle 1| \langle \alpha'_1| + |\alpha_0\rangle |0\rangle \langle 1| \langle \alpha'_1| \right) \end{aligned} \quad (3.5)$$

mas como os estados $|0\rangle$ e $|1\rangle$ são ortogonais,

$$Tr_{Banho} |U_{(t=\tau)}\rangle \langle U_{(t=\tau)}| = |\alpha_0\rangle \langle \alpha_0| + |\alpha'_1\rangle \langle \alpha'_1| \quad (3.6)$$

o que demonstra que não existem mais os termos cruzados, não há mais interferência, devido ao quanta de energia que foi transferido ao banho.

Quer dizer então que o tempo que levou o sistema em perder a coerência foi só de $t_d = \tau$. Porém, o tempo que vai levar para alcançar se nível mais baixo é $t_r \sim N\tau$, o tempo de relaxação. Ou seja, $t_d = Nt_r$ [37, 38]

Como conclusão, a dissipação de energia levou rapidamente à perda da coerência no sistema, sendo que o tempo de relaxação é muito maior que o tempo de decoerência (que tanto, depende do estado inicial do sistema.)

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

Como ponto de partida para alcançar uma compressão sobre os fenômenos de decoerência em QD, a seguir expomos dois tipos de experimentos que atualmente vêm se realizando para testar fenômenos coerentes nestes sistemas. Até o momento as técnicas experimentais não alcançaram o grau de permitirmos checar o fenômeno principal do que trata este trabalho. Porém, vem se desenvolvendo cada dia mais e com base em técnicas de espectroscopia óptica, especificamente de *pump-probe* (da qual falaremos mas adiante) é de esperar-se que em pouco tempo sejam reportadas medidas de tempos de decoerência de spin.

Espectroscopia óptica é uma técnica poderosa para estudar propriedades eletrônicas e vibracionais de diversos sistemas. Em semicondutores, as técnicas de espectroscopia de absorção, reflexão, luminescência e dispersão de luz têm fornecido informação sobre variados aspectos como estrutura eletrônica, excitações de rede, espectros de excitações de elétrons e buracos e outras propriedades. As técnicas ultra-rápidas, na escala de femto até picosegundos, provêm informação fundamental sobre propriedades não lineares e fora do equilíbrio.

O regime temporal durante e imediatamente depois da foto-excitação por um pulso ultra-curto é um regime coerente. A foto-excitação cria uma polarização macroscópica no sistema, uma média sobre um “ensemble” de momentos dipolares individualmente excitados. A polarização macroscópica atua como fonte nas equação de Maxwell e determina a resposta linear e não linear do meio. O estudo dessa resposta permite conhecer os tempos de defasagem e decoerência em nano-estruturas semicondutoras.

Defasagem é a perda da correlação nas fases dos elementos de um ensemble. Mas no mundo experimental, os tempos medidos carregam informação sobre decoerência e defasagem, não podendo ser desligado um fenômeno do outro. Então, por praticidade chama-se de defasagem não homogênea à defasagem que foi definida antes e o termo defasagem vai ser usado simplesmente como o resultante de somar as taxas de defasagem não homogênea e decoerência.

O tempo de relaxação é o tempo que toma o sistema em voltar a seu estado não

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

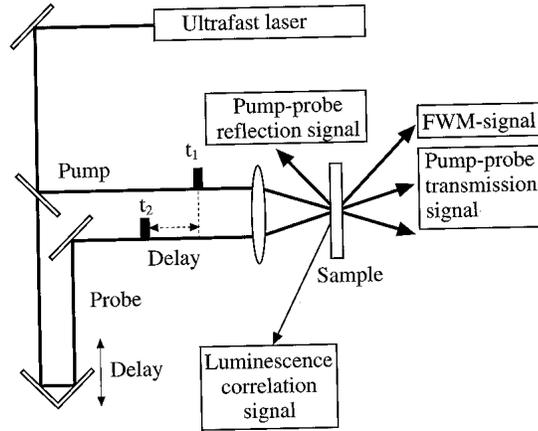


Figura 4.1.: Representação esquemática de um experimento de dois feixes [25].

excitado.

Usando pulsos ultra-rápidos podem ser feitos diversos experimentos, entre estes: luminescência resolvida no tempo, “pump-probe”, “four-wave mixing” [29] e “rotação de Faraday” [33, 34].

Nos experimentos de “pump-probe” a amostra é excitada por um pulso (o “pump”) e as mudanças induzidas na amostra são sondadas por um segundo pulso (o “probe”), o qual chega na amostra atrasado com respeito ao primeiro. Em “four-wave mixing” são usadas geometrias de dois ou três feixes. A amostra é excitada por esses feixes com vetores de onda \mathbf{q}_1 , \mathbf{q}_2 e \mathbf{q}_3 , chegando na amostra nos tempos t_1 , t_2 e t_3 . O ponto “chave” é que os feixes atinjam a amostra em tempos diferentes. A obtenção de dados consiste em medir a energia difratada na direção $\mathbf{q}_d = \mathbf{q}_3 + \mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1$, como função do tempo de atraso entre os feixes. A figura 4.1 apresenta um diagrama típico para fazer experimentos de “pump-probe” ou “four-wave mixing” (na geometria de dois feixes).

Os experimentos de rotação de Faraday (FR) são também do tipo “pump-probe”. A diferença está em que o feixe de “pump” é circularmente polarizado e no processo de excitação há uma transferência de momento angular que cria uma polarização macroscópica de spin. O feixe de “probe” testa essa polarização magnética.

No seguinte, serão descritos dois tipos de experimentos: “four-wave mixing” na geometria de dois feixes, com o objeto de estudar relaxação e defasagem de éxcitons, e rotação de Faraday para estudar a evolução temporal da polarização macroscópica de spin.

O objeto de estudo são pontos quânticos tanto os auto-formados (por FWM) quanto os nano-cristais coloidais (por FR).

4.1. Experimentos de Four-Wave mixing (FWM)

Nesta seção e na seção 4.1.1 se descreve a técnica de Four-Wave Mixing que embora saia do contexto de decoerência de spin é relevante por que com ela se mede um tipo de decoerência e defasagem em semicondutores, o qual permite estudar interações do tipo elétron-fônon.

Quando o primeiro feixe com vetor de onda \mathbf{q}_1 entra na amostra cria uma polarização modulada, com comprimento de modulação $\frac{2\pi}{q_1}$, um “ensemble” de éxcitons. O segundo feixe (com vetor de onda \mathbf{q}_2) alcança a amostra um tempo depois τ_d , menor que o tempo de defasagem da polarização, e ao interagir com a polarização induzida pelo primeiro feixe produz um padrão de interferência com vetor de onda $\pm(\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1)$, fenômeno que se translada em uma grade de difração, a qual, seguindo a lei de Bragg auto-difrata o segundo feixe na direção $\mathbf{q}_d = 2\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1$. Experimentalmente é medida a intensidade na direção \mathbf{q}_d e fisicamente está sendo observada a polarização macroscópica do sistema. O sinal recolhido, a intensidade, é o quadrado dessa polarização.

Para estudar um fenômeno de coerência nada mais apropriado que o formalismo da matriz densidade, o qual facilita o tratamento de sistemas quânticos interagentes, e descreve convenientemente as propriedades estatísticas dos sistemas. O operador matriz densidade é

$$\rho = \sum_j P_j |\psi_j\rangle\langle\psi_j| \quad (4.1)$$

onde, P_j é a fração dos sistemas que tem vetor de estado $|\psi_j\rangle$. A dinâmica do sistema, no caso da polarização sua evolução no tempo, é conhecida através da versão de Liouville da equação de Schrödinger

$$i\hbar\dot{\rho} = [H, \rho]. \quad (4.2)$$

A Hamiltoniana que leva à evolução temporal da polarização é aproximada por três termos:

$$H = H_0 + H_{Int} + H_R, \quad (4.3)$$

sendo o primeiro a Hamiltoniana de um sistema isolado. O segundo corresponde à interação do sistema com o campo eletromagnético, e o terceiro é a Hamiltoniana de

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

relaxação.

No caso de interesse, o éxciton criado pela intervenção do feixe de “pump” é considerado como se tivesse só dois níveis: o estado fundamental, a banda de valência com energia E_a e o estado excitado, a banda de condução, com energia E_b .

Para um sistema de dois níveis onde o auto-vetor do estado fundamental é $|a\rangle$ e o auto-vetor do estado excitado é $|b\rangle$ o operador densidade é

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{bb} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{aa} \end{bmatrix}. \quad (4.4)$$

Os elementos da diagonal da matriz densidade representam a probabilidade de encontrar o sistema nos auto-estados de energia, ou seja, são as populações dos dois auto-estados. Os elementos fora da diagonal, os denominados “coerências”, representam a coerência intrínseca do estado de superposição. Quando os termos fora da diagonal desaparecem, a polarização macroscópica do sistema não existe mais.

Na Hamiltoniana sem perturbar, o vetor estado $|\psi_j\rangle$ obedece a equação de Schrödinger,

$$i\hbar|\dot{\psi}_j\rangle = H_0|\psi_j\rangle. \quad (4.5)$$

Na Hamiltoniana de interação, são permitidas transições dipolares elétricas mas ignoradas transições quadrupolares ou de dipolo magnético. Isto é equivalente a assumir que $qa_0 \ll 1$, onde q é o vetor de onda da radiação incidente e a_0 o comprimento característico dos dipolos. Então, na aproximação dipolar,

$$H_{Int} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t), \quad (4.6)$$

onde \mathbf{d} é o operador de momento dipolar e $\mathbf{E}(\mathbf{R}, t)$ é o campo elétrico da luz. Considerando que antes da incidência do feixe não havia população no nível de mais alta energia, a forma matricial da Hamiltoniana de interação é

$$H_{Int} = \begin{bmatrix} 0 & \Delta_{ba} \\ \Delta_{ba}^* & 0 \end{bmatrix}, \quad (4.7)$$

$$\Delta_{ba} = -\mathbf{d}_{ba} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t). \quad (4.8)$$

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

A Hamiltoniana de relaxação H_R contém todos os processos que fazem o “ensemble” retornar ao equilíbrio termodinâmico. Esses processos incluem recombinação, colisões com fônons e a interação com outros estados eletrônicos. Dentro da aproximação Markoviana (o sistema não tem memória), assumindo que as taxas de relaxação do sistema dependem das funções de distribuição e polarização instantâneas, ou seja, considerando que o sistema não depende da sua “história”, os processos de relaxação são reunidos fenomenologicamente em duas constantes: T_1 e T_2 .

$$\begin{aligned} [H, \rho_{bb}] &= -\frac{\rho_{bb}}{T_1}, \\ [H, \rho_{ba}] &= -\frac{\rho_{ba}}{T_2}. \end{aligned} \quad (4.9)$$

T_1 é o tempo de vida do estado b . T_2 pode pensar-se como o tempo de vida da superposição coerente embora seja a soma das taxas de recombinação e defasagem puro.

As equações acopladas de movimento da polarização e população de um “ensemble” de sistemas dois níveis independentes se conhecem como **Equações Ópticas de Bloch**. Para encontrá-las, substitui-se $n = \rho_{bb}$, $1 - n = \rho_{aa}$ e $p = \rho_{ab}$. n é a densidade de éxcitons enquanto que p é a polarização e $\Omega = \frac{E_b - E_a}{\hbar}$,

$$\rho = \begin{bmatrix} n & p \\ p & 1 - n \end{bmatrix}. \quad (4.10)$$

Seguindo a evolução temporal de acordo com a Hamiltoniana proposta surgem duas equações acopladas para n e p ,

$$\begin{aligned} \dot{n} + \frac{1}{T_1}n + \left(\frac{i}{\hbar}\right)(\Delta_{ba}p^* - p\Delta_{ba}^*) &= 0, \\ \dot{p} + \left(i\Omega + \frac{1}{T_2}\right)p + \left(\frac{i}{\hbar}\right)\Delta_{ba}(1 - 2n) &= 0. \end{aligned} \quad (4.11)$$

Estas equações, no caso geral, não podem ser resolvidas analiticamente. Assumindo que a interação da radiação com a matéria é fraca, pode se aproximar o problema, e expandindo a matriz densidade em série de Taylor nas amplitudes dos campos incidentes truncar a expansão,

$$n = n^{(0)} + n^{(1)} + n^{(2)} + n^{(3)} + \dots, \quad (4.12)$$

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

$$p = p^{(0)} + p^{(1)} + p^{(2)} + p^{(3)} + \dots$$

com $n^{(0)} = 0$ e $p^{(0)} = 0$. Para as condições iniciais usuais $n = 0$ e $p = 0$, as componentes de mais baixa ordem são

$$\begin{aligned} \dot{p}^{(1)} + \left(i\Omega + \frac{1}{T_2}\right) p^{(1)} + \left(\frac{i}{\hbar}\right) \Delta_{ba} &= 0, \\ \dot{n}^{(2)} + \frac{1}{T_1} n^{(2)} + \left(\frac{i}{\hbar}\right) \left(\Delta_{ba} p^{*(1)} - p^{(1)} \Delta_{ba}^*\right) &= 0, \\ \dot{p}^{(3)} + \left(i\Omega + \frac{1}{T_2}\right) p^{(3)} - 2 \left(\frac{i}{\hbar}\right) \Delta_{ba} n^{(2)} &= 0. \end{aligned} \quad (4.13)$$

Em uma amostra onde os elementos são idênticos, o sinal difratado ao longo de \mathbf{q}_d aproxima-se pela polarização macroscópica dada por:

$$P^{(3)} = N \text{Tr} \{ \mathbf{d}\rho \}. \quad (4.14)$$

Em uma amostra não homogêneamente alargada é preciso integrar sobre a distribuição $g(\Omega_0)$:

$$P^{(3)} = -eN \left(\int_0^\infty g(\Omega_0) d\Omega_0 |r_{ba}| p^{(3)} + \int_0^\infty g(\Omega_0) d\Omega_0 |r_{ab}| p^{(3)} \right) \quad (4.15)$$

Ω_0 é o centro da distribuição e $\int_0^\infty d\Omega_0 g(\Omega_0) = 1$. Integrando, encontra-se a evolução temporal do sinal de FWM (TR-FWM) na direção \mathbf{q}_d :

$$S^{(3)}(t) = \left| P^{(3)} \right|^2 \quad (4.16)$$

e o sinal integrado no tempo (TI-FWM) como função de τ_d :

$$I^{(3)}(\tau_d) = \int_{-\infty}^\infty S^{(3)}(t) dt. \quad (4.17)$$

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

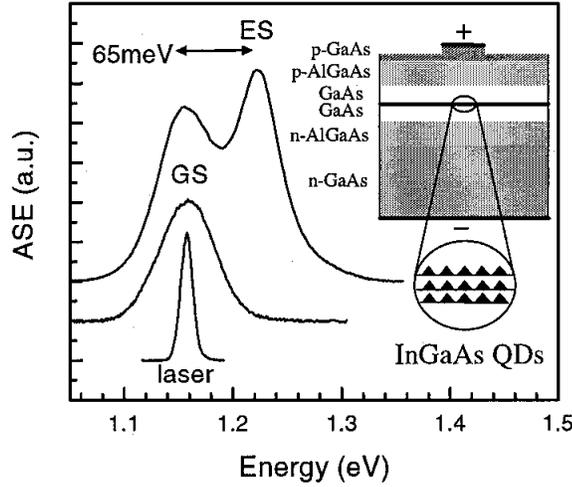


Figura 4.2.: Emissão espontânea amplificada (ASE) a 25K com injeção de corrente entre 0.5 e 20mA [27].

4.1.1. Descrição de um Experimento

No que segue descrevemos com detalhe um experimento do tipo FWM na geometria de dois feixes [27]. O experimento foi feito usando a técnica *heterodyne* [26, 31], que consiste em mandar os dois feixes copolarizados e na mesma direção, e fazer a detecção usando canais de frequência. As amostras estudadas neste caso tinham três camadas empilhadas de pontos quânticos de InGaAs.

O experimento consistiu em medir o T_2 fazendo uma varredura de temperatura na amostras. Para isso o experimento foi dividido em três partes. Inicialmente se encontraram as energias de emissão do estado fundamental para temperaturas entre 25 a 300K utilizando a técnica de Emissão Espontânea Amplificada (ASE, do inglês Amplified spontaneous emission), a qual usa corrente para produzir um espectro de emissão nos níveis de energia dos pontos quânticos, que devido à inhomogeneidade destes é alargado, figura 4.2 [27]. As medidas foram feitas usando correntes desde 0.5mA (curva inferior) até 20mA (curva superior) e o intervalo de comprimentos de ondas necessário para fazer as medidas de T_2 com varredura de temperatura foi de 1070 até 1170nm.

O seguinte passo foi medir o sinal de FWM para diferentes intensidades incidentes para corroborar a validade da aproximação teórica (ignorando as interações éxciton-éxciton). Para isso, fixou-se a temperatura em 50K e aumentou-se a intensidade incidente desde $I_0 = 0.2\text{pJ}$ até $16I_0$ [27]. O lado esquerdo da figura 4.3 mostra o espectro de TR-FWM variando a tempo de atraso dos dois feixes de 0 a 3.2ps com uma intensidade de 0.2pJ;

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

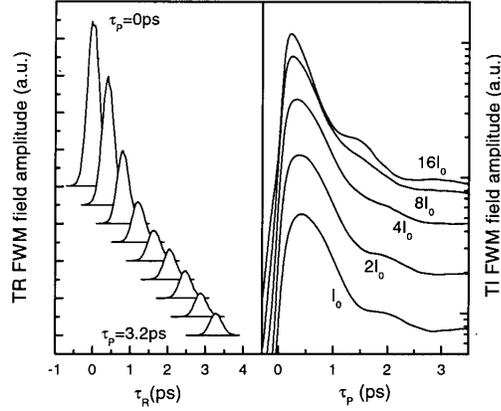


Figura 4.3.: Esquerda: TR-FWM versus tempo de atraso a 50K e $2I_0$. Direita: TI-FWM versus tempo de atraso para diferentes intensidades de excitação [27].

o lado direito da mesma, é o espectro de TI-FWM cobrindo o intervalo de intensidades já mencionado. As oscilações que se distinguem no espectro para $I = 16I_0$ manifestam a impossibilidade de ignorar as interações entre éxcitons na representação do sistema de dois níveis quando a intensidade é alta.

E a última etapa foi encontrar o espectro de TI-FWM com varredura de temperatura entre 7 e 300K. Os resultados desta medida dividiram-se em três regimes: A baixo de 10K o tempo de defasagem foi menor de 500ps, apresentando só relaxação (supressão de dispersão dos fônons ópticos). Entre 10 e 100K apareceu um decaimento lento que domina para baixas temperaturas. Há uma rápida diminuição do tempo de defasagem devida à interação com fônons acústico e o surgimento de processos de espalhamento nos fônons ópticos. Entre 100 e 300K a dinâmica é dominada por um tempo de defasagem menor de 1ps.

Este tipo de experimento nos permite ter uma noção da a escala de tempo de relaxação de éxcitons para baixas temperaturas em pontos quânticos: da ordem de décimos de nanosegundos. Este resultado correspondeu, no caso do experimento, a tempos de defasagem para temperatura abaixo de 10K. Também nos permitir acompanhar, quais processos de espalhamento de fônons poderiam jogar um papel importante na relaxação e portanto na decoerência em pontos quânticos similares aos usados no experimento.

4.2. Medidas de Tempos de Coerência de Spin em QD

Esta seção atinge o problema experimental da decoerência do spin eletrônico misturado com relaxação excitônica. Neste tipo de experimento usa-se um feixe incidente circularmente polarizado. Isto produz éxcitons com momento angular diferente de zero, momento angular que é transmitido pelos fótons aos pares de elétron-buraco criados pela incidência do feixe. A prova da coerência e relaxação da magnetização, é testada por meio de um pulso linearmente polarizado, que alcança a amostra atrasado com respeito ao primeiro. A polarização linear rota uma quantidade proporcional à magnetização uma vez que atravessa o material, de acordo com o efeito Faraday.

4.2.1. Efeito Faraday

Os materiais com uma magnetização definida não são simétricos em relação à absorção de luz polarizada circularmente. O índice absorção de luz circularmente polarizada a esquerda difere do índice da absorção de luz polarizada a direita, originando dicroísmo magnético.

Uma onda linearmente polarizada que atravessa o meio tem uma componente com polarização circular à direita e outra à esquerda, cujos vetores de onda são

$$\begin{aligned} k_+ &= \frac{\omega\eta_+}{c}, \\ k_- &= \frac{\omega\eta_-}{c}, \end{aligned} \quad (4.18)$$

sendo η_+ e η_- os índices de refração à direita e esquerda respectivamente.

4.2.2. Rotação de Faraday Resolvida no Tempo

O efeito Faraday pode-se aproveitar para estudar a superposição coerente de estados de spin dos elétrons na banda de condução quando o momento angular do par elétron-buraco é diferente de zero. A idéia é fazer incidir um feixe de luz circularmente polarizada (onde o momento angular dos fótons é ± 1) de energia igual a energia do gap do material que esteja sendo estudado. Quando os elétrons são removidos da banda de valência se cria um par elétron-buraco com momento angular ± 1 na direção de incidência do feixe, portanto a amostra fica magnetizada. Se coloca um campo magnético externo em direção perpendicular à incidência de feixe o que cria uma superposição quântica de estados (porque a perturbação, o campo magnético, não diagonal na base do sistema) que vai girar seguindo a frequência de Larmor, $\omega_L = \frac{eH}{2m}$, onde \mathbf{H} é o campo magnético,

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

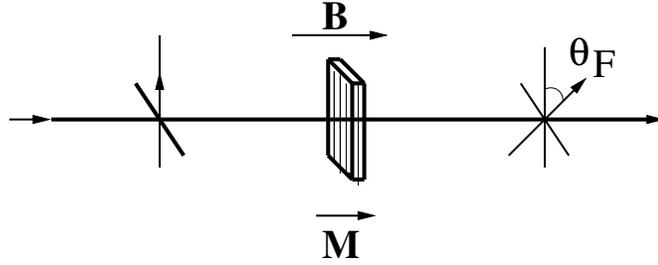


Figura 4.4.: Efeito Faraday.

e a carga do elétron e m a massa. A frequência de oscilação e o tempo que leva em relaxar pode-se testar usando um feixe linearmente polarizado perpendicular à direção de incidência do primeiro feixe e a direção do campo magnético. Pelo efeito Faraday, quando o segundo feixe atravessa o material sua polarização é desviada um ângulo proporcional à magnetização do mesmo, figura 4.4. Então, variando o atraso entre o feixe de excitação e o feixe de prova podemos observar a dinâmica do spin do éxciton.

4.2.3. Descrição de um Experimento

As amostras estudadas foram nano-cristais coloidais de CdSe e de CdSe recobertos com CdS, com um diâmetro médio de $22 - 80 \text{ \AA}$, com uma dispersão de tamanho de $5 - 10\%$, com uma quantidade de pontos quânticos nas amostras da ordem de 10^{10} . Se usaram campos magnéticos de até 7T , a temperaturas de $6 - 282\text{K}$. A energia do pulso incidente variou de 1.7 até 2.6eV em pulsos de ~ 150 femtosegundos.

A primeira medida foi feita com campo magnético zero, a temperatura 6K , em pontos quânticos de diâmetro 40 \AA , tanto em amostras de CdSe quanto nas de CdSe/Cds, figura 4.5(a). O espectro mostrou a relaxação da magnetização macroscópica. No quadro pequeno, a medida de foto-luminescência feita para encontrar as energias dos primeiros níveis.

Na figura 4.5(b), o sinal de rotação de Faraday (FR, do inglês Faraday rotation) apresenta uma oscilação devida à presença do campo magnético. Da oscilação pode-se extrair o fator g (o momento magnético efetivo) enquanto que a envolvente da oscilação indica o tempo de relaxação.

O seguinte passo foi fazer na mesma amostra uma série de medidas, variando o campo magnético aplicado para ver sua relação com o tempo de decoerência e relaxação, figura 4.6. Conforme se aumenta o campo magnético aplicado, aumenta a frequência de oscilação, a frequência de Larmor, e o que se observa é que entre mais alto seja o campo mais rápido a polarização macroscópica irá diminuir. Isso se explica porque

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

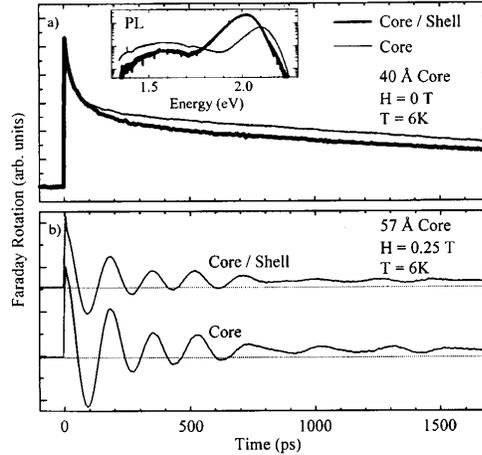


Figura 4.5.: Espectro de rotação de Faraday tomado a $T = 6\text{K}$. Figura superior $\mathbf{H} = 0$ e o diâmetro 40\AA . Figura inferior $\mathbf{H} = 0.25\text{T}$ e o diâmetro 57\AA [33].

a dinâmica está dominada por defasagem não homogênea, a largura de tamanhos dos pontos quânticos faz com que cada ponto tenha uma frequência própria de oscilação e o sinal macroscópico desapareça rapidamente.

Para estudar o efeito da temperatura no processo, se tomou o mesmo sinal da figura 4.5(b), mas a temperatura de 282K , figura 4.7. Da comparação chegou-se à conclusão de que a temperatura não estava influenciando o fenômeno.

Para finalizar, fizeram novamente as medidas na amostra de 57\AA , usando campos de 0 , 0.25 e 4.0T . O último mostrou uma coisa que não tinha sido observada nas medidas anteriores: Apresentava um batimento nas oscilações, figura 4.8. Como possível explicação, pensaram que a energia de incidência do feixe se encontrava no meio de dois níveis. Para conferir tomaram o espectro de absorção da amostra, localizando assim os dois primeiros níveis. Fizeram a medida de FR excitando os elétrons primeiro com uma energia do primeiro nível e depois com uma energia média entre o primeiro e segundo nível. Contrário ao que se esperava os dois espectros tiveram o mesmo comportamento. Outra possível resposta estava na largura da distribuição de tamanhos dos pontos quânticos contidos nas amostras. Para verificar fizeram uma medida de microscopia de transmissão eletrônica (TEM), que também não resolveu o problema. A pergunta então ficou aberta.

Por último foram extraídos os fatores g transformada rápida de Fourier (FFT), que correspondem com esses batimentos: $g \sim 1.1$ e 1.5 , figura 4.9. Mesmo que o fator $g \sim 1.1$ é comparável ao valor estimado do buraco, o valor estimado para o elétron em CdSe é de ~ 0.7 . A resposta pode estar em um forte acoplamento de *exchange* entre o elétron

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

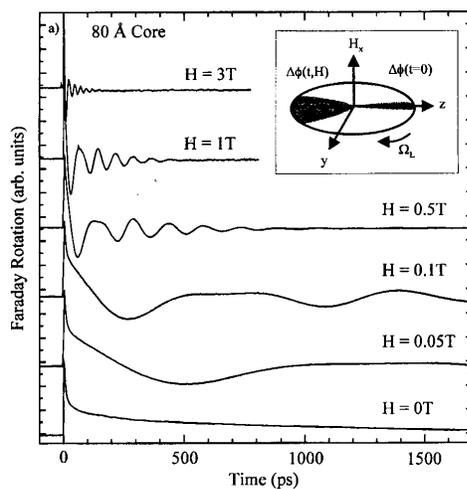


Figura 4.6.: Rotação de Faraday em uma amostra de 80Å de diâmetro, a 6K com variação no campo magnético aplicado [33].

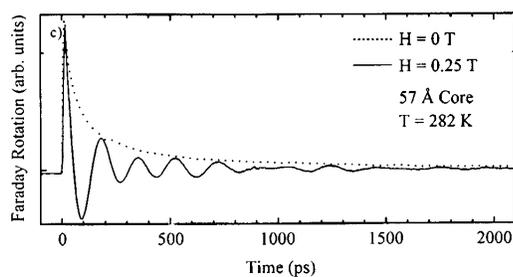


Figura 4.7.: Espectro de FR em uma amostra de 57Å, a $H = 0T$ e $H = 0.25T$, e $T = 282\text{K}$ [33].

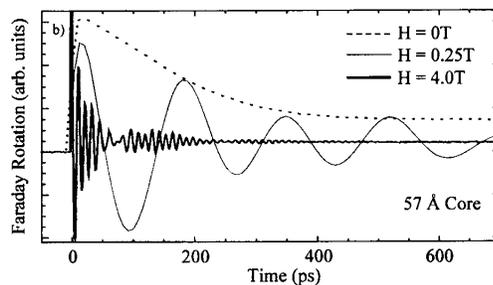


Figura 4.8.: Rotação de Faraday resolvida no tempo para uma amostra de 57Å para $H = 4.0T$ [33].

4. Experimentos Recentes sobre Decoerência em Pontos Quânticos

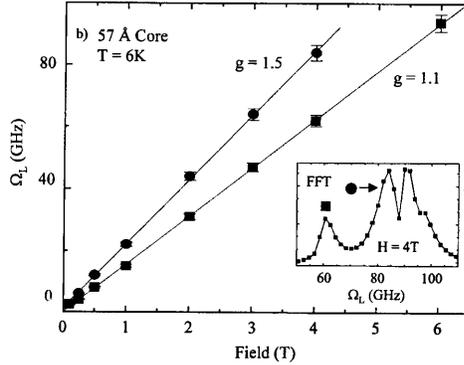


Figura 4.9.: Frequência de Larmor contra campo magnético [33].

e o buraco ou, como sugerem teorias recentes, em um desdobramento da estrutura fina dos níveis de energia do ponto quântico devido à interação de *exchange* e à assimetria do cristal.

A energia dos lasers usados para fazer o experimento anterior é da ordem de eV, a energia do gap do material, a qual corresponde com luz visível. Para fazer um experimento de rotação de Faraday resolvida no tempo dirigido só ao spin seria preciso usar ondas com a energia de Zeeman, ou seja, da ordem 0.1meV, as quais estão na faixa das micro-ondas (1×10^{10} Hz) e cujos comprimentos de onda são da ordem de centímetros, enquanto que os pontos quânticos contidos nelas estão em escala nanométrica. A geometria e obtenção de dados em um experimento com essas características apresenta uma enorme dificuldade, é este o motivo por o qual até agora não foram reportados experimentos na literatura.

Como aprendizagem neste tipo de experimento podemos mencionar que o problema de não homogeneidade dos pontos quânticos representa uma grande limitante para implementar um experimento de que envolva só decoerência de spin. A fenômeno de decoerência fica blindado pela defasagem. Porém este experimento nos permite ter uma noção do limite superior do tempo de decoerência que vai entre umas dezenas de picosegundos e nanosegundos, dependendo da intensidade do campo magnético.

5. Sistemas Quânticos Dissipativos

O problema de estudar sistemas quânticos dissipativos se centra na questão de como quantizar sistemas não isolados [23, 37, 38, 39], cuja dinâmica clássica é descrita por uma equação de movimento que não pode ser obtida pela aplicação das equações de Hamilton a nenhuma Hamiltoniana. O exemplo clássico é a dinâmica da partícula Browniana, cujo movimento é definido pela equação de Langevin (quando o atrito depende do tempo)

$$M\ddot{q} + M \int_{-\infty}^t \gamma(t-t') \dot{q} + V'(q) = \xi(t), \quad (5.1)$$

onde $\gamma(t-t')$ é uma função de amortecimento, $V(q)$ é o potencial externo ao qual a partícula está sujeita e $\xi(t)$ uma força flutuante totalmente caracterizada pela média no “ensemble”,

$$\begin{aligned} \langle \xi(t) \rangle &= 0 \\ \langle \xi(t) \xi(t') \rangle &= Mk_B T \gamma(t-t'). \end{aligned} \quad (5.2)$$

Este tipo de sistema não permite a aplicação da formulação usual da quantização canônica, surgindo então a pergunta de como conciliar o processo de quantização usual com equações do movimento dissipativo. Existem muitas tentativas para responder esta questão por diferentes métodos, que podem se juntar em duas categorias: A primeira delas corresponde a novos esquemas de quantização para sistemas não-isolados, os quais em geral apresentam falhas sobre os princípios físicos ou sobre suas previsões em casos gerais [40, 41, 42, 43]. O segundo tipo de aproximação consiste no estudo da dinâmica de subsistemas, ou seja, uma aproximação do sistema de interesse em contato com um reservatório. Neste esquema se mantém a quantização canônica inalterada mas se muda o sistema, considerando-se o acoplamento do sistema com um reservatório de energia e quantizando dentro do esquema usual [37].

Neste trabalho vai se adotar o segundo método, onde a Hamiltoniana que descreve o problema é a seguinte

5. Sistemas Quânticos Dissipativos

$$H = H_S + H_{int} + H_R. \quad (5.3)$$

H_S é a Hamiltoniana do sistema de interesse, H_{int} a Hamiltoniana de interação entre o sistema e o reservatório e H_R a Hamiltoniana do reservatório. Nesta formulação, o atrito vem da transferência de energia desde um sistema “pequeno” para um meio ambiente “grande”. A energia, uma vez transferida, se dissipa dentro do meio ambiente.

Em muitos casos não se tem informação da natureza microscópica do amortecimento. Mas aproximando-se fenomenologicamente ao problema no limite clássico consegue-se descrever dentro do formalismo quântico uma dinâmica dissipativa.

Consideremos um sistema quântico dissipativo acoplado linearmente via sua coordenada de deslocamento a um reservatório ou banho. Se o banho é perturbado fracamente pelo sistema, pode-se assumir que a resposta dele é linear e qualquer sistema cuja resposta é desse tipo pode se representar como um conjunto de osciladores harmônicos sem perder generalidade. Então a Hamiltoniana do reservatório de N osciladores harmônicos é

$$H_R = \sum_{\alpha=1}^N \left(\frac{p_{\alpha}^2}{2m_{\alpha}} + \frac{1}{2} m_{\alpha} \omega_{\alpha}^2 x_{\alpha}^2 \right). \quad (5.4)$$

A Hamiltoniana geral do sistema global, juntando as características já mencionadas e considerando um grau de liberdade só para o sistema, é a soma das seguintes sub-hamiltonianas:

$$\begin{aligned} H_S &= \frac{p^2}{2m} + V(q), \\ H_R &= \sum_{\alpha=1}^N \left(\frac{p_{\alpha}^2}{2m_{\alpha}} + \frac{1}{2} m_{\alpha} \omega_{\alpha}^2 x_{\alpha}^2 \right), \\ H_I &= - \sum_{\alpha=1}^N F_{\alpha}(q) x_{\alpha} + \Delta V(q), \end{aligned} \quad (5.5)$$

e se conhece hoje como modelo Caldeira-Leggett [37]. Na última equação $\Delta V(q)$ é introduzido para compensar a renormalização do potencial $V(q)$ a qual é causada pelo acoplamento linear com x_{α} em H_I . Na ausência de $\Delta V(q)$, o mínimo da superfície do potencial do sistema global para um dado q está em $x_{\alpha} = \frac{F_{\alpha}(q)}{m_{\alpha} \omega_{\alpha}^2}$ para todo α . O potencial efetivo renormalizado pelo acoplamento é

5. Sistemas Quânticos Dissipativos

$$V_{Eff}(q) = V(q) - \sum_{\alpha=1}^N \frac{F_{\alpha}^2(q)}{2m_{\alpha}\omega_{\alpha}^2}.$$

Se se quer que o acoplamento com o reservatório só introduza dissipação e não renormalização do potencial, a Hamiltoniana de interação deve ser compensada por um termo

$$\Delta V(q) = \sum_{\alpha=1}^N \frac{F_{\alpha}^2(q)}{2m_{\alpha}\omega_{\alpha}^2}.$$

$F_{\alpha}(q)$ é uma função que depende de q e das massas e frequências dos osciladores do banho. Para garantir dissipação estritamente linear,

$$F_{\alpha}(q) = c_{\alpha}q \quad (5.6)$$

e

$$\Delta V(q) = \sum_{\alpha=1}^N \frac{c_{\alpha}^2 q^2}{2m_{\alpha}\omega_{\alpha}^2}.$$

Com objeto de entender como podem se introduzir as constantes fenomenológicas presentes ao problema clássico dissipativo no esquema dos sub-sistemas, vamos agora a descrever classicamente a dinâmica de uma partícula acoplada com um banho de osciladores harmônicos. As equações de movimento de um sistema global descrito pela Hamiltoniana são

$$\begin{aligned} M\ddot{q} + V'(q) + \sum_{\alpha} \left(\frac{c_{\alpha}^2}{m_{\alpha}\omega_{\alpha}^2} \right) q &= \sum_{\alpha} c_{\alpha}x_{\alpha} \\ m_{\alpha}\ddot{x}_{\alpha} + m_{\alpha}\omega_{\alpha}^2 x_{\alpha} &= c_{\alpha}q. \end{aligned} \quad (5.7)$$

Resolvendo para $x_{\alpha}(t)$

$$\begin{aligned} x_{\alpha}(t) &= x_{\alpha}(0) \cos(\omega_{\alpha}t) + \frac{p_{\alpha}(0)}{m_{\alpha}\omega_{\alpha}} \sin(\omega_{\alpha}t) \\ &+ \frac{c_{\alpha}}{m_{\alpha}\omega_{\alpha}} \int_0^t dt' \sin[\omega_{\alpha}(t-t')] q(t'). \end{aligned} \quad (5.8)$$

5. Sistemas Quânticos Dissipativos

Como o objetivo é transformar a equação de movimento da partícula na equação de Langevin (vide eq. 5.1) se define a força flutuante como

$$\zeta(t) = \sum_{\alpha} c_{\alpha} \left(x_{\alpha}(0) \cos(\omega_{\alpha} t) + \frac{p_{\alpha}(0)}{m_{\alpha} \omega_{\alpha}} \sin(\omega_{\alpha} t) \right). \quad (5.9)$$

Integrando por partes o último termo da equação 5.8, a equação 5.7 se escreve como uma equação de Langevin (eq.5.1) onde

$$\gamma(t-t') = \Theta(t-t') \frac{1}{M} \sum_{\alpha} \frac{c_{\alpha}^2}{m_{\alpha} \omega_{\alpha}^2} \cos[\omega_{\alpha}(t-t')] \quad (5.10)$$

e

$$\xi(t) = \zeta(t) - M \gamma(t) q(0). \quad (5.11)$$

Esta última equação cumpre com as exigências estatísticas que impõe a dinâmica da partícula Browniana (eq. 5.2). Para converter o somatório na função de amortecimento $\gamma(t-t')$, equação 5.10, definimos uma função espectral

$$J(\omega) \equiv \frac{\pi}{2} \sum_{\alpha} \frac{c_{\alpha}^2}{m_{\alpha} \omega_{\alpha}^2} \delta(\omega - \omega_{\alpha}), \quad (5.12)$$

que é a parte imaginária da transformada de Fourier $\Im(\omega)$ da susceptibilidade dinâmica (retardada) do banho de osciladores,

$$J(\omega) = \text{Im} \Im \left\{ -i \Theta(t-t') \left\langle \left[\sum_{\alpha} c_{\alpha} q_{\alpha}(t), \sum_{\alpha'} c_{\alpha'} q_{\alpha'}(t') \right] \right\rangle \right\}. \quad (5.13)$$

É esta função espectral a que contém toda a informação do efeito do banho sobre o sistema é nela que centraremos toda a atenção. A obtenção desta função é a chave para fazer a comunhão entre o sistema quântico e a dinâmica dissipativa, e é ela quem nos dirá quão relevante é o acoplamento com o banho.

5.1. Dissipação em Sistemas de Dois Níveis

Como nosso interesse é estudar decoerência por dissipação do spin de um elétron confinado em um ponto quântico, é necessário introduzir as técnicas para estudar dissipação em sistemas de dois níveis [44].

5. Sistemas Quânticos Dissipativos

O passo inicial é definir uma forma geral para a Hamiltoniana que possa se aplicar a qualquer problema adaptável a uma descrição de dois níveis. Para ter um modelo que represente “qualquer” sistema deste tipo, nada melhor que escolher às matrizes de Pauli como uma forma apropriada para expressar a Hamiltoniana. O ponto inicial é definir a Hamiltoniana de dois níveis,

$$H = -\frac{1}{2}\hbar\Delta\sigma_x + \frac{1}{2}\varepsilon\sigma_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \varepsilon & -\hbar\Delta \\ -\hbar\Delta & -\varepsilon \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

cuja base é formada pelos estados localizados $|\psi_R\rangle$ e $|\psi_L\rangle$ os quais são auto-estados de σ_z com auto-valores ± 1 respectivamente. $\frac{1}{2}\hbar\Delta$ é o elemento de transição entre os dois estados (no caso do spin, será o que permitirá o “spin-flip”) e ε , o “bias” é a diferença de energia dos níveis. A razão entre $\hbar\Delta/\varepsilon$ determina a dinâmica de σ_z : quando a razão é pequeno, há uma forte tendência para o sistema se localizar em algum dos estados. Mas quando a razão é grande, em particular, para $\varepsilon = 0$, o comportamento dinâmico de σ_z apresenta efeitos oscilatórios. De fato, quando $\varepsilon = 0$, $P(t) \equiv \langle \sigma_z \rangle$ definida como a diferença de probabilidades de achar o sistema em algum dos estados oscila como $\cos(\Delta_0 t)$ (oscilações de Rabi) se $P(0) = +1$.

Uma vez determinado o que corresponde ao sistema, precisamos de um meio: devemos incluir a energia do banho e a interação entre ele e o sistema. Seguindo os caminhos traçados anteriormente, o banho pode ser modelado como um conjunto de osciladores harmônicos (contando com as mesma suposições feitas no caso geral). Em muitos casos de interesse experimental o principal acoplamento do sistema com o banho é através de um termo da forma $\sigma_z \hat{\Omega}$, onde $\hat{\Omega}$ é qualquer operador do banho. O que significa que dependendo do grau de acoplamento o banho pode destruir rapidamente o comportamento oscilatório de σ_z destruindo assim a coerência do sistema. Em geral, quando o acoplamento é fraco, a interação pode-se escrever como $\frac{1}{2}q_0\sigma_z \sum_{\alpha} c_{\alpha}x_{\alpha}$, onde q_0 é um parâmetro que depende do sistema e c_{α} é a força de acoplamento do sistema com o α -ésimo oscilador. Em particular, consideramos o caso no qual a interação como o banho vem por meio do acoplamento somente nas coordenadas, ou seja, o operador $\hat{\Omega}$ se substitui por x_{α} .

A Hamiltoniana global será então

$$H_{SB} = -\frac{1}{2}\hbar\Delta\sigma_x + \frac{1}{2}\varepsilon\sigma_z + \sum_{\alpha=1}^N \left(\frac{p_{\alpha}^2}{2m_{\alpha}} + \frac{m_{\alpha}\omega_{\alpha}x_{\alpha}^2}{2} \right) + \frac{1}{2}q_0\sigma_z \sum_{\alpha} c_{\alpha}x_{\alpha}, \quad (5.15)$$

a qual é conhecida como Hamiltoniana spin-boson. A equação anterior pode equivalen-

5. Sistemas Quânticos Dissipativos

temente ser expressa em termos dos operadores de criação e destruição a_α e a_α^\dagger , os quais satisfazem as regras de comutação bosônicas $[a_\alpha, a_{\alpha'}] = \delta_{\alpha\alpha'}$.

Sendo que $x_\alpha = \sqrt{\frac{\hbar}{2m_\alpha\omega_\alpha}}(a_\alpha + a_\alpha^\dagger)$ e $p_\alpha = i\sqrt{\frac{\hbar m_\alpha\omega_\alpha}{2}}(a_\alpha^\dagger - a_\alpha)$ a Hamiltoniana toma a seguinte forma

$$H_{SB} = -\frac{1}{2}\hbar\Delta\sigma_x - \frac{1}{2}\sigma_z \sum_{\alpha} \hbar r_\alpha (a_\alpha + a_\alpha^\dagger) + \sum_{\alpha=1}^N \hbar\omega_\alpha a_\alpha^\dagger a_\alpha.$$

(A energia de ponto zero do banho não é relevante.)

Uma vez mais, os efeitos do meio ambiente são compactados na função espectral $J(\omega)$, equação 5.12. A dinâmica do sistema depende fortemente da forma de $J(\omega)$, ou seja, da constante de acoplamento entre o sistema e cada modo de oscilação do banho, e da temperatura.

Para estudar o problema, assume-se que a função espectral é bem comportada em ω , a qual podemos aproximar com uma lei de potências¹ ω^s para $s > 0$ e $\Omega_c \gg \Delta$, onde ω_c é uma frequência de cut-off (uma frequência característica do banho: frequência de Drude, de Debye, de Fermi, etc...). Esta frequência aparece porque qualquer função espectral “real” deve tender a zero quando $\omega \rightarrow \infty$ do contrario, algumas quantidades físicas poderiam divergir. O sentido físico está no fato de existir sempre um tempo de memória finito que define a escala de tempo para efeitos de inércia do banho. Considerando isto,

$$J(\omega) = A\omega^s \exp(-\omega/\Omega_c), \quad (5.16)$$

sendo $A =$

Uma vez assumida uma forma geral para $J(\omega)$ é possível tabular os comportamentos que seguem os sistemas segundo a intensidade do acoplamento com o banho e a temperatura. Seguindo a terminologia imposta por Leggett e colaboradores [44], chamamos $s = 1$ caso ôhmico; $s > 1$ caso super-ôhmico e $0 < s < 1$ caso sub-ôhmico. A dinâmica que seguirá o sistema para cada tipo de acoplamento se encontra na tabela 5.1. Para dissipação sub-ôhmica, o sistema é localizado para temperatura $T = 0$ desde que $\Delta/\Omega_c \rightarrow 0$. A temperatura finita se espera relaxação não-coerente. Para dissipação ôhmica, existem vários regimes dependendo das constantes do problema e da temperatura, que se resumem em três possíveis comportamentos: amortecido, sub-amortecido, super-amortecido ou localizado.

Nossa atenção se centra no caso super-ôhmico, o qual restringe as possibilidades ao

¹As potências zero e negativas foram excluídas porque para $s \leq 0$ a função de amortecimento $\gamma(0)$ pode divergir.

5. Sistemas Quânticos Dissipativos

Dissipação	s	T	Comportamento
Sub-ôhmica	$0 < s < 1$	$T=0$ $T \neq 0$	Localização Super-amortecido
Ôhmica	$s=1$	$T=0$ $T \neq 0$	Localização Super-amortecido Amortecido
Super-ôhmica	$1 < s < 2$	$T=0$ $T=T^*$	Sub-amortecido Super-amortecido
	$2 < s$		Sub-amortecido

Tabela 5.1.: Comportamentos de um sistema de dois níveis segundo o tipo de dissipação.

caso sub ou super-amortecido. Uma conduta super-amortecida aparece só a partir de uma temperatura T^* que depende da função espectral. Como é conhecido, o acoplamento dos elétrons com os fônons acústicos em um sólido apresenta dependência da $J(\omega)$ com ω^3 (interação piezoelétrica) ou ω^5 (potencial de deformação), com $\Omega_c = \omega_D$ (frequência de Debye).

O resultado geral para dissipação super-ôhmica é que para $T = 0$ e $\epsilon = 1$ não importa que tão grande seja a constante A , o sistema sempre vai apresentar oscilações coerentes sub-amortecidas e

$$\begin{aligned}
 P(t) &\equiv \langle \sigma_z(t) \rangle \\
 &= \cos(\tilde{\Delta}t) \exp(-\Gamma_s t)
 \end{aligned}
 \tag{5.17}$$

onde Γ_s é a taxa de amortecimento dada por

$$\Gamma_s = \frac{q_0^2}{4\hbar} J(\tilde{\Delta}),
 \tag{5.18}$$

e $\tilde{\Delta}$ uma frequência renormalizada dada por

$$\tilde{\Delta} = \Delta \exp\left(-\frac{q_0^2}{2\pi\hbar} \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2}\right)
 \tag{5.19}$$

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

Uma vez esclarecidos os detalhes sobre o sistema em questão, sobre o fenômeno que nos interessa tratar e as ferramentas a nossa disposição damos passo ao estudo da decoerência por dissipação do spin eletrônico em pontos quânticos.

O sistema é então um sistema de dois níveis: o spin, e para ele perder coerência por dissipação precisa de um meio ou banho. Como foi visto na seção anterior dependendo do grau de acoplamento entre eles, o sistema pode apresentar diversos comportamentos. Neste caso em particular o meio vem determinado pelos graus de liberdade do elétron, os átomos que fazem parte do QD, as vibrações da rede (i. e. fônons). Mas para o spin “enxergar” tudo aquilo precisa de um mecanismo de acoplamento próprio da sua natureza o qual se limita a interação com momentos angulares ou campos magnéticos. Para este estudo consideraremos apenas interações com a órbita eletrônica e com o campo magnético externo. A influência dos fônons virá só mediante o acoplamento elétron-fônon, constituindo-se no que denominamos: banhos efetivos para o spin.

Vamos agora a estudar a interação spin-órbita em materiais semicondutores e as interações elétron-fônon relevantes para poder achar a função espectral dos banhos efetivos que afetam a coerência do sistema, em pontos quânticos de hetero-estruturas semicondutoras.

Especificamente, estamos interessados em pontos quânticos auto-organizados de InAs-GaAs. O GaAs e o InAs são ligas tipo A_3B_5 , com estrutura zinblende, e gap direto localizado no ponto Γ ($k = 0$). Na figura 6.1 se apresenta uma curva de dispersão se fônons em GaAs. Nesta figura se observa que as energias dos modos ópticos são da ordem de dezenas de milielétron volts, sendo que as energias dos modos acústicos cobrem um intervalo de energias que va de zero até dezenas de milielétron volts.

Para o caso de InAs/GaAs, considerando o elétron na banda de condução, as possíveis interações com os fônons acústicos são a interação piezoelétrica (PZ) e o potencial de deformação (DP), enquanto que com os fônons ópticos o acoplamento é por meio da interação de Fröhlich, com a participação só dos modos longitudinais (LO), tabela 6.1. Muitas coisas tem sido argumentadas sobre estes acoplamentos e especialmente sobre

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

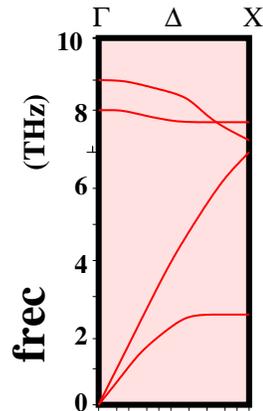


Figura 6.1.: Curva de dispersão de fônons em GaAs.

Tabela 6.1.: Resumo das interações elétron-fônon em GaAs na banda de condução [45].

Fônon	GaAs
TA	PZ
LA	DP,PZ
TO	-
LO	Fröhlich

a não participação dos fônons ópticos em processos de relaxação do elétron em QDs. Vamos inicialmente a fazer uma breve revisão da interação spin-órbita e logo depois estudar as interações elétron-fônon e o papel que desempenham os fônons como fonte de decoerência para o spin. No capítulo três vimos como experimentalmente esses efeitos são juntados na constante fenomenológica medida T_2 , agora pretendemos indagar sobre a natureza desses processos, os quais juntamos na Hamiltoniana de relaxação H_R , seção 4.1.

6.1. Interação Spin-Órbita

Na física atômica é bem conhecido que o spin pode se acoplar com o momento angular orbital via a interação spin-órbita. Em sólidos, deslocamentos da rede geram campos elétricos (∇V) que o elétron sente e este ao mover-se sob influência desses campos gera um campo magnético que se acopla com o spin. A forma geral da interação spin-órbita é a seguinte,

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

	GaAs	GaSb	InP	InAs	InSb
$\gamma_c(eV\text{\AA}^3)$	24.5	187	8	-	220

Tabela 6.2.: Valores da constante γ_c .

$$H_{so} = \frac{\hbar}{4c^2m^2} (\nabla V \times \mathbf{p}) \cdot \sigma, \quad (6.1)$$

onde σ são as matrizes de Pauli, e \mathbf{p} e m o momento e a massa eletrônicos respectivamente. Para semicondutores, essa interação deve se colocar dentro da aproximação $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$, que será discutida no apêndice c, considerando as diferentes bandas e aproveitando as simetrias específicas dessas bandas [46], para chegar na que se conhece como interação de Dresselhaus [45].

Para o caso de elétrons localizados no ponto Γ , ponto central da célula unitária e coincidentalmente ponto extremo das bandas de valência ou condução em um semicondutor de gap direto como GaAs, a interação resultante é

$$H_{so} = H_{c3} = \gamma_c \sum \sigma_i \kappa_i \quad (6.2)$$

desprezando ordens maiores em k , onde

$$\begin{aligned} \kappa_x &= k_x (k_y^2 - k_z^2), \\ \kappa_y &= k_y (k_z^2 - k_x^2), \\ \kappa_z &= k_z (k_x^2 - k_y^2), \end{aligned} \quad (6.3)$$

e $\gamma_c = \frac{2}{3} \frac{\Delta}{\sqrt{2m^* E_g m_{vc}^* E_g}}$ e Δ é a energia de Zeeman. Para pontos quânticos auto-organizados podemos assumir que os graus de liberdade estão congelados no eixo z , de tal forma que a equação 6.2 se reduz a

$$H_{so} = \zeta (-\sigma_x k_x + \sigma_y k_y), \quad (6.4)$$

onde $\zeta = \gamma_c \langle k_z^2 \rangle$. Se assumirmos um poço de potencial quadrado na direção z ,

$$\langle k_z^2 \rangle \approx \frac{\pi^2}{h^2} \quad (6.5)$$

onde h é a altura do ponto. A quantização é ao longo do eixo z ([001]).

6.2. Interações Elétron-Fônon

Dentro da aproximação de Bohr-Oppenheimer ou aproximação adiabática, a Hamiltoniana que descreve um cristal pode ser dividida em três termos: H_F , H_{El} e H_{El-F} . Os dois primeiros termos tratam separadamente os movimentos dos elétrons (H_{El}) e dos íons (H_F); o terceiro termo descreve a interação entre elétrons e íons ou interação elétron-fônon. A Hamiltoniana então, estará composta pela soma dos três termos,

$$H = H_F + H_{El} + H_{El-F}. \quad (6.6)$$

A parte atômica descreve os modos normais de vibração de um sólido:

$$H_F = \sum_{\mathbf{q}\lambda} \omega_{\mathbf{q}\lambda} \left(a_{\mathbf{q}\lambda}^\dagger a_{\mathbf{q}\lambda} + \frac{1}{2} \right), \quad (6.7)$$

a parte eletrônica

$$H_{El} = \sum_i \frac{p_i^2}{2m} + \frac{1}{2} e^2 \sum_{i,j} \frac{1}{r_{ij}}, \quad (6.8)$$

e as interações elétron-íon,

$$H_{El-F} = \sum_{i,j} V_{ei}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j). \quad (6.9)$$

Esta última equação, a Hamiltoniana de interação, soma as interações dos átomos individuais ou íons. Cada íon se localiza na posição $\mathbf{R}_j = \mathbf{R}_j^{(0)} + \delta\mathbf{R}_j$, resultado da soma da posição de equilíbrio $\mathbf{R}_j^{(0)}$ e o deslocamento $\delta\mathbf{R}_j$. Como este último é tão pequeno, o potencial pode ser expandido em potências:

$$V_{ei}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j^{(0)} - \delta\mathbf{R}_j) = V_{ei}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j^{(0)}) - \delta\mathbf{R}_j \cdot \nabla V_{ei}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j^{(0)}) + O(\delta\mathbf{R}^2). \quad (6.10)$$

A interação linear de elétron-fônon é obtida do termo linear em $\delta\mathbf{R}_j$, os outros são desprezados dentro da aproximação de pequenos deslocamentos.

O primeiro elemento do lado direito da equação, $\sum_j V_{ei}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j^{(0)})$, é o potencial criado pelos átomos estarem localizados nas suas posições de equilíbrio, o qual forma o potencial periódico do cristal. A solução da Hamiltoniana para o movimento do elétron no cristal neste potencial periódico dá como resultado os estados de Bloch. Ignorando correções de mais alta ordem, nos concentraremos no segundo termo da expansão para deduzir as formas de interação elétron-fônon:

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

$$V = -\delta\mathbf{R}_j \cdot \nabla V_{ei}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j^{(0)}). \quad (6.11)$$

O deslocamento pode expressar-se nos operadores de criação e destruição a_q^\dagger e a_q da seguinte forma

$$\delta\mathbf{R}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{q}} \left(\frac{\hbar}{2NV\rho\omega_{\mathbf{q}}} \right)^{1/2} \mathbf{e}_{\mathbf{q}} \left\{ \left(a_{\mathbf{q}} \exp[-i\omega t] + a_{-\mathbf{q}}^\dagger \exp[-i\omega t] \right) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \right\} \quad (6.12)$$

onde N é o número de células unitárias no cristal, $\omega_{\mathbf{q}}$ a dispersão dos fônons, V o volume da célula primitiva, ρ a densidade e $\mathbf{e}_{\mathbf{q}}$ o vetor de polarização.

Os efeitos responsáveis pela perturbação podem ser divididos em dois: de curto alcance, determinados pelo deslocamento dos átomos vizinhos, e de longo alcance, criados pela polarização devido a deslocamentos atômicos de todo o material.

As forças de curto alcance são as que correspondem com o potencial de deformação, enquanto que as de longo alcance estão associadas com campos elétricos que surgem da polarização da rede. A esses campos elétricos se associam a interação piezoelétrica no caso dos fônons acústicos e a interação de Fröhlich no caso dos fônons ópticos.

6.2.1. Interação Piezoelétrica

Em cristais não centro simétricos, um “strain” induz um campo elétrico macroscópico \mathbf{E} e por sua vez um campo elétrico gera um “strain”. Este fenômeno é conhecido como efeito piezo-elétrico, figura 6.2. Os fônons acústicos criam modulações de densidade periódicas e pelo tanto, campos elétricos periódicos. Se S_{ij} é o “strain” no cristal, o campo elétrico é proporcional ao “strain”,

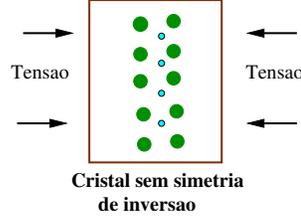
$$E_k = \sum_{i,j} M_{ijk} S_{ij}. \quad (6.13)$$

O “strain” é definido como a derivada simétrica do deslocamento (para pequenos deslocamentos):

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \delta\mathbf{R}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \delta\mathbf{R}_j}{\partial x_i} \right), \quad (6.14)$$

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

Figura 6.2.: Efeito Piezoelétrico



$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\hbar}{2NV\rho\omega} \right)^{1/2} i \sum_q (e_j q_i + e_i q_j) (a_q + a_{-q}^\dagger) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}). \quad (6.15)$$

Devido ao fato do campo elétrico ser criado pelos fônons longitudinais (e considerando só comprimentos de onda longos para ignorar efeitos atômicos), deve apontar na direção \mathbf{q} do fônon. Então, pode se escrever com o gradiente de um potencial ϕ :

$$\begin{aligned} E_k &= -\frac{\partial}{\partial x_k} \phi(\mathbf{r}) \\ &= -\frac{1}{\sqrt{V}} \sum_q i q_k \phi_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \end{aligned} \quad (6.16)$$

e o potencial é proporcional ao deslocamento

$$\phi(\mathbf{r}) = i \sum_{\mathbf{q}\lambda} \left(\frac{\hbar}{2NV\rho\omega_{q\lambda}} \right)^{1/2} M_{\mathbf{q}\lambda} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} (a_{q\lambda} + a_{-q\lambda}^\dagger) \quad (6.17)$$

sendo λ a polarização do fônon acústico (LA ou TA). $M_{\mathbf{q}\lambda}$ não depende da magnitude de \mathbf{q} mas sim na direção.

A partir do potencial podemos chegar na Hamiltoniana, que é

$$H_{ep} = \sum_{\mathbf{q}\lambda} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} (a_{q\lambda} + a_{-q\lambda}^\dagger) b_{\mathbf{q}}. \quad (6.18)$$

onde $b_{\mathbf{q}} = M_{\mathbf{q}\lambda} \left(\frac{\hbar}{2NV\rho\omega_{q\lambda}} \right)^{1/2}$ depende do tipo de material. A diferença da interação de Fröhlich (seguinte seção), a interação piezoelétrica não pode ser expressa com parâmetros

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

macroscópicos.

6.2.2. Interação de Fröhlich

É um tipo de interação entre elétrons e fônons ópticos longitudinais produzida em cristais polares ou em parte iônicos. Neste tipo de cristais, os fônons de comprimento de onda maior envolvem deslocamentos dos átomos carregados dentro da célula primitiva. Esses deslocamentos de átomos com carga oposta geram campos elétricos macroscópicos, os quais interagem com os elétrons em uma forma similar aos campos elétricos gerados pelos fônons acústicos. Tanto o campo elétrico gerado pelos deslocamentos de carga quanto a polarização macroscópica são proporcionais ao deslocamento. A partir deste se obtém a Hamiltoniana que é

$$H_{el-ph} = i \left[\frac{e^2 \hbar \omega_{LO}}{2V \epsilon_0} \left(\frac{1}{\epsilon(\infty)} - \frac{1}{\epsilon(0)} \right) \right]^{1/2} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{q} \left\{ a_{\mathbf{q}} \exp [i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{el}] - a_{\mathbf{q}}^\dagger \exp [-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{el}] \right\} \quad (6.19)$$

onde ω_{LO} é a frequência LO, $\epsilon(\infty)$ e $\epsilon(0)$ são a constante dielétrica para frequências muito altas e zero respectivamente. (Para uma forma detalhada da dedução da interação de Fröhlich ver apêndice B.1.)

6.3. Função Espectral da Interação com Fônons Acústicos

Lembrando agora as propriedades dos pontos quânticos mencionadas no segundo capítulo cabe diferenciar os regimes sobre os que vão ser permitidas as interações com os diferentes tipos de fônons. Como já foi dito, a redução no tamanho do ponto quântico reflete na separação entre seus níveis de energia. A energia de confinamento depende do inverso do quadrado do tamanho do QD: entre maior o tamanho, menor a energia de confinamento, ou seja, menor espaçamento entre níveis. Isto nos leva diretamente a um problema reportado na literatura como “phonon bottleneck” ou “gargalo do fônôn”. Este fenômeno se dá devido à pouca dispersão dos modos ópticos. Para haver acoplamento elétron-LO é necessário que a energia de confinamento do elétron corresponda à energia dos fônons ópticos, cumprindo o princípio de conservação de energia e momento. Em pontos quântico “grandes” ($\omega_0 < \omega_{LO}$) fica bloqueada a interação elétron-LO, e o caminho a seguir é estudar o acoplamento do elétron com os fônons acústicos, como banho efetivo para o spin.

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

Como foi resumido na tabela 6.1 existem duas possíveis interações dos modos acústicos com um elétron localizado na banda de condução: potencial de deformação e interação piezoelétrica. Como já é conhecido, o potencial de deformação como mecanismo de interação elétron-LA/TA se reflete em dissipação coerentemente amortecida para o spin. A seguir falaremos só da interação piezoelétrica.

Primeiramente, juntaremos todos os ingredientes preparados nos capítulos anteriores para construir a Hamiltoniana global do universo composto por o elétron preso no ponto quântico, o spin desse elétron, o campo magnético externo (constante), os modos acústicos, e as formas de interação dos elemento mencionados,

$$H = H_E + H_{Spin} + H_{SO} + H_{Ac} + H_{El-Ac}. \quad (6.20)$$

Para começar, lembramos do capítulo dois que o confinamento ao qual está sujeito o elétron no ponto quântico e o campo magnético externo definem seus auto-estados, os quais conhecemos como estados de Fock-Darwin. Desprezando a parte diamagnética da Hamiltoniana de Fock-Darwin por simplicidade, podemos separar os termos correspondentes ao eixo x e o eixo y , a Hamiltoniana correspondente é

$$H_E = \frac{p^2}{2m_e} + \frac{m_e}{2} \tilde{\omega}^2 (x^2 + y^2). \quad (6.21)$$

O spin interage diretamente com o campo magnético¹

$$H_{Spin} = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}. \quad (6.22)$$

Para maior clareza conservamos a notação do capítulo 5 re-escrevendo-a como,

$$H_S = -\frac{\hbar}{2} \Delta \sigma_x. \quad (6.23)$$

A interação spin-órbita será descrita pela equação 6.4,

$$H_{so} = \gamma_c \langle k_z^2 \rangle (-\sigma_x k_x + \sigma_y k_y) \quad (6.24)$$

substituindo $\gamma_c \langle k_z \rangle$ por ζ . A forma para a Hamiltoniana dos modos acústicos (Eq. 6.7) é

$$H_{Ac} = \sum_{\mathbf{q}\lambda} \omega_{\mathbf{q}\lambda} \left(a_{\mathbf{q}\lambda}^\dagger a_{\mathbf{q}\lambda} + \frac{1}{2} \right). \quad (6.25)$$

¹Lembre-se que o campo magnético também está presente na Hamiltoniana do elétron, incluído quando fizemos a mudança para o gauge $\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p} - \frac{e}{m} \mathbf{A}$, no capítulo dois.

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

	$b(eV/\text{Å})$
Si	0
Ge	0
GaAs	0.166
InAs	0.041

Tabela 6.3.: Constante piezoelétrica

A interação elétron-fônon merece especial atenção de nossa parte. Como vimos na seção 6.2.1 ela está determinada pela equação 6.18. Considerando $qr \ll 1$ podemos aplicar a aproximação dipolar, ou seja, restringimos o estudo a fônons com comprimento de onda longo². O resultado da aproximação é,

$$H_{ep} = \sum_{\mathbf{q}\lambda} \left(\frac{\hbar}{2NV\rho\omega_{q\lambda}} \right)^{1/2} (1 + i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) (a_{q\lambda} + a_{-q\lambda}^\dagger) b_{\mathbf{q}}, \quad (6.26)$$

da qual obtemos um termo que não depende da posição do elétron e que translada o ponto de oscilação dos fônons. O segundo termo é linear na posição do elétron e portanto pode separar-se em coordenadas. Re-escrevendo só na coordenada x

$$H_{int} = \frac{\hbar}{2\sqrt{m_e\omega_0}} (c_x^\dagger + c_x) \sum_{qx} b_{\mathbf{q}} (a_{qx}^\dagger + a_{qx}). \quad (6.27)$$

É claro que à coordenada y corresponde uma equação totalmente similar a anterior. A seguir aparecem alguns valores experimentais de $b_{\mathbf{q}}$ em estruturas tipo zinblende, tabela 6.3. $b_{\mathbf{q}}$ se reduz a

$$b_{\mathbf{q}\lambda} = b(\hat{\mathbf{q}}_i \hat{\mathbf{q}}_j)_\lambda, \quad (6.28)$$

e especificamente para o caso de GaAs

$$b = \frac{4\pi e^2}{\epsilon_\infty} \frac{e_{14}}{e}, \quad (6.29)$$

onde e_{14} é a constante elástica, determinada a partir das propriedades de simetria do cristal e ϵ_∞ a constante dielétrica do material.

Finalmente temos completa a Hamiltoniana que descreve o problema, mas falta esclarecer o caminho seguir. Se observarmos com cuidado a Hamiltoniana global a metade é semelhante a Hamiltoniana spin-boson e a outra metade à Hamiltoniana geral descrita no capítulo 5, equação 5.3, e são justamente essas semelhanças as que definem o caminho.

²Esta restrição já tinha sido considerada com a intenção de evitar interações atômicas na Seção 6.2

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

Como sabemos, os modos acústicos formam um banho para o elétron, então a forma de proceder é resolver o banho do elétron diagonalizando a Hamiltoniana elétron+fônons-acústicos+interação elétron-fônon³. Essa diagonalização é feita usando uma transformação canônica e o procedimento detalhado está no apêndice A.1.

A pergunta a seguir é como saber que tanto irá influenciar à coerência do spin o fato do elétron estar ligado aos fônons acústicos. Para resolver esta questão, uma vez conhecidos os modos de oscilação do conjunto elétron-fônon, se inclui a interação spin-órbita e se procede a diagonalizar novamente (apêndice A.2) com a intenção de chegar em uma equação do tipo spin-boson (descrita na seção 5.1), da qual é facilmente extraída a função espectral efetiva. Uma vez conhecida essa função conhecemos o comportamento do sistema (o spin) em presença do banho efetivo de fônons acústicos.

A forma geral da função espectral do acoplamento elétron-fônon é

$$J(\omega) = \eta_s \frac{\omega^s}{\omega_D^{s-1}} e^{-\omega/\omega_D}. \quad (6.30)$$

No caso particular da interação piezoeétrica, $s = 3$ e

$$\eta_s = \frac{b^2 \omega_D^2}{35\pi\rho} \left(\frac{1}{v_l^5} + \frac{4}{3v_t^5} \right) \quad (6.31)$$

onde v_l e v_t são as velocidades longitudinais e transversais dos modos acústicos e ω_D é a frequência de Debye.

Que a função espectral do elétron acoplado com um banho de fônons dependa de $s = 3$ está nos dizendo que a dissipação é super-ôhmica, ou seja, apresenta um comportamento sub-amortecido. Partindo da função espectral para o elétron no banho de fônons (acústicos ou ópticos) chegamos a que a função espectral efetiva para o spin é

$$J_{Eff}(\omega) = \frac{4}{\pi} \left(\frac{\zeta}{\omega_0} \right)^2 \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^2 J(\omega). \quad (6.32)$$

Especificamente $J(\omega)$ do banho de fônons acústicos é (figura 6.33)

$$J_{Eff}(\omega) = \frac{4}{\pi} \left(\frac{\zeta}{\omega_0} \right)^2 \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^2 \eta_s \frac{\omega^3}{\omega_D^2} e^{-\omega/\omega_D}. \quad (6.33)$$

Para esse tipo de dependência em ω o comportamento do sistema é super-ôhmico, apresentando oscilações coerentemente amortecidas. Quer dizer que o banho de fônons acústicos não representa uma fonte significativa de decoerência para o spin confinado no

³O método mais usado para resolver o sistema é por meio de integrais de trajetória, traçando os graus de liberdade do banho. Porém, nós escolhimos a diagonalização por transformação canônica, sem nenhuma consequência ou restrição.

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

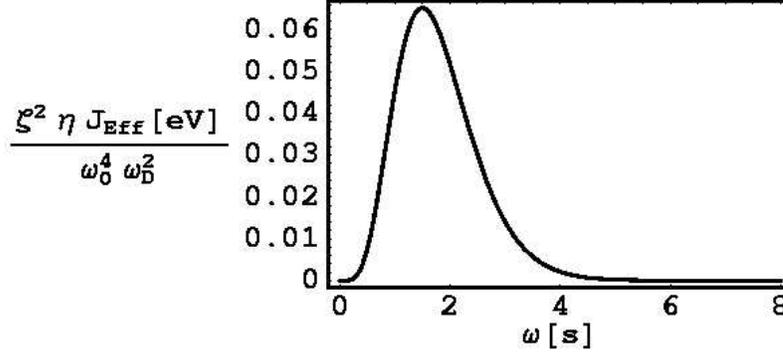


Figura 6.3.: Função Espectral Efetiva.

ponto quântico. A energia de transição entre níveis de spin é a energia de Zeeman, cuja frequência é

$$\Delta = \frac{g\mu_B B}{2\hbar}, \quad (6.34)$$

e lembre-se que g é o fator que define o momento magnético efetivo. Em pontos quânticos de InGaAs o fator g do elétron é $g \sim -1.5$ para um campo magnético de $B = 10T$, $\Delta = 2 \times 10^{11} rad/s$. A frequência renormalizada $\tilde{\Delta}$ é aproximadamente igual a Δ e a taxa de amortecimento⁴ $\Gamma_s = \frac{1}{\hbar} J_{Eff}(\Delta)$. Este resultado é o mesmo que o obtido por Khaestii e Nazarov, usando a regra de ouro de Fermi [51], como esperado pela teoria de sistema de dois níveis dissipativos.

Para obter valores numéricos através deste resultado utilizamos constantes de bulk, que a seguir resumem-se na tabela 6.4, com seus respectivos tempos de decoerência, que são da ordem de ms para uma energia de Zeeman de $0.1meV$. Para GaAs, a densidade é $\rho = 5.32 \frac{gr}{cm^3}$ e $\zeta = 1.5 \times 10^{-13} \frac{\text{Å}}{s}$.

A energia de Zeeman depende do fator g ⁵, então a taxa de amortecimento também vai depender através do fator g , do tamanho do ponto quântico. O tempo de decoerência para este caso depende de Δ^{-5} .

Seria importante ver os mesmos resultados em InAs mas o valor da constante γ_c não

⁴Cabe lembrar que este resultado corresponde a $T = 0K$. A energia de Zeeman ($0.1meV$ aprox. a $B = 10T$ em GaAs) é muito baixa, de maneira que só para temperaturas perto de zero é relevante falar em decoerência de spin por interação spin-órbita-fônon. Para $T = 5K$ a energia térmica é $0.4meV$.

⁵Lembramos do capítulo quatro que os processos de defasagem nos experimentos de rotação de Faraday estavam fortemente influenciados pelos diferentes fatores g dos pontos quânticos nas amostras, figura 4.6.

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

m^*	ω (meV)	V_T ($\frac{cm}{s}$)	V_L ($\frac{cm}{s}$)	η_s ($\frac{gr}{s}$)	T_2 (s)
$0.1m_e$	10	3.35×10^5	4.73×10^5	8.99×10^{-13}	0.053
$0.063m_e$	15	3.35×10^5	4.73×10^5	8.99×10^{-13}	0.32
$0.063m_e$	10	3.35×10^5	4.73×10^5	8.99×10^{-13}	0.13
$0.063m_e$	5	3.35×10^5	4.73×10^5	8.99×10^{-13}	0.033
$0.063m_e$	2	3.35×10^5	4.73×10^5	8.99×10^{-13}	0.0057

Tabela 6.4.: Tempos de decoerência em GaAs.

é conhecido. Outros materiais de interesse para fabricação de pontos quânticos são germânio e silício, nos quais não pode ser aplicado o formalismo anterior por tratarse de materiais nos quais não pode ser aplicada a forma da interação spin-órbita usada aqui. Um outro material de interesse é InP.

6.4. Função Espectral da Interação com Fônons Ópticos

No início da seção anterior, falamos da impossibilidade do elétron para se acoplar com os modos ópticos. No caso de pontos quânticos grandes o suficiente para que a energia entre níveis seja muito menor a energia dos fônons ópticos (em GaAs), a possibilidade de acoplamento não existe. Mas o que acontece se reduzirmos o tamanho do ponto de maneira que essas energias se aproximem?

Li e colaboradores [52, 53] examinaram teoricamente este problema à luz do acoplamento não harmônico dos fônons ópticos com os fônons acústicos do bulk, e concluíram que o acoplamento elétron-fônon óptico pode ser um mecanismo eficiente de relaxação orbital. Os modos ópticos confinados dentro do ponto quântico são de natureza discreta, mas como resultado da interação com os fônons acústicos e ópticos do bulk tem um tempo de vida curto. Mesmo sabendo que estão confinados, a forma exata dos fônons ópticos e da interações não harmônicas não é bem conhecida. Por tal razão neste estudo assumimos a forma de bulk deles.

Para responder a questão examinemos a evidência experimental que vem de um outro tipo de experimento reportado na literatura, no qual fazendo uso da técnica de “pump-probe” estudaram relaxação entre níveis orbitais de confinamento lateral em SAQDs [36]. Este experimento foi feito no esquema de transmissão, em pontos quânticos auto-organizados de InGa-GaAs com dois elétrons por ponto quântico⁶. O tamanho médio dos

⁶Mesmo usando a técnica de “pump-probe” este tipo de experimento se diferencia de aqueles descritos no quarto capítulo justamente no fato de usar um esquema de transmissão para o qual são testados fenômenos de relaxação, T_1 . Neste esquema se mede o tempo de vida do estado, enquanto que no esquema de FWM se mede o tempo de vida de uma superposição coerente, T_2 .

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

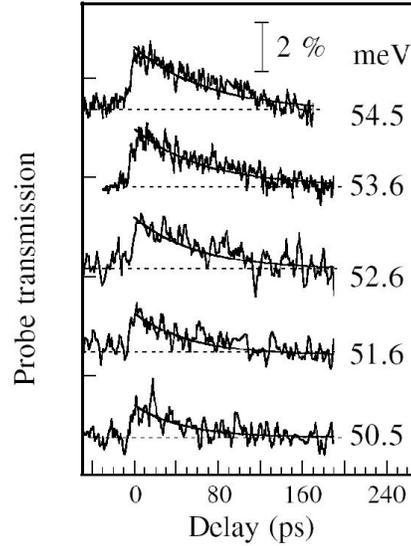


Figura 6.4.: Sinal de Transmissão em QDs de InGa-GaAs [36].

QD foi de $\sim 25nm$ (energia característica $\sim 56meV$). Quando falamos em transmissão nos referimos ao tempo T_1 , tempo de relaxação, equação 4.9.

Este experimento é de especial interesse porque nele se observou uma faixa de energia perto da energia do modo óptico para qual se liga a interação elétron-LO.

A figura 6.4 mostra a dependência espectral do feixe de prova como função do tempo de atraso entre os dois feixes. Esta dependência é ilustrada nas energias de excitação variando entre 54.5 meV (abaixo) e 50.5 meV (acima). A medida foi feita a $T=5K$. Destas medições foram extraídos tempos de relaxação da ordem de dezenas de ps (70ps para energia de excitação de 54.5 meV).

Se observa uma dependência significativa do tempo de relaxação na energia de excitação, ou seja, na diferença de energia entre os estados confinados. Aparentemente, o tempo de relaxação decresce monotonicamente quando a diferença de energia entre níveis se aproxima à energia do fônon óptico. Como já tinha sido proposto antes [52, 53], o tempo de vida finito dos fônons ópticos devido à não harmonicidade do cristal pode conduzir a uma forma eficiente de relaxação para o elétron.

Uma outra evidência experimental vem de medidas de dispersões de campo magnético das ressonâncias (transições $s-\pi_+$, $s-\pi_-$ dependendo da polarização do feixe incidente), feitas em pontos quânticos auto-organizados de InAs[54], figura 6.5. O diâmetro lateral dos QDs era de $\sim 20nm$ e sua energia característica $\sim 50meV$. O acoplamento elétron-

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

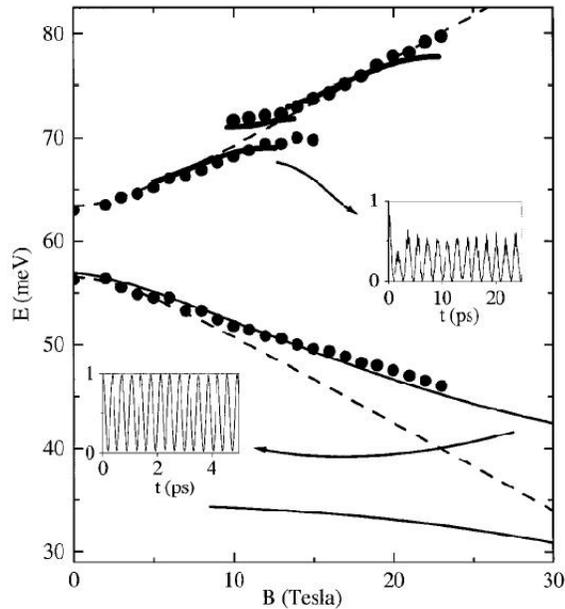


Figura 6.5.: Medidas de dispersão de campo magnético em QDs de InAs (bolhas). As linhas pontilhadas são resultados teóricos [54].

LO se viu no fato de observarem um anti-cruzamento para uma energia de $\sim 70\text{meV}$ e 12T . Essa energia corresponde a energia de dois fônons LO seja em GaAs ou InAs. Para campos magnéticos maiores de 8T , a dispersão do ramo mais baixo mostrou um desvio com respeito ao seu comportamento esperado (linha pontilhada), ou seja, teve um desvio na medida que a energia foi se aproximando à energia LO.

Fica então aberta a possibilidade do acoplamento elétron-fônon óptico como fonte de relaxação para o elétron e portanto pode-se considerar o elétron acoplado com os modos ópticos (junto com seus mecanismos de amortecimento como fônons acústicos e outros modos ópticos) como um novo banho efetivo para o spin.

Partimos agora a considerar a interação elétron-LO como fonte de decoerência, considerando que as não harmonidades da rede levam a um tempo de vida curto para os fônons ópticos (alguns picosegundos nos materiais de interesse aqui).

6. Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos

Como sabemos, só existe uma forma de interação do elétron-fônon óptico em GaAs para um elétron localizado na banda de condução e é a interação de Fröhlich.

Nosso problema é agora extrair a função espectral do novo banho efetivo para o spin: o elétron acoplado com modos ópticos que por sua vez se acoplam com um banho de fônons acústicos. Um vez conhecida essa função espectral procedemos de igual maneira que no caso do banho de fônons acústicos para finalmente conhecer o tipo de dissipação ao qual está sujeito o spin por causa deste banho efetivo (dentro das aproximações feitas).

O primeiro passo é assumir um tipo de acoplamento entre os modos ópticos e o banho de fônons acústicos: assumimos dissipação ôhmica (com base no comportamento amortecido dos modos ópticos confinados em pontos quânticos, vide tabela 5.1), e diagonalizamos a Hamiltoniana pertinente. Paralelamente, reduzimos a interação de Fröhlich à Hamiltoniana de dois osciladores acoplados, por meio de aproximação dipolar (apêndice A.3). Isto feito, introduzimos essa forma da interação de Fröhlich na Hamiltoniana diagonal do acoplamento entre fônons e diagonalizamos novamente para obter a função espectral do banho efetivo (elétron-LO-LA(TA)). Essa função espectral é

$$J_{Eff}(\omega) = \frac{\pi\alpha^2}{\rho NV \ell^2} \frac{2\gamma\omega}{(\omega^2 - \omega_{LO}^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2}, \quad (6.35)$$

onde α é a constante de acoplamento de Fröhlich

$$\alpha = \left[\frac{\hbar\omega_{LO}e^2}{2V\epsilon_0} \left(\frac{1}{\epsilon(\infty)} - \frac{1}{\epsilon(0)} \right) \right]^{1/2}, \quad (6.36)$$

$\ell^2 = \frac{\hbar}{m^*\omega_e}$ o comprimento elétrico e γ a constante de amortecimento dos fônons ópticos ($\gamma \sim 1.4 \times 10^{11} s^{-1}$ em GaAs). Se observa que o acoplamento ôhmico dos fônons ópticos com o banho de fônons acústicos se traduziu em um comportamento ôhmico também para o elétron.

Esta função espectral nos interessa no caso específico de $\omega \sim \omega_{LO}$. Partindo do tipo de dissipação do banho efetivo para o elétron achamos a função espectral para o spin $J^{Eff}(\omega)$ que é

$$J^{Eff}(\omega) = \frac{4\alpha^2}{\rho NV \ell^2} \left(\frac{\zeta}{\omega_0} \right)^2 \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^2 \frac{\gamma\omega}{(\omega^2 - \omega_{LO}^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2}, \quad (6.37)$$

Para baixas frequências, esta função espectral efetiva corresponde a dissipação super-ôhmica, e o sistema apresentará novamente um comportamento oscilatório cuja amplitude decai com o tempo. A taxa de amortecimento neste caso depende de Δ^3 e o tempo de decoerência como Δ^{-3} . Para GaAs o tempo de decoerência é da ordem de μs , a tabela

6. *Banhos Efetivos para o Spin nos Pontos Quânticos*

ω_0 (meV)	T_2 (μs)
25	1.75
30	2.53
35	3.44
40	4.5

Tabela 6.5.: Tempo de decoerência em GaAs.

6.5 resume os tempos obtidos para energias próximas à energia dos modos ópticos. As constantes usadas para fazer a conta foram especificadas na seção 6.3.

7. Conclusões

Podemos concluir que o spin eletrônico em um ponto quântico é um sistema quântico dissipativo por conta das interações elétron-fônon. Os fônons se revelam como um banho efetivo para o spin ao interagir com a órbita eletrônica, que por sua vez se acopla com o spin.

A principal fonte de decoerência em pontos quânticos “grandes” é a interação piezoelétrica, que por se mesma é uma fonte de dissipação super-ôhmica para o elétron, traduzindo-se em uma dinâmica coerentemente amortecida para o spin, dentro da aproximação dipolar.

Podemos dizer que para frequências similares do elétron e os fônons ópticos, um banho ôhmico para os fônons ópticos gera um banho ôhmico para o elétron. Na aproximação dipolar, vemos que a interação entre o elétron e os fônons ópticos é semelhante a interação de dois osciladores harmônicos bidimensionais, desacoplados nas direções.

Quando a frequência do elétron se aproxima da frequência dos fônons ópticos se liga a interação de Fröhlich. O tempo de vida dos modos ópticos, resultado de acoplamentos não harmônicos entre fônons ópticos e os fônons acústicos do “bulk” induz comportamento dissipativo para o elétron e como consequência também para o spin. O acoplamento não harmônico entre fônons produz um banho efetivo para o spin conformado pela órbita eletrônica, os modos ópticos e o banho de fônons acústicos do bulk. Esse banho efetivo faz com que o spin apresente uma dinâmica também super-ôhmica.

Dentro do tratamento fenomenológico dado as interações spin-órbita-fônon o comportamento do spin apresenta oscilações sub-amortecidas. Porém, a dependência da função espectral em ω^3 para os modos ópticos e em ω^5 para os modos acústicos se traduz em que para frequências de Zeeman ($\sim 10^{11} s^{-1}$) é muito menor o tempo de decoerência devido à interação de Fröhlich (de μs) que o tempo de decoerência devido à interação piezoelétrica (de ms), lembrando que estas duas interações não cobrem o mesmo regime de tamanhos de pontos quânticos. Porém, os valores usados para fazer esses cálculos correspondem a valores “bulk”. Os resultados mostram uma forte dependência no tamanho característico do ponto quântico, então para ter noção real da validade dos tempos, seria preciso usar constantes que correspondam a pontos quânticos, mas muitas das constantes requeridas apenas se conhecem para bulk. Uma continuação do trabalho seria aplicar o mesmo procedimento com usando parâmetros físicos característicos dos pontos quânticos.

Referências Bibliográficas

- [1] Jacak, L., Hawrylak, P. e Wójs, A. *Quantum Dots*. Springer Ed. (1998).
- [2] Zurek, W. *Phys. Rev. D.* **26**, 1862(1982).
- [3] Zurek, W. *Phys. Today.* 36(1991).
- [4] Zeh, H. D. *Found. Phys. I.* **69** (1970).
- [5] Tiwari, S., Rana, F., Chan, K., Shi, L. e Hanafi, H. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1232(1996).
- [6] F. G., Medeiros-Ribeiro, G., Pikus, F. G., Petroff, P. M. e Effros, A. L. *Phys. Rev. B* **55**, 1568(1997).
- [7] Medeiros-Ribeiro, Garcia, J. M. e Petroff, P. M. *Phys. Rev. B* **56**, 3609(1997).
- [8] Luyken, R. J., Lorke, A., Govorov, A. O., Kotthaus, J. P., Medeiros-Ribeiro, G. e Petroff, P. M. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2486(1999).
- [9] Loss, D. e DiVincenzo, D. P. *Phys. Rev. A.* **57**, 120(1998).
- [10] Reed, M. A. *Scien. Amer.* Março(1993).
- [11] DiVincenzo, D. P. *Phys. Rev. A,* **51** 1015(1995).
- [12] Fujisawa, T. et al., *Phys. Rev. B.* **63**, 081304(2001).
- [13] Murray, C. B., Norris, D. J. e Bawendi, M. G. *J. Am. Chem. Soc.* **115**, 8706(1993).
- [14] Bowen, J. E., Colvin, V. L. e Alivisatos, A. P. *J. Phys. Chem.* **98**, 4109(1994).
- [15] Scherer, A. e Craighead, H. G. *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1284(1986).
- [16] Leonard, D., Krishnamurthy, M, Reaves, C. M., DenBaars, S. P. e Petroff, P. M. *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203(1993).
- [17] Bimberg, D., Grunmann, M e Ledentsov, N. N. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley Ed. (1999).

Referências Bibliográficas

- [18] Nötzel, R., Temmyo, J. e Tamamura, T. *Appl. Phys. Lett.* **65**, 457(1994).
- [19] Nötzel, R. *Semi. Sci. Techn.* **11**, 1365(1996).
- [20] Shchukin, V. A., Ledentsov, N. N. e Bimberg, D. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **583**, 23(2000).
- [21] Drexler, H., Leonard, D., Hansen, W. Kotthaus, J. P. e Petroff, P. M. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2252(1994).
- [22] Cohen-Tannoudji, C., Diu, B. e Laloe, F. *Quantum Mechanics*, Vol I e II. Wiley Ed. (1977).
- [23] Caldeira, A. O. e Leggett, A. J. *Phys. Rev. B.* **31** 1059(1985).
- [24] Giulini, D., Joos, E., Kiefer, C., Kupsch, J., Stamatescu, I. -O. e Zeh, H. D. *Decoherence and the Appearance of a Classical World in Quantum Theory*. Springer, 1ra Ed. (1996).
- [25] Shah, J. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductors Nanostructures*. Springer, Sec. Ed. (1999).
- [26] Borri, P., Langbein, W., Mork, J., Hvam, J. M., Heinrichsdorff, F., Mao, M.-H. and Bimberg, D., *Phys. Rev. B.* **60**, 7784 (1999).
- [27] Borri, P., Langbein, W., Schneider, S., Woggon, U., Sellin, R. L., Ouyang, D. and Bimberg, D., *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157401 (2001).
- [28] Borri, P., Langbein, W., Schneider, S., Woggon, U., Sellin, R. L., Ouyang, D. and Bimberg, D., *Phys. Rev. B.* **66**, 081306 (2002).
- [29] Rossi, F., Kuhn, T., *Rev. Mod. Phys.* **74**, 895 (2002).
- [30] Borri, P., Langbein, W., Mork, J., Hvam, J. M., *Phys. Sol. Sta.* **178**, 337 (2000).
- [31] Borri, P., Langbein, W., Mork, J., Hvam, J. M., *Opt. Comm.* **169**, 317 (1999).
- [32] Rappen, T., Peter, U.G., Wegener, M. and Schäfer, W., *Phy. Rev. B.*, **49**, 774 (1994).
- [33] Gupta, J. A., Awschalom, D. D., Peng, X. and Alivisatos, A. P., *Phys. Rev. B.* **59**, 421 (1999).
- [34] Gupta, J. A., Knobel, R., Samarth, N., and Awschalom, D. D., *Science*, **292**, 2458 (2001).

Referências Bibliográficas

- [35] www.iquest.ucsb.edu/sites/Awsch/reseach/EletronSpinCoherence.html
- [36] Sauvage, S., Boucaud, P., Lobo, R. P. S. M., Fishman, G., Bras, F., Prazeres, R., Glotin, F., Ortega, J. M. e Gérard, J. -M. *Phys. Rev. Lett.* **17**, 177402-1(2002).
- [37] Caldeira, A. O. e Leggett A. J. *Physica* **121A** 587(1983).
- [38] Caldeira, A. O. *Helv. Phys. Acta* **61**, 611(1988).
- [39] Weiss, U. *Quantum Dissipative Systems*. World Scient. Sec. Ed.
- [40] Nelson, E. *Phys. Rev.* **150**, 1079(1966).
- [41] Kostin, M. D. *J. Chem. Phys.* **57**, 3589 (1972).
- [42] Dekker, H. *Phys. Rev. A.* **16**, 2116(1977).
- [43] Yasue, K. *Ann. Phys. (N. Y.)* **114**, 479(1978).
- [44] Leggett A. J. et Al. *Rev. Mod. Phys.* **59**, 1(1987).
- [45] Cardona, M. e Yu, P. Y. *Fundamentals of Semiconductors*. Springer Ed. (1996).
- [46] Ivchenko, E. L. e Pikus, G. E. *Superlattices an Other Heterostrutures*. Springer Ed. (1997).
- [47] Kittel, C, *Introdução à Física do Estado Sólido*. Guanabara dois, Quinta Ed.
- [48] Ashcroft, N. W, e Mermim, N. D. *Solid State Physics*. Saunders Ed. (1976).
- [49] Madelung, O. *Introduction to Solid-State Theory*. Springer. 3ra Ed. (1996).
- [50] Mahan, G. *Many-Particle Physics*. Plenum Press. Sec. Ed. (1990).
- [51] Khaestkii, A. V. e Nazarov, Y. V. *cond. mat.*0003513 Julho(2001).
- [52] Li, X. -Q. e Arakawa, Y. *Phys. Rev. B.* **57**, 12 285(1998).
- [53] Li, X. -Q., Nakayama, H. e Arakawa, Y. *Phys. Rev. B.* **59**, 5069(1999).
- [54] Hameau, S., Guldner Y., Verzelen, O., Ferreira, R., Bastard, G., Zeman, J., Lemaître, A. e Gérard, J. M. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4152(1999).

A. Processos de Diagonalização

A.1. Modos de oscilação de um oscilador harmônico acoplado com um banho de osciladores, mediante transformação canônica

A Hamiltoniana de um oscilador harmônico acoplado na coordenada com um banho de osciladores é

$$\begin{aligned}
 H &= \omega_0 b_0^\dagger b_0 + \frac{\sum_{i=1}^N \kappa_i}{4m_0\omega_0} (b_0^\dagger + b_0)^2 + \frac{1}{2} (b_0^\dagger + b_0) \sum_{j=1}^N k_j (b_j^\dagger + b_j) + \sum_{j=1}^N \omega_j b_j^\dagger b_j \\
 &= \omega_0 b_0^\dagger b_0 + \frac{\lambda}{2} (b_0^\dagger + b_0)^2 + \frac{1}{2} (b_0^\dagger + b_0) \sum_{j=1}^N k_j (b_j^\dagger + b_j) + \sum_{j=1}^N \omega_j b_j^\dagger b_j \quad (\text{A.1})
 \end{aligned}$$

havendo definido $k_j = \frac{\kappa_j}{2\sqrt{m_0\omega_0 m_j\omega_j}}$. Se diagonaliza a Hamiltoniana, deixando-a na seguinte forma,

$$H = \sum_{l=0}^N \Omega_l \beta_l^\dagger \beta_l \quad (\text{A.2})$$

por meio de uma transformação canônica do tipo

$$\beta_l^\dagger = \sum_{i=0}^N (u_i^l b_i^\dagger - v_i^l b_i). \quad (\text{A.3})$$

Usando a equação de movimento dos operadores da Hamiltoniana diagonal

$$-i \frac{d\beta_l^\dagger(t)}{dt} = \Omega_l \beta_l^\dagger(t) \quad (\text{A.4})$$

obtido do comutador com a Hamiltoniana,

$$\left[\sum_{j=0}^N \omega_j b_j^\dagger b_j, \beta_l^\dagger \right] + \left[(b_0^\dagger + b_0) \sum_{j=1}^N k_j (b_j^\dagger + b_j), \beta_l^\dagger \right] +$$

A. Processos de Diagonalização

$$\left[\frac{\lambda}{2} (b_0^\dagger + b_0)^2, \beta_l^\dagger \right] = \Omega_l \beta_l^\dagger. \quad (\text{A.5})$$

No seguinte vou estudar termo a termo, usando a seguinte propriedade

$$[A, BC] = [A, B]C + B[A, C]. \quad (\text{A.6})$$

O primeiro comutador é

$$\left[\sum_{j=0}^N \omega_j b_j^\dagger b_j, \beta_l^\dagger \right] = \sum_{j=0}^N \omega_j (u_j^l b_j^\dagger + v_j^l b_j). \quad (\text{A.7})$$

O termo seguinte é

$$\begin{aligned} & \left[(b_0^\dagger + b_0) \sum_{j=1}^N k_j (b_j^\dagger + b_j), \beta_l^\dagger \right] = \\ & \sum_{j=1}^N k_j (u_j^l + v_j^l) (b_0^\dagger + b_0) + \sum_{j=1}^N k_j (b_j^\dagger + b_j) (u_0^l + v_0^l). \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

E o último termo,

$$\left[\frac{\lambda}{2} (b_0^\dagger + b_0)^2, \beta_l^\dagger \right] = \lambda (u_0^l + v_0^l) (b_0^\dagger + b_0). \quad (\text{A.9})$$

Substituindo as relações encontradas na equação de movimento,

$$\begin{aligned} & \sum_{j=0}^N \omega_j (u_j^l b_j^\dagger + v_j^l b_j) + \sum_{j=1}^N k_j (u_j^l + v_j^l) (b_0^\dagger + b_0) + \\ & \sum_{j=1}^N k_j (b_j^\dagger + b_j) (u_0^l + v_0^l) + \lambda (u_0^l + v_0^l) (b_0^\dagger + b_0) = \Omega_l \sum_{j=0}^N (u_j^l b_j^\dagger - v_j^l b_j) \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

resultando as quatro equações correspondentes aos coeficientes dos operadores b_0, b_0^\dagger, b_j e b_j^\dagger

$$\omega_0 u_0^l + \sum_{j=1}^N k_j (u_j^l + v_j^l) + \lambda (u_0^l + v_0^l) = \Omega_l u_0^l \quad (\text{A.11})$$

$$\omega_0 v_0^l + \sum_{j=1}^N k_j (u_j^l + v_j^l) + \lambda (u_0^l + v_0^l) = -\Omega_l v_0^l \quad (\text{A.12})$$

A. Processos de Diagonalização

$$\omega_j u_j^l + k_j (u_0^l + v_0^l) = \Omega_l u_j^l \quad (\text{A.13})$$

$$\omega_j v_j^l + k_j (u_0^l + v_0^l) = -\Omega_l v_j^l. \quad (\text{A.14})$$

Chamando

$$Z^l = u_0^l + v_0^l \quad (\text{A.15})$$

$$C^l = \sum_{j=1}^N k_j (u_j^l + v_j^l) \quad (\text{A.16})$$

teremos que

$$u_0^l = \frac{C^l + \lambda Z^l}{\Omega_l - \omega_0} \quad (\text{A.17})$$

$$v_0^l = -\frac{C^l + \lambda Z^l}{\Omega_l + \omega_0} \quad (\text{A.18})$$

$$u_j^l = \frac{k_j Z^l}{\Omega_l - \omega_j} \quad (\text{A.19})$$

$$v_j^l = -\frac{k_j Z^l}{\Omega_l + \omega_j}. \quad (\text{A.20})$$

Somando a duas primeiras equações e as duas últimas achamos a relação entre C^l e Z^l , e os modos normais de oscilação:

$$Z^l = \frac{2\omega_0 (C^l + \lambda Z^l)}{\Omega_l^2 - \omega_0^2}, \quad (\text{A.21})$$

$$C^l = \sum_{j=1}^N \frac{2\omega_j k_j^2}{\Omega_l^2 - \omega_j^2} Z^l \quad (\text{A.22})$$

e

$$1 = \frac{2\omega_0}{\Omega_l^2 - \omega_0^2} \left(\sum_{j=1}^N \frac{2\omega_j k_j^2}{\Omega_l^2 - \omega_j^2} + \lambda \right), \quad (\text{A.23})$$

A. Processos de Diagonalização

$$\Omega_l^2 - \omega_0^2 = 2\omega_0 \left[\sum_{j=1}^N \frac{2k_j^2}{\omega_j} \left(\frac{\omega_j^2}{\Omega_l^2 - \omega_j^2} \right) + \lambda \right] \quad (\text{A.24})$$

fazendo $\lambda = \sum_{j=1}^N \frac{2k_j^2}{\omega_j}$

$$\Omega_l^2 - \omega_0^2 = 2\omega_0 \sum_{j=1}^N \frac{2k_j^2}{\omega_j} \left(\frac{\omega_j^2}{\Omega_l^2 - \omega_j^2} + 1 \right) \quad (\text{A.25})$$

$$\frac{\Omega_l^2}{\omega_0^2} - 1 = 4 \sum_{j=1}^N \frac{k_j^2}{\omega_0 \omega_j} \frac{\Omega_l^2}{\Omega_l^2 - \omega_j^2}$$

$$\frac{\Omega_l^2}{\omega_0^2} - 4 \sum_{i=1}^N \frac{k_i^2}{\omega_0 \omega_i} \frac{\Omega_l^2}{\omega_i^2 - \Omega_l^2} - 1 = 0. \quad (\text{A.26})$$

Voltando as expressões dos coeficientes,

$$u_0^l = \frac{\Omega_l + \omega_0}{2\omega_0} Z_l \quad (\text{A.27})$$

$$v_0^l = -\frac{\Omega_l - \omega_0}{2\omega_0} Z_l. \quad (\text{A.28})$$

Ainda falta uma relação que nos permita resolver o conjunto de equações, para isso fazemos uso do comutador bosônico,

$$[\beta_l, \beta_l^\dagger] = 1 \quad (\text{A.29})$$

$$\left[\sum_{i=0}^N (u_i^l b_i - v_i^l b_i^\dagger), \sum_{j=0}^N (u_j^l b_j^\dagger - v_j^l b_j) \right] = \sum_{j=0}^N \left\{ (u_j^l)^2 - (v_j^l)^2 \right\} \quad (\text{A.30})$$

e substituindo os u 's e v 's,

$$1 = (Z^l)^2 \left\{ \frac{\Omega_l}{\omega_0} + \sum_{j=1}^N \frac{4k_j^2 \Omega_l \omega_j}{(\Omega_l^2 - \omega_j^2)^2} \right\}. \quad (\text{A.31})$$

E a dependência no tempo das quase-partículas β 's é

A. Processos de Diagonalização

$$\beta_l^\dagger(t) = \sum_{j=0}^N \left(u_j^l e^{i\Omega_l t} b_j^\dagger - v_j^l e^{i\Omega_l t} b_j \right), \quad (\text{A.32})$$

$$\beta_l(t) = \sum_{j=0}^N \left(u_j^l e^{-i\Omega_l t} b_j - v_j^l e^{-i\Omega_l t} b_j^\dagger \right) \quad (\text{A.33})$$

e dos operadores b_i 's

$$b_i^\dagger(t) = \sum_{l=0}^N \left(u_i^l e^{-i\Omega_l t} \beta_l^\dagger + v_i^l e^{i\Omega_l t} \beta_l \right), \quad (\text{A.34})$$

$$b_i(t) = \sum_{l=0}^N \left(u_i^l e^{i\Omega_l t} \beta_l + v_i^l e^{-i\Omega_l t} \beta_l^\dagger \right). \quad (\text{A.35})$$

ou

$$\begin{aligned} b_i^\dagger(t) = & \sum_{j,l=1}^N \left\{ \left[\left(u_i^l u_j^l - v_i^l v_j^l \right) \cos \Omega_l t - i \left(u_i^l v_j^l + v_i^l u_j^l \right) \sin \Omega_l t \right] b_i^\dagger \right. \\ & \left. - \left[\left(u_i^l v_j^l - v_i^l u_j^l \right) \cos \Omega_l t - i \left(u_i^l v_j^l + v_i^l u_j^l \right) \sin \Omega_l t \right] b_i \right\}. \end{aligned} \quad (\text{A.36})$$

A.2. Obtenção da função espectral efetiva

A seguir faremos a diagonalização da Hamiltoniana

$$H = \sum_{l=0}^N \Omega_l \beta_l^\dagger \beta_l + \frac{i\zeta\hbar}{\ell\sqrt{2}} \sigma_x \left(a_x^\dagger - a_x \right) + H_{spin}, \quad (\text{A.37})$$

valendo-nos da transformação canônica feita anteriormente,

$$H = \sum_{l=0}^N \left[\Omega_l \beta_l^\dagger \beta_l + \frac{i\zeta\hbar}{\ell\sqrt{2}} \sigma_x \left(u_l^0 + v_l^0 \right) \beta_l^\dagger - \frac{i\zeta\hbar}{\ell\sqrt{2}} \sigma_x \left(u_l^0 + v_l^0 \right) \beta_l \right] + H_{spin}. \quad (\text{A.38})$$

Seja

$$r_l = \frac{\sqrt{2}\zeta}{\ell} \left(u_l^0 - v_l^0 \right) \quad (\text{A.39})$$

A. Processos de Diagonalização

$$H = \sum_{l=0}^N \left[\Omega_l \beta_l^\dagger \beta_l + r_l \sigma_x (i\beta_l^\dagger - i\beta_l) \right]. \quad (\text{A.40})$$

Fazendo a seguinte transformação

$$\tilde{\beta}_l^\dagger = i\beta_l^\dagger \quad (\text{A.41})$$

a Hamiltoniana se translada em uma Hamiltoniana de spin-boson das descritas na seção 5.1,

$$H = \sum_{l=0}^N \Omega_l \tilde{\beta}_l^\dagger \tilde{\beta}_l + \sigma_x \hbar \sum_{l=0}^N r_l (\tilde{\beta}_l^\dagger + \tilde{\beta}_l) + H_{spin}. \quad (\text{A.42})$$

O r_l é a variável na qual está contida a informação sobre o acoplamento entre o spin e o momento. A função espectral então

$$J_{Eff}(\omega) = \sum_{l=0}^N r_l^2 \delta(\omega - \Omega_l) \quad (\text{A.43})$$

onde

$$r_l = \frac{\sqrt{2}\zeta}{\ell} (u_l^0 + v_l^0) \quad (\text{A.44})$$

e substituindo

$$r_l = \frac{\sqrt{2}\zeta}{\ell} \left(\frac{\Omega_l}{\omega_0} \right) Z_l \quad (\text{A.45})$$

$$\begin{aligned} J_{Eff}(\omega) &= 2 \left(\frac{\zeta}{\omega_0 \ell} \right)^2 \sum_{l=0}^N \Omega_l^2 Z_l^2 \delta(\omega - \Omega_l) \\ &= 2 \left(\frac{\zeta}{\omega_0 \ell} \right)^2 \frac{1}{\omega_0} \oint_C \frac{d\Omega}{\pi i} \frac{\Omega^2 \delta(\omega - \Omega)}{f(\Omega) - 1} \end{aligned} \quad (\text{A.46})$$

a delta de Dirac se escreve como

A. Processos de Diagonalização

$$\delta(\omega - \Omega) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{\epsilon}{\pi} \frac{1}{(\omega - \Omega)^2 + \epsilon^2} \quad (\text{A.47})$$

$$\begin{aligned} J_{Eff}(\omega) &= 2 \left(\frac{\zeta}{\omega_0 \ell} \right)^2 \frac{1}{\omega_0} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{\epsilon}{\pi} \oint_C \frac{d\Omega}{\pi i} \frac{\Omega^2}{f(\Omega) - 1} \frac{1}{(\omega - \Omega)^2 + \epsilon^2} \\ &= 2 \left(\frac{\zeta}{\omega_0 \ell} \right)^2 \frac{1}{i\pi\omega_0} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left[\frac{(\omega - i\epsilon)^2}{f(\omega - i\epsilon) - 1} - \frac{(\omega + i\epsilon)^2}{f(\omega + i\epsilon) - 1} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.48})$$

Segundo o caso, a função espectral pode ter três tipos de dependência em ω . No caso ôhmico, $J(\omega) \simeq \omega$,

$$\begin{aligned} \frac{J(\omega)}{2\pi m\omega_0} &= \frac{\gamma\omega}{\pi\omega_0} \Theta(\Omega_c - \omega) \\ \omega_0^2 (f(\omega + i\epsilon) - 1) &= \omega^2 - \omega_0^2 + 2i\gamma\omega \text{sgn}\epsilon \end{aligned} \quad (\text{A.49})$$

$$\begin{aligned} J_{Eff}(\omega) &= 2 \left(\frac{\zeta}{\omega_0 \ell} \right)^2 \frac{\omega_0^2}{i\pi\omega_0} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left[\frac{(\omega - i\epsilon)^2}{\omega^2 - \omega_0^2 - 2i\gamma\omega} - \frac{(\omega + i\epsilon)^2}{\omega^2 - \omega_0^2 + 2i\gamma\omega} \right] \\ &= 2 \left(\frac{\zeta}{\ell} \right)^2 \frac{1}{\pi\omega_0} \frac{4\gamma\omega^3}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2}. \end{aligned} \quad (\text{A.50})$$

As demais funções espectrais foram optidas pelo mesmo esquema.

B. Interação de Fröhlich

B.1. Dedução da Interação de Fröhlich

No limite de longo comprimento de onda dos fônons ópticos, a base de átomos da célula unitária vibra relativa à outra enquanto o movimento nas células adjacentes é praticamente idêntico. Num sólido com dois íons com cargas opostas nessa base, cada um deles vibra no sentido oposto do outro. A polarização da célula então, está dada por $e^*(\mathbf{s}_+ - \mathbf{s}_-) = e^*\mathbf{s}$ onde $\pm e^*$ é a carga efetiva, e \mathbf{s}_\pm o desvio instantâneo de cada íon. O deslocamento de cargas leva também a campos internos que induzem momentos dipolares nos íons da rede. Isto, contribui com a polarização da célula de magnitude αE^{loc} ($\alpha = \alpha_+ + \alpha_-$). α_\pm é a polarizabilidade dos íons e E^{loc} o campo elétrico na posição dos íons. Estes campos elétricos estão relacionados com o campo macroscópico (para redes cúbicas simples), pela relação de Lorentz:

$$\mathbf{E}^{loc}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) + \frac{1}{3\epsilon_0}\mathbf{P}(\mathbf{r}). \quad (\text{B.1})$$

Para encontrar o campo elétrico no ponto \mathbf{r} , divide-se o meio em duas regiões: uma perto que consiste numa esfera de raio r_0 e uma longe, escolhida seguindo o fato de que o campo produzido por esta região não muda dentro do raio r_0 . O campo elétrico macroscópico $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ é uma média total sobre o meio. O campo $\mathbf{E}_{proximo}^{macro}(\mathbf{r}) = -\frac{\mathbf{P}(\mathbf{r})}{3\epsilon_0}$ resulta de calcular o campo elétrico de uma esfera de um material dielétrico uniformemente polarizada. O campo local é menor que o campo macroscópico por não carregar contribuições de cargas localizadas já que a média sobre elas é zero.

No caso de um meio uniforme a densidade de polarização macroscópica esta composta de duas partes, uma delas devido aos dipolos criados pela separação dos dois íons dentro da célula, e a outra devida à ionização dos íons. Para N células unitárias com volume V

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \frac{N}{V} \frac{(e^*\mathbf{s}(\mathbf{r}) + \alpha\mathbf{E}(\mathbf{r}))}{1 - N\alpha/3V\epsilon_0}. \quad (\text{B.2})$$

B. Interação de Fröhlich

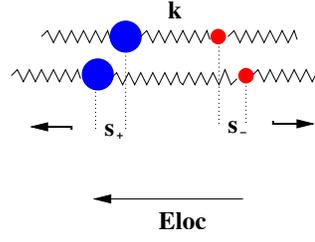


Figura B.1.: Deslocamento dos íons.

As equações de movimento dos íons deslocados, figura B.1, podem

$$\begin{aligned} M_+ \ddot{\mathbf{s}}_+ &= -k(\mathbf{s}_+ - \mathbf{s}_-) + e^* \mathbf{E}^{loc} \\ M_- \ddot{\mathbf{s}}_- &= +k(\mathbf{s}_+ - \mathbf{s}_-) - e^* \mathbf{E}^{loc} \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

onde k é a constante de proporcionalidade da força restauradora. As equações anteriores refletem a consideração dos íons estar-se movendo fora de fase, uma característica própria dos modos ópticos, por isso, a seguinte dedução corresponde só com estes modos de vibração.

Seja $\mu = \frac{M_+ M_-}{M_+ + M_-}$ a massa reduzida, então a equação de movimento de $\mathbf{s} = \mathbf{s}_+ - \mathbf{s}_-$ pode ser escrita como

$$\mu \ddot{\mathbf{s}} = -k\mathbf{s} + e^* \left(\mathbf{E} + \frac{1}{3\epsilon_0} \mathbf{P} \right) \quad (\text{B.4})$$

e temos agora, duas equações que relacionam \mathbf{s} , \mathbf{E} e \mathbf{P} . Re-escalando o vetor \mathbf{s} por $\sqrt{\frac{N\mu}{V}}$ (i. e., $\mathbf{w} = \sqrt{\frac{N\mu}{V}} \mathbf{s}$) temos

$$\begin{aligned} \ddot{\mathbf{w}} &= b_{11} \mathbf{w} + b_{12} \mathbf{E} \\ \mathbf{P} &= b_{21} \mathbf{w} + b_{22} \mathbf{E}, \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

onde

$$b = \begin{pmatrix} -\frac{k}{\mu} + \frac{N}{V\mu} \frac{e^*}{3\epsilon_0(1-N\alpha/3V\epsilon_0)} & \sqrt{\frac{N}{V\mu}} \frac{e^*}{(1-N\alpha/3V\epsilon_0)} \\ \sqrt{\frac{N}{V\mu}} \frac{e^*}{(1-N\alpha/3V\epsilon_0)} & \frac{N}{V\mu} \frac{\alpha}{3\epsilon_0(1-N\alpha/3V\epsilon_0)} \end{pmatrix} \quad (\text{B.6})$$

B. Interação de Fröhlich

A anterior definição foi feita com o objetivo de relacionar as constantes microscópicas (α , e^* , etc...) com parâmetros macroscópicas medíveis e resolver para polarização macroscópica. Resolvendo para $\mathbf{w}(\omega) = w_0 e^{-i\omega t}$, $\mathbf{E}(\omega) = E_0 e^{-i\omega t}$

$$\mathbf{w}(\omega) = -\frac{b_{12}}{b_{11} + \omega} \mathbf{E}(\omega) \quad (\text{B.7})$$

e

$$\mathbf{P} = \left(b_{22} - \frac{b_{21}b_{12}}{b_{11} + \omega^2} \right) \mathbf{E}. \quad (\text{B.8})$$

Podemos usar a relação geral para meios dielétricos

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = (\varepsilon(\omega) - 1) \varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}), \quad (\text{B.9})$$

no caso de $\omega = 0$,

$$\mathbf{P} = \left(b_{22} - \frac{b_{21}b_{12}}{b_{11}} \right) \mathbf{E} = [\varepsilon(0) - 1] \varepsilon_0 \mathbf{E}, \quad (\text{B.10})$$

onde $\varepsilon(0)$ é a constante dielétrica estática. No caso de um campo elétrico externo com frequência muito alta os íons não conseguem acompanhar as forças que mudam muito rápido. Nesse caso, $\mathbf{w} = 0$, e $\varepsilon(\infty)$:

$$\mathbf{P} = b_{22} \mathbf{E} = [\varepsilon(\infty) - 1] \varepsilon_0 \mathbf{E}. \quad (\text{B.11})$$

$\varepsilon(\infty)$ e $\varepsilon(0)$ são constantes as constantes macroscópicas procuradas.

Num cristal cúbico $\mathbf{D} \parallel \mathbf{E}$ e pelo tanto $\parallel \mathbf{P}$. Se todos têm dependência espacial,

$$\begin{Bmatrix} \mathbf{D} \\ \mathbf{E} \\ \mathbf{P} \end{Bmatrix} = Re \begin{Bmatrix} \mathbf{D}_0 \\ \mathbf{E}_0 \\ \mathbf{P}_0 \end{Bmatrix} \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}), \quad (\text{B.12})$$

a divergência de \mathbf{D} leva a

B. Interação de Fröhlich

$$\mathbf{D} = 0 \text{ ou } \mathbf{D}, \mathbf{E} \text{ e } \mathbf{P} \perp \mathbf{q} \quad (\text{B.13})$$

e $\nabla \times \mathbf{E} = \nabla \times (\nabla \phi) = 0$ a

$$\mathbf{E} = 0 \text{ ou } \mathbf{D}, \mathbf{E} \text{ e } \mathbf{P} \parallel \mathbf{q}. \quad (\text{B.14})$$

No modo longitudinal, \mathbf{E} e $\mathbf{P} \parallel \mathbf{q}$, $\mathbf{D} = 0$ e $\varepsilon = 0$, então

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = -\varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}). \quad (\text{B.15})$$

No modo transverso, \mathbf{D} e $\mathbf{P} \perp \mathbf{q}$, $\mathbf{E} = 0$ e $\varepsilon = \infty$. Nesse caso a direção e a magnitude da polarização oscilam seguindo as oscilações transversais dos íons de modo que a oscilação total a polarização média seja zero, por tal motivo só resta a polarização criada pelos modos longitudinais. Separando explicitamente a parte longitudinal da parte transversal $\mathbf{w} = \mathbf{w}_L + \mathbf{w}_T$ ($\nabla \times \mathbf{w}_L = 0$; $\nabla \cdot \mathbf{w}_T = 0$) e impondo a condição $\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$ encontramos o campo elétrico

$$\mathbf{E} = -\frac{\omega_L}{\sqrt{\varepsilon_0}} \sqrt{\frac{1}{\varepsilon(\infty)} - \frac{1}{\varepsilon(0)}} \mathbf{w}_L \quad (\text{B.16})$$

e a polarização macroscópica

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \sqrt{\frac{N\mu\omega_L^2\varepsilon_0}{V}} \sqrt{\frac{1}{\varepsilon(\infty)} - \frac{1}{\varepsilon(0)}} \mathbf{s}(\mathbf{r}). \quad (\text{B.17})$$

A Hamiltoniana de interação do elétron como meio polarizado é

$$H_{el-ph} = -\frac{e}{4\pi\varepsilon_0} \int \frac{\mathbf{P}(\mathbf{r}) \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_{el})}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_{el}|^3} d^3r \quad (\text{B.18})$$

$$\mathbf{s}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{q}} \left(\frac{\hbar}{2N\mu\omega_{LO}} \right)^{1/2} \mathbf{e}_q \left\{ a_q \exp[i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}] + a_q^\dagger \exp[-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}] \right\} \quad (\text{B.19})$$

e integrando

B. Interação de Fröhlich

$$\int \frac{\exp(\pm i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{el})}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_{el}|^3} = \mp 4\pi i \frac{\mathbf{q}}{q^2} \exp(\pm i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{el}) \quad (\text{B.20})$$

para obtermos finalmente uma expressão para a interação do elétron com os fônons ópticos

$$H_{el-ph} = i \left[\frac{e^2 \hbar \omega_{LO}}{2V \epsilon_0} \left(\frac{1}{\epsilon(\infty)} - \frac{1}{\epsilon(0)} \right) \right]^{1/2} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{q} \left\{ a_{\mathbf{q}} \exp[i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{el}] - a_{\mathbf{q}}^\dagger \exp[-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_{el}] \right\}. \quad (\text{B.21})$$

B.2. Transformação da Hamiltoniana da interação de Fröhlich em uma Hamiltoniana de interação de dois osciladores harmônicos acoplados

Partindo da equação B.21 tentaremos reduzir o acoplamento elétron-LO por meio da aproximação dipolar à interação de dois osciladores harmônicos acoplados, considerando o vetor de onda dos fônons no plano.

Define-se

$$\alpha = i \left[\frac{\hbar \omega_{LO} e^2}{2V \epsilon_0} \left(\frac{1}{\epsilon(\infty)} - \frac{1}{\epsilon(0)} \right) \right]^{1/2}. \quad (\text{B.22})$$

Seja

$$e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} = e^{-i(q_x x + q_y y)} \quad (\text{B.23})$$

$$\begin{aligned} c_x &= \left(\sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}} x + i \frac{p_x}{\sqrt{2m\omega\hbar}} \right); & c_x^\dagger &= \left(\sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}} x - i \frac{p_x}{\sqrt{2m\omega\hbar}} \right) \\ c_y &= \left(\sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}} y + i \frac{p_y}{\sqrt{2m\omega\hbar}} \right); & c_y^\dagger &= \left(\sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}} y - i \frac{p_y}{\sqrt{2m\omega\hbar}} \right) \end{aligned} \quad (\text{B.24})$$

$$\begin{aligned} c_d &= \frac{1}{\sqrt{2}} (c_x - i c_y); & c_d^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} (c_x^\dagger + i c_y^\dagger); & n &= c_d^\dagger c_d \\ c_g &= \frac{1}{\sqrt{2}} (c_x + i c_y); & c_g^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} (c_x^\dagger - i c_y^\dagger); & m &= c_g^\dagger c_g \end{aligned} \quad (\text{B.25})$$

B. Interação de Fröhlich

$$e^{-i(q_x x + q_y y)} = \exp \left[\frac{-i\ell q (c_d + c_g^\dagger)}{2} \right] \exp \left[\frac{-i\ell q^* (c_d + c_g)}{2} \right] \quad (\text{B.26})$$

onde definimos o comprimento elétrico como $\ell^2 = \frac{\hbar}{m\omega_e}$. A parêntese na equação B.21 dentro da aproximação dipolar se reduz a

$$\begin{aligned} \left\{ a_q e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{el}} - a_q^\dagger e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{el}} \right\} &= a_q \left\{ 1 + i \frac{\ell q (c_d + c_g^\dagger)}{2} \right\} \left\{ 1 + i \frac{\ell q^* (c_d^\dagger + c_g)}{2} \right\} \\ &- a_q \left\{ 1 - i \frac{\ell q (c_d + c_g^\dagger)}{2} \right\} \left\{ 1 - i \frac{\ell q^* (c_d^\dagger + c_g)}{2} \right\}. \end{aligned} \quad (\text{B.27})$$

Como q é complexo então podemos escrevê-lo como $q = qe^{i\vartheta_q}$ e substituindo na Hamiltoniana

$$\begin{aligned} H_{el-ph} &= i\alpha \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{q} \left\{ a_q \left\{ 1 + ie^{-i\vartheta_q} \frac{\ell q (c_d^\dagger + c_g)}{2} + ie^{i\vartheta_q} \frac{\ell q (c_d + c_g^\dagger)}{2} \right\} \right. \\ &- \left. a_q^\dagger \left\{ 1 - ie^{-i\vartheta_q} \frac{\ell q (c_d^\dagger + c_g)}{2} - ie^{i\vartheta_q} \frac{\ell q (c_d + c_g^\dagger)}{2} \right\} \right\} \\ &= i\alpha \sum_{\mathbf{q}} \left[\frac{a_q - a_q^\dagger}{q} \right] + \frac{\ell\alpha}{2} (c_d + c_d^\dagger + c_g + c_g^\dagger) \sum_{\mathbf{q}} \cos(\vartheta_q) (a_q + a_q^\dagger) \\ &- i \frac{\ell\alpha}{2} (c_d + c_g^\dagger - c_d^\dagger - c_g) \sum_{\mathbf{q}} \sin(\vartheta_q) (a_q + a_q^\dagger), \end{aligned} \quad (\text{B.28})$$

lembrando que

$$x = \frac{\ell}{2} (c_d + c_d^\dagger + c_g + c_g^\dagger) \quad (\text{B.29})$$

$$y = \frac{i\ell}{2} (c_d + c_g^\dagger - c_d^\dagger - c_g) \quad (\text{B.30})$$

onde x e y são coordenadas do elétron, e

B. Interação de Fröhlich

$$x = \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega}} (c_x + c_x^\dagger), \quad (\text{B.31})$$

$$y = \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega}} (c_y + c_y^\dagger). \quad (\text{B.32})$$

Para o fônon podemos fazer a mesma definição, sabendo que $a_q + a_q^\dagger$ se pode ler como um operador “posição” no espaço de k :

$$\begin{aligned} k_x &= \sum_{\mathbf{q}} \cos(\vartheta_q) (a_q + a_q^\dagger) \\ &= b_x + b_x^\dagger \end{aligned} \quad (\text{B.33})$$

$$\begin{aligned} k_y &= \sum_{\mathbf{q}} \sin(\vartheta_q) (a_q + a_q^\dagger) \\ &= b_y + b_y^\dagger \end{aligned} \quad (\text{B.34})$$

e substituindo na Hamiltoniana de interação

$$\begin{aligned} H_{el-ph} &= i\alpha \sum_{\mathbf{q}} \left[\frac{a_q - a_q^\dagger}{q} \right] + \frac{\alpha\ell}{\sqrt{2}} (c_x + c_x^\dagger) (b_x + b_x^\dagger) \\ &\quad - \frac{\alpha\ell}{\sqrt{2}} (c_y + c_y^\dagger) (b_y + b_y^\dagger), \end{aligned} \quad (\text{B.35})$$

o que desacopla o problema nas duas coordenadas, como resultado da aproximação dipolar. O primeiro termo vai ser absorvido pelos operadores ocupação (aproximados).

A Hamiltoniana do elétron com o banho de fônons ópticos é

$$\begin{aligned} H &\simeq \omega_{LO} b_x^\dagger b_x + \omega_{LO} b_y^\dagger b_y + \omega (c_x^\dagger c_x + c_y^\dagger c_y) \\ &\quad + \frac{\alpha\ell}{\sqrt{2}} (c_x + c_x^\dagger) (b_x + b_x^\dagger) - \frac{\alpha\ell}{\sqrt{2}} (c_y + c_y^\dagger) (b_y + b_y^\dagger). \end{aligned} \quad (\text{B.36})$$

B.3. Função Espectral do Elétron-LO

A seguinte é a Hamiltoniana de um sistema composto por dois osciladores, um deles acoplado com um banho. Os β 's são operadores da forma diagonal da Hamiltoniana

B. Interação de Fröhlich

de um oscilador (cujos operadores de escada são b_0 e b_0^\dagger) acoplado com um banho de osciladores. Os c 's correspondem ao outro oscilador.

$$\begin{aligned}
 H &= \sum_{i=0}^N \Omega_i \beta_i^\dagger \beta_i + \omega_c c^\dagger c + \frac{\alpha \ell}{\sqrt{2}} (c^\dagger + c) (b_0^\dagger + b_0) \\
 &= \sum_{i=0}^N \Omega_i \beta_i^\dagger \beta_i + \omega_c c^\dagger c + \frac{\alpha \ell}{\sqrt{2}} (c^\dagger + c) \left[\sum_{l=0}^N (u_l^0 \beta_l^\dagger + v_l^0 \beta_l) + \sum_{l=0}^N (u_l^0 \beta_l + v_l^0 \beta_l^\dagger) \right] \quad (B.37)
 \end{aligned}$$

Definindo

$$H = \sum_{i=0}^N \Omega_i \beta_i^\dagger \beta_i + \omega_c c^\dagger c + \frac{\alpha \ell}{\sqrt{2}} (c^\dagger + c) \sum_{l=0}^N (u_l^0 + v_l^0) [\beta_l^\dagger + \beta_l] \quad (B.38)$$

$$C_l = \frac{\alpha}{\sqrt{2} \ell} (u_l^0 + v_l^0) \quad (B.39)$$

$$\begin{aligned}
 J_{Eff}(\omega) &= \frac{\pi}{2} \sum_{l=0}^N \frac{C_l^2}{m_l \omega_{LO}^2} \delta(\omega - \Omega_l) \quad (B.40) \\
 &= \frac{\pi}{4 \rho N V \omega_{LO}^2} \sum_{l=0}^N \left[\frac{\alpha}{\ell} (u_l^0 + v_l^0) \right]^2 \delta(\omega - \Omega_l) \\
 &= \frac{\pi \alpha^2}{4 \rho N V \omega_{LO}^2 \ell^2} \sum_{l=0}^N Z_l^2 \delta(\omega - \Omega_l) \\
 &= \frac{\pi \alpha^2}{4 \rho N V \ell^2 \omega_{LO}^2} \oint_C \frac{d\Omega \delta(\omega - \Omega)}{i\pi f(\Omega) - 1}
 \end{aligned}$$

a delta de Dirac se escreve como

$$\delta(\omega - \Omega) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{\epsilon}{\pi} \frac{1}{(\omega - \Omega)^2 + \epsilon^2} \quad (B.41)$$

$$J_{Eff}(\omega) = \frac{\pi \alpha^2}{4 i \rho N V \ell^2 \omega_{LO}^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{\epsilon}{\pi} \oint_C \frac{d\Omega}{f(\Omega) - 1} \frac{1}{(\omega - \Omega)^2 + \epsilon^2} \quad (B.42)$$

B. Interação de Fröhlich

$$\begin{aligned}
&= \frac{\alpha^2}{4i\rho NV\ell^2\omega_{LO}^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \epsilon \oint_C \frac{1}{f(\Omega) - 1} \frac{d\Omega}{(\omega - \Omega)^2 + \epsilon^2} \\
&= \frac{\alpha^2}{4i\rho NV\ell^2\omega_{LO}^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \epsilon \oint_C \frac{1}{f(\Omega) - 1} \frac{d\Omega}{[(\omega + i\epsilon) - \Omega][(\omega - i\epsilon) - \Omega]} \\
&= \frac{\alpha^2}{4i\rho NV\ell^2\omega_{LO}^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{\epsilon 2\pi i}{2i\epsilon} \left(\frac{1}{f(\omega - i\epsilon) - 1} - \frac{1}{f(\omega + i\epsilon) - 1} \right)
\end{aligned}$$

assumindo dissipação ôhmica no acoplamento do primeiro oscilador com o banho de osciladores:

$$\omega_0^2 (f(\omega + i\epsilon) - 1) = \omega^2 - \omega_0^2 + 2i\gamma\omega \text{sign}(\epsilon) \quad (\text{B.43})$$

$$\begin{aligned}
J_{Eff}(\omega) &= \frac{\pi\alpha^2}{4i\rho NV\ell^2} \left[\frac{1}{\omega^2 - \omega_{LO}^2 - 2i\gamma\omega} - \frac{1}{\omega^2 - \omega_{LO}^2 + 2i\gamma\omega} \right] \quad (\text{B.44}) \\
&= \frac{\pi\alpha^2}{\rho NV\ell^2} \frac{\gamma\omega}{(\omega^2 - \omega_{LO}^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2}
\end{aligned}$$

C. Método $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$

O método $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ é um método perturbativo que serve para achar o espectro de transportadores perto dos pontos extremos, ou seja, no mínimo da banda de condução e no máximo da banda de valência em materiais com gap diretos, a partir da função de onda de Bloch em uma variante da teoria de perturbações.

A perturbação resulta do fato da função de onda de Bloch estar dividida em duas partes, uma dela que contém a simetria da rede e a outra com a forma de uma onda plana propagada segundo o momento cristalino. O termo perturbativo $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ é então um acoplamento entre o momento cristalino e o momento eletrônico.

No método $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ a função de onda que representa a solução da equação de Schrödinger para um elétron no cristal,

$$(H_0 - E_n) \Phi_n(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{C.1})$$

sendo

$$H_0 = \frac{p^2}{2m} + V_{at}(\mathbf{r}); \quad \mathbf{p} = -i\hbar\nabla, \quad (\text{C.2})$$

$$\Phi_{n\mathbf{k}} = e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (\text{Funções de Bloch}) \quad (\text{C.3})$$

substituindo isto na Hamitoniana do elétron,

$$\begin{aligned} \left(\frac{p^2}{2m} + V_{at}(\mathbf{r}) \right) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) &= E_{n\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \\ \left(\frac{p^2}{2m} + \frac{\hbar\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}}{m} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + V_{at} \right) u_{n\mathbf{k}} &= E_{n\mathbf{k}} u_{n\mathbf{k}} \end{aligned} \quad (\text{C.4})$$

no caso de $k = 0$,

$$\left(\frac{p^2}{2m} + V \right) u_{n0} = E_{n0} u_{n0} \quad (\text{C.5})$$

e uma vez conhecidas suas soluções, pode-se encontrar a solução aproximada para k pequeno, tratando os termos $\frac{\hbar\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}}{m}$ e $\frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ como perturbações. No caso de bandas não

C. Método $k \cdot p$

degeneradas na energia:

$$E_{n\mathbf{k}} = E_{n0} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \frac{\hbar^2}{m^2} \sum_{n \neq n'} \frac{|\langle u_{n0} | \mathbf{k} \cdot \vec{p} | u_{n'0} \rangle|^2}{E_{n0} - E_{n'0}} \quad (\text{C.6})$$

e os auto-estados

$$u_{n\mathbf{k}} = u_{n0} + \frac{\hbar}{m} \sum_{n \neq n'} \frac{\langle u_{n0} | \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} | u_{n'0} \rangle}{E_{n0} - E_{n'0}} u_{n'0} \quad (\text{C.7})$$

Como consideramos um ponto extremo da banda o termo $\langle u_{n0} | \mathbf{k} \cdot \vec{p} | u_{n0} \rangle = 0$;
 $\frac{\hbar^2}{2m} \sum_{n \neq n'} \frac{\langle u_{n0} | k^2 | u_{n'0} \rangle}{E_{n0} - E_{n'0}} u_{n0} = 0$. Para valores pequenos de k acostuma-se escrever a energia $E_{n\mathbf{k}}$ como

$$E_{n\mathbf{k}} = E_{n0} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}. \quad (\text{C.8})$$

m^* se conhece com a massa efetiva (a qual se determina experimentalmente) e é igual a

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m} + \frac{2}{m^2 k^2} \sum_{n \neq n'} \frac{|\langle u_{n0} | \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} | u_{n'0} \rangle|^2}{E_{n0} - E_{n'0}}. \quad (\text{C.9})$$