

Universidade Estadual de Campinas
Instituto de Física Gleb Wataghin

Tempos de relaxação e decoerência em ensembles de pontos quânticos

Félix Guillermo González Hernández

Tese de doutorado apresentada ao
Instituto de Física "Gleb Wataghin"
para a obtenção do título
de Doutor em Ciências

Orientador: Dr. Gilberto Medeiros Ribeiro

Campinas
2007

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP

G589t

González Hernández, Félix Guillermo.

Tempos de relaxação e decoerência em *ensembles* de pontos quânticos / Félix Guillermo González Hernández. -- Campinas, SP : [s.n.], 2007.

Orientador: Gilberto Medeiros Ribeiro.
Tese (doutorado) - Universidade Estadual de Campinas, Instituto de Física "Gleb Wataghin".

1. Pontos quânticos. 2. Decoerência. 3. Spin eletrônico.
4. Fator g. 5. Rotação de Faraday resolvida no tempo.
6. Magneto-capacitância. 7. Estrutura fina do exciton.
I. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física "Gleb Wataghin". II. Ribeiro, Gilberto Medeiros. III. Título.

(vsv/ifgw)

- **Título em inglês:** Decoherence and relaxation time in an ensemble of quantum dots
- **Palavras-chave em inglês (Keywords):**
 1. Quantum dots
 2. Decoherence
 3. Electronic spin
 4. G factor
 5. Time-resolved Faraday rotation
 6. Magneto-capacitance
 7. Exciton fine structure
- **Área de concentração:** Física da Matéria Condensada
- **Titulação:** Doutor em Ciências
- **Banca examinadora:**

Prof. Gilberto Medeiros Ribeiro
Prof. Pablo Ignacio Tamborenea
Prof. Tito José Bonagamba
Prof. Eduardo Miranda
Profª. Maria José Santos Pompeu Brasil
- **Data da defesa:** 05.10.2007
- **Programa de Pós-Graduação em:** Física



Secretaria de Pós-Graduação - Tel: (19) 3521-5305 - FAX: (19) 3521-4142

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE **FÉLIX GUILLERMO GONZÁLEZ HERNÁNDEZ - RA 014693**, APRESENTADA E APROVADA AO INSTITUTO DE FÍSICA "GLEB WATAGHIN" DA UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS, EM 05/10/2007.

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. Gilberto Medeiros Ribeiro (Orientador do Candidato)
LNLS

Prof. Dr. Pablo Ignacio Tamborenea
DF/UNIVERSIDADE DE BUENOS AIRES

Prof. Dr. Tito José Bonagamba
IF/USP/SÃO CARLOS

Prof. Dr. Eduardo Miranda
DFMC /IFGW/UNICAMP

Profª. Drª. Marja José Santos Pompeu Brasil
DFMC/IFGW/UNICAMP

À minha família:
Ljubica, Ana e Aleksandar Tasić Hernández

relaxation:

in physics and chemistry, an effect related to the delay between the application of an external stress to a system and its response. It may occur in nuclear, atomic, and molecular systems.

coherence:

a fixed relationship between the phase of waves in a beam of radiation of a single frequency. Two beams of light are coherent when the phase difference between their waves is constant; they are noncoherent if there is a random or changing phase relationship.

quantum computers:

... large ensembles of identical quantum dots could potentially be manufactured on a single silicon chip. The chip operates in an external magnetic field that controls electron spin states, while neighbouring electrons are weakly coupled (entangled) through quantum mechanical effects. An array of superimposed wire electrodes allows individual quantum dots to be addressed, algorithms executed, and results deduced. Such a system necessarily must be operated at temperatures near absolute zero to minimize environmental decoherence, but it has the potential to incorporate very large numbers of qubits.

Resumo

Medidas experimentais foram realizadas para determinar as escalas de tempo de relaxação e decoerência do spin eletrônico como bit quântico. A estrutura dos estados de exciton foi investigada com o objetivo de servir como estados intermediários na manipulação do spin. O sistema utilizado para o estudo de decoerência é um ensemble de pontos quânticos auto-formados semicondutores.

Dois temas servem como eixos centrais dos três experimentos desenvolvidos nesta tese: a polarização de spin e o fator g de Landé. No primeiro experimento, ao incluir o efeito do reservatório térmico, foi obtido o grau de polarização do spin (populações dos níveis up e down) para as camadas s e p . O desdobramento dos níveis orbitais em subníveis de spin permitiu obter a magnitude do fator g para estes estados. Mudando a orientação do campo magnético, foram observadas as anisotropias do tensor g e a sua relação com os detalhes do potencial de confinamento. Estas características permitiram inferir o tempo de relaxação T_1 .

A medida da polarização resolvida no tempo foi realizada através de espectroscopia óptica de bombeio-prova. Os pulsos de luz e o campo magnético transversal permitem que uma polarização líquida seja inicializada. A rotação de Kerr permitiu observar oscilações desta polarização em torno do campo magnético com frequência determinada pelo fator g . A perda da coerência de fase do spin resulta no decaimento destas oscilações numa escala de tempo T_2 . Medidas realizadas num ensemble de spins implicam em que o tempo de decoerência encontra-se limitado pela escala de defasagem $T_2^* < T_2$. Uma técnica semelhante à refocalização por spin-eco em experimentos de ressonância magnética nuclear, foi aplicada utilizando pulsos de laser para reverter a defasagem do ensemble. Tanto a possibilidade de medir o sinal de eco como o tempo de decoerência foram medidos como função da temperatura.

A estrutura de níveis de exciton e a sua distribuição no ensemble foi es-

tudada também com espectroscopia de bombeio-prova. Foram observados batimentos quânticos entre os níveis de estrutura fina do exciton para sistemas 0D e 2D limitados pelo tempo de recombinação.

Abstract

Experimental measurements were carried out to determine the scales of the relaxation and decoherence time for the electronic spin as quantum bit. The structure of the exciton states was investigated with the objective to serve as intermediate states in the spin manipulation. The system studied for the implementation of the quantum computation is an ensemble of self-assembled semiconductor quantum dots.

Two subjects serve as central axes of the three experiments developed in this thesis: the spin polarization and the Landé g-factor. In the first experiment, when including the effect of the thermal reservoir, the degree of spin polarization (populations for the up and down levels) was measured for layers s and p. The splitting of the orbital levels in spin sublevels allowed to get the magnitude of factor g for these states. Changing the orientation of the magnetic field, the g-tensor anisotropies and its relation with the details of the confinement potential had been observed. These characteristics had allowed to infer the relaxation time T_1 .

The time resolved polarization measurement was carried out by optical pump-probe spectroscopy. The pulses of light and the transverse magnetic field allow the initialization of a net polarization. The Kerr rotation allowed to observe oscillations of this polarization around the magnetic field with frequency determined for factor g. The loss of the spin phase coherence results in the decay of these oscillations in a time scale T_2 . Measurements carried out in an ensemble of spins imply that the decoherence time is limited by the ensemble dephasing time $T_2^* < T_2$. A technique similar to the spin-echo refocalization in nuclear magnetic resonance experiments using laser pulses was applied to reverse the ensemble dephasing. The possibility to measure the echo signal and the decoherence time was measured as a function of the temperature.

The structure of exciton levels and its distribution in ensemble were also

studied with pump-probe spectroscopy. Quantum beats were observed between the fine structure exciton levels for 0D and 2D systems, yet limited by the recombination time.

Prefácio

Esta tese é o resultado do trabalho desenvolvido no grupo de Microscopia de Tunelamento e Força Atômica MTA sob orientação de Gilberto Medeiros Ribeiro no Laboratório Nacional de Luz Síncrotron LNLS em Campinas, São Paulo durante 6 meses de bolsa do Programa Nacional de Nanotecnologia do CNPq e 3 anos de bolsa FAPESP. Neste período, tive o privilégio de participar das diferentes etapas do processo de pesquisa: criar idéias para experimentos, fabricar dispositivos, construir montagens elétricas e ópticas, realizar medidas, modelar teoricamente resultados, publicar e finalmente apresentar em conferências e workshops internacionais.

Sendo que esta tese é o resultado de um esforço conjunto, eu agradeço muito a todas as pessoas que contribuíram. Primeiramente, gostaria de agradecer ao meu orientador pela oportunidade de participar no grupo MTA já desde o meu mestrado. No MTA, gostaria de agradecer ao Thiago e Pablo por sempre estar dispostos a discutir física em qualquer momento. Ao Pablo também agradeço por compartilhar comigo as saudades da nossa Costa Rica. Ao Vinicius e Giovanni gostaria de agradecer pelo apoio técnico. A todos eles agradeço pela amizade.

Na UNICAMP, gostaria de agradecer especialmente ao Grupo de Propriedades Ópticas GPO (Prof. Fernando Iikawa e Prof. Maria José Brasil) por sempre estar dispostos a colaborar nos meus experimentos. Agradeço pelo uso do sistema de magneto para as medidas de capacitância e por disponibilizar uma sala óptica para a montagem de um sistema de espectroscopia de bombeio-prova.

Agradeço em geral ao LNLS e a UNICAMP como instituições onde desenvolvi o meu doutorado e aos meus professores.

A colaboração com o grupo do Prof. Manfred Bayer na Universität Dortmund teve uma enorme importância no sucesso deste trabalho. Os requerimentos dos componentes para a construção de um sistema de bombeio-

prova na UNICAMP foram estudados através de um estagio de seis meses em Dortmund. Agradeço ao DAAD pelo suporte em minha estadia na Alemanha conjuntamente com a FAPESP. Além de aprender como implementar a rotação de Faraday resolvida no tempo, neste período tive o privilégio de participar na pesquisa do grupo relacionada com o tempo de decoerência em ensembles de pontos quânticos. Agradeço a ajuda contínua do Priv.-Doz. Dmitri Yakovlev e do Alex Greilich para acelerar o processo de familiarização com a espectroscopia de bombeio-prova em pontos quânticos. A amizade de Thomas Auer e Ruth Oulton permitiu a minha integração ao grupo dentro de poucas semanas.

Finalmente, agradeço a minha família no Brasil: minha esposa e minha filha pelo carinho. À minha esposa também agradeço pelas discussões de ressonância magnética nuclear, em especial da técnica de spin-eco.

Conteúdo

1	Introdução	1
1.1	Processamento de informação quântica	1
1.2	Spins em pontos quânticos	2
1.3	Interação do spin com o ambiente	4
1.4	Conteúdo desta tese	7
2	Spins eletrônicos em campos magnéticos	9
2.1	Magnetização em campos estáticos	10
2.1.1	Polarização do momentum angular de spin	10
2.1.2	Diamagnetismo e paramagnetismo nos sólidos	12
2.1.3	Estados eletrônicos de elétrons confinados	14
2.2	Magnetização dependente do tempo:	
	Teoria de Bloch para ressonâncias magnéticas	17
2.2.1	Precessão de Larmor	20
2.2.2	Tempo de relaxação longitudinal T_1	20
2.2.3	Tempo de relaxação transversal T_2	21
3	Mecanismos de relaxação e decoerência	25
3.1	Equações ópticas de Bloch	26
3.1.1	Interação fóton-átomo	26
3.1.2	Ensemble de sistemas idênticos de dois níveis	29
3.1.3	Ensemble não homogêneo	32
3.2	Mecanismo (i): Interação spin-órbita SO	34
3.2.1	A origem nos sólidos	34
3.2.2	Fator g efetivo	34
3.2.3	Interação SO em pontos quânticos	37
3.2.4	Relaxação através de um banho de fônons	38
3.2.5	Decoerência devido à interação SO	41

3.3	Mecanismo (ii): Interação hiperfina HF com spins nucleares	43
3.3.1	A origem nos pontos quânticos	43
3.3.2	Influência da evolução aleatória do campo Overhauser	46
3.4	Comparação entre os mecanismos SO e HF	48
4	Métodos de espectroscopia: amostras e técnicas	53
4.1	Ensembles de pontos quânticos	53
4.1.1	Técnicas de crescimento	53
4.1.2	Amostras	55
4.2	Espectroscopia de Magneto-Capacitância	61
4.2.1	Fundamentos do carregamento individual	61
4.2.2	Potencial químico	62
4.2.3	Montagem experimental	64
4.3	Espectroscopia de rotação de Kerr resolvida no tempo	65
4.3.1	Laser pulsado de Titânio-Safira	69
4.3.2	Feixe de bombeio: Linha de atraso, Modulação da polarização	72
4.3.3	Feixe de prova: Filtro da largura espectral, Filtro espacial	76
4.3.4	Focalização dos feixes na amostra	78
4.3.5	Sistema de detecção	79
4.3.6	Montagem final: Lock-in, Aquisição de dados, Criostato	80
5	Energia de Zeeman e tempo de relaxação de spin T_1	83
5.1	Polarização de spin para (B,T)	84
5.1.1	Descrição de impurezas magnéticas e spins	84
5.1.2	Função partição de um sistema de spins	85
5.1.3	Modificação das energias de adição do elétron	86
5.1.4	Medida da polarização de spin em pontos quânticos	90
5.2	Tensor g de Landé para as camadas s e p	95
5.3	Escala do tempo de relaxação	99
6	Tempo de defasagem T_2^* e estrutura fina de excitons	103
6.1	Orientação óptica do spin eletrônico	104
6.2	Estrutura fina do nível de exciton	105
6.2.1	Interação de troca elétron-buraco	105
6.2.2	Batimentos quânticos dos níveis de estrutura fina	108
6.3	Medida da defasagem e estrutura fina de estados de exciton	111

7	Tempo de decoerência T_2 do spin eletrônico como função da temperatura	115
7.1	Resposta de um átomo a um pulso de luz	116
7.2	Manipulação coerente do spin	118
7.2.1	Inicialização	118
7.2.2	Refocalização da defasagem do ensemble	126
7.2.3	Experimento com dois pulsos de bombeio	132
7.3	Dependência com a temperatura do sinal de eco	133
7.4	Medida de T_2 como função da temperatura	136
8	Conclusões	143
8.1	Sumário de escalas de tempo e energias	143
8.2	Propostas Experimentais	145
A	Curriculum Vitae	147
B	Lista de publicações	151

Capítulo 1

Introdução

1.1 Processamento de informação quântica

Information is physical.

Rolf Landauer

A representação de um bit de informação na sua forma quântica permite que classes de problemas sejam resolvidos muito mais rapidamente do que quando representado na sua forma clássica.

Por exemplo, em problemas tais como o processamento de informação, a descoberta do algoritmo de Shor para fatorar eficientemente números grandes claramente demonstra que a escolha da representação física, entre clássica e quântica, pode determinar o tempo consumido de uma computação [1, 2]. No caso de um computador quântico, o algoritmo de Shor é eficiente uma vez que requer recursos computacionais $t(n)$ (tempo ou memória) que escalam polinomialmente com o número de bits n (dados de entrada).

Uma outra situação onde a mecânica quântica pode acelerar o processamento de informação é a busca em bases de dados aleatórias. O algoritmo quântico para este problema foi descoberto por Grover [3]. A comparação entre algoritmos clássicos e quânticos para este problema é descrita da seguinte forma: Imagine uma lista telefônica contendo n nomes organizados de maneira completamente aleatória. Para achar o número de uma pessoa com probabilidade de 50%, qualquer algoritmo clássico precisa acessar

a base de dados pelo menos $0,5n$ vezes. Sistemas mecânico-quânticos podem estar numa superposição de estados e simultaneamente examinar múltiplos números. Ajustando apropriadamente as fases de varias operações, a computação vai reforçando alguns enquanto outros interferem aleatoriamente. Como resultado, o número desejado pode ser achado em somente $O(\sqrt{n})$ acessos à base de dados.

Uma comparação entre o sistema clássico e quântico para estes dois problemas computacionais é dado na tabela 1.1.

Tabela 1.1: Comparação entre o escalamento do tempo consumido $t(n)$ para os melhores algoritmos clássicos e quânticos conhecidos como função do tamanho da entrada n . Para o problema da fatoração, $n = \log_2 N$ onde N é o número que deve ser fatorado e c é uma constante de ordem 1. Para o problema da busca numa base de dados, n é proporcional ao número de entradas na base de dados.

$t(n) \propto$	clássica	quântica
fatoração	$\exp[cn^{1/3}(\ln n)^{2/3}]$	$n^2(\ln n)(\ln \ln n)$ (Shor)
busca de dados	n (busca linear)	\sqrt{n} (Grover)

1.2 Spins em pontos quânticos

Um dos principais questionamentos atuais apontam para quais seriam os sistemas ideais para a implementação de um computador quântico. Existe um número crescente de propostas em vários sistemas [4]. Algumas delas têm sido demonstradas em experimentos de pequena escala (poucos qubits):

1. A proposta teórica para usar os graus de liberdade internos de ions confinados como qubits e o seu acoplamento mútuo através do graus de fônons [5] foi seguida pela implementação de uma única porta quântica [6].
2. Operações de portas quânticas com átomos em cavidades ópticas [7], usando fótons em vez de fônons, foi também demonstrado experimentalmente [8].

3. Operações de portas quânticas e algoritmos em pequena escala usando algoritmos quânticos envolvendo até sete qubits têm sido realizadas usando ressonância magnética nuclear (RMN) em líquidos [9, 10, 11, 12], onde os qubits estão gravados em spins nucleares específicos de uma molécula. Em RMN, as operações e as medidas são realizadas em ensembles macroscópicos desta molécula, tipicamente a temperatura ambiente. A operação a altas temperaturas usando os chamados estados pseudo puros implica que o estado em cada passo da computação pode ser descrito classicamente, este é um fato que leva a debates ao respeito de se experimentos de RMN são realmente computação quântica.

Além destes propostas existem outras em sistemas de estado sólido. A escalabilidade dos dispositivos eletrônicos convencionais sugere que as realizações da computação quântica em estado sólido têm potencial por ser escaláveis a um grande numero de qubits em contraste com as conhecidas limitações das implementações em pequena escala como as descritas acima.

Nesta tese, as medidas experimentais serão focalizadas em propostas que usam o spin eletrônico como qubit e os estados de exciton como estados intermediários de manipulação num sistema de sólido: ensembles de pontos quânticos auto-formados semicondutores. Outras propostas em estado sólido são:

1. Spins nucleares de impurezas doadoras em silício [13].
2. ESR (eletron spin resonance) em heteroestruturas de silício-germânio [14].
3. Elétrons aprisionados por ondas acústicas de superfície [15].
4. Graus de liberdade de carga em pontos quânticos [16, 17, 18, 19, 20]
5. Estados de carga [21, 22] e de fluxo [23] em junções Josephson acopladas.

A utilização de pontos quânticos possui diversas vantagens, sendo a principal a possibilidade de se armazenar um número pequeno de elétrons nestes. Esta característica poderia implicar numa mudança de tecnologia entre os transistors atuais e novos dispositivos que possam trabalhar com um único elétron, em analogia à transição da tecnologia de válvulas para um sistema de estado sólido como o transistor. Em particular, para os pontos quânticos auto-formados, ou self-assembled quantum dots (SAQDs), é possível que se

carregue elétrons de maneira seqüencial e reproduzível. Nestas condições, a injeção controlada de spins individuais permitiria a utilização do spin eletrônico como quantum bit. Para a manipulação deste grau de liberdade de spin, diversas técnicas tem sido propostas, na maior parte utilizando processos de absorção óptica utilizando o grau de liberdade excitônico como intermediário. A incidência de luz ressonante nestes pontos, resultando na criação de excitons controlada pelo bloqueio de Pauli e regras de seleção, permite a polarização, armazenamento [24] e leitura [25] na conversão do qubit de spin em carga. Pontos quânticos acoplados permitem a emulação de moléculas através da superposição das funções de onda de elétrons confinados em pontos diferentes.

Finalmente, deve-se ressaltar que as medidas experimentais que foram realizadas nesta tese exploram a possibilidade de utilizar ensembles de pontos quânticos em comparação com um único ponto quântico. Desta forma, quer-se mostrar as características do ensemble como um conjunto de sistemas de dois níveis homogêneo assim como as vantagens de alta relação sinal/ruído nas medidas e simples modelagem teórica.

1.3 Interação do spin com o ambiente

Um dos efeitos que restringe o uso de materiais para o processamento de informação quântica é o da decoerência, que em termos simples significa quanto tempo um determinado grau de liberdade pode ser representado quanticamente. Decorrido este tempo, o sistema retorna para seu estado clássico, portanto sem utilidade no que concerne à computação quântica (vide figura 1.1 como exemplo da decoerência de um estado de superposição).

Para que um grau de liberdade quântico qualquer associado a uma partícula (por exemplo um elétron ou um exciton) persista em um estado quântico, se requer um bom isolamento entre este e o meio (reservatórios térmicos). Pontos quânticos representam um possível sistema onde um elétron pode estar suficientemente desacoplado do meio, provido que o tamanho e a escolha de materiais seja tal que minimizem o acoplamento com reservatórios (vide figura 1.2).

A decoerência (perda da coerência) acontece uma vez que todo sistema quântico, incluindo a memória do computador quântico, encontra-se acoplado a graus de liberdade externos. Para descrever a decoerência de um único qubit (quantum bit), é conveniente primeiro descrever o sistema do sistema,



Figura 1.1: Gato de Schödinger: Um dispositivo automático libera um veneno e mata o gato se é observado o decaimento de um estado atômico excitado $|1\rangle$. O que acontece quando o átomo está num estado de superposição? Uma vez que é impossível isolar o gato e o átomo na sua caixa, a informação ao respeito do seu estado de superposição é transmitida ao mundo externo. Por exemplo, o calor do gato pode passar pela paredes da caixa e ser medido no exterior. Tais efeitos podem ser modelos como decoerência resultando no amortecimento exponencial dos termos fora da diagonal da matriz densidade $\rho = |\psi\rangle\langle\psi| = 1/2[|vivo, 1\rangle\langle vivo, 1| + |morto, 0\rangle\langle morto, 0| + |vivo, 0\rangle\langle morto, 1| + |morto, 1\rangle\langle vivo, 0|]$. Assim, rapidamente, o sistema é transformado em um ensemble de estados gato-átomo que correspondem a vivo ou morto e que não estão num superposição dos dois estados. A interação com o ambiente de superposições de estados leva a decoerência tal que quanto maior a diferença de energia entre estados mais rápido é o decaimento.

inicialmente num estado puro em termos da matriz densidade:

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi| = \begin{pmatrix} |\alpha|^2 & \alpha\beta^* \\ \alpha^*\beta & |\beta|^2 \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

No caso de um único qubit (por exemplo um spin $1/2$) a dinâmica é descrita por dois tempos: T_1 descreve quão rápido o spin é depolarizado, enquanto T_2 é o tempo característico após o qual a informação da fase é perdida. Para o sistema de pontos quânticos, T_2 é menor do que T_1 e assim o tempo T_2 é o mais restritivo para a realização do processamento de informação quântica.

O processo de decoerência para um único qubit pode ser descrito simplesmente da seguinte maneira. Após um tempo da ordem de T_2 , os elementos de matriz fora da diagonal da equação 1.1 terão decaído deixando o sistema

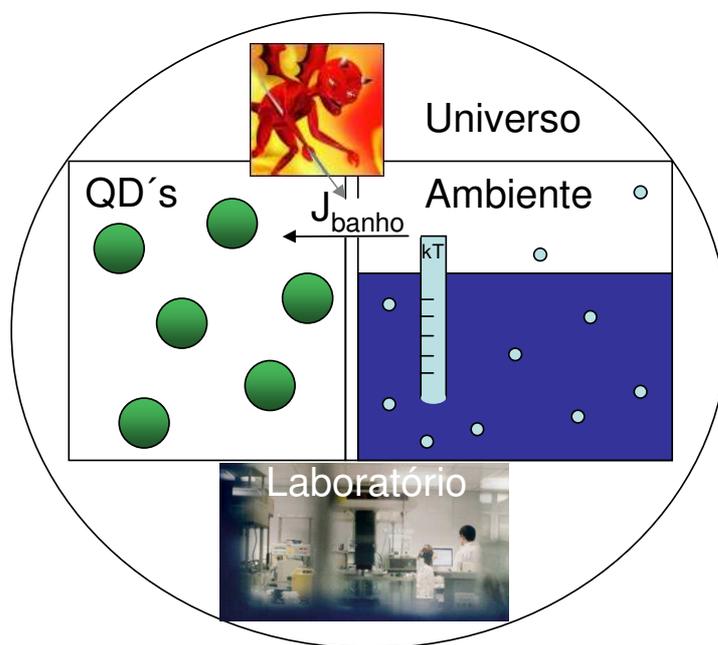


Figura 1.2: Sistema de pontos quânticos interagindo com o ambiente através da função do banho J . Possivelmente o único sistema completamente fechado é o universo. O demônio de Maxwell é o encarregado de abrir a porta entre o sistema e o reservatório térmico. Historicamente, o paradoxo do demônio de Maxwell (1871) definiu um ponto importante no estudo da física da informação. Nele o demônio tentaria quebrar a segunda lei da termodinâmica ao diminuir a entropia total de um sistema de dois cilindros acoplados por uma porta. A resposta do paradoxo está no fato de que o demônio deve realizar medidas e guardar os resultados na sua memória. Uma vez que a memória é finita, ele deve apagar os registros eventualmente. O princípio de Landauer [26] diz: Suponha que um computador apaga um único bit de informação; a entropia do ambiente aumenta pelo menos $k_B \ln 2$, onde k_B é a constante de Boltzmann. Assim, o ato de apagar informação aumenta a entropia total do sistema: demônio, cilindro e ambiente; garantindo que a segunda lei da termodinâmica seja obedecida.

numa mistura incoerente $\rho = |\alpha|^2|0\rangle\langle 0| + |\beta|^2|1\rangle\langle 1|$. Após um tempo T_1 os elementos da diagonal tendem ao valor no equilíbrio térmico $\rho = \frac{1}{Z}e^{-\beta H}$, onde $\beta = 1/k_B T$ e H é o Hamiltoniano do qubit. Se os estados estão completamente misturados tal que $H \ll k_B T$ então $\rho = \frac{1}{2}1$ onde 1 é a matriz

unitária.

As técnicas experimentais necessárias para a caracterização das propriedades coerentes de um determinado sistema quântico são poucas e por vezes de difícil implementação. Por exemplo, pode-se realizar experimentos de ressonância paramagnética de spins e através de técnicas de eco determinar os tempos T_1 e T_2 .

Medidas de T_1 para o spin eletrônico em pontos quânticos (em 2004 nos grupos de G. Abstreiter em Munich [24] e de L. P. Kouwenhoven em Delft [25]) indicam que longos tempos de relaxação (da ordem de milisegundos) podem ser factíveis, no entanto há um longo caminho a se percorrer no que concerne à implementação de novas técnicas e estudos de sistemas contendo ensembles de pontos quânticos assim como pontos quânticos isolados. As primeiras medidas de T_2 para spins em pontos quânticos litográficos foram realizadas em 2005 (grupo de Charles Marcus em Harvard [27]) e para pontos quânticos auto-formados em 2006 (grupo de Manfred Bayer em Dortmund [28]) indicando que o T_2 é da ordem de $1 \mu\text{s}$ e que diminui até 10 ns (escala definida como T_2^*) devido aos efeitos produzidos pela características não-homogêneas do sistema.

1.4 Conteúdo desta tese

Existem dois temas que servem como eixos centrais do desenvolvimento desta tese: a polarização de spin e o fator g de Landé.

A polarização de spin será estudada tanto numa medida cw (continuous wave) como numa medida resolvida no tempo. A medida cw é realizada através de espectroscopia elétrica de magneto-capacitância. Neste experimento é possível observar a distribuição estatística da população dos níveis de spin quando a energia térmica é da ordem do desdobramento de Zeeman. Assim, ao incluir o efeito do reservatório térmico, será obtida o grau de polarização do spin para as camadas s e p . O desdobramento dos níveis orbitais em subníveis de spin permitirá obter a magnitude do fator g para estes estados. Mudando a orientação do vetor do campo magnético, serão observadas as anisotropias do tensor g e a sua relação com os detalhes do potencial de confinamento. Estas características permitirão inferir o tempo de relaxação T_1 .

A medida da polarização resolvida no tempo será realizada através de espectroscopia óptica de bombeio-prova. Os pulsos de luz e o campo mag-

nético transversal permitem que uma polarização líquida seja inicializada. A rotação de Kerr permitiu observar oscilações desta polarização ao redor do campo magnético com frequência determinada pelo fator g . A perda da coerência de fase do spin resulta no decaimento destas oscilações numa escala de tempo T_2 . Medidas realizadas num ensemble de spins implicam em que o tempo de decoerência encontra-se limitado pelas não-homogeneidades do sistema e pela evolução aleatória dos spins nucleares da rede. Desta forma o tempo de decaimento das oscilações da polarização é dado pela escala de defasagem do ensemble $T_2^* < T_2$. Uma técnica semelhante à refocalização por spin-eco em experimentos de ressonância magnética nuclear RMN, será aplicada utilizando pulsos de laser para reverter o efeito da defasagem do ensemble. Esta refocalização só acontece para spins que possuem um fator g tal que a frequência de precessão é um múltiplo da taxa de repetição do laser. O tempo de decoerência e o sinal de eco foi medido como função da temperatura.

A estrutura de níveis de exciton é estudada com o objetivo de utilizar estes estados como intermediários na manipulação do spin. A estrutura fina será medida mostrando uma alta isotropia no plano dos pontos quânticos e uma estreita distribuição de estruturas finas no ensemble. Foram observados batimentos quânticos entre os níveis de estrutura fina do exciton para sistemas 0D e 2D (wetting layer) limitados pelo tempo de recombinação.

A tese está organizada da seguinte forma: No capítulo 2 é feita uma revisão do sistema de um momento angular de spin num campo magnético estático e num caso dinâmico em analogia a teoria de RMN. No capítulo 3 é realizada uma descrição das equações ópticas de Bloch introduzindo o conceito de matriz densidade. Complementariamente são analisados os principais mecanismos de relaxação e decoerência em pontos quânticos semicondutores. No capítulo 4, são descritas as amostras correspondentes aos três experimentos realizados em conjunto com as técnicas experimentais. As técnicas serão descritas em detalhe de componentes ilustrando cada passo na implementação. O capítulo 5 corresponde ao tempo de relaxação e as medidas cw da polarização e do fator g . O capítulo 6 corresponde as medidas da estrutura de níveis de exciton e o capítulo 7 expõe as medidas do tempo de decoerência do spin eletrônico.

Para finalizar, será feito um sumário das escalas de tempo da dinâmica de spin e dos principais resultados obtidos assim como serão propostos possíveis experimentos.

Capítulo 2

Spins eletrônicos em campos magnéticos

Neste capítulo é feita uma revisão da resposta de spins eletrônicos devido à ação de um campo magnético externo. O capítulo é dividido em duas seções: (i) o caso estático de um elétron livre e de um elétron num sólido, (ii) o caso dinâmico da resposta de um momento magnético em analogia à teoria de Bloch para ressonância magnética nuclear [29]. Desta forma pretende-se explicitar as diferenças mais importantes entre estas duas situações. Ao mesmo tempo, a base teórica para as medidas experimentais descritas nesta tese serão estabelecidas.

Na primeira parte do capítulo, a ação de um campo magnético externo num spin livre é descrita. Adicionando o efeito do reservatório térmico, esquematizado na figura 1.2 num ensemble de spins, o problema estatístico mostra a necessidade de estudar o grau de polarização de spin. Esta seção fornece a base teórica para modelar as condições experimentais numa medida da energia Zeeman num ensemble de pontos quânticos. Efeitos diamagnéticos e paramagnéticos num sólido são mostrados para explicitar a dependência destes termos na órbita e no spin do elétron.

Na segunda parte do capítulo, são utilizadas as equações de Bloch para introduzir fenomenologicamente os tempos de relaxação longitudinal e transversal, T_1 e T_2 . O estudo destas escalas de tempo num sistema, com uma determinada magnetização inicial, permite ter uma descrição clássica da dinâmica de spin.

2.1 Magnetização em campos estáticos

2.1.1 Polarização do momentum angular de spin

O operador de momento angular de spin pode ser obtido como sendo:

$$\vec{\mu}_S = g_s \mu_B \vec{S} / \hbar \quad (2.1)$$

onde μ_B é o magneton de Bohr.

O operador de momento angular total $\vec{\mu}_{total}$ é a soma do operador de spin (na equação anterior) e o operador orbital:

$$\vec{\mu}_{total} = \frac{\mu_B}{\hbar} (g_l \vec{L} + g_s \vec{S}) = \frac{\mu_B}{\hbar} (\vec{L} + 2\vec{S}) \quad (2.2)$$

assumindo que $g_l = 1$ e $g_s = 2$. Assim o momento magnético está direcionado ao longo do vetor $\vec{L} + 2\vec{S}$ e não ao longo de $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. Como resultado, este vetor de momento magnético não possui um valor definido quando projetado numa direção arbitrária do espaço tal como o eixo z. Por outro lado, a projeção dele em \vec{J} têm sim um valor definido. É conveniente reescrever a equação anterior como:

$$\vec{\mu}_{total} = \frac{\mu_B}{\hbar} (g \vec{J}) \quad (2.3)$$

tal que a energia de um elétron no campo magnético \vec{B} é:

$$E = -\vec{\mu}_{total} \cdot \vec{B} = \mu_B (B g m_j) \quad (2.4)$$

onde g é o fator g de Landé e representa a projeção de $\vec{\mu}_{total}$ em \vec{J} tal que:

$$g = \langle l, s, j, m_j | \left| \frac{(\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{J}}{J^2} \right| l, s, j, m_j \rangle. \quad (2.5)$$

onde os números quânticos para o momentum angular orbital l e de spin s descrevem o sistema.

Utilizando as propriedades dos operadores \vec{L} e \vec{S} tem-se que:

$$(\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{J} = L^2 + \frac{3}{2}(J^2 - L^2 - S^2) + 2S^2 = \frac{3}{2}J^2 - \frac{1}{2}L^2 + \frac{1}{2}S^2. \quad (2.6)$$

Tomando os elementos diagonais de matriz na equação 2.6 na representação $|l, s, j, m_j\rangle$ e resolvendo para o fator g:

$$g = \frac{\frac{3}{2}j(j+1) + \frac{1}{2}s(s+1) - \frac{1}{2}l(l+1)}{j(j+1)} \quad (2.7)$$

Por exemplo:

$$\begin{aligned} g &= 2 : l = 0, s = \frac{1}{2}, j = \frac{1}{2} \\ g &= 4/3 : l = 1, s = \frac{1}{2}, j = \frac{3}{2} \\ g &= 2/3 : l = 1, s = \frac{1}{2}, j = \frac{1}{2} \end{aligned}$$

Tratando o momento magnético como um operador quantizado, os níveis de energia podem ser escritos como:

$$E_j = -m_j g \mu_B B \quad (2.8)$$

As energias magnéticas estão igualmente espaçadas, uma vez que os números m_j só pode tomar os valores:

$$m_j = j, j-1, \dots, -j \quad (2.9)$$

Para um sistema de dois níveis spin up/down ($s = 1/2$ e $l = 0$, $g = 2$, $m_j = \pm 1/2$), os níveis de Zeeman divergem linearmente com o campo tal que: $E = \pm \mu_B B$.

Para adicionar o efeito do reservatório térmico na distribuição de populações das partículas nos níveis de spin, pode-se calcular a energia média:

$$\langle E \rangle = \frac{\sum_{m_j} e^{m_j g \mu_B B / k_B T} (-m_j g \mu_B B)}{\sum_{m_j} e^{m_j g \mu_B B / k_B T}} \quad (2.10)$$

onde, para maior simplicidade, pode-se definir $x = g \mu_B B / k_B T$, onde j é o valor máximo que pode ter m_j . Fisicamente, x denota a relação entre a energia magnética e energia térmica.

A soma em 2.10 é uma serie geométrica que converge para:

$$\langle E \rangle = -g \mu_B B j \left(\frac{\partial}{\partial x} \right) \ln \sum_{m_j=j}^j e^{m_j \frac{x}{j}} \quad (2.11)$$

$$\begin{aligned}
&= -g\mu_B B j \left(\frac{\partial}{\partial x} \right) \left[\ln \left(\sinh \left(\frac{2j+1}{2j} x \right) \right) - \ln \left(\sinh \left(\frac{x}{2j} \right) \right) \right] \\
&= -g\mu_B B j \left[\left(\frac{2j+1}{2j} \right) \left(\coth \left(\frac{2j+1}{2j} x \right) \right) - \left(\frac{1}{2j} \right) \left(\coth \left(\frac{x}{2j} \right) \right) \right] \\
&= -(g\mu_B B j) B_j(x)
\end{aligned}$$

onde $B_j(x)$ é definida como uma função de Brillouin.

Por exemplo, para $j=1/2$ ($s=1/2$, $l=0$) a função $B_{1/2}(x)$ é $\tanh(x)$. No limite de $x \gg 1$, ou seja para $k_B T$ menor que $g\mu_B B$, $\tanh(x)$ tende a 1 e a energia média deste nível tende ao valor esperado $E = -jg\mu_B B = -(1/2)g\mu_B B$. No caso contrario, $x \ll 1$, a probabilidade de encontrar o vetor de spin com orientação up ou down é a mesma (50/50).

Considerando um ensemble de spins, sem interação entre eles, a magnetização total pode ser obtida através de $\langle \mu \rangle = g\mu_B j B_j(x)$. A distribuição de orientações do vetor de spin, resultado da influencia da temperatura, pode ser analisado em termos de polarização efetiva. Na próxima seção será visto que este termo de energia fornece uma contribuição paramagnética à susceptibilidade. Os termos diamagnéticos também serão descritos obtendo um imagem básica do magnetismo nos sólidos.

2.1.2 Diamagnetismo e paramagnetismo nos sólidos

O cálculo das energias magnéticas de elétrons ligados em sólidos pode ser realizado utilizando a aproximação do Hamiltoniano de um elétron. Este Hamiltoniano inclui os efeitos de um campo eletromagnético e dos momentos magnéticos permanentes da seguinte forma:

$$H = \frac{[\vec{p} - (e/c)\vec{A}]^2}{2m} + e\phi + V(\vec{r}) - \vec{\mu}_p \cdot \vec{B} \quad (2.12)$$

o que, embora não inclui a interação spin-órbita, inclui o efeito do campo magnético através do vetor potencial \vec{A} , do campo elétrico através do potencial ϕ , o potencial periódico através de $V(\vec{r})$, e os momentos magnéticos permanentes através do termo $\vec{\mu}_p \cdot \vec{B}$. Para incluir a interação spin órbita, deve-se adicionar à equação 2.12 um termo $H_{SO} = [1/(2m^2 c^2) \vec{S} \cdot (\vec{\nabla} V \times \vec{p})]$ e na presença de campos eletromagnéticos deve-se substituir $\vec{p} \rightarrow \vec{p} - (e/c)\vec{A}$ nesta relação para H_{SO} . No caso de um campo magnético estático, pode-se escolher $\phi=0$ e considerar somente o vetor potencial \vec{A} . Se é considerado

um campo eletromagnético (com frequência $\omega \neq 0$), então pode-se achar um gauge tal que $\phi=0$.

O termo $\vec{\mu}_p \cdot \vec{B}$ considera os momentos magnéticos permanentes em um sólido os quais, são originados, por exemplo, pelos spins eletrônicos. Assim, desprezando momentaneamente a interação spin-órbita, pode-se escrever o Hamiltoniano acima como:

$$H = H_0 - \left(\frac{e}{2mc} \right) (\vec{p} \cdot \vec{A} + \vec{A} \cdot \vec{p}) + \frac{e^2 A^2}{2mc^2} + e\phi - \vec{\mu}_p \cdot \vec{B} \quad (2.13)$$

onde $H_0 = p^2/2m + V(\vec{r})$ é o Hamiltoniano para um elétron em um campo cristalino a campo zero. Nesta equação, não foi assumida nenhuma relação de comutatividade entre \vec{p} e \vec{A} . Para simplificar o tratamento, pode-se desprezar ϕ e o comutador $[p, A]$ para obter um Hamiltoniano de perturbação de um elétron no sólido:

$$H' = - \left(\frac{e}{mc} \right) \vec{p} \cdot \vec{A} + \frac{e^2 A^2}{2mc^2} - \vec{\mu}_p \cdot \vec{B} \quad (2.14)$$

Também pode-se introduzir a interação de um elétron num campo magnético através do Hamiltoniano de perturbação:

$$H' = - \vec{\mu}_{total} \cdot \vec{B} = - \frac{e}{mc} (\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{B} \quad (2.15)$$

Dependendo do sistema específico, o Hamiltoniano em 2.13 ou em 2.15 pode ser usado.

Sendo que a equação 2.13 contem o vetor potencial explicitamente, é conveniente usar um gauge para escrever o hamiltoniano para interações magnéticas. No caso de uma campo magnético estático, pode ser escolher $\phi = 0$ e o campo uniforme na direção z é derivado do vetor potencial: $\vec{A} = 1/2(\vec{B} \times \vec{r})$ com componentes (num gauge simétrico) $A_x = -1/2yB$, $A_y = 1/2xB$, $A_z = 0$. Substituindo esta expressão para \vec{A} na equação 2.14 e escrevendo $p_j = (\hbar/i)(\partial/\partial x_j)$ e $\vec{\mu}_p = (g_s e/2mc) \vec{S}$:

$$H' = \frac{ie\hbar B}{2mc} \left(x \frac{\partial}{\partial y} - y \frac{\partial}{\partial x} \right) + \left(\frac{e^2 B^2}{8mc^2} \right) (x^2 + y^2) - \left(\frac{g_s e}{2mc} \right) \vec{S} \cdot \vec{B} \quad (2.16)$$

onde o primeiro termo segue de $-(e/2mc) \vec{L} \cdot \vec{B}$ e da uma contribuição paramagnética à susceptibilidade χ (a qual é um tensor que expressa a grau de

magnetização desenvolvida por um sólido sob campo magnético externo $\vec{M} = \bar{\chi} \cdot \vec{H}$). O segundo termo em 2.16, proporcional a B^2 , dá uma contribuição diamagnética à χ . O último termo é novamente paramagnético, depende do fator g de Landé g_s (igual a 2 para elétrons livres), proporcional a \vec{B} e é devido a interação do momentum angular do spin eletrônico com o campo magnético. Este termo foi descrito em detalhe na seção anterior.

2.1.3 Estados eletrônicos de elétrons confinados

Os pontos quânticos apresentam um espectro discreto de níveis de energia semelhante aos átomos. Embora pode-se fazer esta analogia, existe uma grande diferença entre o potencial de um átomo "natural" e de um átomo "artificial". Este fato é refletido na separação entre os níveis de energia (figura 2.1).

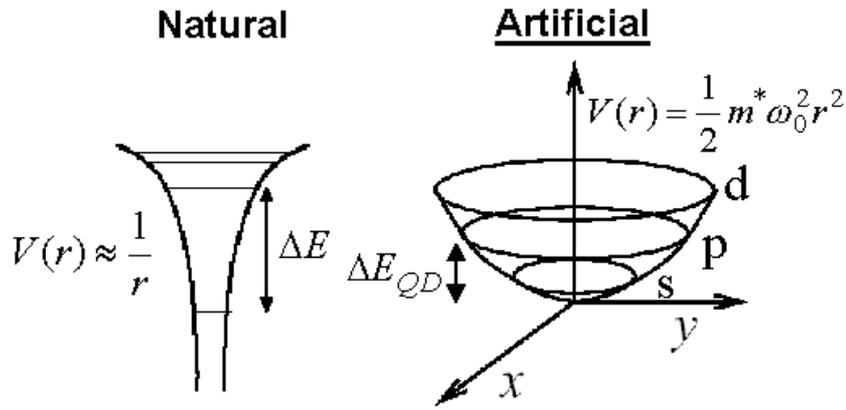


Figura 2.1: Potencial de confinamento lateral para um átomo natural e para um átomo artificial.

Os níveis de pontos quânticos de InAs têm sido modelados utilizando uma aproximação do potencial lateral como parabólico [30, 31]. Discussões relacionadas a aplicação do princípio Aufbau (preenchimento dos níveis em ordem sucessiva sem deixar buracos) e a regra de Hund (com spin máximo) nos padrões de carregamento [32] assim como tratamento complexos contendo a dependência com os efeitos do strain [33] e da composição das ligas [34] mostram que a aproximação parabólica de Fock-Darwin dá uma descrição

adequada e simples algebricamente do carregamento de elétrons em pontos de InAs/GaAs.

A equação de Schrödinger, independente do tempo, que descreve o movimento de um elétron sujeito a um potencial parabólico e com campo magnético $B = 0$ [35] é descrita por:

$$\left[\frac{-\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) + \frac{m^*}{2} \omega_0^2 \rho^2 \right] \psi(\rho, \varphi) = E \psi(\rho, \varphi) \quad (2.17)$$

As soluções são autofunções da componente z do momentum angular orbital: $L_Z = \frac{-\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial \varphi}$, devido a isto pode-se escrever a função de onda como o produto de uma função angular vezes uma função radial:

$$\psi(\rho, \varphi) = v(\rho) e^{-im\varphi} \quad (2.18)$$

A parte angular $e^{-im\varphi}$ é uma autofunção de L_Z com número quântico inteiro m :

$$m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (2.19)$$

Desta forma a função de onda angular é: $\frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-im\varphi}$ com autovalor $\hbar m$. Substituindo a forma desta função na equação 2.17, obtemos uma equação diferencial para a parte radial:

$$\left[\frac{\partial^2 v(\rho)}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial v(\rho)}{\partial \rho} - \frac{m^2}{\rho^2} v(\rho) \right] + [k^2 - \lambda^2 \rho^2] v(\rho) = 0 \quad (2.20)$$

onde k^2 encontra-se relacionado com a energia E :

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (2.21)$$

e determina se a solução cumpre ou não as condições de contorno.

A variável λ é uma quantidade característica do oscilador tal que λ^{-1} é o valor quadrático médio do raio do estado fundamental:

$$\lambda = \frac{m^* \omega_0}{\hbar} \quad (2.22)$$

A equação 2.20 junto com as condições de contorno para $\rho \approx 0$ e $\rho \rightarrow \infty$ constituem um problema de Sturm-Liouville que pode ser resolvido de uma maneira padrão, obtendo:

$$v(\rho) = \rho^{|m|} e^{-\frac{\lambda\rho^2}{2}} \zeta(\rho) \quad (2.23)$$

Utilizando a variável adimensional: $x = \lambda\rho^2$, obtemos uma equação de Kummer para a função $\zeta(\rho)$:

$$x \frac{d^2\zeta(x)}{dx^2} + [(|m| + 1) - x] \frac{d\zeta(x)}{dx} - \frac{1}{2} \left[(|m| + 1) - \frac{k^2}{2\lambda} \right] \zeta(x) = 0 \quad (2.24)$$

com solução para $x = 0$ correspondente a uma série confluyente hipergeométrica [36]:

$$\zeta(x) = M(a, |m| + 1; x) \quad (2.25)$$

onde $a = \frac{1}{2}(|m| + 1) - \frac{k^2}{4\lambda}$.

Quando $a = -n$ com $n = 0, 1, 2$, $\zeta(x)$ é um polinômio e a função de onda pode ser normalizada. Este número n é o número quântico radial.

Desta forma a função de onda tem uma solução:

$$\psi_{nm}(\rho, \varphi) = C_{nm} \rho^{|m|} e^{-\lambda\rho^2/2} M(-n, |m| + 1; \lambda\rho^2) e^{-im\varphi} \quad (2.26)$$

ou normalizando:

$$\psi_{nm}(\rho, \varphi) = \lambda^{(|m|+1)/2} \sqrt{\frac{n!}{\pi(n+|m|)!}} \rho^{|m|} e^{-\lambda\rho^2/2} L_n^{|m|}(\lambda\rho^2) e^{-im\varphi} \quad (2.27)$$

onde L é um polinômio generalizado de Laguerre.

Os autovalores correspondentes são:

$$E_{nm} = \hbar\omega_0(2n + |m| + 1) \quad (2.28)$$

e o valor quadrático médio do raio da função de onda para um estado (n, m) :

$$\langle \rho^2 \rangle_{nm} = \frac{1}{\lambda}(2n + |m| + 1) \quad (2.29)$$

Para obter uma imagem da estrutura das camadas eletrônicas, estes valores podem ser colocados de forma ascendente em energia, organizando os estados (n, m) que possuem o mesmo valor para $N = 2n + |m|$; ao fazer isto

5	<u>(0,-4)</u> <u>(1,-2)</u> <u>(2,0)</u> <u>(1,2)</u> <u>(0,4)</u>
4	<u>(0,-3)</u> <u>(1,-1)</u> <u>(1,1)</u> <u>(0,3)</u>
3	<u>(0,-2)</u> <u>(1,0)</u> <u>(0,2)</u>
2	<u>(0,-1)</u> <u>(0,1)</u>
1	<u>(0,0)</u>

Figura 2.2: Estrutura de camadas eletrônicas com o número de vezes que são degeneradas. Cada camada corresponde à energia $\hbar\omega_0(N + 1)$, onde $N = 2n + |m|$, e (n,m) são os números radial e azimutal, respectivamente. O grau de degenerancia de cada camada é $N+1$ se o spin não é considerado.

(figura 2.2) para os estados de elétron e de buraco temos uma descrição de como acontecem as transições interbanda. Considerando a degenerescência destes estados, para cada camada pode-se realizar uma combinação linear das funções com diferentes m , estas combinações mostram (figura 2.3) uma certa simetria que motiva a seguinte nomenclatura:

$$N = 1, 2, 3, 4, \dots = s, p, d, f, \dots \quad (2.30)$$

2.2 Magnetização dependente do tempo: Teoria de Bloch para ressonâncias magnéticas

As equações de Bloch para ressonâncias magnéticas permitem estudar o problema de um sistema de spins sob a influência de um campo magnético oscilante [29]. Os experimentos de ressonância magnética têm como principal característica a observação de transições causadas por um campo oscilante, em forma de campos de radiofrequência rf, com a frequência de Larmor dos momentos magnéticos ao redor de um campo magnético constante (vide figura 2.4).

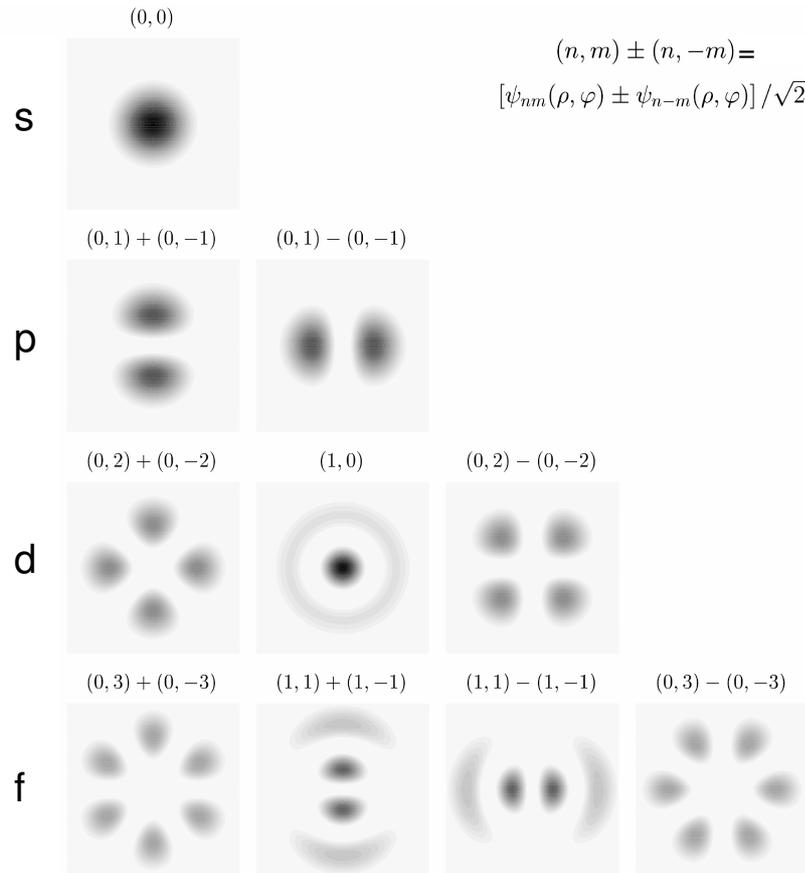


Figura 2.3: Gráfico bi-dimensional das possíveis combinações lineares das funções de onda para cada camada eletrônica: Forma dos orbitais. A escala de cinza é mesma em todos os quadros. Figura extraída da referência [37].

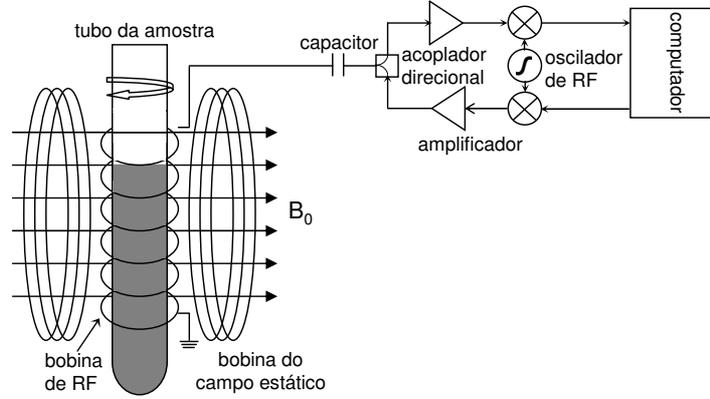


Figura 2.4: Diagrama de um experimento de ressonância magnética nuclear. Um acoplador direcional permite a separação do caminho realizado pela onda gerada pelo oscilador de RF e pela onda refletida na bobina de RF, a qual contém a informação da ressonância magnética.

As equações que descrevem as componentes da magnetização dependente do tempo são:

$$\begin{aligned} \frac{dM_x}{dt} &= \gamma(\vec{M} \times \vec{B})_x - \frac{M_x}{T_2} + D\nabla^2 M_x \\ \frac{dM_y}{dt} &= \gamma(\vec{M} \times \vec{B})_y - \frac{M_y}{T_2} + D\nabla^2 M_y \\ \frac{dM_z}{dt} &= \gamma(\vec{M} \times \vec{B})_z - \frac{M_z - M_z^0}{T_1} + D\nabla^2 M_z \end{aligned} \quad (2.31)$$

onde γ é a constante giromagnética igual a $-g\mu_B/\hbar = 1,76 \times 10^{11} s^{-1} T^{-1}$ para elétrons e onde o último termo em cada equação são termos de difusão incluídos em [38].

Nesta seção, as equações de Bloch serão resolvidas em três situações para a magnetização dependente do tempo: (a) sem relaxação, (b) com relaxação longitudinal, (c) com relaxação transversa. O resultado encontra-se ilustrado na figura 2.5.

2.2.1 Precessão de Larmor

No primeiro caso, considere que não existe relaxação e que o campo estático é aplicado na direção z: $\vec{B} = B_0 \hat{z}$. A equação que deve ser resolvida é:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \vec{M} \times \gamma \vec{B} \quad (2.32)$$

ou, nas condições de contorno, em forma matricial:

$$d/dt \begin{pmatrix} M_x \\ M_y \\ M_z \end{pmatrix} = \det \begin{vmatrix} i & j & k \\ M_x & M_y & M_z \\ 0 & 0 & \gamma B_0 \end{vmatrix} \quad (2.33)$$

equivalente a:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} M_x &= \gamma B_0 M_y \\ \frac{d}{dt} M_y &= -\gamma B_0 M_x \\ \frac{d}{dt} M_z &= 0 \end{aligned} \quad (2.34)$$

com solução:

$$\vec{M}(t) = \begin{pmatrix} M_x(t) \\ M_y(t) \\ M_z(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\omega_0 t & \sin\omega_0 t & 0 \\ -\sin\omega_0 t & \cos\omega_0 t & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} M_x^0 \\ M_y^0 \\ M_z^0 \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

onde M_i^0 é a componente i da magnetização inicial.

Assim, o resultado obtido é a precessão de Larmor do vetor de spin \vec{S} num cone ao redor do eixo z. Este resultado está ilustrado na figura 2.5 (a).

2.2.2 Tempo de relaxação longitudinal T_1

No seguinte caso de estudo pode-se considerar os processos de relaxação longitudinal com escala de tempo T_1 .

O vetor de magnetização total encontra-se alinhado com a direção do campo aplicado \vec{B} no equilíbrio e têm o valor de M_0 . Esta notação não deve ser confundida com M_i^0 : condição inicial da componente i do vetor de

magnetização. Nesta configuração a componente z, M_z é igual a M_0 . M_z é chamada de magnetização longitudinal. As componentes transversas da magnetização (M_x ou M_y) são nulas nesta condição.

A mudança da magnetização líquida é possível se o sistema de spins é exposto a uma onda com energia tal que a sua frequência é igual a diferença entre estados de spin. A constante de tempo que descreve como M_z volta ao seu valor no equilíbrio é chamada de tempo de relaxação longitudinal T_1 . A equação que governa este comportamento é:

$$\frac{d\vec{M}_z}{dt} = \frac{(M_z - M_0)\hat{z}}{T_1} \quad (2.36)$$

onde pode ser notado que quanto maior a diferença do equilíbrio mais rápida é a mudança.

A solução é:

$$M_z(t) = M_z^0 e^{-t/T_1} + M_0(1 - e^{-t/T_1}) \quad (2.37)$$

Um caso específico muito interessante é a inversão da magnetização. Se é aplicado um pulso de rf tal que vetor de magnetização aponta na direção $-\hat{z}$ ($-M_0$), o vetor vai voltar gradualmente à posição de equilíbrio ao longo do eixo $+\hat{z}$ (M_0) com taxa determinada por T_1 . Este pulso de inversão é chamado de pulso 180° ou pulso π . A dinâmica, ilustrada na figura 2.5 (b), pode ser modelada como:

$$M_z^0 = M_z(t=0) = -M_0 \quad (2.38)$$

$$\begin{aligned} M_z(t) &= M_z^0 e^{-t/T_1} + M_0(1 - e^{-t/T_1}) \\ &= -M_0 e^{-t/T_1} + M_0(1 - e^{-t/T_1}) \\ &= M_0(1 - 2e^{-t/T_1}) \end{aligned} \quad (2.39)$$

Este fenômeno de inversão da magnetização pode ser analisado em analogia com um sistema de spins $1/2$ ligados a um sólido onde, por exemplo, um spin up troca energia com o rede cristalina e inverte o seu estado de polarização para spin down num tempo T_1 . Este fenômeno é conhecido como spin flip.

2.2.3 Tempo de relaxação transversal T_2

Agora pode-se considerar a dinâmica da magnetização transversal M_x e M_y . A equação correspondente é:

$$\frac{d\vec{M}(t)}{dt} = \frac{(M_x\hat{i} + M_y\hat{j})}{T_2} \quad (2.40)$$

com solução:

$$M(t) = M^0 e^{-t/T_2} e^{-i\omega_0 t} \quad (2.41)$$

onde ω_0 é frequência de precessão ao redor do campo estático em \hat{z} a qual é determinada pela fator g de Landé.

A equação está ilustrada na figura 2.5 (c). Em resumo, a magnetização transversal apresenta um comportamento oscilatório com decaimento exponencial determinado pela constante de tempo T_2 .

Pode se concluir que, na situação do sistema ter absorvido uma onda de rf na presença de um campo magnético externo alinhado no eixo \hat{z} , a magnetização neta no plano xy decai no tempo T_2 enquanto a magnetização longitudinal volta ao valor no equilíbrio M_0 no tempo T_1 .

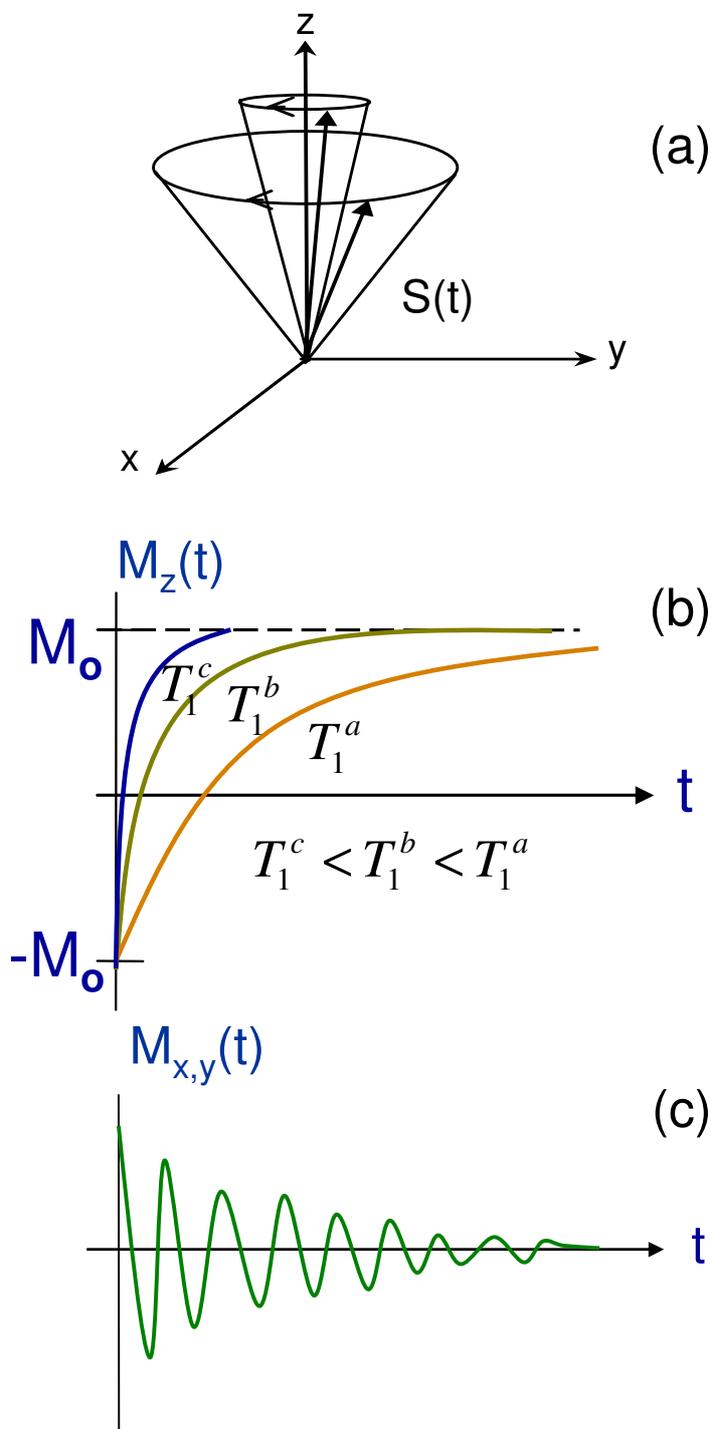


Figura 2.5: Três exemplos de magnetização dependente do tempo: (a) Precessão de Larmor. (b) Magnetização longitudinal voltando ao valor no equilíbrio após ter sido invertida para diferentes tempos de relaxação T_1 . (c) Magnetização transversa oscilatória com decaimento exponencial com escala de tempo T_2 .

Capítulo 3

Mecanismos de relaxação e decoerência

O momento magnético de um único spin eletrônico, dado pelo magneton de Bohr ($\mu_B = \hbar/2m_e = 5,78 \times 10^{-2} meV/T$) é tão pequeno que os estados eletrônicos de spin são perturbados só fracamente pelo ambiente.

Neste capítulo, as equações ópticas de Bloch são discutidas com o objetivo de evidenciar a relação de T_1 e T_2 com os efeitos de relaxação e decoerência num formalismo quântico. A base para os estudos de manipulação coerente de spins com pulsos de luz é obtida pela interação do campo elétrico de uma luz incidente com um sistema atômico de dois níveis.

Para os spins eletrônicos em pontos quânticos semicondutores, os mecanismos de acoplamento com o ambiente mais importantes são: interação spin-órbita e interação hiperfina com spins nucleares do material da rede cristalina. Um exemplo direto da influência do ambiente em semicondutores é fato de que o fator g de Landé dos elétrons pode ser muito diferente de 2 tanto positivo como negativo ($g_{GaAs} = -0,44$). Nesta seção será introduzido o conceito do fator g efetivo, análogo ao conceito de massa efetiva.

Flutuações no ambiente podem levar a uma fase aleatória do spin eletrônico, por definição caracterizado pela escala de tempo T_2 . Além disto, os elétrons podem sofrer da transição do seu estado de spin ($|\uparrow\rangle \rightleftharpoons |\downarrow\rangle$), mediante a troca de energia com graus de liberdade do ambiente. Este processo é caracterizado pela escala de tempo T_1 .

Finalmente, os mecanismos que levam à relaxação e decoerência do spin eletrônico em pontos quânticos serão brevemente descritos neste capítulo.

3.1 Equações ópticas de Bloch

3.1.1 Interação fóton-átomo

Considere um sistema atômico de dois níveis, ilustrado na figura 3.1, por exemplo o caso de uma partícula carregada que sofre transições entre dois níveis discretos. Considere também a presença de um campo eletromagnético. Se o sistema é tratado quanticamente, a sua função de onda Ψ segue a equação de Schrödinger: $i\hbar\partial\Psi/\partial t = H\Psi$, onde H é o operador Hamiltoniano, em geral dependente do tempo. O campo eletromagnético pode ser descrito classicamente segundo as equações de Maxwell. Com este tratamento semiclássico é possível descrever a influência de um campo de radiação coerente no sistema (absorção e emissão estimulada) mas não descreve a emissão espontânea de radiação a qual deve ser incluída fenomenologicamente. O tratamento teórico desta seção segue a referência [39].

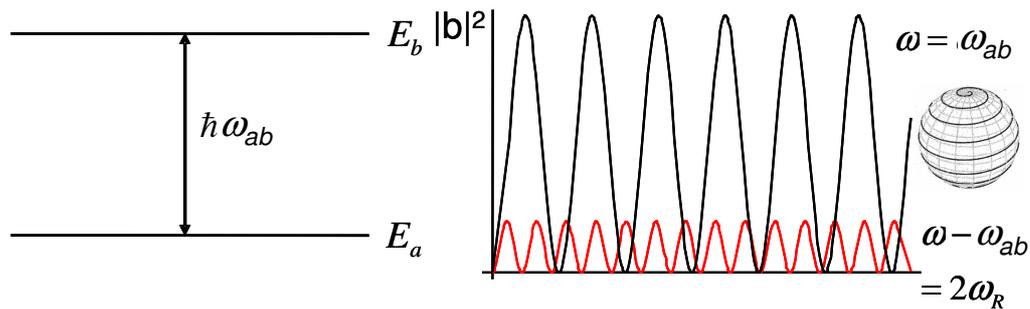


Figura 3.1: Esquerda: Esquema de energia para um sistema de dois níveis. Direita: Evolução temporal da probabilidade de ocupação do estado excitado $|b\rangle$ de acordo a equação 3.13 para o caso da ressonância $\omega = \omega_{ab}$ e para a dessintonia $\omega - \omega_{ab}$ igual a duas vezes a frequência de Rabi. No inset é mostrada a oscilação do estado do sistema na esfera de Bloch a qual possui polos $|a\rangle$ e $|b\rangle$.

Na presença de um campo de radiação dependente do tempo, a solução da equação de Schrödinger é:

$$\Psi(\vec{r}, t) = c_a(t)\Psi_a(\vec{r}, t) + c_b(t)\Psi_b(\vec{r}, t) \quad (3.1)$$

onde o coeficiente c_a (c_b) é tal que $|c_a|^2$ ($|c_b|^2$) é a probabilidade de achar o sistema no nível a (b).

O Hamiltoniano H pode ser separado em $H = H_0 + H'$, onde H_0 é o Hamiltoniano na ausência do campo de radiação e H' é o Hamiltoniano de interação:

$$H' = -\vec{d} \cdot \vec{E} \quad (3.2)$$

onde \vec{E} é o campo elétrico incidente e \vec{d} é o momento de dipolo elétrico da transição.

Na chamada aproximação de dipolo, o tamanho da função de onda que descreve o movimento de uma partícula é desprezível quando comparada com ao comprimento de onda do campo \vec{E} e o campo é avaliado numa posição espacial fixa (por exemplo no núcleo do átomo). Substituindo a equação 3.1 na equação de Schrödinger e considerando 3.2 obtém-se:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dc_a}{dt} &= c_a H'_{aa} + c_b H'_{ab} \\ i\hbar \frac{dc_b}{dt} &= c_a H'_{ba} + c_b H'_{bb} \end{aligned} \quad (3.3)$$

com:

$$\begin{aligned} H'_{ij} &= e^{-i(E_j - E_i)t/\hbar} (-\vec{d}_{ij} \cdot \vec{E}) \\ \vec{d}_{ij} &= \int d^3r \varphi_i^* \vec{d} \varphi_j \end{aligned} \quad (3.4)$$

onde φ_j são as autofunções de H_0 .

Os elementos de H'_{ij} ($i, j = a, b$) do Hamiltoniano de interação pode ser simplificado considerando que $H'_{ij} = H'_{ji}^*$ (representa um observável físico). Devido a paridade definida das autofunções φ_j , o elemento \vec{d}_{ii} é:

$$\vec{d}_{ii} = \int d\vec{r} \varphi_i^* (-e\vec{r}) \varphi_i \quad (3.5)$$

onde o momento de dipolo elétrico de uma partícula de carga $-e$ foi usado.

Se são introduzidas as definições:

$$\begin{aligned} \hbar\omega_{ab} &= E_b - E_a, \quad a = c_a e^{+i\omega_{ab}t/2}, \quad b = c_b e^{-i\omega_{ab}t/2} \\ \vec{s} &= (s_1, s_2, s_3) = (ab^* + ba^*, i(ab^* - ba^*), bb^* - aa^*) \end{aligned} \quad (3.6)$$

$$(3.7)$$

a equação 3.3 pode ser escrita na forma vetorial como:

$$\frac{d\vec{s}}{dt} = \vec{\Omega} \times \vec{s} \quad (3.8)$$

a qual descreve a precessão do vetor \vec{s} com o vetor de frequência angular:

$$\Omega = \left(\frac{(\vec{d}_{ab} + \vec{d}_{ab}^*) \cdot \vec{E}}{\hbar}, \frac{(\vec{d}_{ab} - \vec{d}_{ab}^*) \cdot \vec{E}}{\hbar}, -\omega^0 \right) \quad (3.9)$$

A equação 3.8 representa a forma geral da interação de um sistema de dois níveis com um campo de luz na teoria semiclássica e é conhecida como equação óptica de Bloch, devido à analogia com as equações introduzidas por Bloch para ressonância magnética de um spin 1/2 em um campo magnético oscilante.

Pode-se fazer uma transformação para o sistema de coordenadas girante com frequência angular $\vec{\omega} = (0, 0, -\omega)$ e supor uma onda monocromática $\vec{E} = \vec{E}_0 \cos(\omega t)$ e uma transição linearmente polarizada ($\vec{d}_{ab} = \vec{d}_{ab}^* = \vec{d}$).

Se a radiação eletromagnética aplicada tem frequência perto da ressonância do sistema atômico e se a intensidade é baixa, podem ser desprezados os termos $\omega + \omega_{ab}$ mantendo os termos $\omega - \omega_{ab}$. Na descrição de interação (formalismo de Dirac) a evolução de um átomo devida ao correspondente Hamiltoniano atômico é absorvido no *ket* do sistema, deixando somente a evolução devida a interação do átomo com o campo de luz. Nesta descrição os termos que oscilam rapidamente podem ser eliminados. Sendo que a descrição de interação podem ser pensada com girando com o *ket* do sistema, somente a parte da onda eletromagnética que que gira no mesmo sentido é mantida e a componente que gira contrariamente é descartada. Esta aproximação é conhecida como *rotation wave approximation* [40].

Finalmente, a matriz de rotação Θ relaciona as componentes \vec{s} e \vec{s}' ($\vec{s}' = \Theta \vec{s}$):

$$s_1 = s'_1 \cos \omega t + s'_2 \sin \omega t, s_2 = -s'_1 \sin \omega t + s'_2 \cos \omega t, s_3 = s'_3 \quad (3.10)$$

Desta forma, as equações de Bloch no sistema de referência l são:

$$\frac{d\vec{s}'}{dt} = \vec{\Omega}_e \times \vec{s}' \quad (3.11)$$

com:

$$\Omega_e = (\omega_R, 0, \omega - \omega_{ab}) \quad (3.12)$$

onde $\omega_R = \vec{d} \cdot \vec{E}_0 / \hbar$ é a frequência de Rabi.

Por exemplo, considerando as condições iniciais $\vec{s}'(t=0) = (0, 0, -1)$, a solução de 3.11 fornece a probabilidade de ocupação do estado excitado:

$$|b|^2 = \frac{\omega_R^2 \sin^2(\sqrt{(\omega - \omega_{ab})^2 + \omega_R^2} t / 2)}{(\omega - \omega_{ab})^2 + \omega_R^2} \quad (3.13)$$

Dos exemplos desta solução encontram-se na figura 3.1. No caso de ressonância ($\omega = \omega_{ab}$), a probabilidade de achar o sistema no estado excitado oscila no tempo com a frequência de Rabi e alcança o seu máximo valor.

3.1.2 Ensemble de sistemas idênticos de dois níveis

Em sistemas reais, as oscilações coerentes descritas na seção anterior apresentam amortecimento. Primeiramente a emissão espontânea do nível **b** para o nível **a** resulta em um tempo de vida radiativo finito. Adicionalmente, pode-se considerar as interações com o ambiente. Por exemplo, em gases, colisões com outros átomos. Em sólidos, vibrações da rede e interações de Coulomb. Considerar todos estes fatores pode ser muito complicado devido ao grande número de variáveis. Numa aproximação simples, o ambiente pode ser considerado como um banho térmico sem memória e a evolução do sistema pode ser descrita por um decaimento exponencial ao valor do equilíbrio. Esta aproximação simples introduz fenomenologicamente constantes de amortecimento na evolução temporal de \vec{s}' .

Uma descrição consistente da mecânica do amortecimento tem que abandonar a possibilidade de descrever o sistema de dois níveis com a função de onda Ψ (a qual representa um estado puro) e deve introduzir a formalismo de matriz densidade. Neste caso, o sistema não é mais um estado puro senão que se encontra numa mistura estatística. Assim, o sistema pode ser descrito por probabilidades P_k de estar no estado $\Psi_k = c_{a,k}\Psi_a + c_{b,k}\Psi_b$. A matrix densidade do sistema é definida como:

$$\rho = \sum_k P_k \begin{pmatrix} |c_{a,k}|^2 & c_{a,k}c_{b,k}^* \\ c_{b,k}c_{a,k}^* & |c_{b,k}|^2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Esta descrição é conveniente para sistemas que consistem de um ensemble de sistemas idênticos os quais estão em diferentes estados puros ou para um único sistema onde as quantidades medidas em tempos longos pode ser tratadas equivalentemente a uma média sobre um ensemble de medidas independentes. A matriz densidade descreve as propriedades estatísticas do sistema. Pode-se introduzir duas quantidades físicas mensuráveis que são importantes em experimentos ópticos: a densidade de diferença de população ΔN e a densidade de polarização do sistema \vec{P} . Estas são propriedades macroscópicas do sistema e representam médias no ensemble dadas por [39]:

$$\Delta N = n \sum_k P_k (|c_{b,k}|^2 - |c_{a,k}|^2) = n \sum_k P_k s_{3,k} \quad (3.15)$$

$$\vec{P} = n \sum_k P_k \langle \vec{d} \rangle_k = n \vec{\mu} \sum_k P_k s_{1,k} \quad (3.16)$$

onde n é o número de sistemas por unidade de volume no ensemble.

Desta forma, os termos da diagonal na matriz densidade estão associados com a população dos autoestados de energia, enquanto que os termos fora da diagonal estão associados com a superposição dos dipolos no ensemble, a qual é sensível à fase, e como resultado estão associados à sua coerência mútua.

Agora pode-se introduzir um novo vetor \vec{S}' que descreve a inversão e a polarização macroscópica:

$$S'_1 = \sum_k P_k s'_{1,k}; S'_2 = \sum_k P_k s'_{2,k}; S'_3 = \sum_k P_k s'_{3,k} \quad (3.17)$$

que obedece as equações ópticas de Bloch com amortecimento:

$$\begin{aligned} \frac{dS'_3}{dt} &= \omega_R S'_2 - \frac{S'_3 + 1}{T_1} \\ \frac{dS'_2}{dt} &= (\omega - \omega_{ab}) S'_1 - \omega_R S'_3 - \frac{S'_2}{T_2} \\ \frac{dS'_1}{dt} &= -(\omega - \omega_{ab}) S'_2 - \frac{S'_1}{T_2} \end{aligned} \quad (3.18)$$

Na equação 3.18, foi introduzido o tempo $T_1 > 0$ como tempo de decaimento da diferença de população tal que o sistema retorna ao seu estado

fundamental no equilíbrio sem campo. Também foi introduzido $T_2 > 0$ o que representa a constante de amortecimento da polarização, também chamado de tempo de decoerência. T_1 e T_2 são conhecidos como tempos de relaxação longitudinal e transversal, respectivamente, em analogia com a teoria de ressonância magnética.

Se o sistema estiver numa superposição de estados, os fenômenos de relaxação levam a mudança do estado de energia do sistema e implicam, conjuntamente, na perda de coerência (vide figura 3.2). Ao contrário, fenômenos de coerência podem ser puros e não implicar na mudança do estado de energia (vide figura 3.3). A equação que expressa esta relação entre T_1 e T_2 é:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T'_2} \quad (3.19)$$

onde T'_2 é o tempo de decoerência puro ou elástico.

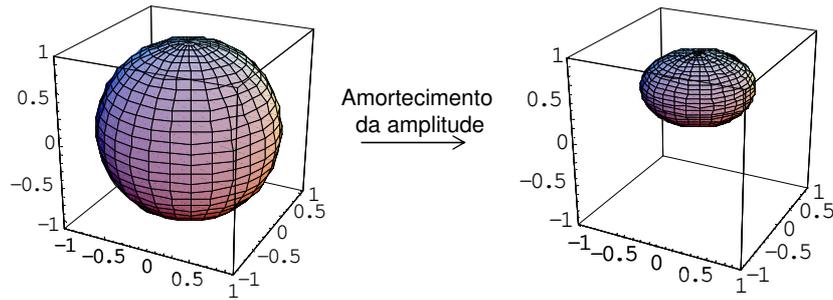


Figura 3.2: Efeito do amortecimento da amplitude na esfera de Bloch. Note como a esfera completa é encolhida na direção do polo norte (estado $|0\rangle$). O polo norte está representando o estado fundamental. Neste exemplo foi usada uma transformação do tipo: $(r_x, r_y, r_z) \rightarrow (r_x\sqrt{1-\gamma}, r_y\sqrt{1-\gamma}, \gamma + r_z(1-\gamma))$ onde γ pode ser pensado com a probabilidade de perder um fóton ao inserir um semi-espelho no caminho de um modo óptico de superposição entre zero e um fóton. Na maioria dos sistemas físicos γ é uma função que varia com o tempo como $1 - e^{-t/T_1}$ [41].

Um fenômeno de decoerência puro pode ser induzido, por exemplo, através de um processo de espalhamento que deixa o átomo no mesmo estado de energia (colisões elásticas) mas que mudam a fases de $c_{a,k}$ e $c_{b,k}$ sem mudar as suas amplitudes. A polarização macroscópica é sensível as relações de fase

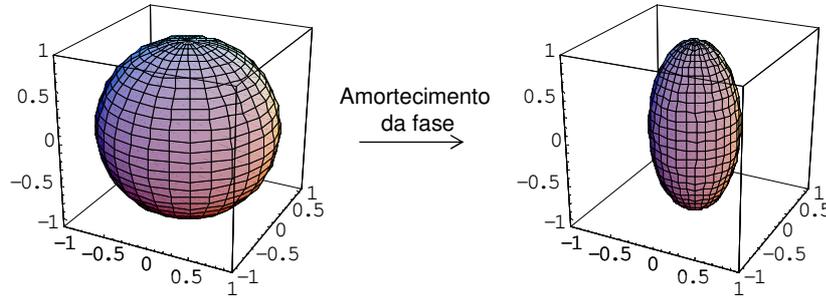


Figura 3.3: Efeito do amortecimento da fase na esfera de Bloch. Note como os estados ao longo do eixo z não são alterados (decoerência pura). Neste exemplo foi usada transformação $(r_x, r_y, r_z) \rightarrow (r_x\sqrt{1-\lambda}, r_y\sqrt{1-\lambda}, r_z)$ onde $\sqrt{1-\lambda}$ é uma função que varia com o tempo como $e^{-t/2T_2}$. O amortecimento da fase aumenta com o tempo e todos os pontos da esfera unitária se deslocam para o eixo z [41].

dos termos $c_{a,k}c_{b,k}^*$ na superposição $\sum_k P_k s_{1,k}$, de tal forma que mudanças aleatórias causadas por colisões elásticas resultam no decaimento da polarização macroscópica adicionalmente ao decaimento da população. O fator de 2 entre a taxa de decoerência pura e a taxa radiativa deve ser notado. Isto pode ser entendido a partir do fato de que a polarização é proporcional à amplitude da probabilidade de ocupação do estado excitado c_b enquanto que a inversão de população é proporcional a $|c_b|^2$.

Na presença de decoerência, as componentes de \vec{S}' decaem com o tempo e tendem a valores estacionários. Na figura 3.4 é ilustrado o decaimento das oscilações coerentes para diferentes fatores de amortecimento.

Por fim salienta-se que a introdução de constantes de amortecimento T_1 e T_2 é a aproximação mais simples para descrever a relaxação de um sistema até o equilíbrio e é chamada de aproximação do tempo de relaxação.

3.1.3 Ensemble não homogêneo

Na maioria de sistemas reais, o ensemble estudado é formado por sistemas de dois níveis que não são idênticos. Cada sistema de dois níveis pode ser descrito pela equação 3.18, mas com parâmetros tais como frequência de transição, momento de dipolo e constantes de amortecimento diferentes para cada

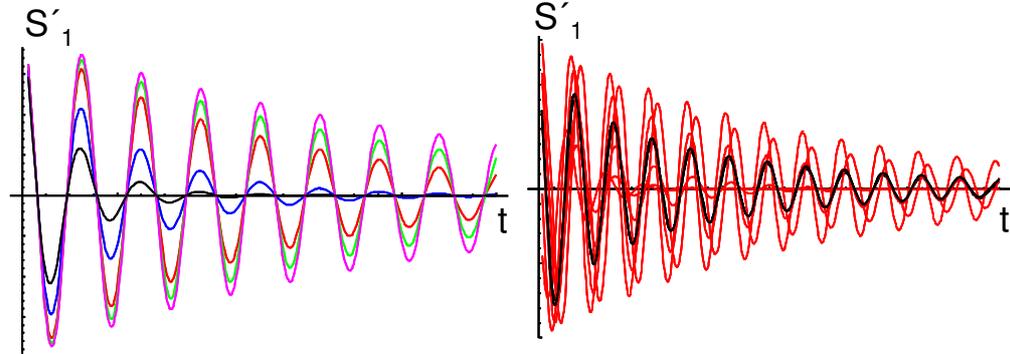


Figura 3.4: Esquerda: Decaimento exponencial das oscilações coerentes para diferentes valores de T_2 . Direita: Soma das oscilações coerentes de um ensemble não homogêneo. As curvas vermelhas representam sistemas de dois níveis individuais e diferentes, o decaimento da curva preta (soma) é definido pelo tempo de defasagem do ensemble T_2^* .

sistema do ensemble. A distribuição de frequências de transição é frequentemente o efeito não homogêneo mais importante nas propriedades ópticas do ensemble. Em muitos casos, um ensemble não homogêneo é aproximado assumindo uma distribuição de frequências ω_{ab} representado por uma função $G(\omega_{ab})$.

O efeito da não homogeneidade de um ensemble pode ser visto na figura 3.4. Nesta figura cada gráfico vermelho representa as oscilações coerentes de um único sistema de dois níveis e o gráfico preto é a soma que resulta da média experimental macroscópica. A constante de tempo que define este decaimento do ensemble é definida como T_2^* e usualmente chamada de tempo de defasagem do ensemble.

A linha de absorção de um único sistema de dois níveis é uma linha Lorentziana centrada em $\hbar\omega_{ab}$ com largura homogênea dada por: $\Gamma = 2\hbar/T_2$. No caso de um ensemble não homogêneo a largura da linha é a convolução da linha do sistema individual com a distribuição G .

Existem vários mecanismos físicos que fornecem a origem para os decaimentos descritos nesta seção. As mais importantes fontes de amortecimento em pontos quânticos serão descritas a seguir.

3.2 Mecanismo (i): Interação spin-órbita SO

3.2.1 A origem nos sólidos

O spin do elétron se movimentando em um campo elétrico \vec{E} sente um campo magnético interno, proporcional a $\vec{E} \times \vec{p}$, onde \vec{p} é o momentum do elétron. Este é o caso, por exemplo, de um elétron orbitando ao redor de um núcleo carregado positivamente. A ação deste campo magnético sob o spin depende de qual orbital o elétron ocupa; o spin e a órbita estão acoplados.

Um elétron se movimentando em um sólido sente campos elétricos originados pelos átomos da rede. O campo elétrico total da rede é zero se o potencial cristalino é espacialmente simétrico. No caso de cristais que apresentam assimetria de inversão no bulk (BIA), por exemplo a estrutura *zincblend* do GaAs, o campo elétrico é diferente de zero ao longo de algumas direções cristalinas. Este efeito é conhecido como contribuição Dresselhaus à interação spin-órbita [42, 43].

Além deste efeito, campos elétricos associados com potenciais de confinamento assimétricos também contribuem à interação spin-órbita (SIA ou assimetria estrutural de inversão). A contribuição SIA à interação spin-órbita é conhecido como termo Rashba [44, 45]. Isto acontece, por exemplo, no caso de um gás de elétrons bi-dimensional (2DEG) formado em uma heterointerface de GaAs/AlGaAs ou mesmo nos pontos quânticos auto-formados. Em contraste, em poços simétricos de AlGaAs/GaAs/AlGaAs o campo elétrico total é zero se integrado ao longo da direção de crescimento.

3.2.2 Fator g efetivo

Para elétrons não emparelhados a doadores, a diferença do fator g com o valor de 2 para o estado fundamental de um átomo livre revela a dependência no campo cristalino e no acoplamento spin-órbita [46]. Para elétrons de condução em cristais bulk semicondutores, o fator \underline{g} pode ser determinado com muita precisão por uma teoria de perturbação $\vec{k} \cdot \vec{p}$ usando a equação de Roth [47, 48] e confirmado experimentalmente [49] (por exemplo figura 3.5). A dependência na estrutura de bandas pode ser descrita como:

$$g = 2 - \frac{2E_p \Delta}{3E_g(E_g + \Delta)} \quad (3.20)$$

onde Δ é a energia de acoplamento spin-órbita, E_g é a energia do gap, e E_p é $2\langle S|P|X\rangle^2/m$ é a energia de Kane que relaciona a função de Bloch $\langle S|$ (com simetria tipo S) e a função $\langle X|$ (com simetria tipo P) [50], e m é a massa do elétron livre.

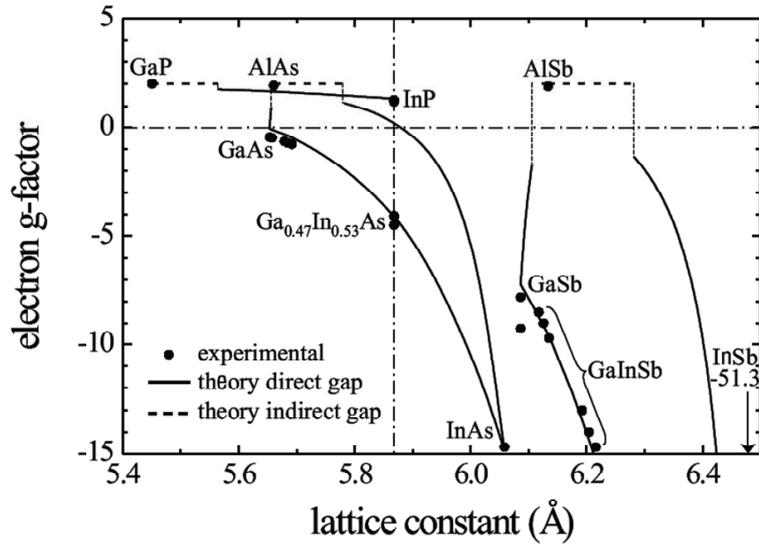


Figura 3.5: Fatores g para materiais bulk. Comparação entre o cálculo teórico, em uma aproximação $\vec{k} \cdot \vec{p}$, e valores experimentais. Figura extraída da referência [51].

As simetrias de defeitos e o ambiente químico também podem ser revelados no mapeamento do tensor g [52]. Complementarmente, a parte anisotrópica do fator g influencia a relaxação do spin na rede e é de muita importância para aplicações relacionadas ao uso do spin [53, 54]. Para o caso de poços [55] e fios quânticos [56], o confinamento quântico, o strain e as flutuações da composição afetam o tensor g . Recentemente, utilizando a técnica de batimentos spin em rotação de Kerr resolvida no tempo, foi determinado um comportamento universal (que em alguns casos tende ao valor de Roth) para poços quânticos de $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ [57]. Na tabela da figura 3.6 pode-se observar o grau de anisotropia do fator g para poços de GaAs de diferente composição e espessura.

Sample, Al content	QW width (nm)	Transition	Laser energy (eV)	$ g_{\perp} $	$ g_{\parallel} $
1 (p343), $x=0.33$	16.0	e1-hh1	1.528	0.36 ± 0.01	0.43 ± 0.01
	14.3	e1-hh1	1.530	0.34 ± 0.01	
	11.0	e1-hh1	1.540	0.30 ± 0.01	0.43 ± 0.01
	10.2	e1-hh1	1.543	0.27 ± 0.01	
	7.6	e1-hh1	1.565	0.15 ± 0.01	0.22 ± 0.01
	7.3	e1-hh1	1.569	0.13 ± 0.01	
	4.3	e1-hh1	1.618	0.10 ± 0.01	0.025 ± 0.02
	4.2	e1-hh1	1.622	0.06 ± 0.004	
2 (p340), $x=0.34$	17.2	e1-hh1	1.527	0.40 ± 0.01	
	13.0	e1-hh1	1.535	0.33 ± 0.01	
	13.0	e1-hh1	1.542	0.33 ± 0.01	
	13.0	e2-hh2	1.597	0.32 ± 0.01	
	11.7	e1-hh1	1.538	0.30 ± 0.01	0.40 ± 0.01
	8.8	e1-hh1	1.555	0.20 ± 0.005	
	7.9	e1-hh1	1.562	0.16 ± 0.01	0.25 ± 0.01
3 (p337), $x=0.28$	10.0	e1-hh1	1.544	0.26 ± 0.005	
	8.4	e1-hh1	1.559	0.17 ± 0.01	
4 (11302), $x=0.25$	GaAs buffer		1.559	0.43 ± 0.005	
5 (e294), $x=0.32$	8.8	e1-hh1	1.555	0.21 ± 0.01	
	GaAs buffer		1.515	0.44 ± 0.001	
	GaAs buffer		1.529	0.44 ± 0.001	
	GaAs buffer		1.543	0.43 ± 0.006	
	GaAs buffer		1.553	0.42 ± 0.004	

Figura 3.6: Anisotropia do fator g para poços quânticos de GaAs/AlGaAs de diferente espessura e composição. Tabela extraída da referência [57].

Pesquisas experimentais dos fatores g e tensores g têm sido relatadas para nanopartículas metálicas [58] e pontos quânticos definidos litograficamente [59, 60]. Para as nanopartículas metálicas, as dificuldades provêm do fato de achar um eixo simetria não conhecido *a priori*. Este poderia ser determinado do mapeamento do tensor g. Além disto, uma vez que o caminho livre médio do elétron é menor do que o tamanho do partícula, o momentum angular pode não ser um bom número quântico. Para os pontos quânticos definidos por litografia, o desdobramento de Zeeman e o desdobramento orbital tem escalas de energia similares, impossibilitando a avaliação da componente do tensor g fora do plano. Para os pontos quânticos auto-organizados, como foi deduzido na seção anterior, o carregamento, a energia de Zeeman e as autoenergias de uma única partícula são diferentes o que permite que sejam distinguidas para excitons e elétrons [61, 62, 63, 64].

Recentemente, cálculos foram realizados mostrando uma relação entre o

tensor g e a estrutura eletrônica dos pontos quânticos [65].

3.2.3 Interação SO em pontos quânticos

Da explicação semi-clássica da interação spin-órbita, poder-se-ia esperar que em pontos quânticos com dimensões muito menores do que o comprimento deste acoplamento l_{SO} , os estados de spin eletrônico vão ser dificilmente afetados por esta interação. De fato, a mesma explicação se obtém na descrição quântica, onde o acoplamento spin-órbita pode ser considerado como uma pequena perturbação ao espectro discreto de níveis de energia orbitais. Primeiro, deve-se observar que os estados estacionários em um ponto quântico são estados ligados para os quais $\langle p_x \rangle = \langle p_y \rangle = 0$. Esta característica tem uma implicação muito importante:

$$\langle nl \downarrow | H_{SO} | nl \uparrow \rangle = 0 \quad (3.21)$$

onde n e l indicam os orbitais no ponto quântico, e H_{SO} é o Hamiltoniano de spin-órbita o qual inclui tanto o termo Dresselhaus como o termo Rashba.

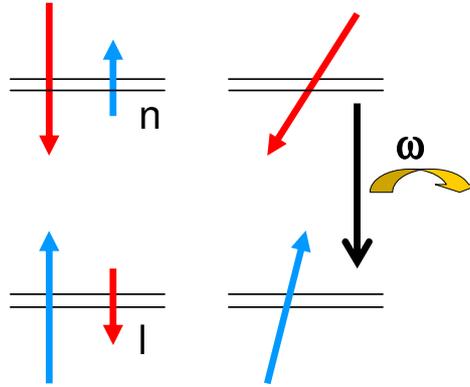


Figura 3.7: A mistura de níveis de spin nos orbitais n e l , na presença de termos de acoplamento spin-órbita, permite o spin flip devido ao espalhamento com fônons.

A interação spin-órbita não acopla diretamente sub-níveis de um orbital do ponto quântico produzidos pelo deslocamento Zeeman mas, estados que contenham partes orbitais e partes de spin diferentes, são acoplados pelo

Hamiltoniano de spin-órbita [66] (figura 3.7). Como resultado, o que usualmente é chamado de estados de spin eletrônicos *up* e *down* em um ponto quântico, são misturas de estados orbitais e de spin na realidade [67]. Se a energia de Zeeman é muito menor do que o espaçamento entre níveis orbitais, os autoestados perturbados podem ser aproximados como:

$$|nl \uparrow\rangle^{(1)} = |nl \uparrow\rangle + \sum_{n'l' \neq nl} \frac{\langle n'l' \downarrow | H_{SO} | nl \uparrow \rangle}{E_{nl} - E_{n'l'} - \Delta E_{Zeeman}} |n'l' \downarrow\rangle \quad (3.22)$$

$$|nl \downarrow\rangle^{(1)} = |nl \downarrow\rangle + \sum_{n'l' \neq nl} \frac{\langle n'l' \uparrow | H_{SO} | nl \downarrow \rangle}{E_{nl} - E_{n'l'} - \Delta E_{Zeeman}} |n'l' \uparrow\rangle \quad (3.23)$$

onde ΔE_{Zeeman} corresponde ao desdobramento entre os níveis up e down ($\Delta E_{Zeeman} = E_{|\uparrow\rangle} - E_{|\downarrow\rangle}$).

3.2.4 Relaxação através de um banho de fônons

Campos elétricos não podem induzir transições entre estados puros de spin. Porém, na seção anterior viu-se que a interação spin-órbita perturba os estados de spin e faz que os autoestados sejam misturas de estados orbitais e de spin (vide equação 3.22). Estes novos autoestados podem ser acoplados a campos elétricos, e flutuações nestes campos podem levar à relaxação de spin [66, 67, 68]. Experimentalmente têm sido medidos tempos de relaxação muito longos; demonstrando que este mecanismo não é muito eficiente [24, 25, 60, 69, 70, 71, 72, 73, 74].

Em geral, campos elétricos flutuantes podem ser provocados por muitas fontes, incluindo flutuações nos potenciais de contatos dos dispositivos, flutuações em cargas residuais de fundo e outros tipos de ruído elétrico [75, 76]. Porém, em experimentos onde estas fontes de ruído foram cuidadosamente isoladas, as flutuações do campo elétrico devido a estas fontes não são importantes em comparação com as causadas pelo banho de fônons.

Os fônons podem produzir flutuações elétricas de duas maneiras. Primeiramente, através do potencial de deformação os fônons deformam a rede cristalina de maneira não homogênea e assim, mudando o gap, produz campos elétricos aleatórios. Este mecanismo ocorre em todos os semicondutores. Segundo, em cristais polares como GaAs, o strain homogêneo induz campos elétricos através do efeito piezo-elétrico (fônons piezo-elétricos).

A taxa de transição induzida pelos fônons entre $|nl \uparrow\rangle^{(1)}$ e $|nl \downarrow\rangle^{(1)}$ é determinada pela regra de ouro de Fermi:

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{n,l} |{}^{(1)}\langle nl \uparrow | H_{e,ph} | nl \downarrow \rangle^{(1)}|^2 D(\Delta E_{Zeeman}^{(1)}) \quad (3.24)$$

onde $D(E)$ é a densidade de fônons na energia E .

Desta forma, a taxa de relaxação depende da densidade de estados de fônons na energia do spin-flip (os fônons tem que levar embora esta energia) e da força com que os fônons acoplam os estados de spin perturbados pela interação spin-órbita. Este último fator depende do grau de mistura entre os estados de spin e orbitais, da amplitude do campo elétrico associado a um fônon, o comprimento de onda do fônon e do campo magnético externo. A seguir podemos considerar alguns detalhes relevantes destes fatores:

1. Energia

Em pontos quânticos de GaAs, as energias de fônons óticos (dezenas de meV) [77] são muito maiores que as energias típicas de spin-flip, assim que só fônons acústicos são relevantes ($E_{ph} = g_e \mu_B B$). Dada uma dispersão linear (semelhante a fônons em bulk [78]), a densidade de estados aumenta quadraticamente com a energia.

2. Grau de mistura entre estados de spin e orbitais

Depende dos parâmetros de acoplamento spin-órbita α e β . Uma vez que a interação spin-órbita é anisotrópica, α e β podem somar ou cancelar dependendo da orientação do campo magnético em relação aos eixos cristalinos. A taxa de relaxação pode ser anisotrópica também [79].

3. Campo elétrico associado

O campo elétrico associado com um único fônon é proporcional a $1/\sqrt{q}$ para fônons piezo-elétricos e a \sqrt{q} para fônons do potencial de deformação, onde q é o número de onda do fônon. Esta diferença pode ser entendida considerando que energias de fônon pequenas correspondem a comprimentos de onda longos resultando em um campo de strain homogêneo no cristal, o qual pode criar campos elétricos somente através do efeito piezo-elétrico. Para energias do

fônons pequenas (E_{ph} abaixo de 0.6meV [77] para GaAs) os fônons piezo-elétricos dominam.

4. Comprimento de onda

O comprimento de onda do fônons afeta fortemente a força do acoplamento entre diferentes orbitais. Isto é consequência do Hamiltoniano de acoplamento elétron-fônons [80]. Em GaAs, a velocidade do som c_{ph} é da ordem de 4000 m/s [77], sendo que o comprimento de onda do fônons é hc_{ph}/E_{ph} temos aproximadamente 16 nm para um fônons de 1 meV. Somente quando o comprimento de onda do fônons pode ser comparado ao tamanho do ponto quântico, o fônons pode eficientemente acoplar os orbitais; e relaxação de spin é mais rápida [68, 81, 82].

5. Energia de Zeeman

Sem um desdobramento de Zeeman, os elementos de matriz na equação 3.24 são iguais a zero. Um fônons produz um campo elétrico que oscila em um determinado eixo e este campo elétrico vai fazer que o elétron no ponto quântico oscile no mesmo eixo. Na ausência de outros termos no Hamiltoniano que atuem sob o spin, a rotação induzida pela interação spin-órbita é realizada durante meio ciclo do campo elétrico e é revertido no seguinte meio ciclo, obtendo assim uma rotação de spin nula. Esta característica está diretamente relacionada com o fato de que a interação spin-órbita possui simetria de inversão temporal. Em contraste, na presença de um campo magnético externo, a rotação de spin (ao redor da soma do campo magnético externo mais o campo induzido pelo termo spin-órbita) durante a primeira metade do ciclo não comuta com a rotação de spin na segunda metade do ciclo, assim obtendo uma rotação de spin neta diferente de zero.

Incluindo estes elementos, pode-se inferir a dependência do tempo de relaxação com o campo B entre níveis de spin eletrônico desdobrados pelo acoplamento Zeeman. Primeiro, a densidade de estados dos fônons aumenta com E_{Zeeman}^2 . Logo, a amplitude do campo elétrico de um fônons varia como $\sqrt{q} \propto \sqrt{E_{Zeeman}}$ para fônons do potencial de deformação e como $1/\sqrt{q} \propto 1/\sqrt{E_{Zeeman}}$ para fônons piezoelétricos. Se B tem amplitude de alguns Tesla, E_{Zeeman} está abaixo da energia do fônons que têm comprimento

comparável com o tamanho do ponto quântico (isto acontece para fônons de $100 \mu\text{eV}$), assim que estamos no limite de comprimentos de onda grandes onde o elemento de matriz elétron-fônon aumenta como $q \propto E_{Zeeman}$. Finalmente, devido ao efeito do desdobramento de Zeeman, o elemento de matriz na equação 3.24 carrega outro fator E_{Zeeman} . Somando todos estes fatores, e considerando que a taxa de relaxação é proporcional ao quadrado do elemento de matriz, pode-se inferir que T_1 varia com E_{Zeeman}^5 quando o acoplamento com fônons piezo-elétricos é dominante [67], e com E_{Zeeman}^7 quando os fônons do potencial de deformação dominam. No primeiro caso, a dependência exata é:

$$\frac{1}{T_1} = A' \frac{E_{Zeeman}^5}{\hbar(\hbar\omega_0)^4} = A' \frac{(g\mu B)^5}{\hbar(\hbar\omega_0)^4} \quad (3.25)$$

onde A' é uma constante adimensional que reflete a força efetiva do acoplamento do fônon piezoelétrico na heteroestrutura e $\hbar\omega_0$ é o espaçamento entre os níveis confinados do ponto quântico.

Usando propriedades do GaAs, o valor de A' na equação 3.25 é estimado em 0,14 [67, 68]. Em conjunto com $|g|=0,8$ [83] e $\hbar\omega_0=30 \text{ meV}$ [84], foi utilizado como valor teórico na figura 3.8 superior. A evolução de T_1 nesta medida óptica segue esta tendência teórica e evidencia que as transições de spin flip entre subníveis de Zeeman em pontos quânticos são dominadas por processos de espalhamento por um único fônon para temperaturas baixas. Da mesma forma, valores de T_1 obtidos em uma medida elétrica em pontos quânticos de GaAs [25] (mostrados na figura 3.8 inferior), variam entre 120 μs para 14 T até 120 ms para 1,75 T e possuem uma dependência com B^5 em um intervalo grande de campos. O tempo T_1 máximo medido em [24] (20 ms para 4 T) foi inferior ao valor máximo medido em [25] de 120 ms para 1,75 Tesla.

Experimentalmente em [24] os dados de T_1 divergem do comportamento de B^{-5} para B^{-4} para campo de 2 a 4 T. Este comportamento é esperado para processos de um fônon [67, 68], refletindo a transição entre o regime de baixa temperatura ($k_B T < g\mu_B B$) para um regime onde $k_B T$ é da ordem de $g\mu_B B$.

3.2.5 Decoerência devido à interação SO

Neste capítulo, foi mostrado como um banho de fônons pode induzir transições entre estados de spin misturados pela interação de spin-órbita (ab-

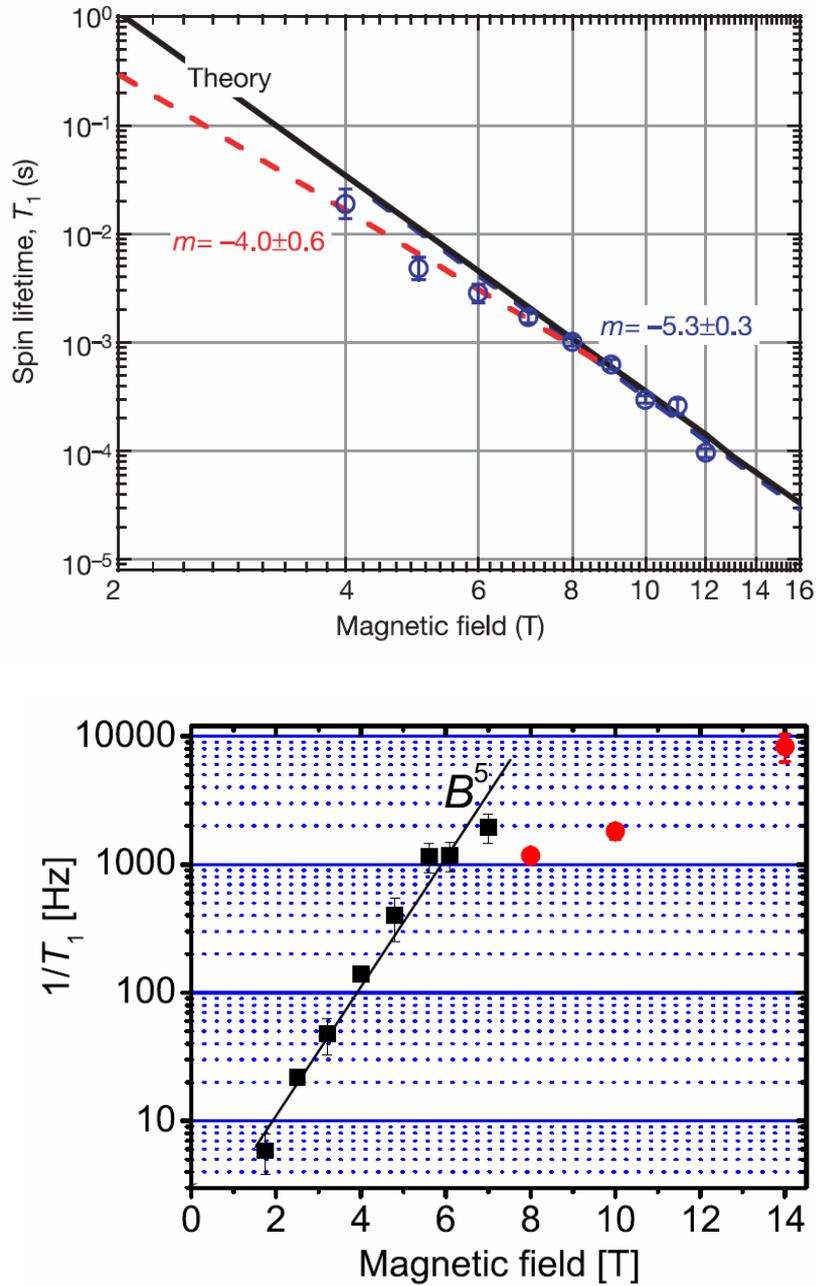


Figura 3.8: Medidas experimentais de T_1 . Superior: Medida óptica de T_1 em pontos quânticos auto-formados. Inferior: Taxa de relaxação entre subníveis desdobrados pela interação de Zeeman do nível orbital fundamental do ponto quântico. Os pontos quadrados correspondem as medidas de [25]; e os pontos redondos são de [72]. Em ambos gráficos uma tendência teórica com B^5 é usada como parâmetro de comparação. A figura superior foi extraída da referência [24] e a inferior da referência [85].

3.3 Mecanismo (ii): Interação hiperfina HF com spins nucleares

sorvendo a energia do spin flip). Na subseção "Ensemble de sistemas idênticos de dois níveis", foi determinado que $T_2 \leq 2T_1$ (equação 3.19). Também nessa seção foi estudado que processos de energia de relaxação também levam a perda de coerência.

Notavelmente, não existe relaxação pura de fase induzida pela interação spin-órbita ($T_2' = \infty$). Este fato leva a que, considerando só os efeitos spin-órbita, $T_2 = 2T_1$ [82] (vide equação 3.19). Isto pode ser entendido se é considerado o caso de um spin em um campo magnético externo perpendicular ao plano da amostra; as contribuições Dresselhaus e Rashba só contêm termos σ_x e σ_y . Assim, com \vec{B} ao longo z, estes termos levam a spin flips mas não a pura evolução aleatória da fase. Embora este argumento não aplica no caso de um campo magnético no plano da amostra, e mesmo que algum termo de evolução aleatória da fase possa ser esperado, este termo também não existe neste caso [82].

Uma teoria para a dissipação de spins eletrônicos confinados em pontos quânticos auto-organizados, devido ao seu acoplamento com modos de fônons acústicos da rede através de uma função espectral efetiva J_{eff} , foi apresentada por Westfahl e colaboradores em [86]. Baseado na teoria de dissipação de sistemas de dois níveis para a dinâmica de spin, foi derivada uma relação entre o banho, o potencial de confinamento e a interação elétron-fônon.

O resultado, figura 3.9, coloca as amostras estudadas nesta tese em uma área de baixa taxa de decoerência (área preta). Isto sugere que, considerando só a decoerência devida a fônons acústicos, os pontos quânticos auto-organizados são os que melhor desacoplam o grau de liberdade do spin eletrônico do ambiente.

Considerando as características descritas da interação spin-órbita, nas próximas seções será considerada a interação hiperfina com spin nucleares como fonte determinante na introdução de decoerência.

3.3 Mecanismo (ii): Interação hiperfina HF com spins nucleares

3.3.1 A origem nos pontos quânticos

O spin de um elétron em um átomo pode interagir com o spin do núcleo atômico através do acoplamento hiperfino (figura 3.10). Em contraste, um spin de elétron em um ponto quântico pode interagir com muitos spins nu-

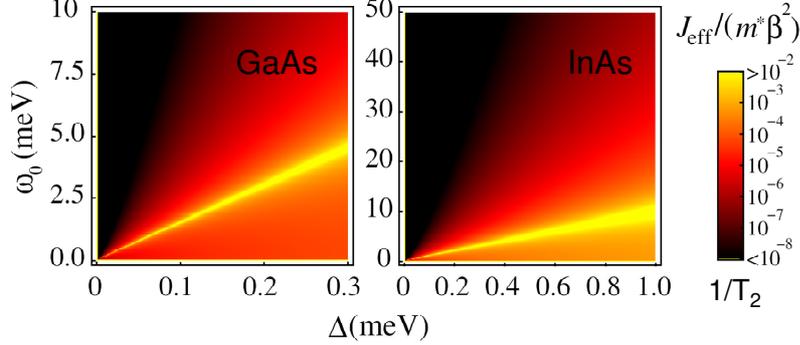


Figura 3.9: Mapa de densidade para a função espectral efetiva J_{eff} do banho de fônons piezo-elétricos (proporcional a $1/T_2$) como função do desdobramento de Zeeman Δ . Cálculo para pontos de GaAs (esquerda) e InAs (direita). Figura extraída da referência [86].

cleares do material *host*. Ainda mais, considerando a não homogeneidade da função de onda do elétron, a força do acoplamento A_k entre cada núcleo k e o elétron varia como função da sua dependência com o quadrado da superposição (overlap) entre a função de onda do núcleo e do elétron. Especificamente, o Hamiltoniano de acoplamento hiperfino H_{HF} elétron-núcleo [87] é dado por:

$$H_{HF} = \sum_k^N A_k \vec{I}_k \vec{S} \quad (3.26)$$

onde \vec{I}_k e \vec{S} são os operadores de spin para o núcleo k e para o spin, respectivamente.

Esta situação assimétrica combinada com a dinâmica rápida do spin eletrônico e a dinâmica lenta do spin nuclear, produz uma situação complexa em um problema de mecânica quântica de muitos corpos; onde o spin nuclear afeta a evolução temporal do spin eletrônico, e o spin do elétron retorna a ação na dinâmica de cada núcleo. Recentemente, Oulton e colaboradores [88], mostraram que a polarização do núcleo é um parâmetro chave na memória do spin eletrônico em pontos quânticos, tal que o spin do elétron é estabilizado ao longo da média do campo nuclear magnético. Foi demonstrado que a polarização de spin eletrônico em pontos de (In,Ga)As/GaAs

3.3 Mecanismo (ii): Interação hiperfina HF com spins nucleares 45

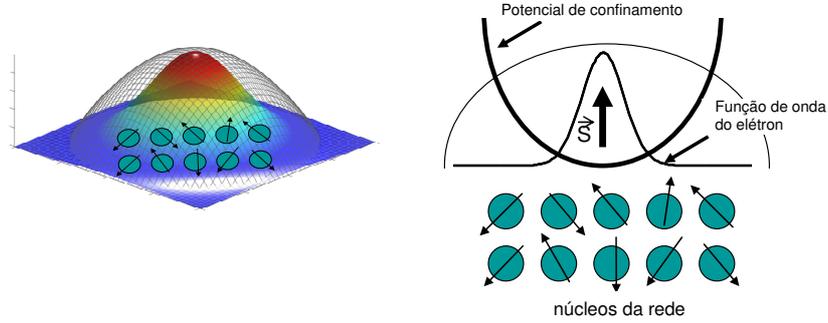


Figura 3.10: Interação hiperfina dos núcleos da rede e do spin eletrônico confinado.

alinha o campo nuclear através da interação hiperfina. O retorno desta ação sob os elétrons, leva a estabilização devida a formação de um polaron do spin nuclear [89]. Neste caso, foi mostrado que a depolarização do sistema composto por ambos spins é reduzida consideravelmente, e que a memória de spin do sistema de spin acoplados elétron-núcleo é mantida até 0,3 segundos a 2 K. Uma das amostras estudadas em [88] (caracterizada pelo annealing a 945°C) é a mesma amostra utilizada nas medidas do tempo de decoerência apresentada nesta tese.

Uma vez que o spin nuclear e o spin eletrônico confinado são objetos quânticos, o acoplamento hiperfino pode criar emaranhamento entre eles. Para o spin eletrônico, este emaranhamento com spins nucleares aleatoriamente distribuídos constitui um mecanismo de decoerência. Isto significa que o spin do elétron inicialmente em um estado puro vai evoluir para uma mistura estatística, um de vários possíveis estados cada um com igual probabilidade [41].

Uma alternativa muito útil para a descrição do efeito do spin do núcleo no spin eletrônico, é tratar o ensemble de spins nucleares como um campo magnético semiclássico, B_N . Este campo nuclear, conhecido como campo Overhauser, atua no spin eletrônico da mesma forma que um campo magnético externo B :

$$\left(\sum_k^N A_k \vec{I}_k \right) \vec{S} + g\mu_B \vec{B} \vec{S} = g\mu_B (\vec{B}_N + \vec{B}) \vec{S} \quad (3.27)$$

Quando o campo nuclear B_N assume um valor aleatório e desconhecido,

o spin do elétron vai subseqüentemente evoluir para uma mistura estatística dos estados. Estas duas descrições são completamente equivalentes sempre e quando esteja se olhando somente o spin elétron. Em termos de informação quântica, a evolução temporal da matriz densidade reduzida é precisamente a mesma em ambos os casos. Somente se é requerido estudar a correlação entre os estados de spin nuclear microscópicos e o estado de spin de um único elétron, pode-se distinguir entre ambas descrições e revelar o emaranhamento. A descrição quântica é necessária para observar fenômenos tais como o efeito Zeno no qual, hipoteticamente, a repetição de medidas dos estados de spin nucleares pode congelar a evolução temporal do spin nuclear [90].

A magnitude do campo nuclear, B_N , pode ser da ordem de 5 T em GaAs se todos os spins nucleares apontassem na mesma direção (total polarização do spin nuclear [91]). No equilíbrio termodinâmico, a polarização média criada é orientada ao longo do campo magnético externo, com uma amplitude dada pela distribuição de Boltzmann. Se o spin eletrônico está acoplado com N spins nucleares, vai existir uma flutuação estatística ao redor da média de $5/\sqrt{N}$ T [87, 92, 93]. Este valor foi medido em pontos quânticos, em medidas ópticas [94, 95] e elétricas [96, 97], dando em ambas um valor de alguns mT.

3.3.2 Influência da evolução aleatória do campo Overhauser

Um campo nuclear constante e precisamente conhecido afeta a dinâmica do spin de uma maneira sistemática e conhecida. Neste caso, não existiria nenhuma contribuição à decoerência. Porém, a magnitude e direção do campo nuclear mudam com o tempo. Primeiro, o campo hiperfino ou campo Overhauser, vai mudar se a polarização nuclear local ($\sum_k I_k$) mudar. Isto pode ocorrer, por exemplo, se os núcleos estão localmente polarizados e esta polarização se difunde até desaparecer. Segundo, B_N pode também mudar enquanto a polarização nuclear total se mantém constante. Isto pode acontecer quando dois núcleos, com diferente A_k , chaveiam (flip-flop) de maneira que $\sum_k A_k \vec{I}_k$ muda.

Em um determinado momento, o campo nuclear assume um valor e orientação aleatório e desconhecido, e esta característica do spin nuclear diretamente leva a evolução aleatória do spin eletrônico. Se a componente longitudinal do campo, B_N^z , for aleatoriamente tomada de uma distribuição gaussiana de campos nucleares com desvio padrão $\sqrt{\langle (B_N^z)^2 \rangle}$, por exemplo

3.3 Mecanismo (ii): Interação hiperfina HF com spins nucleares 47

no caso em que cada spin nuclear tem probabilidade 50/50 de estar up ou down, o conhecimento da fase do spin é perdida após um tempo [87]:

$$T_2^* = \frac{\hbar\sqrt{2}}{g\mu_B\sqrt{\langle(B_N^z)^2\rangle}} \quad (3.28)$$

Esta escala de tempo corresponde a perda na coerência de fase por um fator $1/e$. Para $\sqrt{\langle(B_N^z)^2\rangle}=1$ mT, T_2^* é da ordem de 30 ns.

Na seção "Ensemble não homogêneo" foi mostrado que T_2^* está relacionado com medidas em ensembles de spins. Porém, em experimentos realizados em um único spin, medidas realizadas em intervalos suficiente longos tal que os spins nucleares não estejam correlacionados mostram o efeito da defasagem. O resultado desta defasagem, devida a repetição das medidas em um único elétron, é semelhante à defasagem em uma única medida de um ensemble de spins.

Pode-se supor que no tempo $t=0$ a orientação e força do campo nuclear são exatamente conhecidas. Após um certo tempo, o banho de spins nucleares evolui de uma maneira aleatória devido aos mecanismos como: a interação dipolo-dipolo internuclear e interação hiperfina elétron-nuclear. Agora pode-se perguntar: Em qual escala de tempo, T_2 , a fase do spin eletrônico vai ser aleatória devida ao campo nuclear flutuante?

Em principio pode-se pensar que T_2 pode ser igual ou da ordem do tempo das flutuações nucleares (t_{nuc}). Esta escala de tempo nuclear pode ser muito longo da ordem de segundos [88]. Porém, esta suposição é errada devido ao fato de que T_2 não depende só da escala de tempo das flutuações nucleares, mas, também depende da sua natureza estocástica (por exemplo, ruído gaussiano, ruído lorentziano e outros modelos) [98] e da largura da distribuição do campo nuclear. Esta largura pode ser expressada em termos de T_2^* . Por exemplo, assumindo um sistema de spins nucleares que perde coerência no tempo:

$$T_2(t) \sim \exp\left(\frac{-t^3}{t_{nuc}T_2^{*2}}\right) \quad (3.29)$$

devido a flutuações locais no campo magnético (com características de ruído gaussiano) causadas por spins diferentes que são vizinhos na rede cristalina [99].

Tomando $T_2^* = 10$ ns e $t_{nuc} = 10$ s, pode-se obter T_2 de 10μ s, muito mais rápido do que o tempo das flutuações no campo nuclear.

Embora as flutuações nucleares não podem ser caracterizadas como ruído gaussiano, previsões teóricas complexas para T_2 oscilam entre 1 e 100 μs incluindo efeitos como contribuições das interações internucleares dipolo-dipolo [100, 101, 102], da interação hiperfina elétron-nuclear [92, 103] e interações indiretas nuclear-nuclear mediadas pelo acoplamento hiperfino [101, 104]. Se o banho de spins nucleares é não-Markoviano, ou seja se ele tem memória longa, a coerência de spin não decairá exponencialmente senão com outro tipo de função, por exemplo, uma lei de potência. Se o efeito do campo nuclear pudesse ser fortemente suprimido, a interação spin-órbita limitaria o valor de T_2 ao valor de $2T_1$, o qual poderia exceder dezenas de milisegundos.

Mesmo que T_2 é geralmente muito menor do que t_{nuc} , ele é em qualquer caso é muito maior do que T_2^* . Assim, pode-se fazer a pergunta: Como recuperar o tempo T_2 , intrinsecamente longo, a partir de uma medida de T_2^* ?

Das estratégias básicas que existem para poder realizar esta operação, a técnica de spin-eco de Hahn têm sido muito utilizada em experimentos de ressonância magnética nuclear (RMN) ao longo de vários anos [105]. Nesta técnica, a evolução temporal realizada durante um certo intervalo de tempo τ é revertida durante um segundo intervalo de tempo com a mesma duração, aplicando um pulso de inversão de 180° no meio dos intervalos de tempo. A utilidade desta técnica foi demonstrada experimentalmente em pontos quânticos litográficos, onde o limite de T_2 foi de 1 μs para um campo de 100 mT [27].

A técnica de refocalização será discutida na seção 7.2.2 em comparação com a técnica utilizada de refocalização com pulsos de laser.

3.4 Comparação entre os mecanismos SO e HF

Com o objetivo de comparar as interações spin-órbita e hiperfina como mecanismos de relaxação e decoerência descritos neste capítulo, foi graficado o tempo de decoerência para ambas na figura 3.11

Para a construção da figura 3.11 foi utilizado que:

(i) A taxa de decoerência produzida pela interação spin-órbita [66] é:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} = \frac{A'}{2}(g\mu B)^5 / (\hbar (\hbar\omega_0)^4) = \frac{A'}{2}(g\mu B)^5 / \left(\hbar \left(\frac{\hbar^2}{m^*l^2} \right)^4 \right) \quad (3.30)$$

onde m^* foi aproximada pela massa efetiva do elétron no GaAs ($0,067m_0$), o

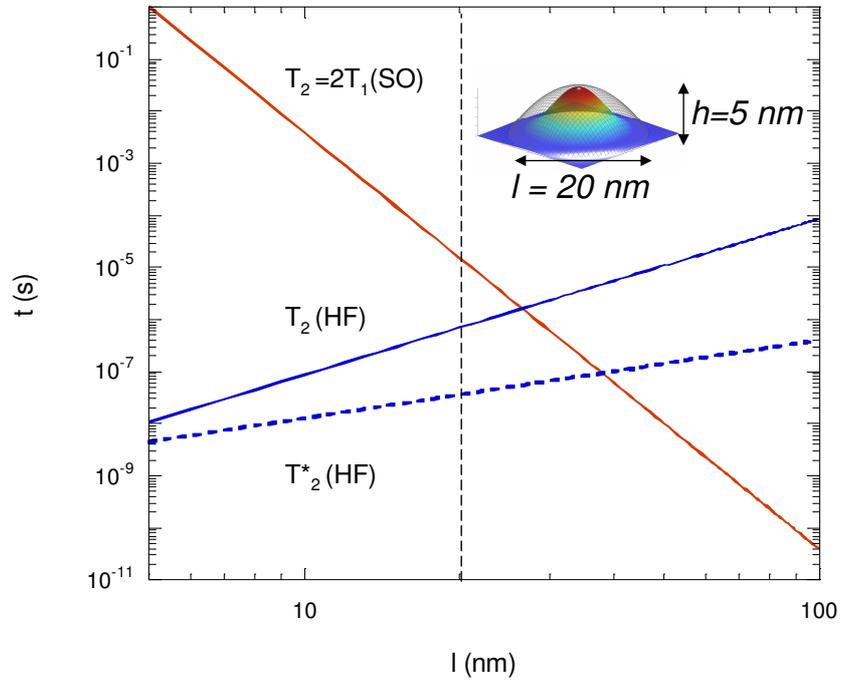


Figura 3.11: Comparação da decoerência e defasagem produzida através das interações spin-órbita e hiperfina como função do tamanho do ponto quântico. O tempo de decoerência para a interação spin-órbita inclui a dependência com o material (fator g), com o campo magnético externo e com o tamanho do ponto quântico. O tempo de decoerência e defasagem para a interação hiperfina com spins nucleares depende do tamanho do ponto quântico (número de spins nucleares) e da constante de acoplamento hiperfino do material. A maneira de avaliar estas dependências encontra-se descrita no texto. Como exemplo, é marcada a linha correspondente ao tamanho de pontos quânticos estudados nesta tese ($l = 20$ nm, $h = 5$ nm).

fator g é 0,51 e o campo utilizado foi 4 Tesla. A expressão para o comprimento da função de onda l foi deduzida na seção 2.1.3 de acordo ao modelo do potencial de confinamento lateral parabólico. O valor de 0,51 para o fator g foi medido com o campo magnético no plano da amostra como será descrito no capítulo 5.

(ii) A taxa de decoerência produzida pela interação hiperfina com spins nucleares [92] é:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{A}{\hbar N} = \frac{A}{\hbar 10^5} \left(\frac{V}{\pi \times (30/2nm)^2 \times (30/4nm)} \right) \quad (3.31)$$

onde A é a constante de acoplamento hiperfino igual a $42 \mu\text{eV}$ para Ga [106] (vide tabela 3.1), N é o número de spins nucleares (estimado em 10^5 para pontos de GaAs de 30 nm de diâmetro e 5 nm de altura [87]). O volume V pode ser calculado assumindo um cilindro com diâmetro de base l e altura $l/4$: $V = \pi(l/2)^2(l/4)$.

(ii) A taxa de defasagem produzida pela interação hiperfina com spins nucleares [92] é:

$$\frac{1}{T_2^*} = \frac{A}{\hbar \sqrt{N}} = \frac{A}{\hbar \sqrt{10^5}} \sqrt{\frac{V}{\pi \times (30/2nm)^2 \times (30/4nm)}} \quad (3.32)$$

onde a troca de N por \sqrt{N} corresponde a mudança de um sistema de núcleos polarizados para um sistema de núcleos não polarizados com direções aleatórias [92].

Um cálculo de T_2^* incluindo a distribuição de núcleos de In, Ga e As na célula unitária do ponto quântico pode ser encontrada em [87]. O cálculo realizado na figura 3.11 só incluiu a constante de acoplamento hiperfino para o Ga. Esta aproximação [92] foi escolhida por ser consideravelmente mais simples e fornecer o valor do tempo de defasagem na mesma escala de tempo.

A figura 3.11 mostra os tamanhos de ponto quântico que minimizam os efeitos de decoerência e defasagem. No caso de medidas em um único elétron, o tempo de decoerência máximo possível (competição da contribuição SO e a contribuição HF) é obtido para um ponto com um diâmetro de 30 nm. No caso de um ensemble de pontos quânticos, o máximo tempo de defasagem foi obtido para pontos um pouco maiores (40 nm). As três amostras de pontos quânticos estudadas nesta tese estão muito próximos de ter o tamanho ótimo.

Na tabela 3.1 encontram-se organizadas, em ordem descendente em energia, todas as escalas de mecanismos discutidas neste capítulo.

Tabela 3.1: Escalas relevantes dos mecanismos de relaxação e decoerência [107].

	Símbolo	Descrição	Escala(meV)
1	$\hbar\omega_0$	Energia de Quantização	1
2	J	Acoplamento de troca do spin	10^{-1}
3	$\hbar\max \alpha , \beta /l$	Força do acoplamento spin-órbita	10^{-2}
4	A	Interação hiperfina (núcleo polarizado)	10^{-1}
5	A/\sqrt{N}	Interação hiperfina (núcleo não polarizado)	10^{-4}
6	A/N	Dispersão do deslocamento Knight	10^{-6}
7	$N\mu_B\mu_N/l^3$	Acoplamento dipolar elétron-núcleo	10^{-7}
8	\hbar/τ_{dd}	Acoplamento dipolar núcleo-núcleo	10^{-8}
9	μ_B^2/l^3	Acoplamento dipolar elétron-elétron	10^{-9}

Pode-se notar que o efeito de um campo hiperfino flutuante sob os spins eletrônicos é mais importante em pontos quânticos do que em sistemas 2D ou bulk. Isto é simplesmente devido que o número de núcleos com os quais a função de onda é superposta, N , é menor em pontos quânticos do que nestes outros sistemas e a magnitude do campo Overhauser escala com $1/\sqrt{N}$. Este fato é contrário ao que acontece com a interação spin-órbita, a qual é suprimida em estruturas menores do que o comprimento spin-órbita, tal como em pontos quânticos pequenos. Inclusive, o confinamento induz um espectro de níveis discretos, o qual suprime a transferência de energia entre estados de spin e estados orbitais.

Capítulo 4

Métodos de espectroscopia: amostras e técnicas

Neste capítulo apresentam-se os sistemas estudados nesta tese. Para cada um dos três experimentos realizados corresponde uma amostra especialmente desenhada.

Primeiramente, as técnicas utilizadas para o crescimento dos pontos quânticos são descritas seguida das características mais importantes das amostras estudadas.

As técnicas elétricas e ópticas utilizadas, para as medidas da polarização de spin estática e dinâmicas assim como para as medidas de estados de exciton, são descritas começando pelo fundamento físico e concluindo nos detalhes da montagem experimental.

A instrumentação desenvolvida é mostrada incluindo a grande maioria dos componentes com o objetivo de ser documento de referência para outras montagens valorizando o tempo investido nela.

4.1 Ensembles de pontos quânticos

4.1.1 Técnicas de crescimento

Crescimento de Heteroestruturas: MBE, MOCVD

Existem três tipos principais de técnicas de crescimento: liquid phase epitaxy LPE, vapor phase epitaxy VPE e molecular beam epitaxy MBE. Em todas estas técnicas a idéia é começar com um substrato (por exemplo GaAs)

que esteja polido e orientado em uma direção particular, para logo crescer epitaxialmente camadas finas.

Uma das formas de VPE é a *organo-metallic* VPE (OMVPE), conhecida geralmente como *metal-organic chemical vapor deposition* MOCVD.

No crescimento de materiais III-V no MOCVD os elementos do grupo III são fornecidos na forma de compostos metalo-orgânicos, tal como trietilgalio $Ga(C_2H_5)_3$. Os elementos do grupo V estão inicialmente na forma de hidrídios, tal como arsina AsH_3 , os quais são muito tóxicos. Estes compostos são transportados ao substrato usando gás hidrogênio. A pressão típica no reator é de aproximadamente 25 Torr, devido a isto a técnica é conhecida como MOCVD de baixa pressão. Para começar o substrato é aquecido usando uma onda de radio frequência, logo os materiais semicondutores são crescidos na superfície do substrato. Ao final o hidrogênio e os constituintes orgânicos formam gases orgânicos, para serem eliminados do sistema.

Os materiais dopantes são introduzidos como hídrídios de elementos do grupo VI (por exemplo H_2S) para dopagem tipo n, e como compostos organometálicos de elementos do grupo II (por exemplo dietilzinco) para dopagem tipo p.

Por MBE, na forma mais simples, células de efusão (ou Knudsen) são colocados em ultra-alto vácuo, aproximadamente 10^{-9} Torr, contendo os elementos de interesse. Para uma dada temperatura de célula e pressão de vapor de um determinado material, uma taxa fixa e controlável pode ser mantida. Através de obturadores pode-se modular os feixes de átomos incidentes sobre um substrato aquecido. As limitações geométricas fazem que seja impossível colocar todos os fornos em um determinado eixo; o substrato é, geralmente, girado durante o processo para ter um crescimento uniforme. Desde os fornos, feixes de átomos ou moléculas dos elementos são emitidos. Uma vez que a taxa de emissão e o vácuo são muito baixos, os átomos e moléculas não se comportam como gases senão como feixes. Estes feixes incidem sobre a superfície do substrato, previamente aquecido, resultando no crescimento do material. Obturadores mecânicos na frente das células controlam quando um feixe incide na superfície ou não (com tempo de operação na escala de um segundo).

Tipicamente, elementos do grupo II, como Be (baixa constante de difusão), são utilizados para fazer uma dopagem tipo p; e elementos do grupo VI para dopagem tipo n. Além destes elementos temos o Si, que faz uma dopagem tipo n muito efetiva em materiais AlGaAs. Pode-se dopar um cristal de GaAs utilizando Si (n), Sn (n), C (p), e Be (p).

De uma maneira geral, MBE e MOCVD têm capacidades comparáveis, mas materiais específicos determinam a escolha de algum destes sistemas.

Modo de crescimento Stranski-Krastanow

Técnicas como MOCVD ou MBE permitem fazer estruturas com espessura controlada de até uma camada atômica. Se as camadas são de aproximadamente 10nm ou menores, o confinamento das funções de onda do elétron, e do buraco, produz como resultado fortes efeitos quânticos. No crescimento epitaxial de heteroestruturas onde há o descasamento de parâmetros de rede, a morfologia de superfície pode variar de maneira substancial, devido a diferentes modos de crescimento.

Os modos de crescimento (figura 4.1) podem ser divididos de maneira geral em 3 categorias diferentes [108]:

1. camada por camada - 2D (ou Frank-van der Merwe - FM).
2. camadas 2D seguida por ilhas 3D (Stranski-Krastanow - SK)
3. ilhas - 3D (Volmer-Weber - VW)

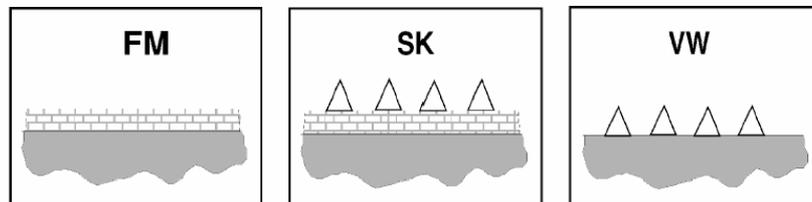


Figura 4.1: Modos de crescimento epitaxial. Figura extraída da referência [108].

Os ensembles estudados nesta tese foram crescidos no modo SK.

4.1.2 Amostras

Nesta tese foram realizados três experimentos correspondentes aos capítulos 5, 6 e 7. Embora para cada experimento foram utilizadas amostras de características específicas como por exemplo nível de dopagem ou comprimento de

onda de emissão, todas as amostras são constituídas por ensembles de pontos quânticos auto-formados.

As características das amostras por experimento encontra-se listadas na tabela 4.1.

Tabela 4.1: Tabela de amostras por experimento.

Experimento	λ (nm)	Técnica crescimento	Camadas de QDs	Dopagem
CVxB Polarização/fator g	1250	MBE	1	Sim
Bombeio-Prova Dinâmica de exciton	920	Multi-layer MOCVD + annealing	5	Não
Bombeio-Prova Dinâmica de spin	900	Multi-layer MBE + annealing	20	Sim

Amostra 1: Medida da polarização e do fator g

As medidas das energias de adição para o carregamento de elétrons foram realizadas usando magneto-capacitância em pontos quânticos de InAs crescidos por MBE e enterrados com camadas finas de InGaAs redutoras do strain (strain reducing layers), como descrito na literatura [63, 64].

A principal característica desta amostra é a possibilidade de carregar elétrons um a um nos pontos quânticos. A tabela de crescimento 4.2 mostra as espessuras e a distribuição de camadas na heteroestrutura.

As amostras foram inseridas em estruturas de capacitância que foram posteriormente definidas através de fotolitografia convencional. A área dos dispositivos foi de $4 \times 10^{-2} mm^2$ contendo um ensemble de aproximadamente 10^8 pontos quânticos por dispositivo. As detalhes dos processos de litografia podem ser encontrados em [109].

Amostra 2: Medida da estrutura de estados de exciton

Para o estudo da estrutura dos estados de exciton foi usado um ensemble de pontos quânticos sem dopagem. Com objetivo de obter um nível de sinal maior, a amostra possui 5 camadas de pontos separadas por barreiras de 20 nm de GaAs.

Tabela 4.2: Tabela de crescimento da amostra contendo um ensemble de pontos quânticos de carregamento ajustável por um potencial elétrico.

Camada	T (°C)	Dopagem (cm ⁻³)	Espessura
GaAs buffer	600°		1 μm
GaAs reservatório de elétrons		Si: 1x10 ¹⁸	80 nm
GaAs barreira de tunelamento (t_b)	530°		16 nm
InAs pontos quânticos			1.9 ML
In _{0,2} Ga _{0,8} As camada redutora de strain			3

Sendo que a espectroscopia de rotação de Kerr precisa de excitação ressonante, a amostra sofreu um tratamento térmico para deslocar a energia de emissão até uma região acessível ao laser de Ti:Safira. Ao mesmo tempo, este deslocamento melhora o nível de detecção nos fotodiodos de silício.

A temperatura do annealing foi de 900°C por 30 s após uma rampa de subida de 8 s. O espectro de fotoluminescência antes e depois do tratamento térmico está na figura 4.2.

O fato de que a banda de emissão desloca para energias maiores pode ser explicado uma vez que, ao aumentar a temperatura, o In difunde fora do ponto e é substituído por Ga, o que tem uma energia de gap maior. De maneira complementar, a largura não-homogênea do ensemble é reduzida consideravelmente.

Com o objetivo de comparar a estrutura do nível de exciton em pontos quânticos, foi utilizada uma amostra que possui pontos quânticos em baixíssima densidade de modo que o sinal observado seja unicamente da wetting layer (sistema tipo poço quântico). O laser de excitação e prova também foi utilizado ressonante com a emissão da wetting layer mas neste caso não foi necessário fazer nenhum tratamento térmico.

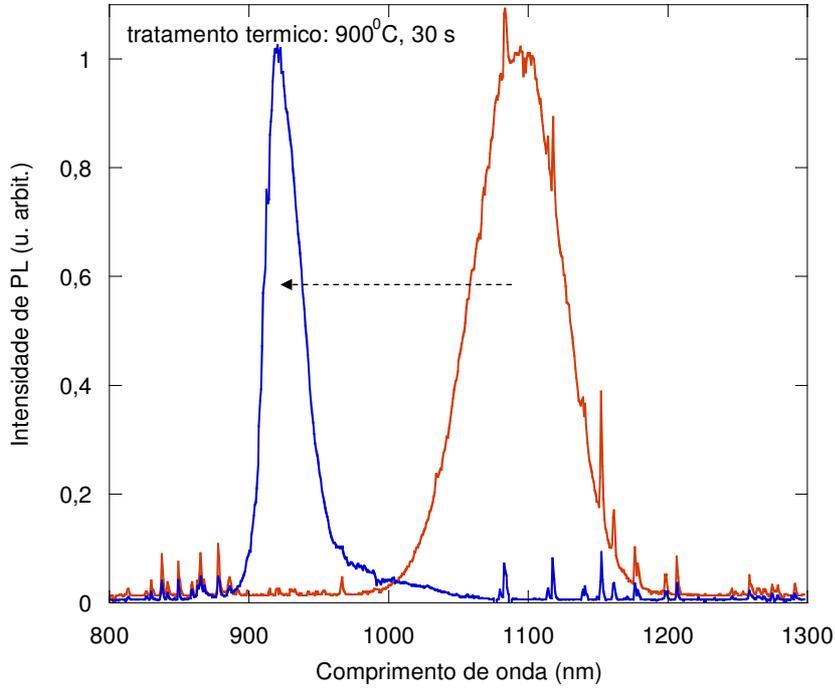


Figura 4.2: Espectro de PL (77 K) após o tratamento térmico de uma amostra de pontos quânticos de InAs.

Amostra 3: Medida da dinâmica de spin

O sistema no qual a polarização dinâmica de spin foi estudada, no capítulo 7, consiste de um ensemble de pontos quânticos com dopagem fixa de um elétron por ponto. A estrutura desta amostra (código 11955) foi crescida em um substrato de GaAs não dopado com orientação [100] pelo método de MBE. A amostra contém 20 camadas de pontos quânticos as quais estão separadas por barreiras de GaAs de 60 nm, conforme ilustrado na tabela de crescimento 4.3.

A densidade de pontos em cada camada é da ordem de 10^{10} cm^{-2} . 20 nm abaixo de cada camada de pontos, foi posicionada uma folha de dopantes (δ -doping) com densidade dos dopantes de Si aproximadamente igual a densidade de pontos quânticos. Assim, para cada ponto quântico, corresponde um elétron residente. Este nível da dopagem por ponto quântico pode ser testado por pelo menos duas maneiras. Primeiro, o efeito de polarização cir-

Tabela 4.3: Tabela de crescimento da amostra contendo um ensemble de pontos quânticos dopados.

Camada	Ciclo	T (°C)	Dur.(s)	Espess.(nm)
GaAs Substrate				
GaAs		660	531,9	100,0
AlAs	inicio: 20x	660	20,0	2,0
GaAs	fim	660	5,3	1,0
AlAs		660	20,0	2,0
GaAs		660	425,5	80,0
	inicio: 20x			
InAs	Do:16x	590	4,0	0,3
GaAs		580	42,6	8,0
GaAs		660	42,6	8,0
Si- δ		660	4,0	0,0
GaAs	fim	660	340,4	64,0
AlAs	inicio: 20x	660	20,0	2,0
GaAs	fim	660	5,3	1,0
GaAs		660	531,9	100,0
GaAs		660	79,8	15,0

cular negativa (NCP) pode ser observado sob condições de bombeio com luz circularmente polarizada em alta potência. Neste experimento é medida a fotoluminescência resolvida em polarização (σ^+/σ^-). A única maneira possível de medir a emissão da luz com polarização contrária a luz de bombeio é a através da existência de um único dopante no ponto quântico. Também, pode-se medir o espectro da rotação de Faraday utilizando altos campos magnéticos na configuração de Voigt. O sinal da rotação Faraday mostra consideráveis modulações no tempo de vida do exciton [110]. Estas modulações são originadas pela superposição dos batimentos quânticos do spin eletrônico, em pontos quânticos carregados com um único elétron, com os batimentos quânticos de exciton em pontos quânticos neutros. Da relação entre a magnitude relativa destas contribuições, pode estimar a relação entre pontos carregados e neutros. Pontos com mais de dois elétrons não mostram nenhuma contribuição considerável na rotação de Faraday ressonante devido

ao bloqueio de Pauli [111].

4.2 Espectroscopia de Magneto-Capacitância

4.2.1 Fundamentos do carregamento individual

O método fundamental, da espectroscopia de capacitância, é alterar o potencial químico dentro das ilhas permitindo a entrada de elétrons um a um (figura 4.3).

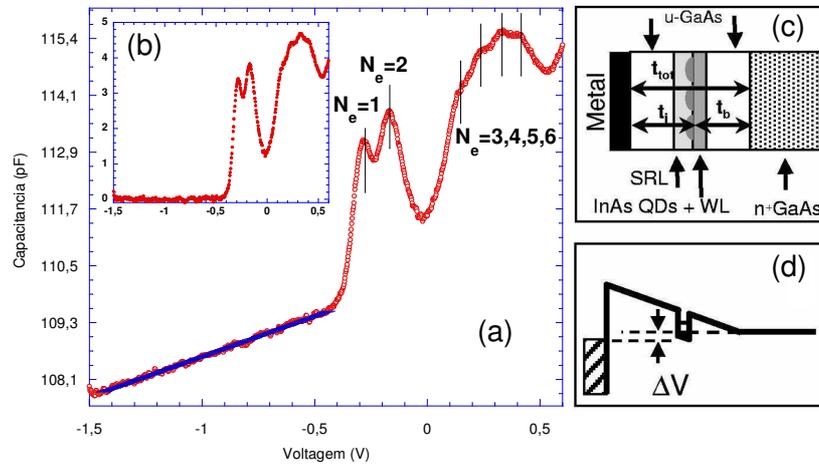


Figura 4.3: Capacitância de um dispositivo com pontos quânticos. (a) Ocupação de elétrons/QD para um determinado valor de voltagem na porta. (b) Curva de capacitância sem fundo linear. (c) Características do dispositivo. (d) Diagrama de bandas para uma determinada voltagem aplicada.

O controle do número de elétrons dentro destas ilhas permite estudar processos de transição entre níveis de elétrons e observar o princípio de exclusão de Pauli em processos de absorção entre níveis de buracos e elétrons.

As amostras crescidas (ilhas de InAs de tamanho médio de 20nm de diâmetro e 4-8nm de altura figura 4.3) apresentam tipicamente energias de quantização de dezenas de meV (figura 4.3). Portanto representam uma configuração excelente para estudos desta natureza.

4.2.2 Potencial químico

A voltagem da porta pode ser transformada em uma escala de energia por uma relação que considera as características da estrutura [64]. O espectro de uma medida CV possui um fundo que aumenta linearmente com a voltagem aplicada, relacionado com fatores como: espessura das camadas (t_{tot}, t_i, t_b), número de dopantes N_d , constante dielétrica do material ϵ_s , altura da barreira Schottky ϕ_b e área do dispositivo A (vide figura 4.3c e figura 4.4). Para obter esta dependência é preciso resolver a equação de Poisson em uma aproximação de depleção desprezando a contribuição dos QDs.

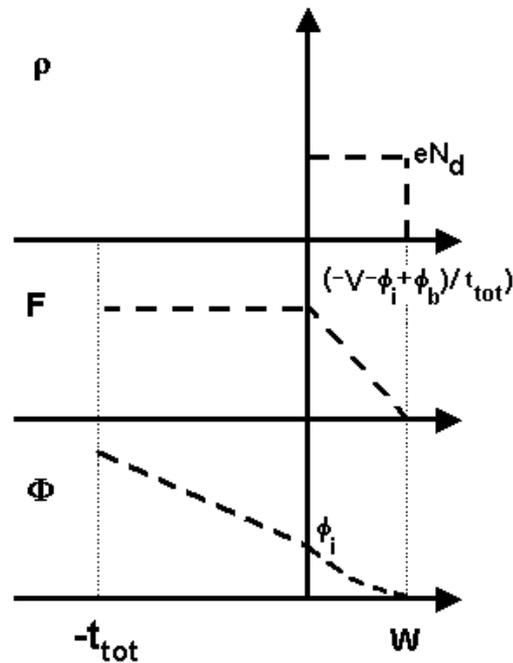


Figura 4.4: Modelo e convenção utilizados na obtenção da capacitância geométrica e da conversão de voltagem em potencial químico: t_{tot} é a espessura nominal total da amostra, W leva em conta a existência de uma região de depleção no contato traseiro.

A equação de Poisson que deve-se resolver é:

$$-\frac{d^2}{dz^2}\Phi = \frac{\rho(z)}{\epsilon} \quad (4.1)$$

O campo elétrico deve ser constante para $-t_{tot} < z < 0$ e igual a:

$$F(z) = \frac{\phi_b - V - \phi_i}{t_{tot}} \quad (4.2)$$

$$\Phi(z) = \frac{\phi_i - \phi_b + V}{t_{tot}} z + \phi_i \quad (4.3)$$

Para $0 < z < W$ obtemos:

$$\frac{dF(z)}{dz} = -N_d \quad (4.4)$$

$$\Phi(z) = \frac{eN_d}{\epsilon} \left(\frac{z^2}{2} - Wz \right) + \phi_i \quad (4.5)$$

Sabendo que $\Phi(z) = 0$ em $z = W$ para o potencial temos que:

$$\frac{eN_d}{\epsilon} \left(\frac{W^2}{2} - W^2 \right) = -\phi_i \quad (4.6)$$

$$\rightarrow \phi_i = \frac{1}{2\epsilon} W^2 e N_d \quad (4.7)$$

e para o campo elétrico temos que em $z = 0$:

$$F(z = 0) = \frac{-eN_d W}{\epsilon} \quad (4.8)$$

Comparando com a equação 4.2:

$$W = \left(\frac{-V + \phi_b - \phi_i}{t_{tot}} \right) \left(\frac{-\epsilon}{eN_d} \right) \quad (4.9)$$

Substituindo a equação 4.6 na equação 4.9 e resolvendo a equação quadrática obtemos a forma da região de depleção W :

$$W = t_{tot} - \sqrt{t_{tot}^2 + \frac{2\epsilon}{eN_d} (-V + \phi_b)} \quad (4.10)$$

Estas equações são suficientes para avaliar o valor do campo elétrico na região dos QDs:

$$F(V) = \frac{\phi_b - V}{t_{tot}} - \frac{1}{t_{tot}} \left(W^2 \frac{eN_d}{2\epsilon} \right) \quad (4.11)$$

onde V é o valor da voltagem aplicada.

Da mesma maneira é possível avaliar a capacitância geométrica:

$$C(V) = \frac{\epsilon A}{t_{tot} + W} = \frac{\epsilon A}{2t_{tot} - \sqrt{t_{tot}^2 + \frac{2\epsilon}{eN_d}(\phi_b - V)}} \quad (4.12)$$

A relação entre o potencial químico dentro dos pontos é:

$$\Delta\mu = t_b \Delta V / t_{tot} \quad (4.13)$$

onde a relação t_b/t_{tot} é conhecido como braço de alavanca.

Aplicando novamente a aproximação de depleção no contato traseiro, obtém-se:

$$\Delta\mu = \frac{t_b + t_{tot} - \sqrt{t_{tot}^2 - \frac{2\epsilon_0\epsilon_r}{qN_d}(\phi_B - V)}}{2t_{tot} - \sqrt{t_{tot}^2 - \frac{2\epsilon_0\epsilon_r}{qN_d}(\phi_B - V)}} \Delta V \quad (4.14)$$

4.2.3 Montagem experimental

Os experimentos de capacitância foram realizados a temperatura nominal de 2,8 K usando amplificadores lock-in (Stanford Research Systems SR570 Low Noise Current Pre-Amplifier) a uma frequência de 7,5 KHz. Uma amplitude AC de 10 mV (rms) foi superimposta em um bias DC variável de -2V a 0,5 V com uma relação sinal/ruído sempre acima de 10^4 . A montagem experimental encontra-se na figura 4.5.

Uma vez que o termo de interação de Zeeman no Hamiltoniano de spin não depende somente do alinhamento entre o vetor efetivo de spin (\vec{S}) e \vec{B} , mas depende também do ângulo que \vec{B} faz com certas direções cristalográficas definidas pela simetria do nanocristal [46, 112], foi utilizado um goniômetro para varrer a direção do campo magnético em intervalos pequenos (aproximadamente 15°) cobrindo pelo menos 180° girando a amostra (figura 4.6).

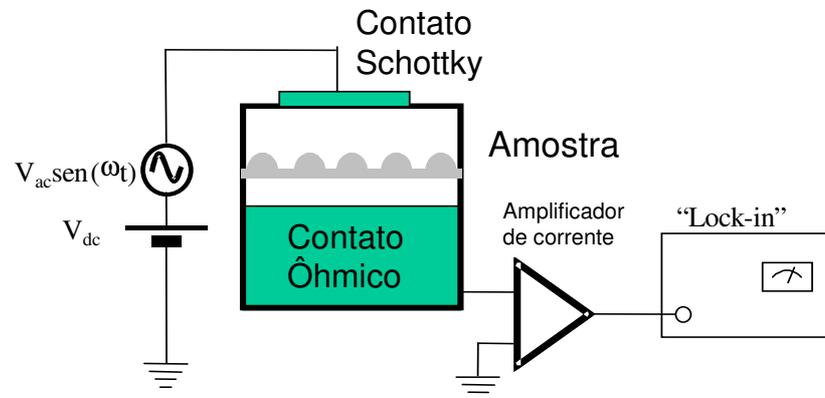


Figura 4.5: Montagem experimental para espectroscopia de capacitância.

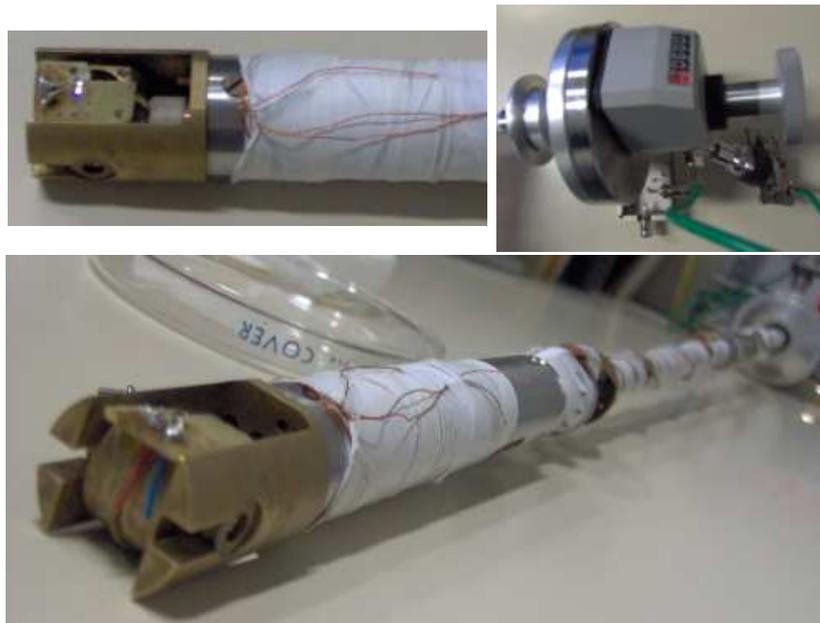


Figura 4.6: Montagem experimental para mudar o alinhamento do vetor do campo magnético e os eixos das amostras.

4.3 Espectroscopia de rotação de Kerr resolvida no tempo

A espectroscopia de Faraday/Kerr resolvida no tempo utiliza a técnica de bombeio-prova (pump-probe) para preparar-interrogar a população de spin

usando um trem de pulsos ópticos ultra-curtos com um comprimento de onda justo acima da borda de absorção de um semiconductor [113, 114]. Tipicamente, os pulsos ópticos são fornecidos por uma fonte de laser pulsado tal como um laser de Ti:Safira que gera pulsos de 100 fs com uma taxa de repetição de 76 MHz. Um beamsplitter divide o trem de pulsos em bombeio e prova com uma polarização que pode ser escolhida ou modulada (vide figura 4.7). O pulso de bombeio pode ser circular ou linearmente polarizado dependendo do experimento específico. O pulso de prova é sempre linearmente polarizado e uma linha de atraso mecânica produz atrasos no intervalo de 0 até 3 ns. Os pulsos ópticos são incididos normalmente à amostra e focalizados em um spot de aproximadamente 50 μm de diâmetro.

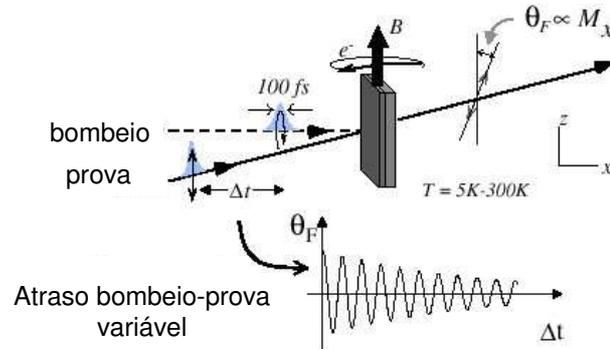


Figura 4.7: Montagem experimental para espectroscopia de rotação de Faraday. A variação no ângulo de polarização da prova (θ_F) como função do atraso entre o bombeio e a prova (Δt) permite obter a dinâmica da população de spins. Figura adaptada da referência [113].

O ângulo de rotação do pulso de prova linearmente polarizado é medido usando uma ponte óptica como função do tempo de atraso entre o bombeio e a prova. Na geometria de transmissão, refere-se a esta medida como rotação de Faraday resolvida no tempo (time resolved Faraday rotation TRFR), enquanto na geometria de reflexão é chamada de rotação de Kerr resolvida no tempo (time resolved Kerr rotation TRKR). Medidas do efeito Faraday e Kerr revelam informação da evolução coerente do spin que acontece em escalas de tempo maiores do que o tempo de recombinação radiativa; sendo assim mais útil neste estudo do que por exemplo, fotoluminescência resolvida no tempo.

Experimentos de rotação de Faraday em poços quânticos realizados com um laser ressonante são possíveis devido ao deslocamento Zeeman dos picos de absorção para uma polarização de bombeio σ^+ ou σ^- . Este deslocamento produz um ângulo de rotação pico no valor de energia correspondente à máxima diferença entre os índices de refração (vide figura 4.8).

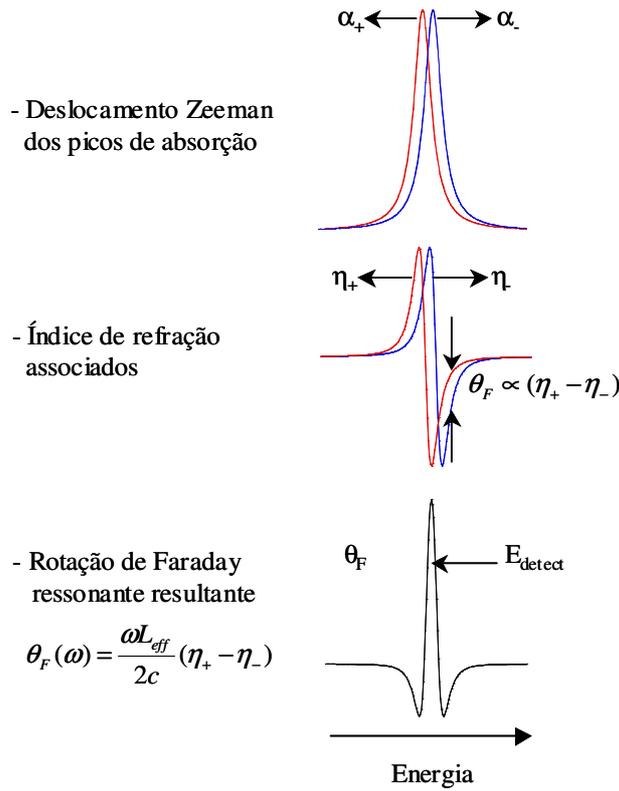


Figura 4.8: Rotação de Faraday em poços quânticos perto da ressonância.

Com o objetivo de demonstrar as características desta técnica, pode-se analisar o sinal de rotação de Faraday para poços de GaAs dopados tipo n. Na figura 4.9, a medida a campo nulo mostra um pico na amplitude correspondente ao ponto na linha de atraso no qual o pulso de bombeio e prova chegam ao mesmo tempo na amostra. Uma vez que para a função correlação atrasos positivos e negativos são equivalentes, o decaimento exponencial no lado positivo é o primeiro indicio da existência de sinal na amostra.

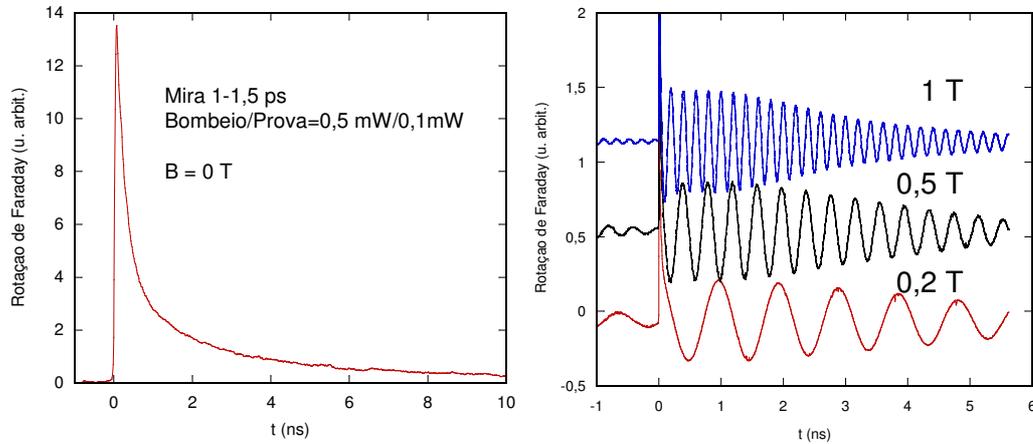


Figura 4.9: Rotação de Faraday em poços quânticos de GaAs como função do campo magnético. O sinal para atrasos negativos mostra que o tempo de decaimento é maior do que a taxa de repetição do laser (13,24 ns).

A rotação Faraday foi realizada para diferentes campos (vide figura 4.9). Para cada valor de campo existem dois principais características: o decaimento exponencial (função de T_2^*) e a oscilações no tempo (função do fator g). O decaimento pode ter diferentes modulações devido aos diferentes tempos de vida do exciton (buraco e elétron) e dos elétrons residentes dos dopantes. Este efeito é especialmente claro para 1 T na figura 4.9.

Um fenômeno muito importante neste sistema acontece para atrasos negativos. O fato de poder observar sinal na faixa negativa de atrasos significa que o tempo de vida do elétron residente é superior ao tempo de recombinação do exciton (o qual pode ser medido, por exemplo, com fotoluminescência resolvida no tempo numa streak câmera) e da ordem da taxa de repetição do laser (13,24ns).

Para inferir o valor do fator da frequência de oscilação, pode-se fazer uma transformada de Fourier. O valor obtido na figura 4.10 para esta amostras foi de $|g| = 0,4$.

Os dados experimentais mostrados na figura 4.9 foram realizadas no setup do grupo de M. Bayer em Dortmund com o objetivo de conhecer o funcionamento da rotação de Faraday resolvida no tempo. Nessa montagem foram realizadas as medidas de T_2 discutidas no capítulo 7. As próximas subseções descrevem em detalhe o desenvolvimento e implementação de uma montagem

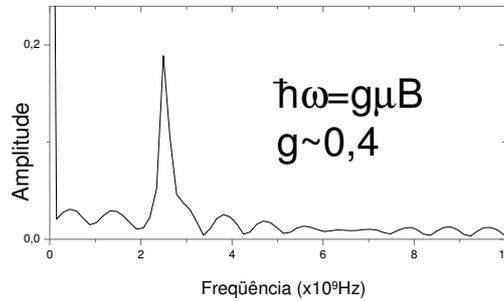


Figura 4.10: Transformada de Fourier do sinal de rotação de Faraday para 0,2 T. O pico em frequência permite inferir o valor do fator g do elétron.

de espectroscopia bombeio-prova na UNICAMP, a qual foi montada na geometria de rotação de Kerr mas que pode ser transformada facilmente para medidas de rotação de Faraday, transmissão diferencial, ou dicronismo circular. Esta montagem foi usada para as medidas de estrutura fina de excitons discutidas no capítulo 6.

4.3.1 Laser pulsado de Titânio-Safira

A safira dopada com titânio (Ti:Safira $Ti:Al_2O_3$) é um meio de ganho que permite que a emissão estimulada ocorra dentro de uma faixa de 750-950 nm quando devidamente colocada em uma cavidade [115, 116]. Devido a sua larga banda de absorção no azul e no verde, a energia para o processo de laser pode ser fornecida por um laser de argônio contínuo ou por um laser de estado sólido cw bombeado por diodo em 532nm [117, 118]. O bombeamento, no presente caso, é feito por um laser de alta potência emitindo no verde no modo transversal TEM_{00} modelo Verdi-V6 da Coherent: refrigeração em ciclo fechado num chiller, comprimento de onda 532 nm, largura de linha <5 MHz, diâmetro do feixe $2,25$ mm $\pm 10\%$, divergência de feixe $<0,5$ μ rad, estabilidade com a temperatura <2 μ rad/ $^\circ$ C, estabilidade em potência de $\pm 1\%$, ruído $<0,03\%$ rms e polarização vertical $>100:1$.

O laser pulsado utilizado é um Mode-Locked Femtosecond Titanium-Sapphire Trestles-100 da Del Mar Ventures com saída de 700-950 nm utilizando dois conjuntos de espelhos. Imagens com detalhes da montagem podem ser vistas na figura 4.11. A cavidade possui 5 espelhos (M1, M2, M3, M4 e o

Output Coupler OC), um cristal (TiS), uma lente (L) para focalizar a radiação de bombeio, dois prismas (P1 e P2) e uma fenda (slit S) (figura 4.12). Os prismas são utilizados para corrigir a dispersão de velocidade de grupo GVD (group velocity dispersion) na cavidade e a fenda para a sintonização do comprimento de onda da saída do laser.

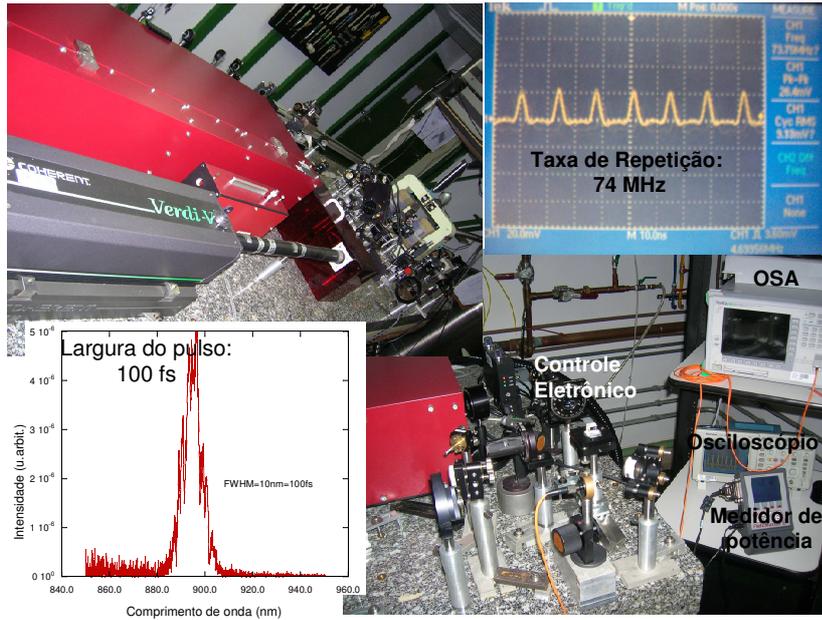


Figura 4.11: Detalhes da montagem do Ti:Safira.

Na saída do laser de Ti:Safira, um sistema eletrônico de controle monitora e inicia o modo pulsado sempre que seja necessário. Um isolador de Fadaray (Optical Isolator Kirra Modelo 800-38G5 da Del Mar Ventures) funciona como diodo óptico permitindo a saída do laser mas evitando que qualquer reflexão possa voltar à cavidade do laser e produzir instabilidades. Um analisador de espectro óptico (Optical Spectrum Analyzer Anritsu Modelo MS9710B 0,6-1,75 μm) permite medir a largura do espectro do laser em comprimento de onda e assim inferir a largura temporal. Uma largura de 10 nm corresponde a um pulso de 100 fs. Complementariamente, um osciloscópio (Tektronix Modelo TDS 2012 100 MHz 1GS/s) é utilizado para monitorar a estabilidade da taxa de repetição do laser em 74 MHz.

Após a região inicial de controle e monitoramento com o analisador de

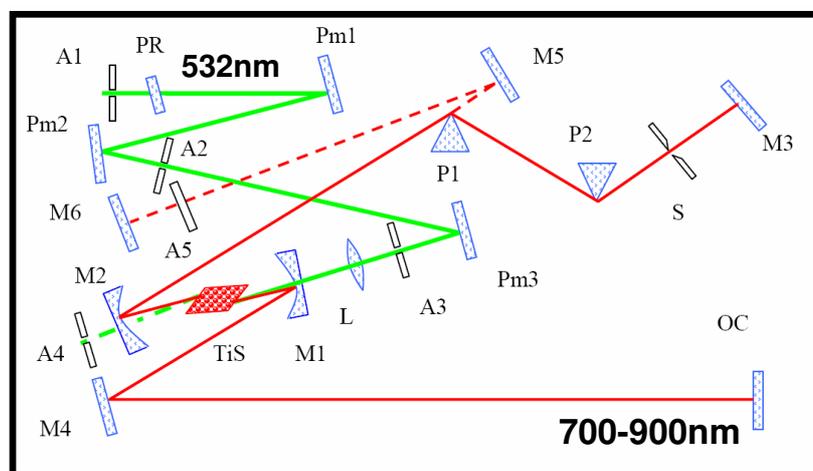


Figura 4.12: Desenho esquematizado da cavidade do laser pulsado: M: Mirror, A: Aperture, PR: Polarization Rotator, P:Prism, Ti:S: Ti-Sapphire, S:Slit.

espectro óptico e o osciloscópio, o laser é levantado com dois espelhos com recobrimento de ouro até o nível de altura da janela óptica no criostato. O feixe mantém esta altura em todo o caminho óptico (aprox. 15 cm acima da mesa). Os espelhos da montagem são Newport VALUMAX Broadband Mirrors de Pyrex com recobrimento de prata protegida (480-1100 nm) para $R_{avg} > 96\%$ ou Edmund Precision Optical Flat Mirrors 1/4 Wave Accuracy de Zerodur com recobrimento de ouro. Os suportes do espelhos são Newport ULTIMA Series Kinematic Optical Mounts.

Através de uma lâmina de meia onda (Fresnel Rhomb Achromatic Retarders - $\lambda/2$ Modelo FR600HM 400-1550nm da Thorlabs) o feixe é incidido num beamsplitter polarizador (Broadband Polarizing Cube Beamsplitters: relação de extinção $> 500:1$ Modelo 05FC16PB.5 da Newport). As saídas de um cubo de beamsplitter polarizador são ortogonalmente polarizadas. Ao girar o ângulo da lâmina de meia onda pode se mudar o eixo de polarização da luz e em conseqüência produzir saídas no cubo com intensidades variáveis. Esse sistema foi utilizado para dividir o feixe de bombeio e o feixe de prova assim como para escolher as intensidades de acordo com o experimento. A figura 4.13 descreve este sistema.

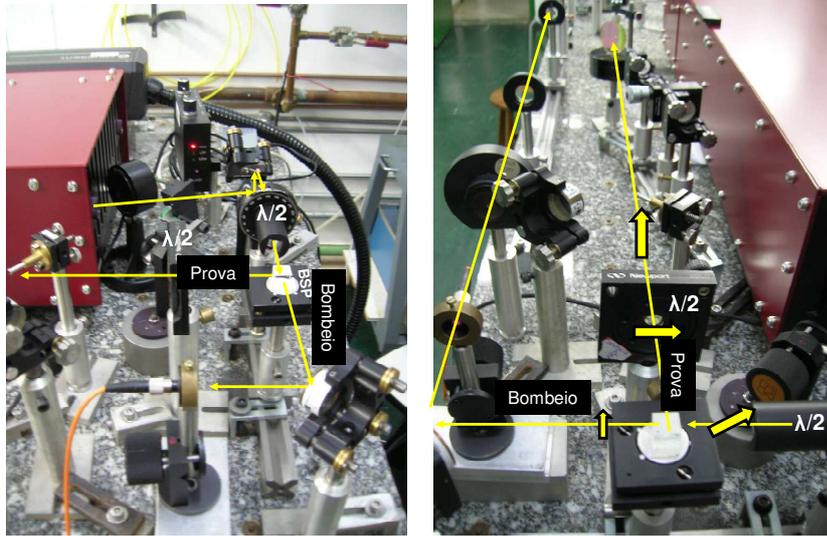


Figura 4.13: Um beamsplitter polarizador divide em duas partes o laser pulsado: bombeio e prova.

4.3.2 Feixe de bombeio:

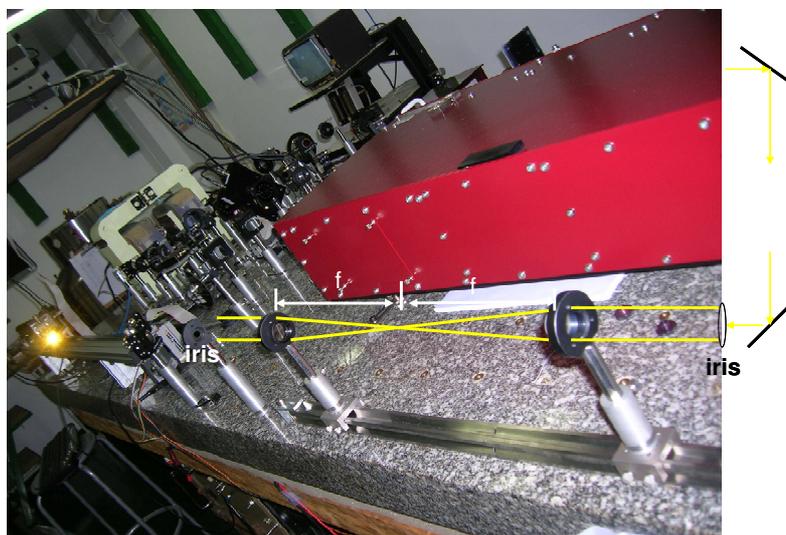
Linha de atraso, Modulação da polarização

Linha de atraso

A linha de atraso entre o feixe de bombeio e o feixe de prova é montada através de um estágio motorizado. Os requerimentos da técnica implicam em algumas restrições sob o funcionamento do estagio, por exemplo o motor de passo deve ser calibrado para se deslocar distâncias da ordem de 0.1 mm por passo mantendo o curso contínuo e sem desvios. Na prática, a linha utilizada tem 1 metro (atraso máximo de aproximadamente 6 ns) da Otttime com motor e controlador da Parker (Modelo OEM 750X).

Antes de entrar na linha de atraso, o feixe de bombeio passa por duas lentes idênticas (com distancia focal de 30 cm) para colimar o feixe como mostrado na figura 4.14. Se o feixe for divergente, ao passar pela linha de atraso pode-se obter diâmetros do feixe muito diferentes dependendo de qual a longitude do caminho percorrido.

O componente óptico que deslocado no estágio é um retrorefletor oco (Modelo UBBR1 com abertura de 25,4 mm da Newport). Detalhes do sistema



f=15cm

Figura 4.14: Lentes para evitar variações de potência no bombeio através da melhora do paralelismo do feixe.

de atraso completo encontram-se na figura 4.15.

Sendo que a linha só deve estende ou reduzir a longitude do caminho mas não deve mudar o ponto de focalização na amostra, deve-se ter especial cuidado no seu alinhamento. O alinhamento da linha de atraso com respeito à direção do feixe de bombeio foi testado com um medidor de potência sensível à posição do feixe no sensor (Power Meter Modelo Field Master-GS Position da Coherent com um sensor para alta potência LM10HTD).

O retrorefletor oco é feito de três superfícies com espelhos planos montados dentro de uma esquina de cubo. Esta geometria permite que o feixe refletido seja precisamente paralelo ao feixe incidente independentemente do ângulo de incidência. O erro no paralelismo é menor do que 1 arcosegundo e a distorção do frente de onda é menor do que $\lambda/3$. A diferença dos retrorefletores de vidro sólido, o caminho óptico é inteiramente no ar fazendo que a eficiência seja alta mesmo sem coberturas antirefletoras que poderiam limitar o banda do comprimento de onda de operação. O retrorefletor é montado sem stress para obter maior estabilidade térmica.

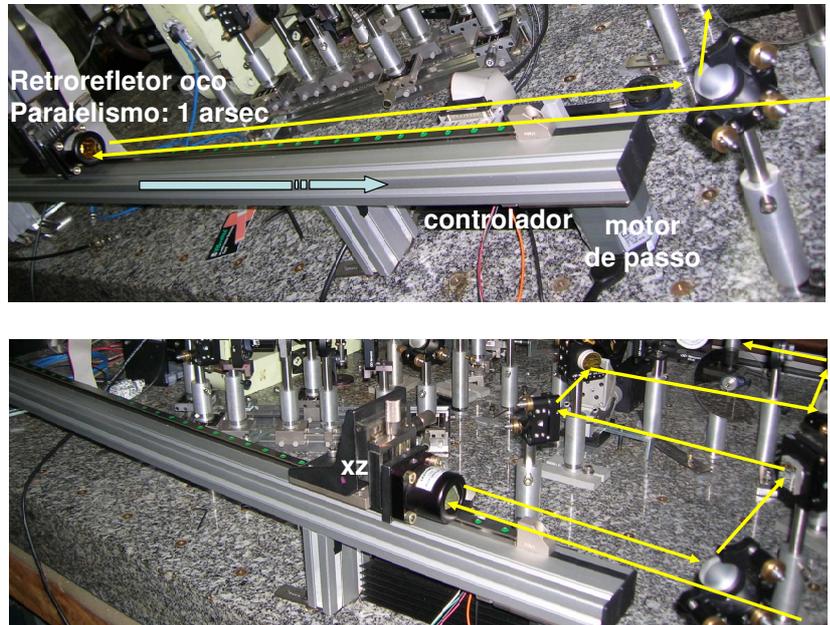


Figura 4.15: Linha de atraso em duas posições. Um deslocador xy permite ajustar a posição do retrorefletor com respeito a direção do laser. No painel inferior, quatro espelhos após a linha de atraso permitem o ajuste da relação de caminhos do bombeio e da prova. Através deles pode ser escolhido a posição na linha de atraso na qual os caminhos dos dois feixes são iguais determinando o atraso zero na escala do experimento.

Modulação da polarização circular

A polarização circular do feixe de bombeio é feito através de um modular fotoelástico (figura 4.16).

O modulador fotoelástico (Photoelastic Modulator Modelo PEM-90 da Hinds) possui uma cabeça eletrônica que transmite uma onda de RF numa cabeça óptica de tal forma que polarizações de λ/n podem oscilar em uma determinada frequência característica do cristal. A frequência utilizada foi de 84 kHz para uma polarização $\lambda/4$.

Lembrando que experimentos de rotação de Faraday são possíveis devido ao deslocamento Zeeman dos picos de absorção para uma polarização de bombeio σ^+ ou σ^- , ao oscilar a polarização do bombeio entre estas duas

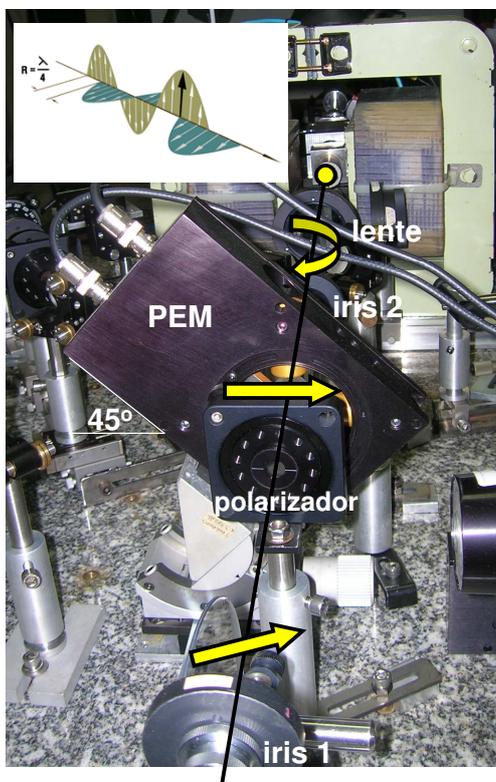


Figura 4.16: Modulação da polarização circular do bombeio em 84 kHz utilizando um modulador fotoelástico. A modulação do bombeio não permite o alinhamento dos spins nucleares e assim aumenta o tempo de coerência do spin eletrônico.

polarizações é possível medir a dinâmica da polarização de spin (vide figura 4.8). Além disto, a polarização dinâmica do bombeio não permite o alinhamento dos spins nucleares e assim aumenta o tempo de coerência do spin eletrônico.

Na figura 4.16, pode ser observado um polarizador (Glan-Thompson Calcite Polarizer, relação de extinção $>100.000:1$, 350-2300 nm (sem recobrimento) Modelo 10GT04 da Newport) inserido antes do modulador fotoelástico com o objetivo limpar a polarização linear do laser deformada após sucessivas reflexões nos espelhos. Após ter determinada a polarização circular, o feixe não incide em nenhum espelho. Para isto o espelho que direciona o feixe

através do polarizador e do modulador é o mesmo que ajusta a incidência na amostra.

4.3.3 Feixe de prova:

Filtro da largura espectral, Filtro espacial

Filtro da largura espectral: *Pulse shaper*

A figura 4.13 direita mostra o caminho óptico do feixe de prova após o cubo de divisão do bombeio e prova. Sendo que o sistema objeto de estudo desta tese são ensembles de pontos quânticos, o feixe de prova passa através de um filtro para aumentar a resolução em energia. A melhora na definição em energia do laser é essencial para resolver o conjunto de pontos quânticos em ressonância. O pulso ideal para este sistema deve ter uma largura de aproximadamente 1 meV o que corresponde a um pulso de 1 ps. Embora o laser utilizado não produz este tipo de pulsos, utilizando um pulse shaper pode-se filtrar parte do espectro e produzir o pulso com a forma desejada (figura 4.17). Com este objetivo foi montado um sistema com um grade de difração (Certified Precision Grating: 1800 linhas/mm, blaze $26^{\circ}45'$ correspondente a 750nm, Modelo 3553-65-298 da Bausch & Lomb Incorp.) e uma fenda (Adjustable Optical Slit: abertura máxima 6,35mm, micrômetro 1 division = 0,02 mm, Modelo NT40-488 da Edmund) ilustrado na figura 4.17. Para obter a maior eficiência na conversão do pulso de femtosegundos para picosegundos, o laser passa por uma lâmina de meia onda (Achromatic Zero-Order Wave Plate $\lambda/2$ Modelo 10RP42-3 715-1000nm da Newport) de tal forma que incida na grade com o eixo de polarização perpendicular à direção das linhas.

No filtro de energia é utilizada uma lente para focalizar o feixe difratado pela grade na fenda. A distancia entre a grade e a fenda é duas vezes a distancia focal dessa lente ($f=15$ cm). Um espelho perpendicular à direção de propagação do feixe faz ele percorrer o caminho inverso. Desta forma, o feixe mantém o diâmetro inicial mas com um espectro bem mais estreito. O resultado deste processo encontra-se na figura 4.18.

Filtro espacial

Antes de incidir na amostra, o pulso de prova passa por um sistema de filtro espacial com o objetivo de limpar qualquer defeito na sua forma (figura 4.19). Primeiramente ele passa por um polarizador (Glan-Thompson Calcite



Figura 4.17: Filtro espectral do laser utilizando uma grade de difração e uma fenda para cortar a largura do pulso em energia. A direita pode-se observar como o feixe entra e sai deste filtro.

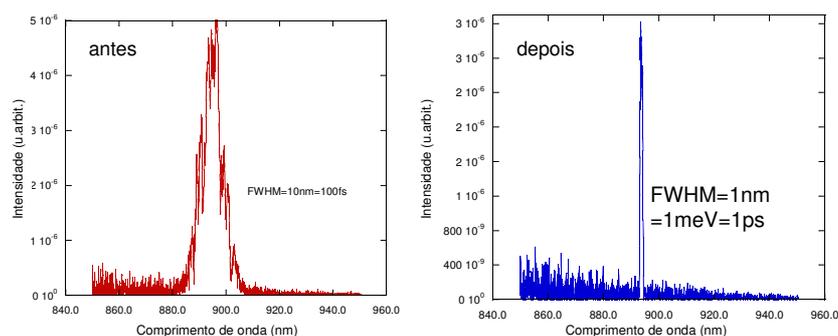


Figura 4.18: Pulso de laser original (100 fs) e do laser cortado em energia para uma resolução de 1 meV (1 ps).

Polarizer da Melles Griot) eliminando a forma elíptica na polarização após uma serie de reflexões. Em seguida, o feixe é dirigido para o filtro espacial.

No filtro espacial, uma lente focaliza o laser num pinhole de $20 \mu\text{m}$ na qual é formado um espectro de difração. O diâmetro do feixe e a distancia focal da lente determinam que só a parte do perfil do laser constituída por uma única onda plana perfeita passe através do pinhole. Na saída, uma lente idêntica à primeira colima o feixe divergente.

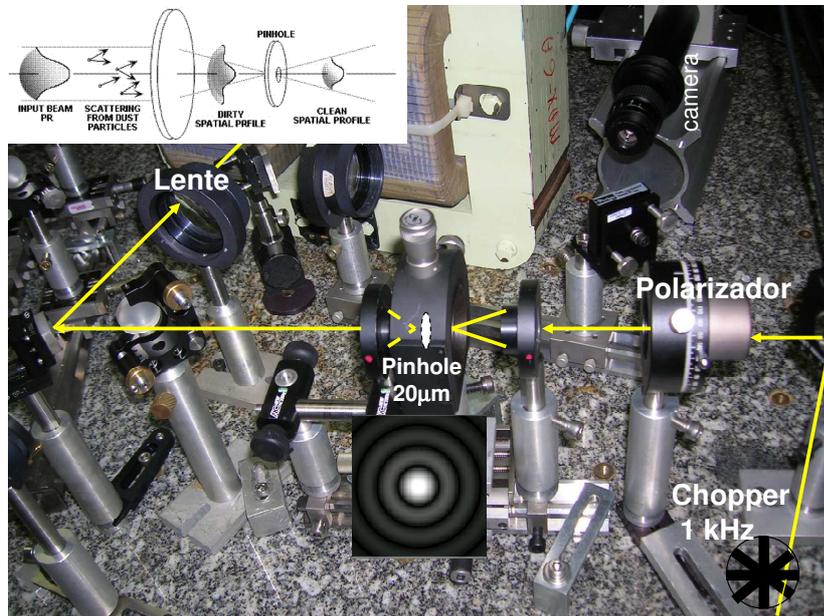


Figura 4.19: O filtro espacial do feixe de prova permite eliminar qualquer ruído/defeito no feixe originado do espalhamento com, por exemplo, poeira da sala óptica, defeitos em espelhos, etc. Na parte superior direita é possível observar a camera utilizada para verificar a superposição do feixe de bombeio e de prova na amostra.

4.3.4 Focalização dos feixes na amostra

Uma única lente com distancia focal de 20 cm é utilizada para focalizar os feixes de bombeio e prova (figura 4.20). Esta lente também é utilizada para colimar o feixe de prova refletido pela amostra.

O ajuste do foco para ambos feixes, bombeio e prova, é feito através de uma camera (CCD-Iris Color Video Camera de alta resolução da Sony) com zoom ajustável.

A potência utilizada para os feixes de bombeio e de prova em proporção 10/1 foi de 5 mW e 0,5 mW, respectivamente (vide figura 4.20 direita). O feixe de prova refletido levado ao sistema de detecção tem 0,1 mW de potência. Para medir estas baixas potências, é utilizado o mesmo medidor de potência para alinhar a linha de atraso com um sensor TS29 da Coherent com capacidade de medir até nanowatts.

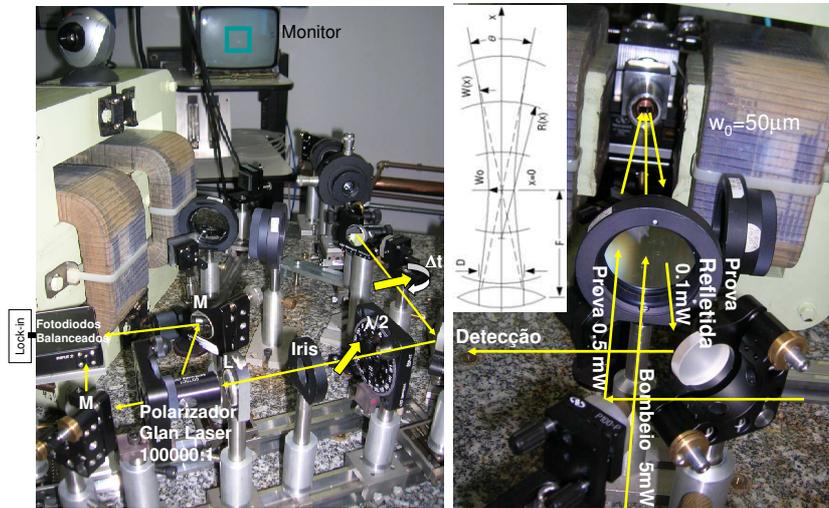


Figura 4.20: Direita: Uma única lente foi utilizada para focalizar os pulsos de bombeio e de prova e para coletar a prova refletida pela amostra. Esquerda: Ponte de polarização com fotodiodos balanceados que produzem um sinal de saída proporcional a diferença entre as duas fotocorrentes. Na parte superior observa-se o monitor que permite ajustar a superposição do bombeio e da prova na amostra.

4.3.5 Sistema de detecção

O sistema de detecção é baseado numa ponte de polarização. Nesta ponte, o feixe de prova refletido (ou transmitido se o experimento é de rotação de Faraday) é dividido em dois caminhos de intensidades iguais. Para esta divisão é utilizada uma placa de meia onda (Achromatic Zero-Order Quartz-MgF₂ Wave Plates $\lambda/2$ Modelo 10RP52-2 da Newport) e um polarizador que possui duas saídas ortogonalmente polarizadas (Glan-Laser Calcite Polarizers com alta relação de extinção $>100.000:1$, 350-2300 nm (uncoated) Modelo 10GL08 da Newport). Cada saída do polarizador, extremamente pura em polarização (devido à alta relação de extinção), é dirigida até um fotodiodo. A placa de meia onda é ajustada de tal forma que a corrente gerada nos fotodiodos seja a mesma e assim, fazendo a diferença, possa-se obter um nível zero de sinal de referência. Qualquer pequena rotação de polarização, por exemplo da ordem de microradianos, produz a perda do balance da ponte resultando em um nível de sinal neto diferente de zero.

O sinal de saída dos fotodiodos possui duas frequências: a frequência de modulação da polarização circular do bombeio 84 kHz e a frequência de modulação da amplitude da prova 1kHz. Esta última é introduzida através de um chopper óptico (vide figura 4.19). Um sistema de modulação com duas frequências permite eliminar qualquer fundo variável no sinal medido devido a luz espalhada ou outras fontes de luz que possam incidam acidentalmente nos fotodiodos. A detecção nestas duas frequências é realizada com dois amplificadores lock-in (Stanford Research 830 DSP). O primeiro lock-in deteta e amplifica o sinal usando como referência 84 kHz. A saída deste passa para o segundo lock-in o qual usa como referência a frequência do chopper.

Em situações onde o sinal de rotação é grande, por exemplo quando em amostras de poços quânticos dopados ou em amostras com varias camadas de pontos quânticos, pode-se utilizar só um lock-in na frequência do bombeio. A detecção do feixe de prova refletido não deve ser feita na própria frequência de modulação para evitar um fundo constante que possa esconder a evolução do sinal de rotação.

Os fotodiodos possuem um sistema eletrônico casado com filtros e amplificadores de corrente de baixo ruído. O modelo utilizado, Balanced Photoreceivers da New Focus, responde a altas frequências (<1 GHz) e são feitos de silício. A alimentação dos fotodiodos de ± 15 V é realizada com uma fonte Modelo MPC-303DI da Minipa.

4.3.6 Montagem final: Lock-in, Aquisição de dados, Criostato

Controle e Aquisição de dados

O controle do experimento, especialmente da linha de atraso, é realizado utilizando rotinas de LabView. A aquisição dos dados também é automatizada permitindo a relação de varias varreduras e coleta de pontos com o objetivo de melhor a relação sinal/ruído. O programa encontra-se ilustrado na figura 4.21.

Criostato

A montagem final foi realizada utilizando um criostato de dedo frio com hélio líquido e um electro-ímã. A menor temperatura possível neste sistema é de 7 K e o campo maior é de 1000 Gauss. O sistema de controle pelo LabView permite passos de 1 Gauss utilizando uma fonte de corrente estabilizada

através de retroalimentação.

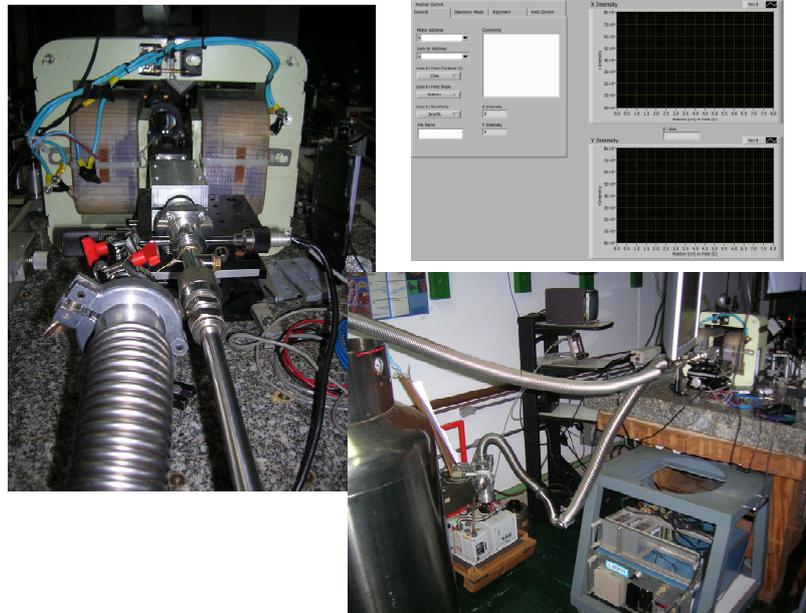


Figura 4.21: Magneto e criostato de dedo frio para produzir um campo máximo de 1000 Gauss e uma temperatura mínima de 7 K. O controle do experimento e aquisição de dados é feito pelo LabView.

A montagem final, incluindo todos os componentes descritos em detalhe nesta seção, encontra-se na figura 4.22.

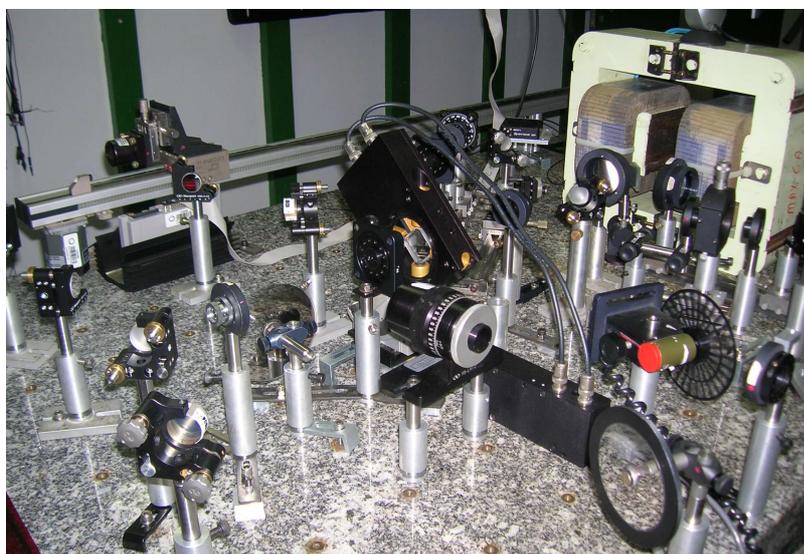


Figura 4.22: Montagem final de rotação de Kerr resolvida no tempo.

Capítulo 5

Energia de Zeeman e tempo de relaxação de spin T_1

O entendimento do tempo de relaxação, para campos magnéticos altos e temperaturas baixas, requer uma detalhada descrição das propriedades relacionadas ao spin de nanoestruturas semicondutoras. Neste capítulo, foi estudado o fator g de Landé através de medidas do desdobramento Zeeman de subníveis de spins eletrônicos confinados em camadas orbitais s e p de pontos quânticos de InAs/GaAs.

A motivação para o estudo de T_1 como função do fator g é dada pela teoria de relaxação de spin em pontos quânticos de GaAs de A. V. Khaetskii e Y. V. Nazarov [66, 67] e os resultados experimentais de J. M. Elzerman [25] e M. Kroutvar [24]. O comportamento observado nestas referências mostrou que o mecanismo de relaxação fundamental é a interação com fônons piezo-elétricos na presença de termos spin-órbita. Este mecanismo leva a uma dependência da taxa de relaxação com a quinta potência do fator g , isto uma vez que o fator g serve como medida da interação spin-órbita.

A polarização de spins eletrônicos em pontos quânticos de InAs foi analisada considerando o sistema como centros paramagnéticos sem interação quando confinados em pontos diferentes. A descrição da estatística dos momentos magnéticos com funções de Brillouin permitiu estudar o limite onde a energia térmica e magnética tendem a competir. Por exemplo, no limite quando $g\mu_B B \sim kT$, a população dos níveis de spin deve ser considerada no cálculo das energias de adição dentro modelo Fock-Darwin. As energias de adição correspondem ao análogo da diferença entre o potencial de ionização e à afinidade eletrônica. Utilizando este conceito é possível saber a energia

necessária para adicionar o N-ésimo elétron num ponto com N-1 elétrons.

O sistema de spins em um ensemble de pontos quânticos foi comparado com um estado dubleto onde a interação de Zeeman faz os dois níveis de spin divergir linearmente (correspondente ao limite quando $g\mu_B B \gg kT$). Foi mostrado como o máximo de polarização de spin de elétrons nos estados s e p é alcançado em campos diferentes para uma mesma temperatura.

O estudo da resposta dos níveis de energia a campos magnéticos alinhados com diferentes orientações cristalográficas permitiu o mapeamento do modulo do tensor g para os estados s e p. Encontrou-se que os tensores g para estes estados exibem um comportamento muito diferente. O estado s, ao ser mais localizado, mede detalhes do potencial de confinamento ao varrer o campo desde a direção paralela ao eixo de crescimento da amostra até a direção paralela ao plano da amostra. Para o estado p, o modulo do tensor g é proximo ao valor da matriz de GaAs, consistente como uma maior deslocalização e com o fato da função de onda possuir um nó no centro do ponto quântico. Além da medida do tensor g, estes resultados revelam maiores detalhes do potencial de confinamento em pontos quânticos auto-organizados que não tinham sido observados.

5.1 Polarização de spin para (B,T)

5.1.1 Descrição de impurezas magnéticas e spins

Momentos paramagnéticos em um sólido, em contraste ao diamagnetismo para elétrons ligados, dependem da temperatura devido a alinhamento aleatório dos momentos pela desordem térmica.

Os primeiros experimentos realizados em spin paramagnéticos, como o de Warren E. Henry [119] em ions como Fe^{+3} or Cr^{+3} , mostraram a compatibilidade dos resultados com funções de Langevin ou de Brillouin. Neste caso o fator g, obtido do ajuste de curvas do momento magnético por ion em termos de funções de Brillouin, permitiu estudar as condições de saturação para diferentes temperaturas e observar o *quenching* do momentum angular orbital L pelo campo cristalino para materiais com diferente momentum angular total J.

Em pontos quânticos, medidas experimentais [120, 121, 122] e predições teóricas [123, 124, 125] recentes, permitiram observar a existência de polarização de spin determinada pela direção e magnitude do campo magnético

Tabela 5.1: Configuração para o preenchimento sequencial de seis elétrons nas camadas s e p do ponto quântico usada como referencia na obtenção do número quântico J.

camada s L=0	camada p L=1	$S = \sum S_z$	$L = \sum L_z$	$J=L+S$
↑		1/2	0	1/2
↑↓		0	0	0
↑↓	↑	1/2	1	3/2
↑↓	↑↓	0	2	2
↑↓	↑↓↑	1/2	1	3/2
↑↓	↑↓↑↓	0	0	0

externo e da temperatura. A discussão em experimentos ópticos em pontos quânticos ao respeito do grau de polarização que pode ser criado pela incidência de luz como função das condições do ambiente, introduz o problema da existência de um limite da polarização neta também em experimentos elétricos.

5.1.2 Função partição de um sistema de spins

Em um estado dubleto, o campo magnético (B) faz os níveis de spin divergir linearmente com inclinação $\pm 1/2 g\mu_B B$ onde μ_B é o magneton de Bohr. Se, em contraste, calculam-se as propriedades magnéticas de sólidos à temperatura finita, deve-se considerar uma aproximação estatística que inclua a relação entre a energia magnética e térmica ($Jg\mu_B B/k_B T$). Realizando este cálculo, obtém-se uma dependência para o valor médio do momento magnético $g\mu_B J \times B_J(g\mu_B B/k_B T)$ (média térmica sobre a população de spin) onde B_J é a função de Brillouin para uma determinada camada eletrônica com momentum angular total J (vide tabela 5.1). Para um valor grande do argumento de B_J , os momentos magnéticos estão completamente alinhados com o campo e a magnetização tem o seu máximo valor $Jg\mu_B$. Assumindo que não existe interação entre spins confinados em pontos quânticos diferentes, não é necessário introduzir termos extras para corrigir a função de Brillouin.

Sendo que os pontos quânticos serão estudados sob diferentes condições

de carregamento, para o cálculo das energias de adição será utilizada a energia livre de Helmholtz associada a um nível caracterizado por um momento angular J . Esta pode ser calculada como:

$$F_J(B, T) = -kT \ln Z_J(B, T) \quad (5.1)$$

onde a função partição Z_J do sistema pode ser calculada da seguinte maneira:

$$\begin{aligned} Z_J(B, T) &= \sum_{m_J=-J}^J \exp(m_J g \mu_B B / k_B T) \\ &= \sinh[(2J+1)x/2] / \sinh[x/2] \end{aligned} \quad (5.2)$$

onde $x = m_J g \mu_B B / k_B T$.

Pode-se confirmar na tabela 5.1 que quando a camada eletrônica está cheia obtém-se $J=0$ e por conseguinte a contribuição paramagnética é nula.

5.1.3 Modificação das energias de adição do elétron

Potencial de Fock-Darwin FD

Para campo magnético nulo, na aproximação de Fock-Darwin, os três primeiros níveis do oscilador harmônico s, p e d são degenerados. O nível s é duplamente degenerado, o nível p quadruplicamente degenerado, e o nível d é sêxtuplicamente degenerado com energias $\hbar\omega_0$, $2\hbar\omega_0$, and $3\hbar\omega_0$ respectivamente onde cada camada é caracterizada por um número quântico J ($J=L+S$).

Correção da compressão da função de onda

O carregamento de elétrons nos pontos quânticos implica em fenômenos eletrostáticos ao aproximar um elétron a outro. Para inserir um elétron em um ponto carregado deve-se aumentar o potencial químico numa quantidade conhecida como energia de bloqueio de Coulomb E_{ij}^C . Esta energia permite separar o carregamento individual de elétrons nos estados i e j a campo magnético nulo [126].

Tem sido mostrado que ensembles de pontos quânticos (1×10^8 QDs), crescidos auto-organizados pela método de MBE, apresentam uma distribuição de tamanho extremamente uniforme, onde a largura da linha inhomogênea é um efeito pequeno quando comparado com a energia de carregamento de Coulomb [127, 63].

A interação de Coulomb está relacionada com o comprimento característico da função de onda l (diâmetro do ponto $\sim 20nm$, $l \sim 5nm$) tal que $E_{ij}^C = q^2/(4\pi\epsilon_0\epsilon_r l)$ onde $l = \sqrt{\hbar/(m^*\Omega)}$ e $\Omega = \left[\left(\frac{\omega_c}{2}\right)^2 + \omega_0^2\right]^{1/2}$ onde ω_c é a frequência de ciclotron.

Na presença de campo magnético externo, é possível obter uma correção da energia de Coulomb através da avaliação da mudança no comprimento da função de onda. O resultado para o estado s é $E_{ss}^C(B) = E_{ss}^C(0) \times \sqrt{\Omega/\omega_0} = E_{ss}^C(0) \times (1 + \omega_c^2/4\omega_0^2)^{1/4}$. Porém, existem complicações para ajustar uma relação semelhante para a camada p e será assumido que a energia de E_{pp}^C não muda com o campo magnético. As complicações são: (i) uma menor energia de Coulomb ($E_{pp}^C = 3/4 \times E_{ss}^C$) e (ii) um alargamento dos picos de capacitância devido à desordem de Coulomb. Este último fator é determinado pela distribuição de tamanhos no ensemble de pontos e aumenta como n^2 , onde n é o número de elétrons no ponto quântico [126]. Pode-se considerar esta aproximação como um limite superior do fator g e, mais importante, permite manter o modelo o mais simples possível para mostrar as simetrias de um estado em particular. A interação de troca entre elétrons nas camadas i e j será descritas por E_{ij}^X . Nas próximas seções será mostrado a concordância do conjunto de dados completo com a teoria nesta aproximação dentro de um erro de 5-10%.

Energias e potenciais químicos

Pode-se calcular, utilizando um potencial de confinamento lateral parabólico e com uma energia de Coulomb que inclui dependência com o campo magnético, as energias de adição para o carregamento dos elétrons nos pontos quânticos. A energia total do sistema com N elétrons é:

$$E_N = NE_z + N\hbar\Omega + F_J + \sum_{i,j}^N (E_{ii}^C + E_{ij}^C + E_{ij}^X) - N\mu_N \quad (5.3)$$

onde os dois primeiros termos representam efeitos quânticos com E_z sendo a energia de confinamento na direção de crescimento (potencial tipo poço quântico) e os dois últimos termos são contribuições eletrostáticas com μ_N sendo o potencial químico para o carregamento do n -ésimo elétron.

Para os primeiros quatro elétrons têm-se:

$$E_1 = E_z + \hbar\Omega - kT \ln [2 \cosh (g\mu_B/kT)] - \mu_1 \quad (5.4)$$

$$E_2 = 2E_z + 2\hbar\Omega + E_{ss}^C - 2\mu_2 \quad (5.5)$$

$$E_3 = 3E_z + 4\hbar\Omega - kT \ln \left[\frac{\sinh(2g\mu_B B/kT)}{\sinh(g\mu_B B/2kT)} \right] + E_{ss}^C + 2E_{sp}^C - E_{sp}^X - 3\mu_3 \quad (5.6)$$

$$E_4 = 4E_z + 6\hbar\Omega - kT \ln \left[\frac{\sinh(5g\mu_B B/2kT)}{\sinh(g\mu_B B/2kT)} \right] + E_{ss}^C + 4E_{sp}^C - 2E_{sp}^X + E_{pp}^C - 4\mu_4 \quad (5.7)$$

Como esperado, não tem contribuição paramagnética na equação 5.5 devido a fato de que corresponde a uma camada fechada.

Lembrando que o tunelamento do elétron i acontece quando $E_i = E_{i-1}$, podem-se resolver as expressões anteriores para achar μ_i utilizando esta condição. Este fato pode ser entendido na figura 5.1 onde V_1 (V_2) indica a voltagem de gate para o tunelamento do primeiro (segundo) elétron graficados em comparação com uma curva de capacitância.

A solução obtida para os potenciais químicos é:

$$E_1 = 0 \rightarrow \mu_1 = E_z + \hbar\Omega - kT \ln [2\cosh(g\mu_B/2kT)] \quad (5.8)$$

$$E_2 = E_1 \rightarrow \mu_2 = E_z + \hbar\Omega + kT \ln [2\cosh(g\mu_B/2kT)] + E_{ss}^C \quad (5.9)$$

$$E_3 = E_2 \rightarrow \mu_3 = E_z + 2\hbar\Omega - kT \ln \left[\frac{\sinh(2g\mu_B B/kT)}{\sinh(g\mu_B B/2kT)} \right] + 2E_{sp}^C - E_{sp}^X \quad (5.10)$$

$$E_4 = E_3 \rightarrow \mu_4 = E_z + 2\hbar\Omega - kT \ln \left[\frac{\sinh(5g\mu_B B/2kT)}{\sinh(2g\mu_B B/kT)} \right] + 2E_{sp}^C - E_{sp}^X + E_{pp}^C \quad (5.11)$$

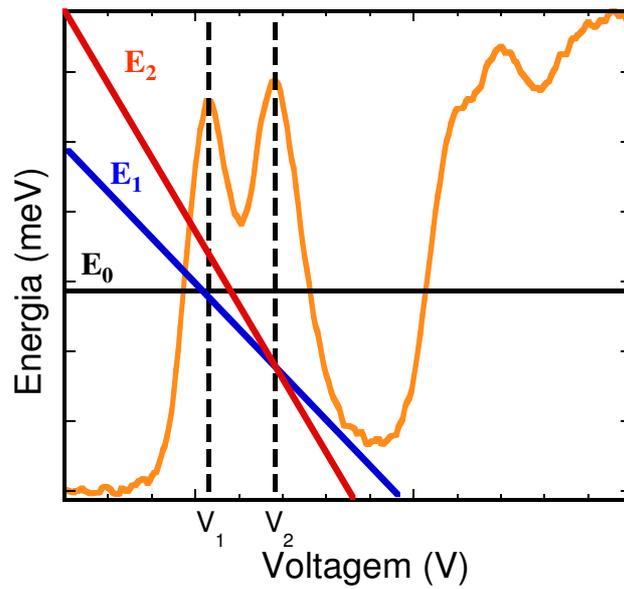


Figura 5.1: Tunelamento individual de elétrons no ponto quântico. As linhas E_0 , E_1 e E_2 correspondem a energia do sistema com 0, 1 e 2 elétrons. O cruzamento das linhas na voltagem de gate V_1 e V_2 indica o tunelamento do primeiro e segundo elétron para dentro do ponto quântico desde o reservatório. As expressões para a energia estão graficadas em comparação com uma curva de capacitância.

Para o propósito do ajuste dos dados experimentais, podemos calcular a diferença entre os potenciais químicos 1 e 2 e entre os potenciais 3 e 4, eliminando o maior número de termos comuns desconhecidos e obtendo o desdobramento para as camadas s e p-. As expressões correspondentes são:

$$\Delta\mu_s = 2kT \ln[2 \cosh(g\mu_B B/2kT)] + E_{ss}^C \quad (5.12)$$

$$\begin{aligned} \Delta\mu_p = kT \ln \left[\frac{\sinh(2g\mu_B B/kT)}{\sinh(g\mu_B B/2kT)} \right] \\ - kT \ln \left[\frac{\sinh(5g\mu_B B/2kT)}{\sinh(2g\mu_B B/kT)} \right] + E_{pp}^C \end{aligned} \quad (5.13)$$

No limite $B/T \rightarrow \infty$, as equações 5.12 e 5.13 convergem ao valor correto para o desdobramento de Zeeman: $g\mu_B B$.

A polarização como função do campo magnético e da temperatura pode ser obtida através da derivada da energia livre de Helmholtz:

$$M = \left. \frac{\partial F_J(B, T)}{\partial B} \right|_T \quad (5.14)$$

5.1.4 Medida da polarização de spin em pontos quânticos

O análise da polarização de spin será feito nos casos onde o vetor do campo magnético está alinhando paralelo e perpendicular com a direção de crescimento, direções [001] e [110] respectivamente. Porém, o estudo da polarização de spin foi em todo o conjunto de dados experimentais (para outras direções de \vec{B}) sendo que os resultados dos ajustes serão mostrados na forma de curvas do tensor g na próxima seção.

A figura 5.2(a) mostra o deslocamento dos picos de capacitância para o carregamento dos níveis s e p sob campo magnético aplicado (paralelo à direção de crescimento da amostra). Devido a homogeneidade do ensemble de pontos quânticos, pode-se apreciar o carregar individual dos elétrons no estado p através de picos de funções gaussianas (associadas à distribuição de tamanhos). Caso contrario, o sinal de capacitância mostraria a serie de funções gaussianas completamente misturadas (devido a uma largura muito

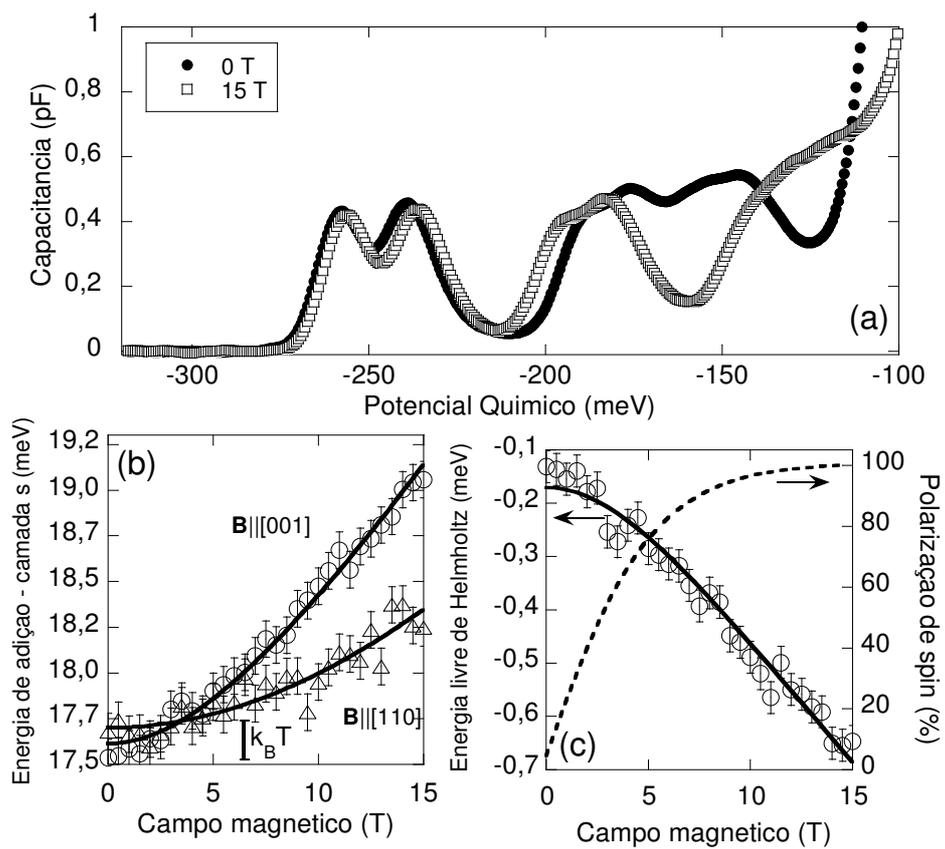


Figura 5.2: (a) Espectros de capacitância: Comparação entre 0 e 15 T com o campo magnético alinhado paralelo à direção de crescimento. (b) Energia de adição para o estado s com o campo magnético em duas direções. (c) Energia livre de Helmholtz e polarização de spin.

maior da distribuição de tamanhos) sendo impossível separar a posição individual de cada evento de tunelamento.

A escala em energia, na figura 5.2(a), é derivada do bias aplicado e do braço de alavanca (lever arm) e referenciada a borda da banda de condução do GaAs. O braço de alavanca mostra quanto é deslocado o potencial químico com uma mudança em voltagem. Ele é calculado levando em consideração efeitos de depleção no contato traseiro [64], assim permitindo uma determinação precisa da escala de energia.

Com o objetivo de separar a contribuição dos efeitos orbitais dos efeitos eletrostático e de Zeeman, podem-se subtrair as posições dos picos dos níveis s e p (resultado mostrado anteriormente na forma de $\Delta\mu_s$ e $\Delta\mu_p$) uma vez que a contribuição diamagnética é a mesma entre os níveis de spin de um mesmo orbital. A figura 5.2(b) mostra o resultado para o $\Delta\mu_s$ com o campo alinhado na direção [001] e [110]. A linha sólida é um ajuste com a equação 5.12. Se realizamos também o ajuste da soma dos potenciais químicos, pode-se obter um número considerável de parâmetros mostrados na tabela 5.2. Os parâmetros obtidos nos ajustes seguem o valor esperado (na aproximação de potencial de confinamento parabólico como discutida na seção subseção anterior) com um erro de 5-10%. No mesmo ajuste, podem ser obtidos os valores para os fatores g (tabela 5.3). Os fatores g serão discutidos na próxima seção.

Tabela 5.2: Parâmetros do potencial de confinamento.

Parâmetro	Valor
$\hbar\omega_0$	$37,8 \pm 0,2 meV$
E_z	$280 meV$
E_{ss}^C	$17,2 meV$
E_{pp}^C	$13,4 meV$

Calculando a derivada das curvas do desdobramento Zeeman na figura 5.2(c) ($M = \partial F_J / \partial B|_T$), pode-se obter o valor de polarização nesta região de campo (mostrados na mesma figura como porcentagem). Para o estado s, com o campo ao longo da direção de crescimento, o 100% de polarização é alcançado aproximadamente em 12,5 T. Isto significa que só neste valor de campo, para a temperatura experimental de 2,8 K, os momentos magnéticos encontram-se alinhados com o campo. No caso em que $\mathbf{B}||[110]$, o campo

Tabela 5.3: Fatores g de Landé

	Direção de \mathbf{B}	fator g
camada s	[001]	$1,51 \pm 0,05$
	[110]	$0,87 \pm 0,05$
camada p	[001]	$0,6 \pm 0,1$
	[110]	$0,51 \pm 0,05$

correspondente ao 80% de polarização é deslocado em aproximadamente 3 T devido a um fator g menor (esta anisotropia do fator g é o assunto da próxima seção). Quando $B \rightarrow 0$ obtém-se o valor da energia térmica kT na temperatura experimental (vide figura 5.2(b)).

Em resumo, no análise dos dados experimentais tomou-se a posição dos picos das camadas s e p- e ajustou-se a diferença entre eles com as equações 5.12 and 5.13 como mostrado na figura 5.2(b). Aqui os parâmetros de ajuste foram somente o fator g e a temperatura. Encontrou-se que o valor inferido do fator g é muito sensível à escolha da temperatura utilizada no ajuste. Para cada direção do campo foi realizado o ajuste da temperatura, assim incluindo o efeito das mudanças no sistema do criostato durante o tempo que leva mudar a magnitude do campo no experimento. Deve-se lembrar que o deslocamento de Zeeman que se deseja medir é da ordem de 1 meV quando o campo muda de 0 para 15 T. O fator g pode mudar até 10% em se variando a temperatura em 0,5 K. A temperatura inferida foi $2,7 \pm 0,1$ K em concordância com o valor nominal do controlador do criostato (2,8 K).

A possibilidade de usar expressões de ajuste contendo o valor da temperatura permite usar todos os pontos experimentais, ambos para baixo e alto campo, para obter o valor do fator g e da polarização de spin. Senão for usada uma aproximação estatística, dever-se-ia utilizar somente os dados acima do campo para o qual o termo de spin dos níveis diverge linearmente e assim perdendo a grande parte dos pontos para o estado s e todos os pontos para o estado p. Esta vantagem encontra-se também refletida na aquisição de informações mais completas incluindo a distribuição térmica de spin.

Note-se que a polarização de spin é menor do que 100% para campos consideravelmente altos (da ordem de 10 T) e temperaturas baixas (da ordem de 2 K).

A figura 5.3 mostra a segunda derivada do espectro de magneto-capacitância

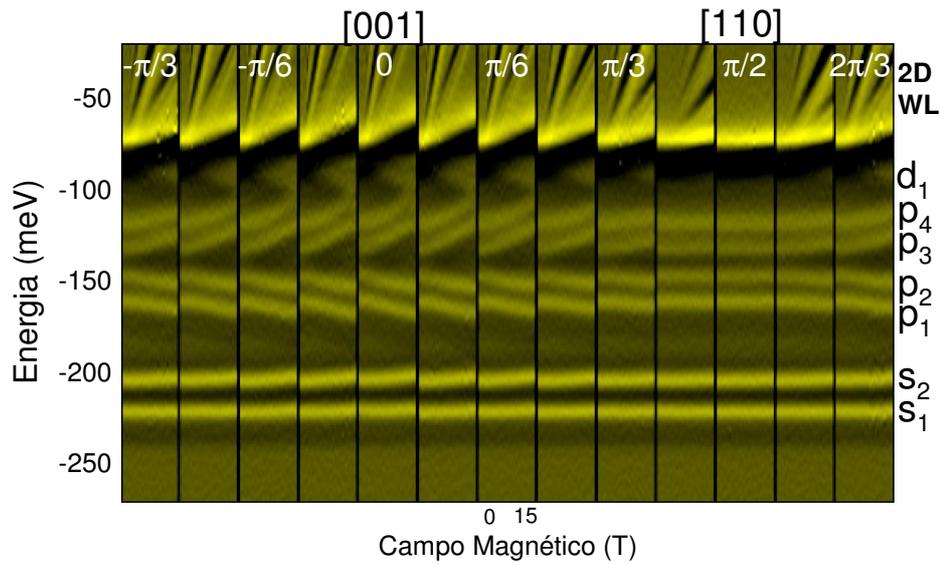


Figura 5.3: Dados medidos (derivada) para uma varredura polar do campo, ou seja mudando o campo da direção paralela a $[001]$ até a direção $[110]$. A escala de cores está relacionada a segunda derivada do espectro de capacitância onde as cores mais claras indicam uma densidade de estados maior (picos do espectro de cv na figura 5.2(a).) Cada um dos 13 quadros, correspondentes a varreduras na magnitude do campo desde 0 até 15 T, foram realizadas em intervalos de 15° . Os estados s, p e d assim com os níveis 2D da wetting layer estão indicados.

correspondentes a varreduras no campo entre as direções [001] e [110] (varredura polar). A escala de cores é a representação da densidade de estados, onde os estados 0D (até -80 meV) e 2D (acima de -80 meV) estão associados com os pontos quânticos e com a wetting layer.

As expressões para as energias de adição, descritas nas seções anteriores, permitem separar os termos orbital, eletrostático e de Zeeman. Todos estes efeitos podem ser observados nos dados da figura 5.3. Quando o campo encontra-se alinhado no plano da amostra, todos os efeitos orbitais são minimizados devido a geometria de panqueca dos pontos; também são desprezíveis os efeitos do campo na wetting layer. A quantização da órbita na wetting layer (sistema 2D) leva a formação dos chamados níveis de Landau. O preenchimento de níveis de Landau é exibida para campos com componentes perpendiculares à superfície da amostra. Deve-se lembrar que a evolução rápida da camada p com o campo é devida ao deslocamento diamagnético (efeito orbital para $L=1$) e não a um efeito relacionado com o spin.

O análise completo da figura 5.3 na seguinte seção vai permitir a obtenção do grau de anisotropia do fator g.

5.2 Tensor g de Landé para as camadas s e p

Ajustes semelhantes aos mostrados na figura 5.2(b) foram realizados para cada direção do campo magnético em cada camada eletrônica. O módulo do tensor g foi determinado por varreduras polar e azimutal através de:

$$\begin{aligned} |g_{pol}| &= \sqrt{g_{[001]}^2 \cos^2(\theta) + g_{[110]}^2 \sin^2(\theta)} \\ |g_{az}| &= \sqrt{g_{[110]}^2 \cos^2(\phi) + g_{[1\bar{1}0]}^2 \sin^2(\phi)} \end{aligned} \quad (5.15)$$

As figures 5.4 e 5.5 mostram as varreduras polar e azimutal. No painel superior, a condição experimental é representada mostrando a orientação do campo magnético com respeito aos eixos cristalinos do ponto quântico, assim como as funções de onda para cada camada calculadas para 15 Tesla. Os dados são mostrados no painel inferior assim como os correspondentes ajustes (equações 5.15).

A varredura polar mostra, imediatamente, que existe uma anisotropia considerável no fator g do estado s; enquanto que, para o estado p, o fator g é

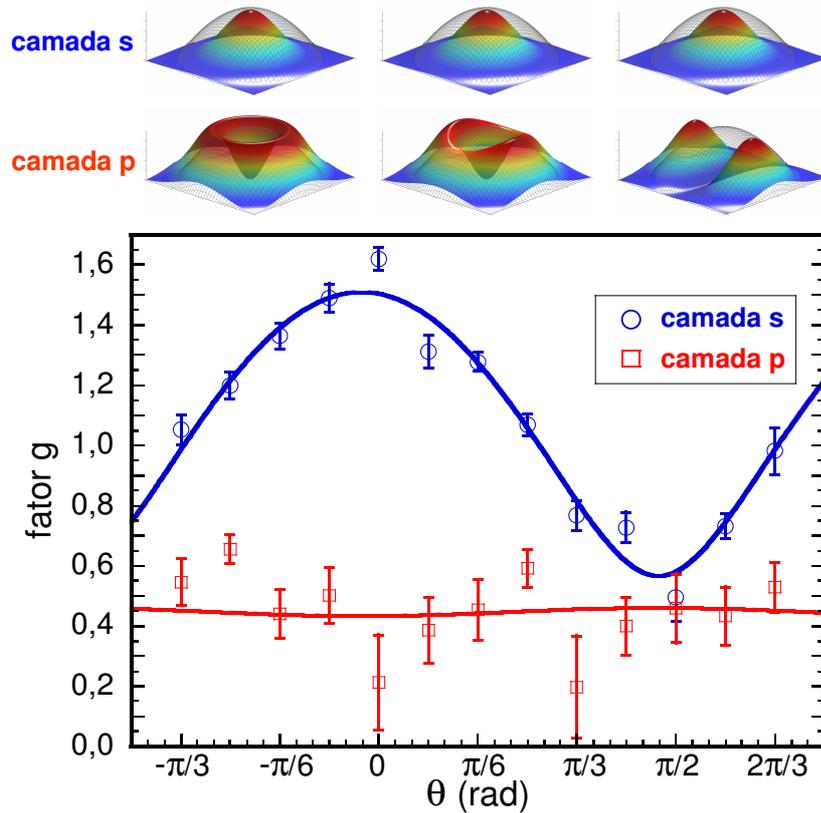


Figura 5.4: Painel superior: Funções de onda para as camadas s e p mostrando três direções do campo magnético aplicado $\theta = 0, \theta = \pi/3$, e $\theta = \pi/2$. x, y, e z correspondem as direções $[110]$, $[1\bar{1}0]$ e $[001]$, respectivamente. Um ponto quântico é esquematicamente representado no mesmo gráfico respeitando o tamanho aproximado. Painel inferior: Tensor g para as camadas s e p na varredura polar.

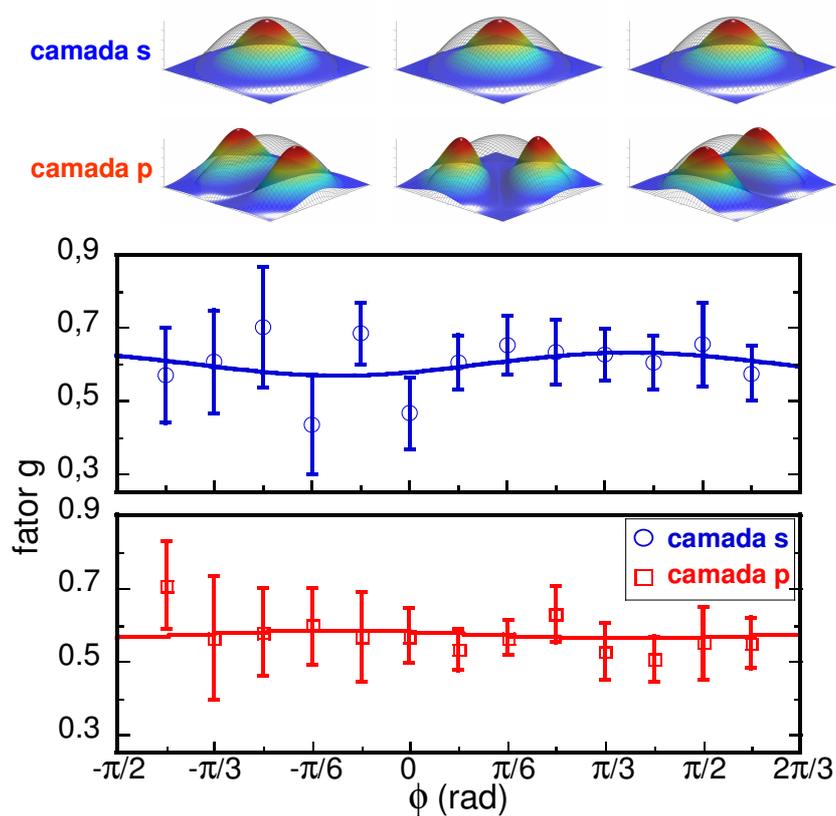


Figura 5.5: Painel superior: Funções de onda para as camadas s e p mostrando três direções do campo magnético aplicado $\theta = 0, \theta = \pi/4$, e $\theta = \pi/2$. x , y , e z correspondem as direções $[110]$, $[1\bar{1}0]$ e $[001]$, respectivamente. Um ponto quântico é esquematicamente representado no mesmo gráfico respeitando o tamanho aproximado. Painel inferior: Tensor g para as camadas s e p na varredura azimutal.

constante e sempre menor. Este é um resultante surpreendente considerando a energia de partícula única ($\hbar\omega_0=37,8$ meV), o confinamento ao longo de z ($E_Z=280$ meV) e o fato de que a componente z da função de onda para ambos estados é praticamente a mesma.

Os valores maiores para o fator g do estado s são consistentes com uma localização mais forte dentro do ponto quântico, devido a um maior confinamento. Com o objetivo de se obter uma informação qualitativa para as funções de onda, pode-se graficar as soluções para as funções s e p no caso de diferentes alinhamentos do campo magnético (painel superior das figuras 5.4 e 5.5). Considerando o comportamento de $|g_s|$, pode-se notar que a função de onda é mais localizada no interior do ponto quântico e, em consequência, é mais sensível aos detalhes do potencial de confinamento no centro do ponto. Sendo assim, uma alta anisotropia é esperada dada a geometria de panqueca dos pontos quânticos.

O resultado mais inesperado foi obtido na camada p . Um comportamento altamente isotrópico é encontrado e pode-se associar à simetria da função de onda do estado p , como desenhado na figura 5.4 superior. Primeiro, os elétrons no estado p são mais delocalizados, acontece uma fuga da função de onda ao longo da direção de crescimento; o qual leva a um módulo do fator g perto do valor da matriz ($|g_{GaAs}|=0,44$). Segundo, a função de onda do estado p tem um nó no centro do ponto quântico, o que permite que prove regiões fora ou na interface do ponto. Desta forma, medidas do fator g nas camadas s e p , levam a avaliação dos detalhes do potencial de confinamento em diferentes regiões espaciais, de uma maneira similar ao realizado na determinação do ambiente químico de níveis profundos [52].

A figura 5.5 mostra o tensor g para a configuração de campo no plano da amostra (varredura azimutal). Para ambas camadas, o fator g é independente da direção do campo dentro das incertezas experimentais. Este resultado não mostrou nenhuma das duas anisotropias estruturais em pontos quânticos de InAs: (i) em cristais zincblend as direções $[110]$ e $[1\bar{1}0]$ não são equivalentes, (ii) os pontos são ligeiramente elípticos.

Alguns efeitos que acontecem em pontos de InAs tem que ser considerados no análise dos resultados: (i) o detalhes do confinamento são mudados pelo strain local e pelos campos cristalinos locais, (ii) composição não-uniforme, (iii) confinamento quântico e (iv) não-parabolicidade. Todos estes parâmetros podem influenciar o acoplamento spin-órbita, o qual é um componente importante na determinação do fator g . Modificações do fator g têm sido demonstradas pelo ajuste do strain [64, 128] e da composição [129] nos pon-

tos quânticos. Se são comparados os resultados experimentais com a teoria, uma boa concordância é encontrada o que corrobora a descrição de Pryor [65]. Um maior número de experimentos cuidadosos em diferentes amostras são necessários para obter uma imagem mais ampla do efeito relativo de cada componente.

Em resumo, foi inferido o tensor g de Landé para as camadas s e p de pontos quânticos de InAs auto-organizados. Foi determinado que para a camada s o tensor g é anisotrópico, refletindo os detalhes do potencial de confinamento. Para a componente no plano da amostra e para a camada p , o módulo do fator g é próximo a valor de GaAs bulk. Finalmente, foi determinado que para o estado p o tensor g é isotrópico dentro da resolução experimental, o que é consistente com uma função de onda tendo um nó no centro do ponto e sendo mais delocalizada ao longo da direção de crescimento.

Utilizando o valor do fator g medido e conhecimento as expressões para a energia livre de Helmholtz podem-se construir mapas de polarização para cada valor de campo e temperatura. O resultado encontra-se mostrado na figura 5.6(a) e (b). A anisotropia do fator g é refletida numa anisotropia de polarização como mostrado na figura 5.6.

5.3 Escala do tempo de relaxação

Sendo que a taxa de relaxação depende da energia de Zeeman, e que agora são conhecidos os valores do tensor g , pode-se inferir uma escala para o tempo T_1 .

Primeiramente, a maneira de exemplo, pode-se considerar a figura 3.8 superior. Nesta referência, o máximo T_1 medido é de 20 ms para 1 K e 4 T. A figura 5.7 mostra o cálculo de T_1 com a equação 3.25 para diferentes parâmetros de confinamento e fatores g . Os parâmetros $A = 0,14$, $\hbar\omega_0 = 30\text{meV}$, $g = 0,8$ utilizados para a linha pontilhada foram tomados de [24] para comparar a escala obtida na amostra estudada neste capítulo. Utilizando os dois valores extremos para o fator g medidos na varredura polar e $\hbar\omega_0 = 37,8\text{meV}$, pode-se obter as linhas contínuas na figura 5.7.

Em resumo, pode-se concluir que o tempo de relaxação T_1 é da ordem de centenas de ms para o ensemble de pontos quânticos de InAs. No próximos capítulos, será utilizada esta escala em comparação com os tempos de decoerência T_2 e defasagem do ensemble T_2^* , os quais foram medidos através de técnicas ópticas.

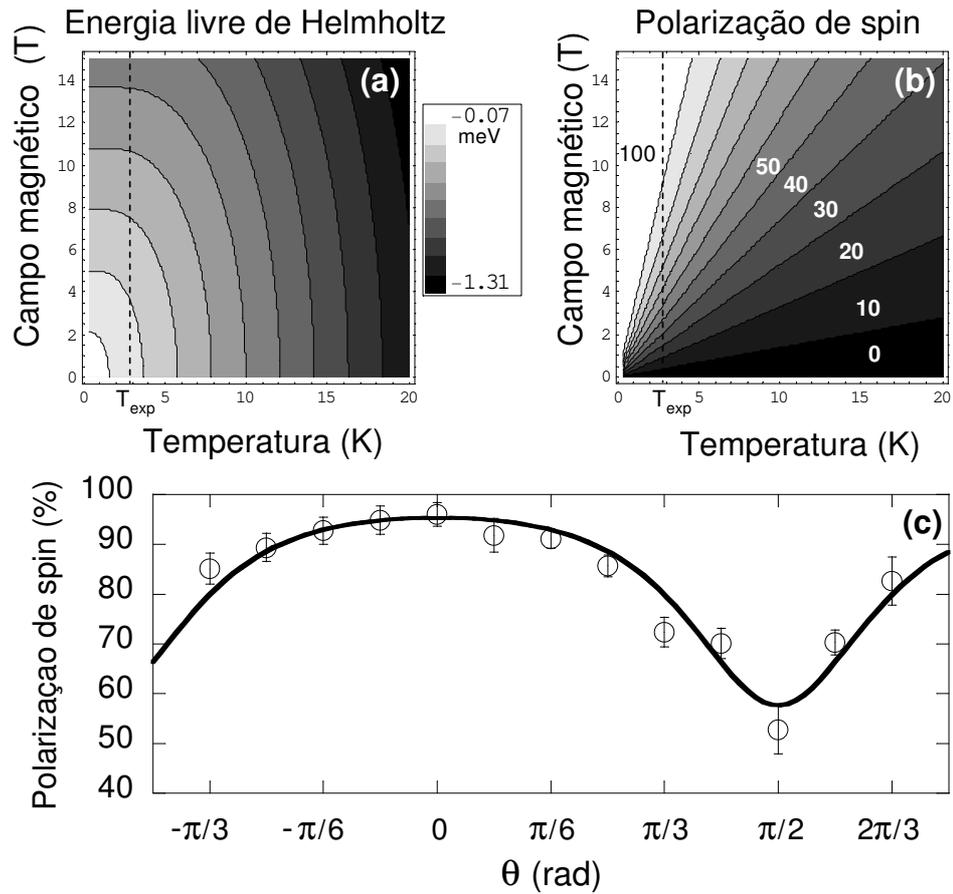


Figura 5.6: Mapas de polarização. (a) Energia livre de Helmholtz e (b) Polarização de spin para uma determinada temperatura e campo magnético considerando o fator g medido. (c) Anisotropia de polarização.

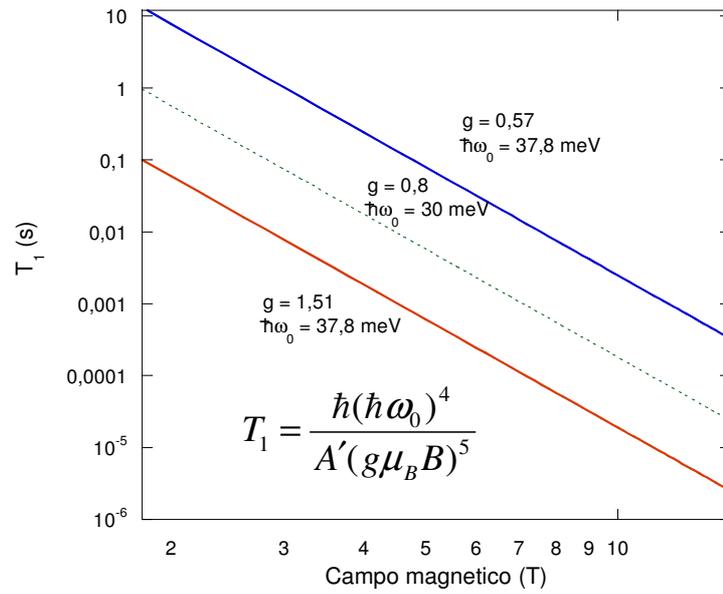


Figura 5.7: Escala teórica de T_1 como função do campo magnético. Os parâmetros $\hbar\omega_0 = 37,8\text{meV}$, $g_{[001]} = 1,51$ e $g_{[110]} = 0,57$ foram medidos experimentalmente como descrito na seção anterior. A linha pontilhada foi calculada usando os parâmetros descritos em [24]. Nestes cálculos foi assumido um regime de baixas temperaturas evitando qualquer saturação no crescimento de T_1 para baixo campo.

Capítulo 6

Tempo de defasagem T_2^* e estrutura fina de excitons

O spin eletrônico tem sido considerado como um bit quântico muito promissor dado que a sua dinâmica pode ser efetivamente protegida do ambiente dentro dos limites das escalas de tempo T_1 e T_2 . A inicialização da polarização do spin eletrônico pode ser obtida usando estados de superposição entre excitons e elétrons como estados intermediários [142]. No presente capítulo será feito um estudo da estrutura fina dos níveis de exciton. Desta forma, será aprofundado o conhecimento da estrutura dos níveis do ponto quântico para ser aplicada no estudo da manipulação do spin no próximo capítulo.

A existência de autoestados de exciton com característica de spin linearmente polarizada ($|x\rangle=1/\sqrt{2}(|+1\rangle + |-1\rangle)$ e $|y\rangle=1/\sqrt{2}(|+1\rangle - |-1\rangle)$), mistura de estados de exciton com spin puro *up* e *down*, é resultado da interação de troca elétron-buraco a qual reflete a perda de anisotropia dos pontos quânticos no plano [83]. As autoenergias associadas a estes níveis diferem por um fator de estrutura de fina. Este fator representa a maior dificuldade para a criação de uma fonte de fótons emaranhados utilizando o decaimento do biexciton em pontos quânticos [130]. O emaranhamento de pares de fótons tem sido considerado como um parâmetro fundamental em propostas para a implementação de teleportagem quântica [131].

Neste capítulo foram realizadas medidas de rotação de Kerr com o objetivos de medir batimentos quânticos dos níveis de estrutura fina em pontos quânticos e na wetting layer. Assim, pode ser feita uma comparação da anisotropia estrutural em um sistema 0D e 2D. O período destas oscilações quânticas está relacionado com o inverso da energia de separação entre os

autoestados $|x\rangle$ e $|y\rangle$ e o seu amortecimento exponencial resolvido no tempo mostra a defasagem da superposição entre estes dois níveis. O inverso do tempo de defasagem permite obter a largura da distribuição de energias de estrutura fina no ensemble.

6.1 Orientação óptica do spin eletrônico

A excitação óptica de um portador com um determinado spin obedece algumas regras. As transições ópticas obedecem a conversão de energia e momento, em particular a conservação de momento angular do fóton (helicidade ± 1). Este fato leva a regras de seleção, as quais podem ser satisfeitas para transições da banda de valência (com momentum angular total $J=3/2$) para a banda de condução ($J=1/2$). No regime linear, a conservação de energia em semicondutores permite uma transição óptica se a energia excede a energia do gap (desprezando processos de ordem superior como absorção de dois fótons).

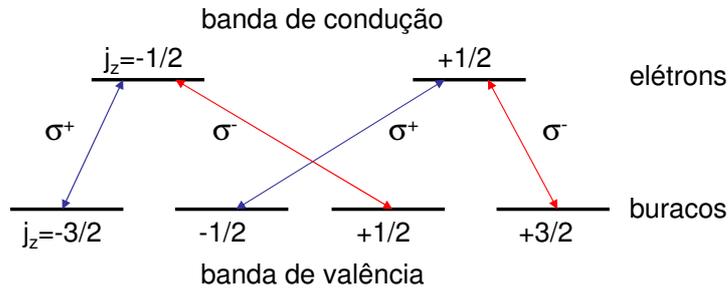


Figura 6.1: Esquema para as regras de seleção ópticas entre níveis de buracos e elétrons. A probabilidade de transições de buraco pesado são 3 vezes maiores do que para buracos leves [132].

Uma ilustração básica dos níveis envolvidos nas transições ópticas encontra-se na figura 6.1. Se os fótons são circularmente polarizados a esquerda ou direita, eles carregam um momento angular $\Delta j = +1$ ou $\Delta j = -1$, respectivamente. De acordo a esta característica, os fótons são denominados como σ^+ ou σ^- . Para fótons polarizados σ^+ somente transições que mudam o momento angular em 1 podem ser possíveis. Por exemplo, $J_{z,hh} + \Delta j = -3/2 + 1 = -1/2 = J_{z,e}$.

A lei de conservação de momento implica também que o spin do elétron criado na banda de condução é sempre paralelo à direção de propagação do fóton.

6.2 Estrutura fina do nível de exciton

6.2.1 Interação de troca elétron-buraco

Em geral, a interação de troca (exchange) é proporcional à integral [83]:

$$E_{exchange} \propto \int \int d^3r_1 d^3r_2 \Psi_X^*(\vec{r}_e = \vec{r}_1, \vec{r}_h = \vec{r}_2) \quad (6.1)$$

$$\times \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \Psi_X^*(\vec{r}_e = \vec{r}_2, \vec{r}_h = \vec{r}_1)$$

onde Ψ_X é a função de onda do elétron e $\vec{r}_{e,h}$ são as coordenadas de posição do elétron e do buraco.

Para calcular o exchange, existem duas possíveis formas de dividir a integral. Numa delas, pode ser dividida no espaço real: em partes de alcance curto e longo. A parte de curto alcance é dada pela probabilidade de encontrar o elétron e o buraco na mesma célula unitária de Wigner-Seitz. A parte de longo alcance, complementarmente, é dada pela contribuição quando eles se encontram em células diferentes.

A forma do Hamiltoniano de spin da interação de troca elétron-buraco para um exciton formado por um buraco com spin J_h e um elétron com spin S_e é dado por [133]:

$$H_{exchange} = - \sum_{i=x,y,z} \left(a_i J_{h,i} S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 S_{e,i} \right) \quad (6.2)$$

onde z é a direção de crescimento da heteroestrutura, e b_i depende da simetria do ponto quântico: $b_x = b_y$ se a simetria é D_{2d} (simétrico no plano) ou $b_x \neq b_y$ se a simetria é menor ($< D_{2d}$).

Devido ao strain nos pontos quânticos, os estados de buraco leve e pesado são separados em energia por algumas dezenas de meV. Esta separação é consideravelmente maior do que as energias do que as energias das interações de estrutura fina assim que os níveis de buraco leve podem ser negligenciados. A base de autoestados, na qual os estados do exciton são construídos, consiste

de um buraco pesado com $J_h = 3/2$, $J_{h,z} = \pm 3/2$ e um elétron com $S_e = 1/2$, $S_{e,z} = \pm 1/2$.

Da base de autoestados, quatro estados de exciton são formados, os quais são degenerados quando o Hamiltoniano da equação 6.2 é desprezado (vide figura 6.2). Estes estados estão caracterizados pelas projeções do momento angular $M = S_{e,z} + J_{h,z}$. Estados com $|M| = 2$ não podem acoplar com o campo da luz e por isto são opticamente inativos (dark excitons), enquanto que os estados com $|M| = 1$ são opticamente ativos (bright excitons).

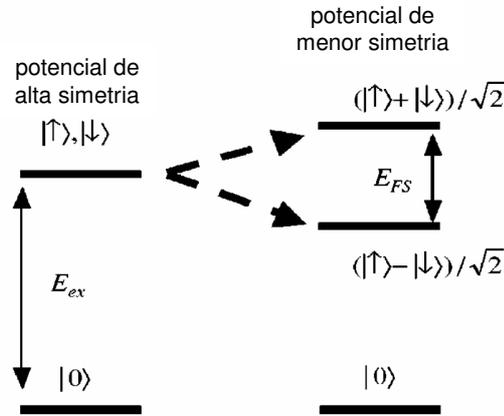


Figura 6.2: Diagrama dos estados do exciton no ponto quântico no caso de alta (esquerda) e baixa (direita) simetria. $|0\rangle$, $|\uparrow\rangle$ e $|\downarrow\rangle$ denotam o estado inicial do fóton e os estados de exciton com spin puro up e down, respectivamente. O desdobramento de estrutura fina dos estados linearmente polarizados, no caso de menor simetria, é denotado por E_{FS} (δ_1 no texto). E_{ex} é a energia do exciton [134]

Usando os autoestados de momento angular $|+1\rangle$, $|-1\rangle$, $|+2\rangle$ e $|-2\rangle$; pode-se escrever a representação matricial de $H_{exchange}$ [135]:

$$H_{exchange} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

onde as energias δ_0 , δ_1 e δ_2 encontram-se definidas na figura 6.3.

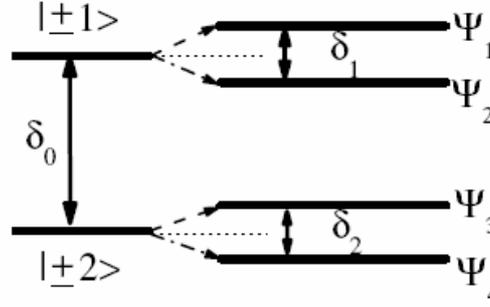


Figura 6.3: Desdobramento de estrutura fina dos níveis de exciton induzida pela interação de exchange anisotrópica. δ_0 da a componente isotrópica da interação de exchange e δ_1 , δ_2 são as componentes anisotrópicas para os estados de exciton bright e dark, respectivamente. Ψ_i denota a correspondente função de onda.

As energias dos autoestados Ψ_i , da figura 6.3, encontra-se ilustrada na tabela 6.1.

Tabela 6.1: Autoestados de exciton em estruturas de simetria D_{2d} ou menor [83].

D_{2d}		$< D_{2d}$	
Energia	Autoestado	Energia	Autoestado
$+\frac{1}{2}\delta_0$	$ -1\rangle$	$+\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\delta_1$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+1\rangle + -1\rangle)$
$+\frac{1}{2}\delta_0$	$ +1\rangle$	$+\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\delta_1$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+1\rangle - -1\rangle)$
$-\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+2\rangle + -2\rangle)$	$-\frac{1}{2}\delta_0 + \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+2\rangle + -2\rangle)$
$-\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+2\rangle - -2\rangle)$	$-\frac{1}{2}\delta_0 - \frac{1}{2}\delta_2$	$\frac{1}{\sqrt{2}}(+2\rangle - -2\rangle)$

Recentemente, o decaimento de um complexo de biexciton confinado em um ponto quântico foi sugerido como uma possível fonte de pares de fótons emaranhados em polarização [136]. Embora alguns experimentos tenham falhado na demonstração deste princípio [137], recentemente foi obtido o emaranhamento através de um método de filtragem espectral (diminuição da resolução em energia) que recobra a degenerescência do nível de exciton [130].

A existência da energia de estrutura fina no nível de exciton constitui um dos maiores problemas para a realização desta geração de fótons. Neste caso (figura 6.4 (a)) os dois caminhos possíveis para o decaimento do biexciton podem ser distinguidos através de uma medida de energia (mesmo sem uma medida de polarização). Nas próximas seções será mostrado como produzir batimentos quânticos, entre os níveis separados pela estrutura fina, permitindo a medida da energia δ_0 .

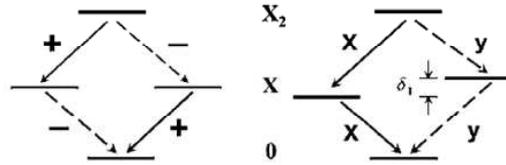


Figura 6.4: (a) Decaimento de um biexciton criando um par de fótons emaranhados. (b) A estrutura fina faz com que os níveis de exciton não sejam degenerados em energia.

Estudos do desdobramento induzido pela interação de troca têm sido reportados utilizando fotoluminescência de um único ponto quântico [61, 83] ou espectroscopia não linear tal como transmissão diferencial [134] e four-wave mixing [138]. Um exemplo da primeira destas técnicas encontra-se na figura 6.5 para três pontos individuais sem campo aplicado.

Utilizando a técnica de rotação de Faraday a campo zero, foi demonstrado que o tratamento térmico pós-crescimento resulta no aumento da largura homogênea e, simultaneamente, na forte redução do desdobramento δ_1 [139]. A amostra de pontos quânticos estudada neste capítulo foi preparada através de um tratamento térmico como descrito no capítulo 4 (seção 4.1.2).

6.2.2 Batimentos quânticos dos níveis de estrutura fina

Se o nível superior de um sistema de dois níveis é separado em dois níveis muito próximos como na figura 6.6, existem mudanças significativas no resultado observado nos experimentos citados na seção anterior. No domínio espectral, duas linhas de absorção serão observadas se a resolução do experimento for melhor do que a separação entre os níveis superiores. No domínio temporal, os dois níveis serão simultânea e coerentemente excitados pelo

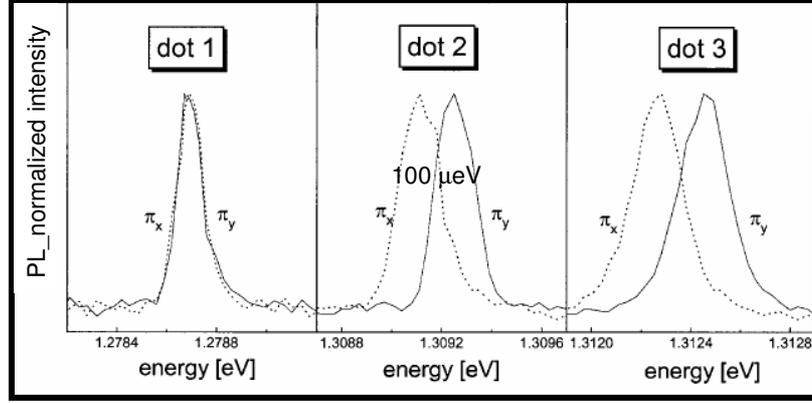


Figura 6.5: Estrutura fina do nível de exciton para pontos quânticos individuais ($\delta_1 \sim 100\mu eV$). Figura extraída da referência [83].

mesmo pulso de laser o qual é suficientemente largo em energia para cobrir as duas transições.

No caso do decaimento livre da polarização dos níveis superiores excitados coerentemente é superposta a uma componente oscilatória, conhecida como batimentos quânticos (quantum beats). O sistema de interesse nesta tese, ensembles de pontos quânticos, apresentam um largura não-homogênea devida à distribuição de tamanhos. Considerando uma distribuição gaussiana das frequências:

$$f(\omega_e) = C \exp\left(-(\omega_e - \omega_{21})^2 / 2(\Delta\omega_{21})^2\right). \quad (6.4)$$

onde ω_{21} é a frequência central (figura 6.6), e $\Delta\omega_{21}$ é a largura da distribuição, o sinal resultante $I(t) \propto \int_0^\infty \cos(\omega_{21}t) f(\omega_{21}) d\omega_{21}$ contém diferentes frequências:

$$I(t) = I_0 \exp\left(-t^2 / 2(T_2^*)^2\right) \cos(\omega_{21}t) \quad (6.5)$$

onde o sinal oscila com frequência central ω_{21} e decai na escala de tempo $T_2^* = 1/\Delta\omega_{21}$.

Contrário ao decaimento de um ensemble homogêneo, caracterizado por uma exponencial linear no tempo ($\exp(-t/\tau)$), observa-se que o decaimento exponencial na equação anterior depende do quadrado do tempo o que mostra

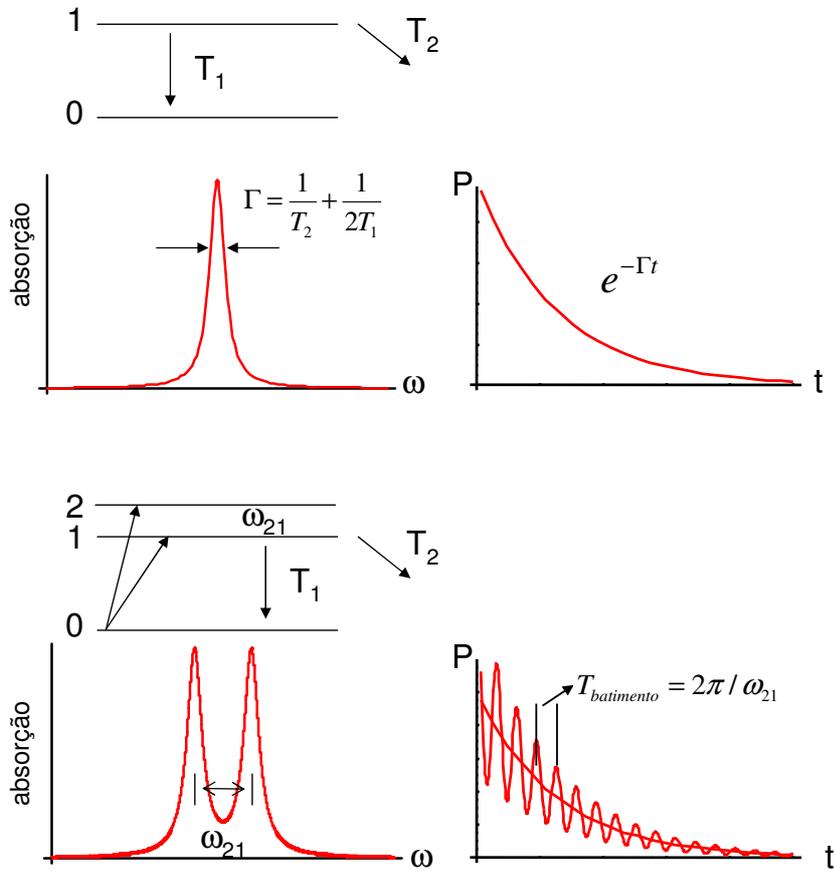


Figura 6.6: Painel superior: Determinação espectral e temporal da defasagem num sistema de dois níveis. Painel inferior: Determinação espectral e temporal da separação entre níveis de um sistema quase-degenerado de três níveis [140].

o assinatura da defasagem não homogênea dada pela distribuição gaussiana [111]. Se $2\pi/\omega_{21} < T_2^*$ então é possível observar as oscilações.

6.3 Medida da defasagem e estrutura fina de estados de exciton

Neste capítulo serão estudado um sistema 0D: pontos quânticos não dopados, e um sistema 2D: wetting layer. Estas medidas foram realizadas na montagem de rotação de Kerr construída na UNICAMP e descrita no capítulo 4 (seção 4.3).

Para efeitos de realizar a excitação ressonante com um laser de Ti:Safira, foi feito um tratamento térmico na amostra de pontos quânticos. Os espectros de emissão incluindo a posição do laser na medidas de bombeio-prova é mostrado na figura 6.7.

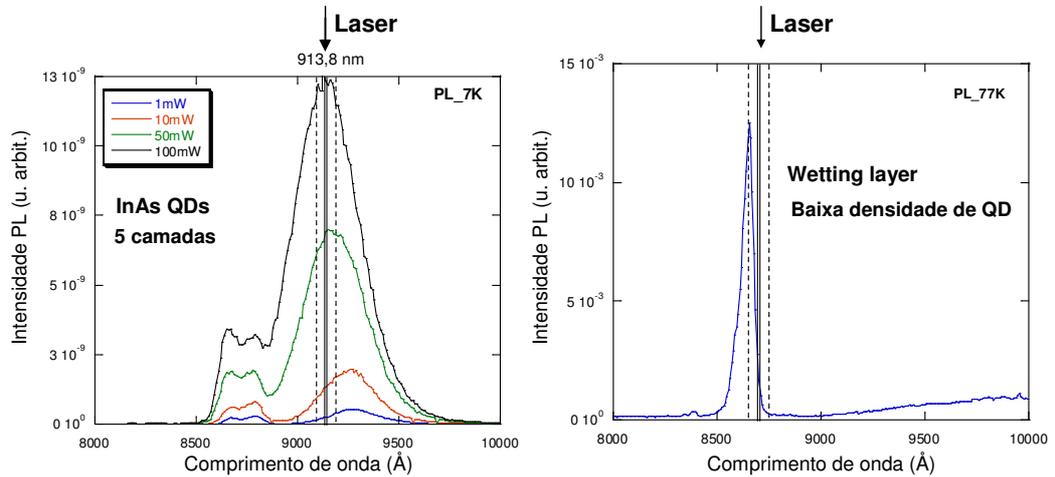


Figura 6.7: Posição do laser com respeito ao espectro de emissão para pontos quânticos e wetting layer.

Os batimentos quânticos observados encontram-se na figura 6.8. Ajustando a equação 6.5 o resultado obtido, para os parâmetros de ajuste encontra-se na tabela 6.2. Com estes pode-se calcular o valores de δ_1 e $\Delta\omega_{21}$ (tabela 6.3).

Para o ensemble de pontos quânticos, os resultados mostram uma alta isotropia no plano da amostra (δ_1 pequeno da ordem de $7 \mu\text{eV}$) e uma distribuição estreita de tamanhos (com $3,5 \mu\text{eV}$ de largura). Esta característica do ensemble permite a alta resolução em energia do experimento. No caso

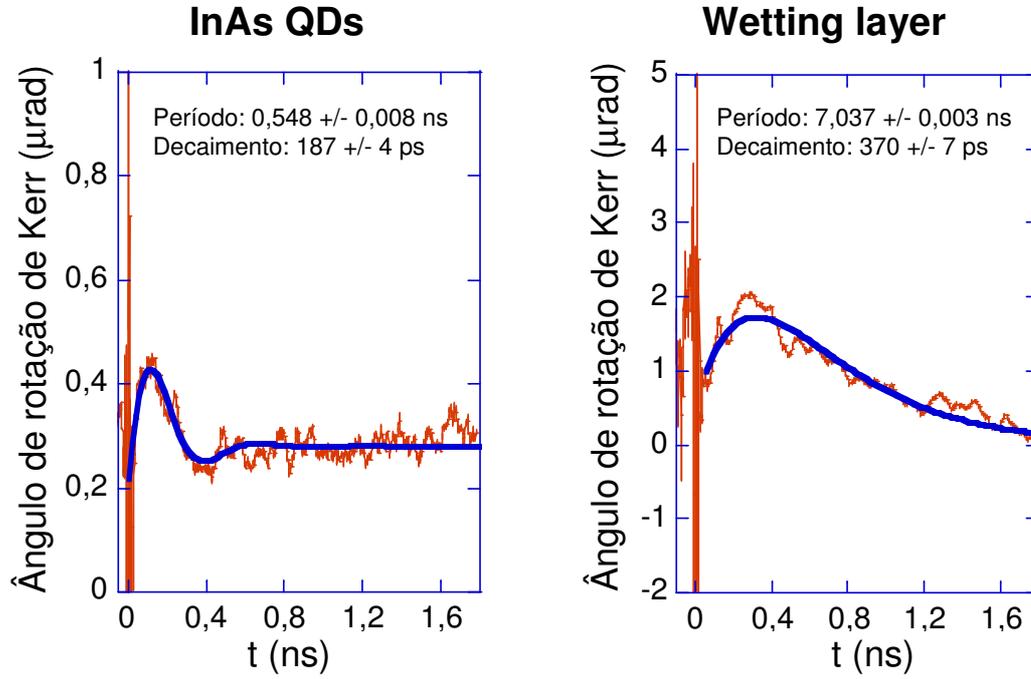


Figura 6.8: Batimentos quânticos produzidos pela superposição de estados de excitons.

Tabela 6.2: Parâmetros dos batimentos quânticos de níveis de estrutura fina de exciton.

	Período de Oscilação $2\pi/\omega_{21}$ (ns)	Tempo de defasagem $T_2^* = 1/\Delta\omega_{21}$ (ps)
QD ensemble	$0,548 \pm 0,008$	187 ± 4
W.Layer	$7,037 \pm 0,003$	370 ± 7

contrario, se a distribuição de fatores de estrutura fosse maior do que δ_1 , não seria possível observar os batimentos quânticos e seria necessário isolar um único ponto quântico como foi feito na figura 6.5. A homogeneidade do ensemble pode ser observada em medidas da morfologia com AFM como ilustrado na figura 6.9.

Como esperado, a comparação com a wetting layer mostra que para um

6.3 Medida da defasagem e estrutura fina de estados de excitação

Tabela 6.3: Fatores de estrutura fina e distribuição no ensemble de pontos quânticos e na wetting layer.

	Estrutura fina $\delta_1 = \hbar\omega_{21}$ (μeV)	Largura distribuição $\hbar(\Delta\omega_{21})$ (μeV)
QD ensemble	7	3,5
W.Layer	0,5	1,7

sistema 2D o valor de δ_1 é menor do que nos pontos quânticos, porém é importante notar como ambas magnitudes são comparáveis. Embora o tempo de defasagem grande para a wetting layer pode evidenciar uma boa uniformidade, a largura da distribuição $\Delta\omega_{21}$ foi maior do que a frequência central ω_{21} . Como consequência, não é possível observar mais do que uma oscilação no sinal de batimento quântico porém ainda é possível inferir a frequência central aproximadamente através do ajuste.

Os valores obtidos concordam com a literatura, para pontos quânticos de InAs com tratamento térmico foi medido um desdobramento de $7 \mu\text{eV}$ por Greilich e colaboradores [139]. Uma energia deste tamanho seria impossível de medir através de fotoluminescência. Na referência [130], a implementação do emaranhamento de pares de fótons foi realizada numa amostra com $\delta_1 = 27 \pm 3 \mu\text{eV}$. Isto coloca a amostra medida dentro dos requerimentos para

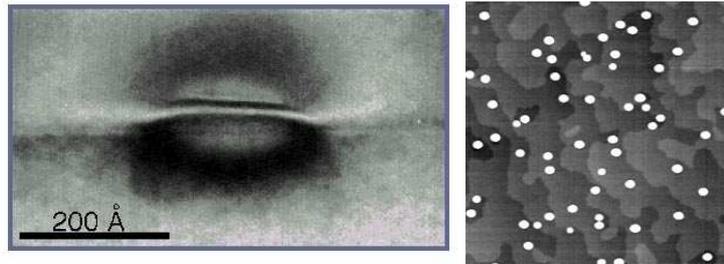


Figura 6.9: Imagens de XTEM e AFM de um ensemble de pontos quânticos de InAs. Esquerda: Imagem em seção transversa de microscopia eletrônica de transmissão de pontos de InAs em GaAs (001). Direita: Varredura de $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ com microscopia de força atômica.

esta implementação.

Capítulo 7

Tempo de decoerência T_2 do spin eletrônico como função da temperatura

Os resultados experimentais obtidos descritos neste capítulo demonstram, utilizando uma técnica de refocalização com pulsos de laser [28], a manipulação da dinâmica do spin em um ensemble de pontos quânticos durante o tempo de coerência de um único spin eletrônico. Num campo magnético transversal, a precessão do spin pode ser controlada mudando os parâmetros do laser de excitação. Por exemplo, o ajuste da taxa de repetição do laser permite observar o decaimento da amplitude do sinal de eco e desta forma obter T_2 em uma medida de T_2^* .

O experimento foi realizado como função da temperatura permitindo demonstrar que a sincronização dos spins eletrônicos, refletida na aparição do sinal de eco, pode ser obtida por esta técnica até 30 K. Dentro deste intervalo de temperatura, foi demonstrado que o tempo de decoerência T_2 permanece constante.

Aplicações de spins eletrônicos no processamento de informação quântica utilizando ensembles de pontos quânticos, sofrem de importantes limitações devido ao curto tempo de defasagem. A utilização da refocalização através de pulsos de laser, conhecida como efeito mode-locking [28], permitiria superar esta limitação do sistema. A frequência de repetição destes pulsos pode ser transferida à evolução dos spins e assim sincronizar as fases dos spins em precessão, resultando na interferência construtiva das contribuições do ensemble num espectro de rotação de Faraday. Foi observado que T_2^* é

aproximadamente 10 ns enquanto T_2 pode chegar a $1\mu s$. Adicionalmente, tem sido mostrado que um trem de pulsos de laser circularmente polarizados é extremamente eficiente para a inicialização do spin [110].

7.1 Resposta de um átomo a um pulso de luz

A solução das equações ópticas de Bloch pode ser obtida para um pulso de excitação retangular. O tratamento teórico desta seção segue a referência [141] com a notação de [39].

Sendo que uma solução geral é complicada, pode se simplificar o problema assumindo que o pulso têm uma frequência de excitação ω que coincide com a frequência atômica ω_0 .

As equações de Bloch no referencial t , ou seja $\frac{d\vec{s}'}{dt} = \vec{\Omega}_e \times \vec{s}'$, são:

$$\begin{aligned}\frac{ds'_1}{dt} &= 0 \\ \frac{ds'_2}{dt} &= \omega_R s'_3 \\ \frac{ds'_3}{dt} &= -\omega_R s'_2\end{aligned}\tag{7.1}$$

onde a primeira das equações garante que o vetor de Bloch se movimenta no plano y', z' .

Pode-se supor que inicialmente o sistema está num estado puro, tal que o comprimento de \vec{s}' é unitário. Considerando:

$$s'_2(t) = [1 - s_2'^2(t)]^{1/2} \sin[\Theta(t) + K]\tag{7.2}$$

onde $\Theta(t)$ é uma nova variável para descrever o ângulo de rotação e K é uma constante, e:

$$s'_3(t) = [1 - s_2'^2(t)]^{1/2} \cos[\Theta(t) + K]\tag{7.3}$$

onde para garantir que $s_1'^2 + s_2'^2 + s_3'^2 = 1$ em todos os momentos; a substituição nas equações de Bloch resulta em:

$$\frac{d\Theta(t)}{dt} = \omega_R(t)\tag{7.4}$$

ou

$$\Theta(t) = \int_{-\infty}^t \omega_R(t') dt' \quad (7.5)$$

Quando K é expresso em termos das condições iniciais, obtém-se as soluções:

$$\begin{aligned} s'_1(t) &= s'_1(-\infty) \\ s'_2(t) &= s'_2(-\infty)\cos\Theta(t) + s'_3(-\infty)\sin\Theta(t) \\ s'_3(t) &= -s'_2(-\infty)\sin\Theta(t) + s'_3(-\infty)\cos\Theta(t) \end{aligned} \quad (7.6)$$

onde $s'_1(-\infty)$, $s'_2(-\infty)$, $s'_3(-\infty)$ são as condições iniciais no momento da incidência do pulso.

A solução representa uma rotação do vetor de Bloch no plano y' , z' em torno do eixo x' num ângulo $\Theta(t)$. A figura 7.1 mostra a esfera de Bloch e a oscilação entre o estado fundamental $|0\rangle$ (ausência de exciton) e um estado excitado $|X\rangle$ (presença de exciton) medida experimentalmente em pontos quânticos.

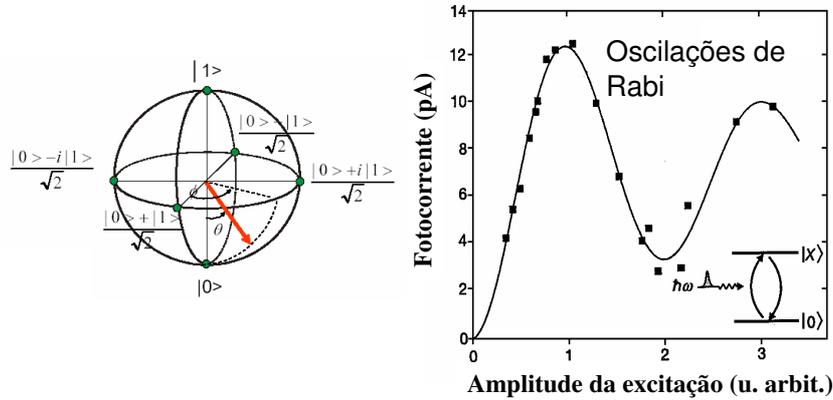


Figura 7.1: Esquerda: O vetor do estado quando gira na esfera deve manter a magnitude unitária para ser um estado puro. Direita: Oscilações de Rabi entre estados $|0\rangle$ e $|X\rangle$ para um pulso com área π em pontos quânticos. A fotocorrente mede a captura em contatos elétricos do par elétron-buraco dissociado. As oscilações são mostradas como função da área do pulso proporcional à raiz potência do laser (medida em mW). Figura direita adaptada da referência [143].

Se a luz é na forma de um pulso com uma amplitude diferente de zero

somente por um período limitado de tempo então, no final do pulso, o vetor de Bloch é girado no ângulo:

$$\Theta(\infty) = \int_{-\infty}^{\infty} \omega_R(t') dt' \quad (7.7)$$

O ângulo $\Theta(\infty)$ (ou simplesmente Θ) é chamado de área do pulso e é proporcional a área sob a envoltória do pulso no domínio temporal. Por exemplo, a área do pulso (a qual é adimensional) pode ser obtida escrevendo a frequência de Rabi em termos do elemento de matriz do dipolo da transição \vec{d} e o campo elétrico da luz \vec{E} como na seção 3.1.1:

$$\Theta = \frac{2}{\hbar} \int (\vec{d} \cdot \vec{E}) dt \quad (7.8)$$

onde dt é a largura temporal do pulso.

Se a largura do pulso é mantida fixa, a área do pulso é proporcional a raiz quadrada da potência de excitação.

Especificamente, se Θ é igual a π e o átomo inicialmente encontra-se no estado fundamental $|0\rangle$, o átomo vai acabar no estado excitado $|1\rangle$ no final do pulso. Este pulso de luz é conhecido como pulso π ou pulso de inversão. Se a área do pulso é 2π , o vetor de Bloch faz uma revolução completa e termina no estado $|0\rangle$. Observe que a rotação é determinada unicamente por Θ seguindo a equação 7.8 e independe da forma do pulso.

7.2 Manipulação coerente do spin

Nesta seção será feita uma revisão do trabalho desenvolvido em [28] e [110] com objetivo de introduzir a técnica de medida do sinal de eco e de T_2 como função da temperatura (nas seções 7.3 e 7.4).

7.2.1 Inicialização

A polarização de spin eletrônico pode ser inicializada utilizando pulsos ressonantes de luz circularmente polarizada sob um campo magnético transversal [142]. Em ensembles de pontos quânticos, mais especificamente na amostra 3 descrita na seção 4.1.2, a demonstração experimental deste efeito já foi realizada em [110] por Greilich e colaboradores. A maneira em que foi possível inicializar a polarização nessa referência constitui o tema desta seção.

Sendo que em [110] foi utilizado um laser de Ti:Safira, foi realizado um tratamento térmico na amostra para deslocar a emissão do estado fundamental (energia 1,398 eV) até uma região acessível com o laser para ter bombeio ressonante. Em semelhança ao experimento do capítulo 5, foi usado um modulador fotoelástico no feixe de bombeio com frequência em 50 kHz para diminuir os efeitos da polarização nuclear dinâmica. A rotação de Faraday foi usada para monitorar a coerência de spin. O campo magnético foi aplicado na geometria de Voigt.

Antes da incidência da luz, o spin residente encontra-se orientado paralelo ou antiparalelo ao campo magnético dependendo do sinal do seu fator g . O feixe de bombeio incide na amostra, ao longo da direção z , levando a excitação de um elétron com spin $S_z^e = -1/2$ e um buraco com $J_z^h = +3/2$ para a excitação σ^+ . Este par elétron buraco em conjunto com o elétron residente formam um exciton carregado negativamente (trion). Batimentos quânticos de spin pronunciados, figura 7.2 superior, foram observados no sinal da rotação de Faraday como função da magnitude do campo aplicado.

O tempo de defasagem T_2^* do ensemble foi determinado ajustando os dados, nas curvas da figura 7.2 superior, por uma função oscilatória, com período dado pelo fator g , com decaimento exponencial. Estes dois parâmetros encontram-se na figura 7.2 (b), (c) e (d) para elétrons e buracos. Para separar frequências diferentes em um mesmo espectro, pode-se realizar uma transformada de Fourier. Especificamente, a oscilação mais lenta no começo dos padrões para atrasos positivos corresponde ao batimento dos buracos [110].

Por exemplo, para a análise da defasagem do ensemble, pode-se considerar o valor medido de $T_2^* = 3$ ns para 0,5 Tesla. No ensemble, a escala tempo curta para T_2^* é determinada pela flutuação de fatores g . Todos os spins começam a precessão com a mesma fase mas, as variações dos fatores g no interior do ensemble, levam à rápida perda da coerência de fase entre os spin que precessam. O tempo de defasagem a campo zero, maior do que qual outro de campo, é determinado pela influência aleatória do campo hiperfino flutuante dos núcleos nos pontos quânticos. Como visto no capítulo 3 (equação 3.28), a predição teórica para o tempo de defasagem da ordem de nanosegundos para o caso de um campo nuclear de Overhauser de 1 mT corresponde aos valores medidos.

A equação que descreve $T_2^*(B)$ é:

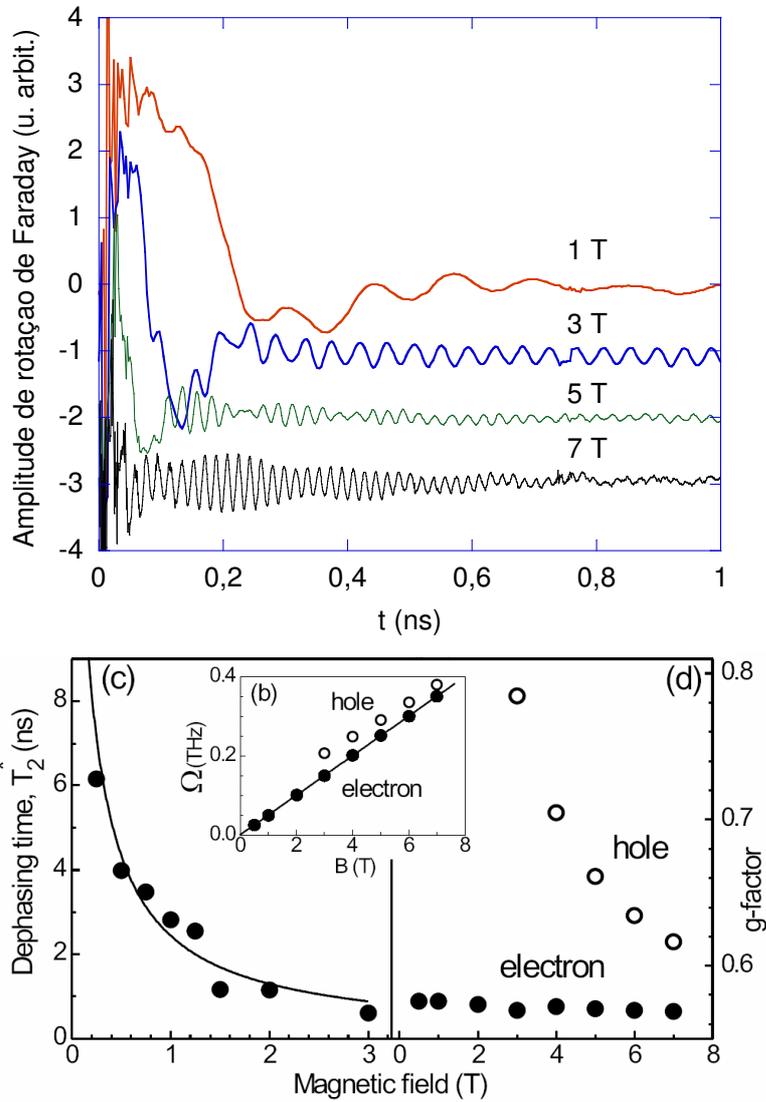


Figura 7.2: Superior: Rotação de Faraday (FR) em um ensemble de pontos quânticos dopados como função da magnitude do campo aplicado. A potência de excitação foi 10 mW. Inferior: (b) Dependência com o campo das frequências de precessão para elétrons e buracos. (c) Tempo de defasagem T_2^* como função do campo (símbolos). A linha corresponde a um ajuste com dependência $1/B$. (d) Fatores g para elétrons e buracos. Figura inferior extraída da referência [110].

$$\frac{1}{T_2^*(B)} = \frac{1}{T_2^*(0)} + \frac{\Delta g \mu_B B}{\sqrt{2}\hbar} \quad (7.9)$$

Um ajuste na figura 7.2 (c) com a equação 7.9 da uma distribuição de fatores g para o elétron de $\Delta g = 0,004 = 0,8\%$ [110].

Sendo que este tipo de espectroscopia óptica mede rotações de polarização induzidas por uma magnetização normal à direção do campo, a orientação do spin do elétron residente teve que ser mudada de alguma forma para poder ser observada. A origem desta mudança de orientação será descrita a seguir nesta seção.

Com o objetivo de estudar a origem da inicialização de spin, é necessário estudar como o spin do elétron residente é girado da sua orientação original à direção perpendicular ao campo magnético. A figura 7.3 mostra o sinal de FR como função da potência de bombeio. A amplitude correspondente é graficada na figura 7.3 (b) como função da área do pulso [110].

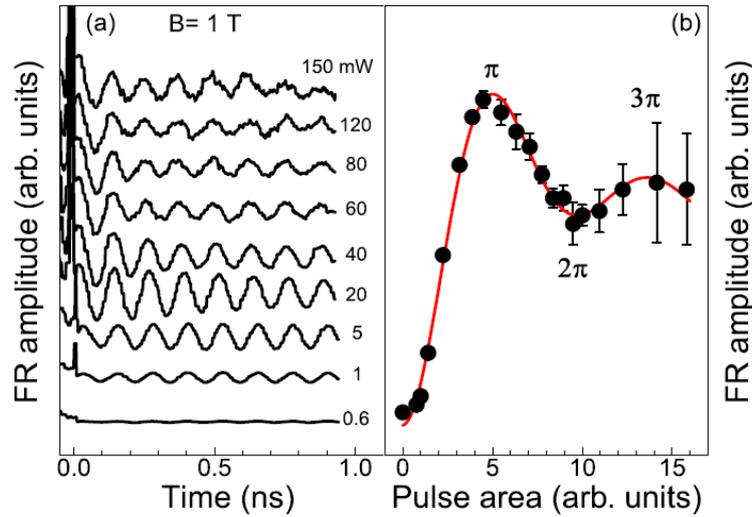


Figura 7.3: (a) Sinal de FR para atrasos pequenos a $B = 1$ T para diferentes potências de bombeio circularmente polarizado. (b) Amplitude da FR vs área do pulso de laser. A linha é uma guia para o olho. Figura extraída da referência [110].

A amplitude, na figura 7.8, mostra um comportamento não-monotônico com o incremento da área do pulso. Primeiro chega a um máximo e depois cai

até aproximadamente 60%. Este comportamento é similar ao conhecido para oscilações de Rabi do vetor de Bloch [143, 144]. A amplitude da FR alcança o máximo quando um pulso de inversão completa de 180° é aplicado ao vetor de Bloch. Devido a esta característica, este pulso é conhecido como pulso π . A amplitude chega no mínimo para um pulso 2π , para o qual o vetor de Bloch é girado em 360° . O amortecimento das oscilações é fortemente devida às não-homogeneidades nas propriedades dos pontos no ensemble, tais como o momento de dipolo [145]. Os resultados na figuras 7.2 e 7.3 são chave para o entendimento da origem da inicialização de spin.

O campo magnético transversal ($\vec{B} \parallel \hat{x}$) leva ao desdobramento nos níveis do spin eletrônico com autoestados de spin paralelo ou antiparalelo à direção do campo $|\pm x\rangle$. Para descrever os estados de spin, pode-se usar os estados de spin *up* e *down* na base de quantização ao longo do eixo z: $|\uparrow\rangle$ e $|\downarrow\rangle$ com $S_z = \pm 1/2$.

Em pontos quânticos neutros, não considerando o buraco para maior simplicidade, os pulsos ópticos criam elétrons com estados $|\uparrow\rangle$ ou $|\downarrow\rangle$ ao longo da direção de propagação da luz, o qual pode ser expresso como superposições coerentes dos autoestados de spin $|\pm x\rangle = (|\uparrow\rangle \pm |\downarrow\rangle) / \sqrt{2}$. Assim, ocorrem batimentos quânticos de spin, os quais correspondem à precessão ao redor de um campo magnético numa imagem clássica. Em pontos neutros, a precessão não pode ser mais longa do que o tempo de vida do exciton. Estes batimentos quânticos foram medidos no capítulo anterior.

Em pontos quânticos dopados, a excitação ressonante leva a formação de trions $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ ou $|\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$, consistindo de dois elétrons formando um estado de singlete e um buraco no estado $|\uparrow\rangle$ ou $|\downarrow\rangle$ com projeção de spin $J_z^h = \pm 3/2$ para luz circularmente polarizada σ^+ ou σ^- respectivamente [146].

Inicialmente, o elétron residente pode ter orientação arbitraria de spin $|\psi\rangle = \alpha|\uparrow\rangle + \beta|\downarrow\rangle$, onde $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$, se o estado de trion não está populado, e $|\alpha|^2 + |\beta|^2 < 1$ caso contrario.

A polarização do spin eletrônico pode ser descrita pelo vetor de spin $\vec{S} = (S_x, S_y, S_z)$ definido por $S_x = \text{Re}(\alpha\beta^*)$, $S_y = -\text{Im}(\alpha\beta^*)$ e $S_z = (1/2)(|\alpha|^2 - |\beta|^2)$. Similarmente, pode-se introduzir o vetor de spin, $\vec{J} = (J_x, J_y, J_z)$, que representa a polarização do trion com estado $|\bar{\psi}\rangle = \bar{\alpha}|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + \bar{\beta}|\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$.

Um pulso de luz curto é um ferramenta muito útil para o controle coerente do spin eletrônico sob campo magnético transversal. Se a largura do pulso é menor do que o tempo de decaimento radiativo e que o tempo de relaxação do spin, o pulso mistura o estados de elétron e de trion em um superposição

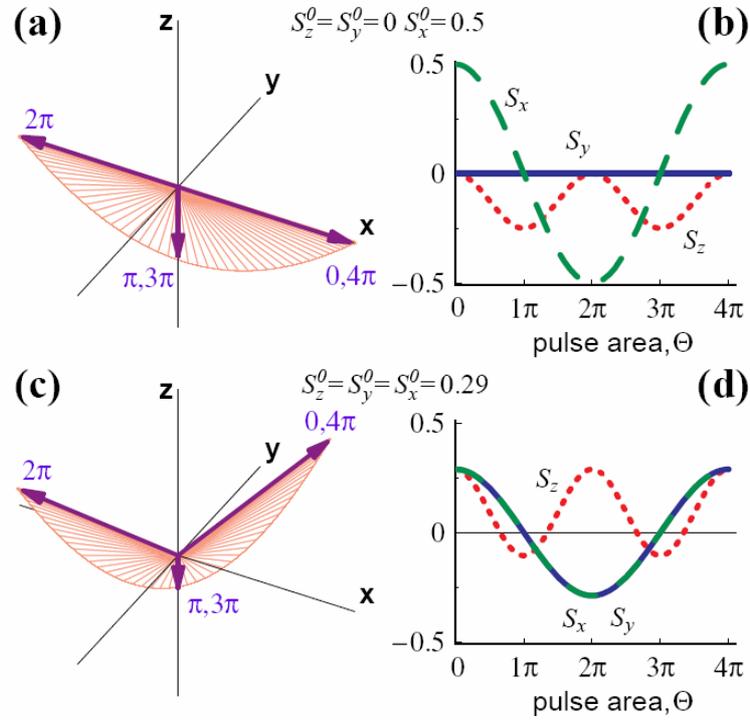


Figura 7.4: (a) e (c): Reorientação da polarização do spin eletrônico pela aplicação de pulsos ópticos ressonantes como função da área do pulso. Os cálculos foram feitos considerando duas configurações iniciais da polarização de spin. (b) e (d): Componente da polarização de spin do elétron vs área do pulso Θ . A direção do campo é orientada ao longo de x. Figura extraída da referência [110].

coerente, a qual não é afetada pela decoerência durante a geração. Isto devido ao fato de que os dois spins eletrônicos no trion estão em uma configuração de singleto, assim não sofrem a influência do campo nuclear. Para um bombeio ressonante controlado, a superposição é unicamente determinada pela área do pulso Θ . Com uma mudança desta área, não somente as populações de elétron e trion são mudadas periodicamente como também a orientação dos vetores de spin e trion, \vec{S} e \vec{J} , é controlada. A evolução do vetor de spin como função de Θ é mostrada na figura 7.4 para duas configurações iniciais: paralela ao campo magnético e uma direção arbitraria [110]. Em ambos casos, um pulso curto σ^+ leva o estado inicial de spin eletrônico:

$$|\psi\rangle = \alpha|\uparrow\rangle + \beta|\downarrow\rangle, \quad (7.10)$$

em uma superposição coerente de elétron e trion:

$$|\psi_{ET}\rangle = \alpha\cos(\Theta/2)|\uparrow\rangle - i\alpha\sin(\Theta/2)|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + \beta|\downarrow\rangle \quad (7.11)$$

Este processo encontra-se esquematizado na figura 7.5.

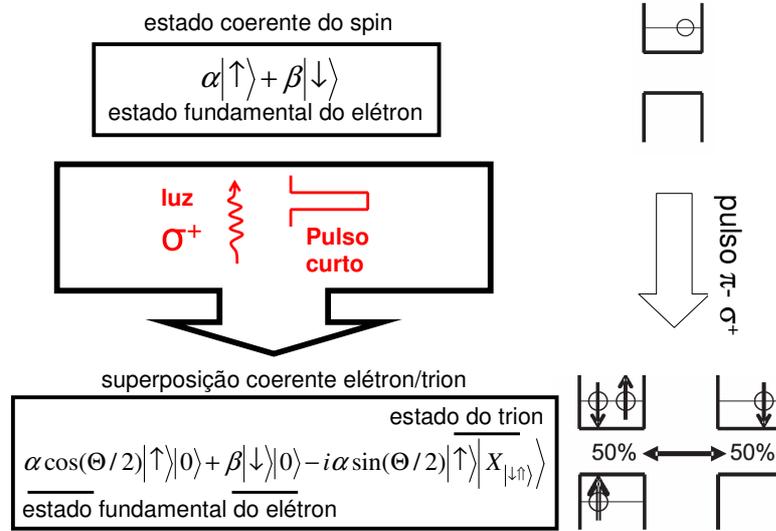


Figura 7.5: Representação esquemática da criação da superposição elétron-trion. A superposição do spin do elétron, com polarização inicial $|+x\rangle$, é orientado ao longo da direção do campo magnético. Após a excitação com luz σ^+ , uma superposição entre o spin $|\downarrow\rangle$ e o trion $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ é criada. O elétron agora está polarizado ortogonal ao campo externo. O sinal de rotação de Faraday é proporcional à fração dos elétrons com polarização de spin $|\downarrow\rangle$, a qual é controlada pela área do pulso Θ . Para um pulso π esta fração é máxima, devido a fato de que todos os elétrons com polarização contrária $|\uparrow\rangle$ estão ligados aos trions.

A mudança induzida pela luz na componente S_z , $|S_z - S_z^0| = |\alpha|^2 \sin^2(\Theta/2)$, varia com a população do estado $|\uparrow\rangle$, e alcança o máximo para pulsos com área $\Theta = (2n + 1)\pi$ independentemente das condições iniciais. Em particular, $S_z[(2n + 1)\pi] = -0.25$ para $S_z^0 = 0$ em concordância com a referência [142]. Também é interessante observar como, ao contrário da componente z , as componentes x e y oscilam tal que a direção de \vec{S} muda entre (S_x^0, S_y^0, S_z^0)

e $(-S_x^0, -S_y^0, S_z^0)$ com período 4π . Isto é devido ao fato de que as componentes $S_{x,y} \sim \cos(\Theta/2)$ descrevem a coerência do estado do spin eletrônico e ambas variam com a fase da função de onda $|\psi_{ET}\rangle$. Note que a rotação de Faraday só mede a componente S_z .

Em outras palavras, assumindo que o estado inicial antes da iluminação com o laser contém (por exemplo) um spin apontando ao longo de $|+x\rangle = (|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle)/\sqrt{2}$, então um pulso π com polarização σ^+ vai injetar um par elétron-buraco com configuração $|\downarrow\uparrow\rangle$ se não for proibido pela exclusão de Pauli. No estado de superposição do spin do elétron $|+x\rangle$, injeção do par elétron-buraco na parte $|\uparrow\rangle$ é possível, enquanto é proibida para a parte $|\downarrow\rangle$. Como consequência, a incidência do pulso cria um estado de superposição de um trion (par elétron-buraco mais parte $|\uparrow\rangle$) e a parte $|\downarrow\rangle$ do estado inicial do elétron: $|ET\rangle = (|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle)/\sqrt{2}$. Este estado de superposição $|ET\rangle$ decai pela recombinação radiativa da primeira componente do trion.

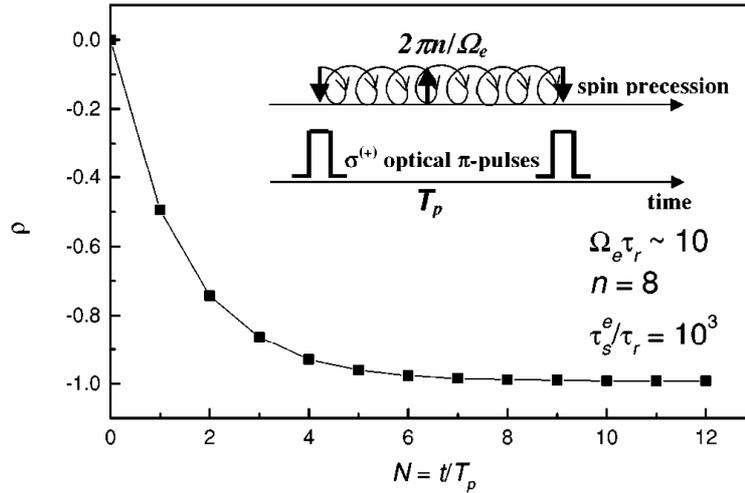


Figura 7.6: Grau de polarização do spin eletrônico como função do número de pulsos π polarizados σ^+ (N). O tempo de coerência do spin eletrônico τ_s^e deve ser maior que o tempo de recombinação do trion τ_r . Na última seção deste capítulo será mostrado que τ_s^e é da ordem de μs no sistema estudado experimentalmente. A frequência denominada Ω_e na figura é chamada de ω_e no texto. Figura extraída da referência [142].

Após o decaimento, o resultado obtido é basicamente ter o elétron resi-

dente com polarização normal ao campo magnético. Como consequência, a precessão do spin em torno do campo é observada. Também, a componente de spin do elétron da parte do trion vai ter alguma contribuição, causando uma redução na polarização total. Porém, pela aplicação subsequente de pulsos de laser a polarização de spin pode ser maximizada. Isto pode ser entendido através da figura 7.6: após a excitação por um pulso π σ^+ a máxima polarização possível de elétrons $|\downarrow\rangle$ é alcançada. Esta polarização começa a precessar em torno do campo magnético. Se a separação dos pulsos de bombeio é $2\pi n/\omega_e$ (na figura como $2\pi n/\Omega_e$), a polarização criada no começo do trem de pulsos não vai ser afetada pelo seguinte pulso de bombeio devido ao bloqueio de Pauli. No tempo entre pulsos, os elétrons ligados aos trions não são afetados pelo campo magnético, fazendo que eles mantenham a polarização. Após a recombinação do trion, o que acontece em momentos diferentes, os elétrons liberados também começam a precessar em torno do campo magnético, e dependendo na polarização eles aumentam ou diminuem a polarização total. No seguinte pulso, menos elétrons são ligados aos trions. Assim, no caso de pulsos $(2n + 1)\pi$, uma dúzia de pulsos são suficientes para criar 99% de polarização de spin [142] (vide figura 7.6). Mais destes pulsos são necessários se a potência de bombeio difere de aquela de um pulso π .

Em contraste a aplicação de um pulso π , um pulso 2π não muda o estado inicial do spin eletrônico uma vez que o vetor de Bloch é girado em 360° o resultado é não ter mudança na população de elétrons e buracos. As componentes S_x e S_y mudam de sinal com período 2π . Isto implica que pulsos 2π podem levar à refocalização da precessão dos spins, muito similar as técnicas de spin-echo [147].

7.2.2 Refocalização da defasagem do ensemble

Como visto no capítulo 3, a falta de homogeneidade num ensemble de pontos quânticos leva a rápida perda de coerência entre as fases dos spin, tipicamente na ordem de nanosegundos [94, 95, 110, 122]. Esta escala, T_2^* , é ordens de magnitude menor que o tempo de coerência de um único ponto quântico o qual pode ser da ordem de microsegundos [27]. A rápida defasagem num ensemble é devida a dois fatores: as flutuações espaciais dos campos nucleares [87, 92] e as não-homogeneidades de fatores g do elétron.

A refocalização por técnicas de spin-eco, também comentada no capítulo 3 (seção 3.3.2), permite reverter o efeito dos fatores que produzem a defasagem [148]. Na figura 7.7 é ilustrado a técnica de medida de spin-eco assim como

o efeito que a seqüência de pulsos utilizados causa nos spins.

Considerando a capacidade de manipular os spins em experimentos de RMN através de pulsos de RF, o fenômeno da refocalização pode ser modelado da seguinte maneira. Considere um Hamiltoniano de dois spins $H = H^{sis} + H^{RF}$, onde $H^{sis} = aZ_1 + bZ_2 + cZ_1Z_2$. Quando uma onda de RF intensa é aplicada na frequência adequada para ressonância, pode-se aproximar $e^{-iHt/\hbar} \approx e^{-iH^{RF}t/\hbar}$ [41]. Esta aproximação vai permitir definir as operações nos spins.

Primeiramente, pode-se definir uma rotação 90° em torno do eixo \hat{x} para o spin 1:

$$R_{x1} = e^{-i\pi X_1/4} \quad (7.12)$$

e similarmente para o spin 2.

Uma rotação 180° seria R_{x1}^2 a qual tem a seguinte propriedade:

$$R_{x1}^2 e^{-iaZ_1t} R_{x1}^2 = e^{iaZ_1t} \quad (7.13)$$

Pulsos 180° (ou pulsos π) aplicados desta maneira são conhecidos como pulsos de refocalização devido a que revertem a evolução temporal temporal. Eles atuam de tal maneira que spins com frequências diferentes e que começaram a precessar em conjunto em algum ponto da esfera de Bloch voltam ao mesmo ponto na esfera de Bloch [41].

Foi demonstrado por Grelich e colaboradores [28] como um técnica para manipular a coerência de spin pode permitir a preservação da coerência de único em medidas realizadas em ensembles de pontos. O objetivo de esta técnica é aplicar pulsos π de luz (em vez de ondas de RF como em NMR) para produzir refocalização. A analogia entre a refocalização em NMR ou no presente sistema pode ser estendida considerando que ambas técnicas medem ensembles de spins. A refocalização por pulsos de luz pode ser de grande importância no processamento de informação quântica em estado sólido, incluindo a inicialização (subseção anterior), manipulação (presente seção) e leitura de um estado de spin coerente. A técnica de manipulação da referência [28] será o assunto central desta seção.

Na figura 7.8, os espectros de FR são mostrados para diferentes campos magnéticos [28]. Para 0 T, uma única oscilação, fortemente amortecida, é observada para atrasos positivos (após a chegada do pulso de bombeio em $t=0$). Nenhum sinal é observado para atrasos negativos ($t<0$). Para o campo de 1 T, batimentos quânticos de spin de longa vida são observados

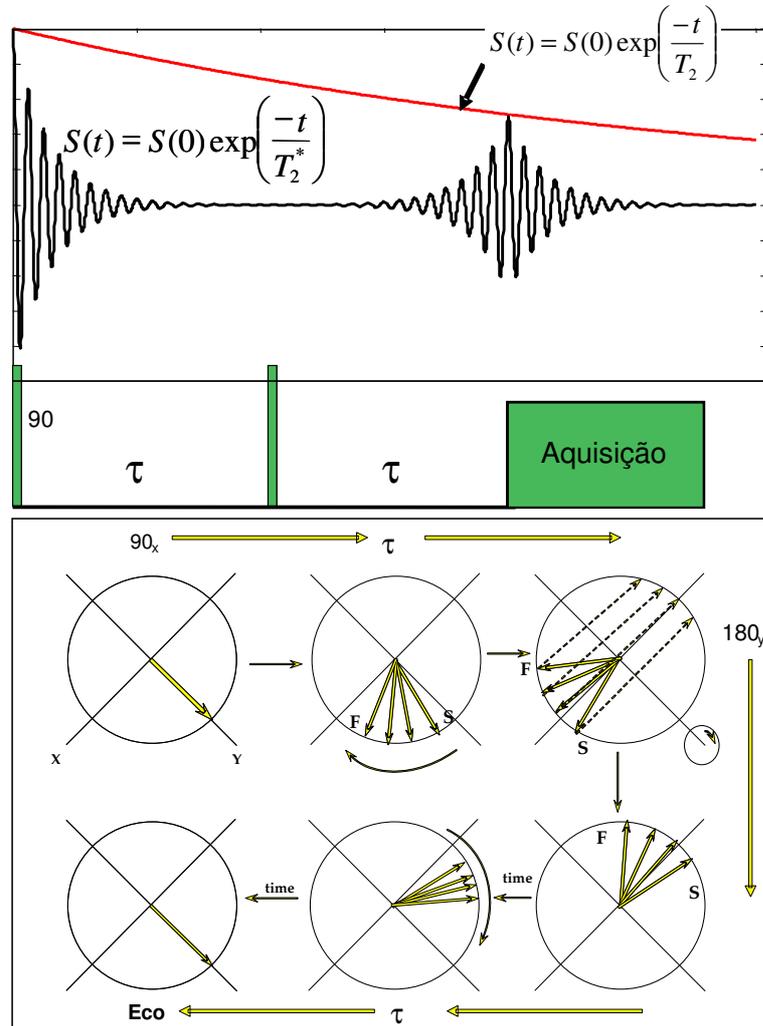


Figura 7.7: Medida de T_2 usando a técnica de spin-echo. Superior: Diagrama de spin-eco convencional mostrando o sinal medido no tempo. Inferior: Sequencia de pulsos utilizados para a refocalização. Um pulso 90°_x derruba a magnetização no plano xy . Após evoluir livremente por um tempo τ , um pulso 180°_y inverte a orientação dos spins de tal forma que o spin que precessa mais rapidamente (F) agora está atrás do spin mais lento (S). Após um tempo τ os spins voltam a se encontrar produzindo um sinal de eco. Graficando a intensidade do eco como função do tempo no qual é feito a aquisição dos dados 2τ pode-se obter T_2 .

para atrasos positivos. Estes batimentos têm um tempo de vida maior do que os 400 ps de tempo de vida dos pares elétron-buraco. A origem destes batimentos, relacionada à precessão dos elétrons residuais, foi discutida na subseção anterior.

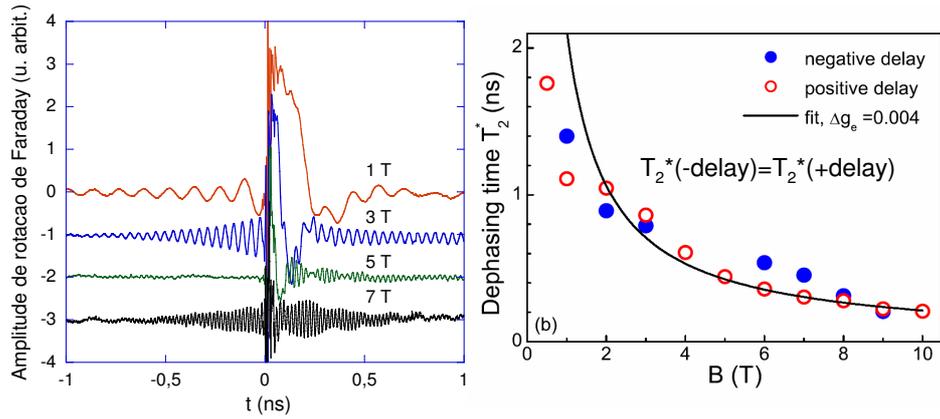


Figura 7.8: Esquerda: Sinal de FR em pontos quânticos de (In,Ga)As/GaAs para diferentes campos magnéticos. A densidade de potência do bombeio é 60 W/cm^2 e da prova é 20 W/cm^2 . Oscilações para intervalos positivos e negativos são observados para campos não nulos. $T_R = 13,2 \text{ ns}$ foi a separação entre os pulsos do laser. Direita: O tempo de defasagem T_2^* é avaliado para atrasos positivos (símbolos abertos) e negativos (símbolos sólidos). A linha corresponde a um ajuste com a equação 7.9 com dependência B^{-1} . O parâmetro de ajuste é a distribuição de fatores g com resultado $\Delta g = 0,004$. Medida realizada 6 K. Figura direita extraída da referência [28].

De maneira inesperada, os fortes batimentos de spin são observados também para atrasos negativos (antes da chegada do pulso de bombeio) em campos não nulos. A amplitude destes batimentos quânticos aumenta quando aproximam $t=0$. Os batimentos quânticos para atrasos negativos têm sido reportados unicamente no caso em que o tempo de decaimento é maior do que o tempo entre pulsos de bombeio. Nestes casos, por exemplo para GaAs bulk dopado moderadamente [114], foi desenvolvida a técnica RSA (resonant spin amplification) para somar as contribuições de pulsos sucessivos mudando o campo externo mantendo fixo o atraso entre o bombeio e a prova. Este claramente não é o caso, o sinal de rotação desaparece após 1,2 ns a 6 T. Os padrões da FR foram analisados para atrasos negativos e positivos como

funções oscilatórias com decaimento exponencial (figura 7.8) [28].

A coincidência entre o tempos de defasagem T_2^* para $t > 0$ e $t < 0$ pode ser interpretada como evidencia de que o sistema responsável pelos padrões deve ser o mesmo: os elétrons residuais nos pontos dopados tipo n. A única maneira de isto acontecer é quando a coerência de spin em cada ponto quântico prevaleça um tempo muito maior do que o intervalo entre os pulsos do laser, além da escala de defasagem do ensemble. Assim, a dependência da amplitude da FR para atrasos negativos com o período de repetição do laser pode fornecer informação do tempo de coerência de um único spin T_2 .

Antes de mostrar o resultado experimental para T_2 como função da temperatura ao mudar o periodo de repetição do laser, pode-se estudar como acontece o fenômeno da sincronização de fase de alguns modos de precessão dentro da distribuição. Este efeito encontra-se ilustrado na figura 7.9.

Primeiro, considere um tem de pulsos π circularmente polarizados. A inicialização da polarização acontece da forma discutida na subseção anterior. O grau de polarização do spin pode ser definida como:

$$P(\omega_e) = 2|S_z(\omega_e)| \quad (7.14)$$

onde $S_z(\omega_e)$ é a projeção em z do spin eletrônico no momento de chegada do pulso.

Têm sido mostrado teoricamente que se o período de pulsos, T_R , é igual a um múltiplo do período de precessão do spin no campo magnético transverso $N \times 2\pi/\omega_e$ com N inteiro, então tal trem de pulsos π produz quase 100% de polarização ao longo da direção de propagação da luz [142]. Como resultado, o grau de polarização de spin alcança o seu máximo valor:

$$P_\pi = \exp\left(-\frac{T_R}{T_2}\right) / \left[2 - \exp\left(-\frac{T_R}{T_2}\right)\right] \quad (7.15)$$

onde $P_\pi = 1$ se $\exp(-T_R/T_2) \sim 1$ ($T_R \ll T_2$).

Um ensemble de pontos quânticos contém alguns QDs com frequências de precessão que satisfazem a condição de sincronização de fase (PSC):

$$\omega_e = N \frac{2\pi}{T_R} \equiv N\Omega. \quad (7.16)$$

Geralmente, vários subconjuntos de pontos quânticos satisfazem a condição da equação 7.16 para diferentes valores N no conjunto total do ensemble. Este fato está ilustrado na figura 7.9, onde o painel A mostra a precessão

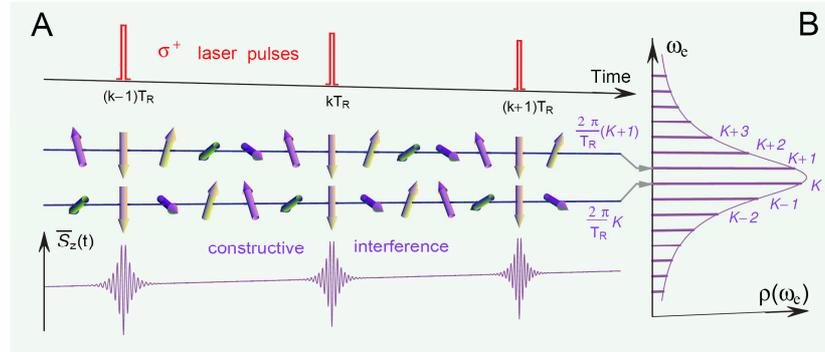


Figura 7.9: Representação esquemática da refocalização por pulsos de laser: efeito mode-locking. (a) O gráfico superior mostra um trem de pulsos π polarizados σ^+ com frequência de repetição T_R . O trem sincroniza os spins nos pontos quânticos com frequências de precessão múltiplas de $(2\pi/T_R)$: $\omega_e = N(2\pi/T_R)$. Nestes pontos, os spins estão alinhados no momento de chegada do pulso: cada spin está oposto à direção de propagação da luz. Os dois gráficos do meio mostram a sincronização de fase para dois spin com frequências de precessão que divergem por $2\pi/T_R$: $N=K$ e $N=K+1$ (onde K é um inteiro grande). O gráfico inferior mostra a evolução temporal da polarização média $\bar{S}_z(t)$, resultado da interferência construtiva das fases dos subconjuntos de pontos sincronizados. (b) Espectro de modos de precessão sincronizados em fase dentro da densidade de frequências de precessão $\rho(\omega_e)$ no ensemble de pontos quânticos. Somente aqueles spins que são sincronizados pelo trem de pulsos contribuem no espectro. Estes formam um conjunto de picos nas frequências $\omega_e = N(2\pi/T_R)$ ($N=\dots,K-1,K,K+1$) os quais satisfazem a condição de sincronização de fase na equação 7.16. Figura extraída da referência [28].

para $N=K$ e $N=K+1$. Os spins em cada subconjunto precessam no intervalo entre pulsos com frequência $N\Omega$, começando com uma fase inicial a qual é mesma para todos os subconjuntos. A contribuição, destes spins, à polarização de spin do ensemble num tempo t após o pulso é $-\frac{1}{2}\cos(N\Omega \times t)$. Como ilustrado em 7.9, a soma dos termos para todos os subconjuntos resulta na interferência construtiva das contribuições no momento de chegada do próximo pulso. O resto dos pontos quânticos não contribui à média da polarização de spin eletrônico $\bar{S}_z(t)$ para tempo $t \gg T_2^*$, devido a defasagem. A média da polarização de spin pode ser escrita como:

$$\bar{S}_z(t) = -\frac{1}{2}\Omega \sum_{N=-\infty}^{\infty} \cos(N\Omega \times t)\rho(N\Omega) \quad (7.17)$$

onde pela definição $\rho(N\Omega) = \rho(\omega_e)$, e $\rho(\omega_e)$ é a densidade de freqüências de precessão dentro do perfil de energia do laser.

Um tratamento teórico completo pode ser achado no Support Online Material da referencia [28] realizado por Al. L. Efros e A. Shabaev.

7.2.3 Experimento com dois pulsos de bombeio

Continuando na revisão da técnica de refocalização, após ter mostrado que um protocolo específico (equação 7.16) permite selecionar um subconjunto de pontos quânticos agora pode-se testar o grau de controle que pode ser alcançado através de tais seqüências. Para tal propósito, o feixe de bombeio é dividido em dois pulsos com atraso fixo entre eles T_D tal que $T_D < T_R$. As medidas para $T_D=1,84$ ns estão graficadas na figura 7.10.

Na figura 7.10, os pulsos de bombeio utilizados têm a mesma intensidade e polarização. Quando os pontos quânticos são expostos a um destes bombeios (curvas superiores), a resposta na FR é idêntica exceto que está deslocada por T_D [28]. O sinal muda completamente quando são usados os dois pulsos de bombeio (curva inferior): Antes da chegada do primeiro pulso a resposta é a mesma do que no experimentos de um pulso de bombeio; antes do segundo pulso o padrão é semelhante ao anterior mas com amplitude maior; após atrasos múltiplos de T_D aparecem sinais de echo. Estes sinais têm forma simétrica e têm tempos de crescimento (rise time) e decaimento (decay time) dado por T_2^* . Observe-se que estes sinais não possuem modulações extra como as observadas para atrasos positivos quando o bombeio é aplicado. Isto concorda com a explicação de que estas modulações vêm de portadores fotogerados, os que recombinaem antes da aparição dos ecos. A figura 7.10 (c) mostra a dependência com o campo magnético.

Em conclusão, ao inserir um trem de pares de pulsos de bombeio, o período de espaçamento T_D destes bombeios determina um novo protocolo de excitação que resulta num fenômeno de sincronização em fase de subconjuntos de spin eletrônicos em precessão. A resposta do eco como função de T_D foi realizada em [150]. Este parâmetro de controle não será discutido, sendo que será estudada a dependência do efeito mode-locking com a com a temperatura T e com taxa de repetição do laser T_R mantendo fixo $T_D=1,84$

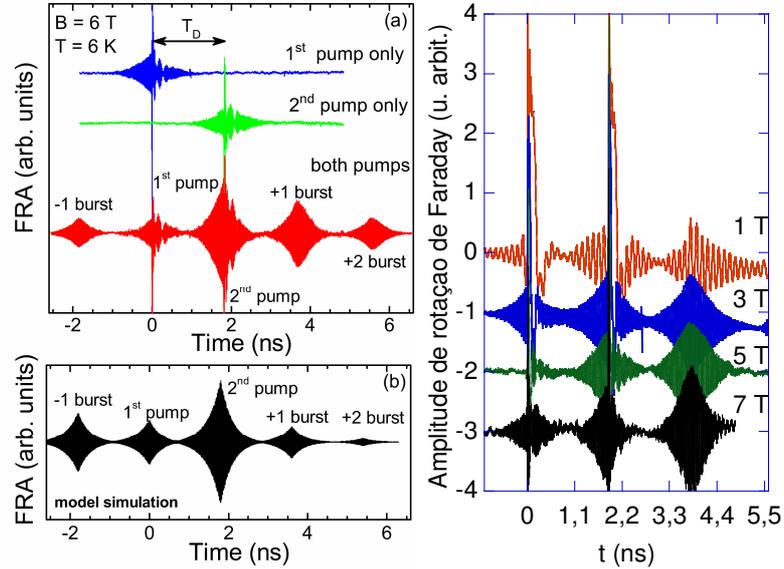


Figura 7.10: Controle da sincronização de spin eletrônicos por dois trens de pulsos de bombeio com $T_R=13,2$ ns deslocados por $T_D=1,84$ ns. Esquerda: (a) Medidas experimentais para a ação individual de cada bombeio (curvas superiores) e a ação conjunta dos pulsos (curva inferior). Os pulsos têm igual intensidade e polarização. A ação conjunta leva à aparição de sinais de eco. (b) Modelo teórico usando $\Theta = \pi$ e $1/\omega_e=3,2\text{GHz}$. Direita: Medidas como função do campo magnético. Figura esquerda extraída da referência [28].

ns.

7.3 Dependência com a temperatura do sinal de eco

Tendo finalizado a revisão da técnica de refocalização que será utilizada, nesta seção será analisada a estabilidade com a temperatura da interferência construtiva que cria o sinal de eco. As medidas que serão descritas a seguir foram realizadas na montagem de rotação de Faraday do grupo de Dortmund em uma configuração semelhante as utilizada em [28].

A interferência construtiva das contribuições dos spin eletrônico só pode ser observada enquanto a coerência dos spins é mantida. Neste aspecto,

estabilidade com a temperatura é de especial importância.

A figura 7.11 mostra os padrões na configuração de dois pulsos para diferentes campos magnéticos.

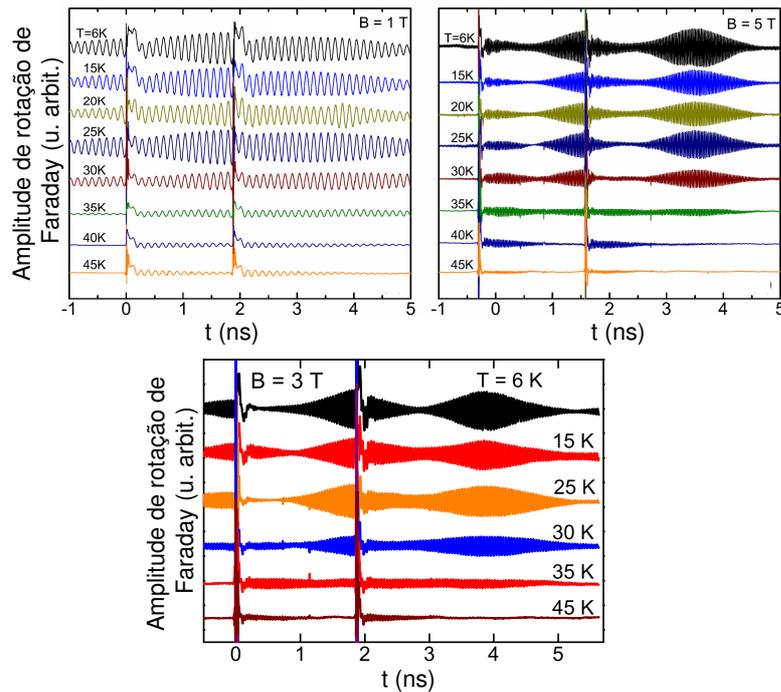


Figura 7.11: FR como função da temperatura para 1, 3 e 5 T na configuração de dois bombeios.

Para efeitos de análise pode-se concentrar na figura 7.11 superior (3 T). Para atrasos positivos e negativos, a amplitude de Faraday num determinado ponto é aproximadamente constante para temperaturas até 30 K. Acima desta temperatura, um decaimento acentuado acontece o qual pode ser relacionado como uma destruição da coerência de spin ativada termicamente. A polarização de spin eletrônico, em pontos quânticos carregados, é inicialmente gerada pela superposição de um elétron e um exciton carregado pelo excitação de pulsos de bombeio ressonantes (vide seção 7.2.1). O decaimento simultâneo dos padrões na FR antes e depois de cada pulso de bombeio, quando o sinal de interferência construtiva é controlado pelo pulso de excitação, sugere que a coerência a altas temperaturas é perdida logo durante a

geração.

A temperatura limite de 30 K corresponde a uma energia de ativação de $k_B T = 2,5 \text{ meV}$. Esta energia pode ser relacionada ao espaçamento entre níveis de buraco menos confinados, devido a fato de que o espaçamento entre níveis de elétrons é da ordem de 20 meV entre o estado s e p em um espectro de fotoluminescência. A decoerência dos níveis de buraco resultam do espalhamento por dois fônons, o que é termicamente ativado e ocorre em um regime de tempo de sub-picosegundos [151]. A comparação entre processos de um ou dois fônons é mostrado na tabela 7.1.

Tabela 7.1: Comparação entre os processos de um e dois fônons a 30 K para as transições intra-dublete dos quatro primeiros dubletos de menor energia de excitons em pontos de GaAs. Nesta temperatura, a decoerência é fortemente dominada por espalhamento por dois fônons [151].

	1 fônon	2 fônons
1-1´	$1,42 \times 10^{-8} \mu\text{eV}$	$0,071 \mu\text{eV}$
2-2´	0,017	0,156
3-3´	0,068	0,418
4-4´	0,021	0,227

O efeito de refocalização mostra que é possível manipular os spins mantendo-se o tempo de coerência de um único spin em medidas realizadas em ensembles de pontos quânticos. Também foi mostrado que o efeito é robusto contra a temperatura até 30 K, possibilitando as medidas a temperaturas acessíveis em criostatos padrão.

Com o objetivo de testar a memória do sistema, pode-se bloquear o segundo pulso de bombeio e observar como o efeito da sincronização do spins (aparição do echo) desaparece [152]. A medida encontra-se na figura 7.12 e demonstra um tempo de persistência da sincronização de minutos. Este resultado implica que, de alguma forma, os spins eletrônicos passam a informação da sincronização para os spin nucleares e estes ajudam a manter a esta informação no sistema por vários minutos através de um mecanismo de realimentação com os spins do elétron. Experimentalmente, neste caso a única forma de reiniciar o sistema é através de zerar o campo externo. Este resultado ainda não está completamente entendido e o mecanismo ainda precisa de estudos teóricos.

Finalmente, como função da temperatura, este decaimento (ajustado por duas constantes τ_1 e τ_2) permanece constante até 30 K.

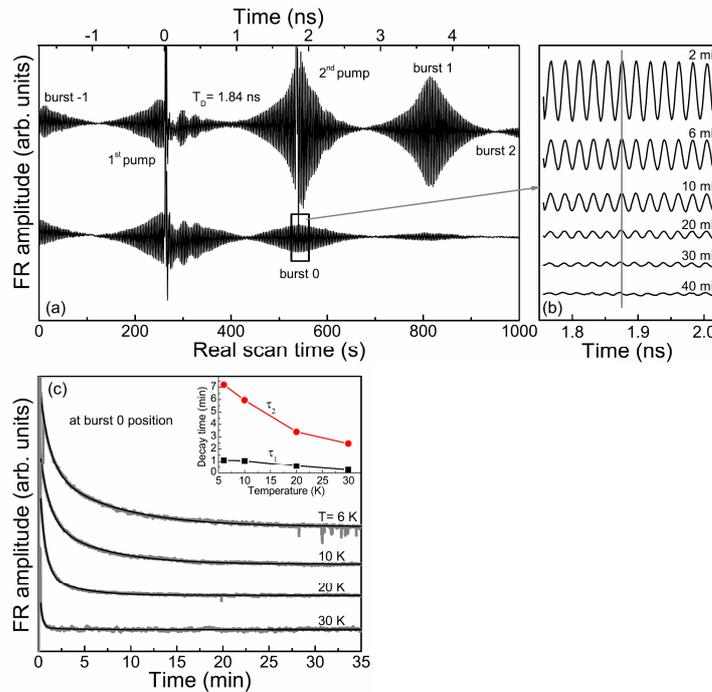


Figura 7.12: (a) Tempos ultralongos do sinal de sincronização. O eixo inferior mostra o tempo real que leva varredura do retrorefletor na linha de atraso. Após 500 segundos o sinal do eco na posição do segundo bombeio ainda é observado. (b) Varreduras curtas ao redor da posição do eco 0 após 2 min com o bombeio fechado, após 6 min, 10 min, etc. (c) Dependência com a temperatura. A linha representa um ajuste com duas exponenciais com parâmetros τ_1 e τ_2). O decaimento permanece aproximadamente constante até 30 K. Medida feita a 6 T. Figura extraída da referência [152].

7.4 Medida de T_2 como função da temperatura

A mudança na taxa de divisão (division rate DR) do período de repetição do laser (13,24 ns), utilizando um *pulse picker*, permite selecionar a porcentagem de pulsos que chegam na amostra. Por exemplo se DR=20 então só 1 de cada

20 pulsos chega na amostra $T_R(20) = 20 \times 13,24ns = 264,8ns$. A medida para 2 K encontra-se ilustrada na figura 7.13.

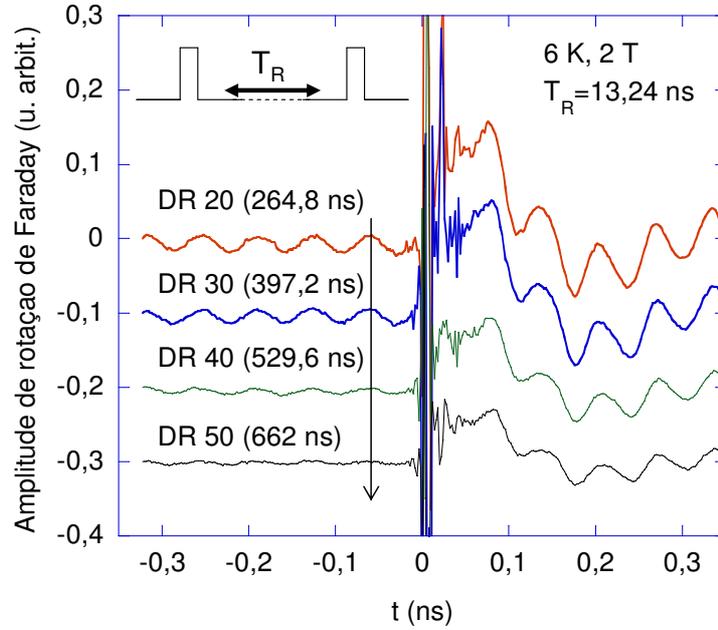


Figura 7.13: Dependência da amplitude da FR para atrasos negativos para 2 K e 2 T como função do período de repetição do laser T_R . A taxa de divisão (DR division rate) quantifica a porcentagem em que se divide o período de repetição original do laser, por exemplo se DR=20 então só 1 de cada 20 pulsos chega na amostra $T_R(20) = 20 \times 13,24ns = 264,8ns$.

Com o objetivo de avaliar a existência de diferentes temperaturas de ativação T_{act} da perda de refocalização, foi medido o sinal de rotação de Faraday (FR) para atrasos negativos como função da temperatura para diferentes valores de DR. O valor de $FR \times DR$ (FR normalizada pela potência média) encontra-se graficado na figura 7.14.

Na introdução deste capítulo foi afirmado que ao aumentar a separação dos pulsos de laser e observar como a refocalização desaparece, para atrasos negativos, seria possível filtrar o valor de T_2 na medida de um ensemble de pontos quânticos. Com o objetivo de medir T_2 como função da temperatura, foi medida a dependência da amplitude de Faraday mudando a taxa de divisão para diferentes temperaturas. Isto é contrário à figura 7.14 onde foi

mantido DR constante e mudada a temperatura, o resultado encontra-se na figura 7.15.

As curvas na figura 7.14 e na figura 7.15 foram ajustadas com decaimentos exponenciais da forma $\exp(-T/T_{act})$ e $\exp(-t/T_2)$, respectivamente.

A figura 7.16 superior mostra T_{act} como função do período de repetição do laser. Desta forma pode-se inferir a energia de ativação do processo de decoerência ($k_B T_{act}$). O aumento observado na energia de ativação com o campo magnético é possivelmente devido ao aumento da energia Zeeman nos níveis confinados.

A figura 7.16 inferior mostra o valor aproximado do tempo de decoerência ($T_2 = 0,4 \mu s$) constante até 20 K. Sendo que não é observada nenhuma mudança significativa com o aumento do campo magnético, fica demonstrado que a influencia da distribuição de fatores g na dependência de T_2^* com o campo magnético não está sendo medida ou, em outras palavras, o efeito do ensemble foi filtrado nesta medida de T_2 .

Em termos do efeito de refocalização, uma característica importante é que o espaçamento dos pulsos foi aumentado até 800 ns sem perder o fenômeno de sincronização.

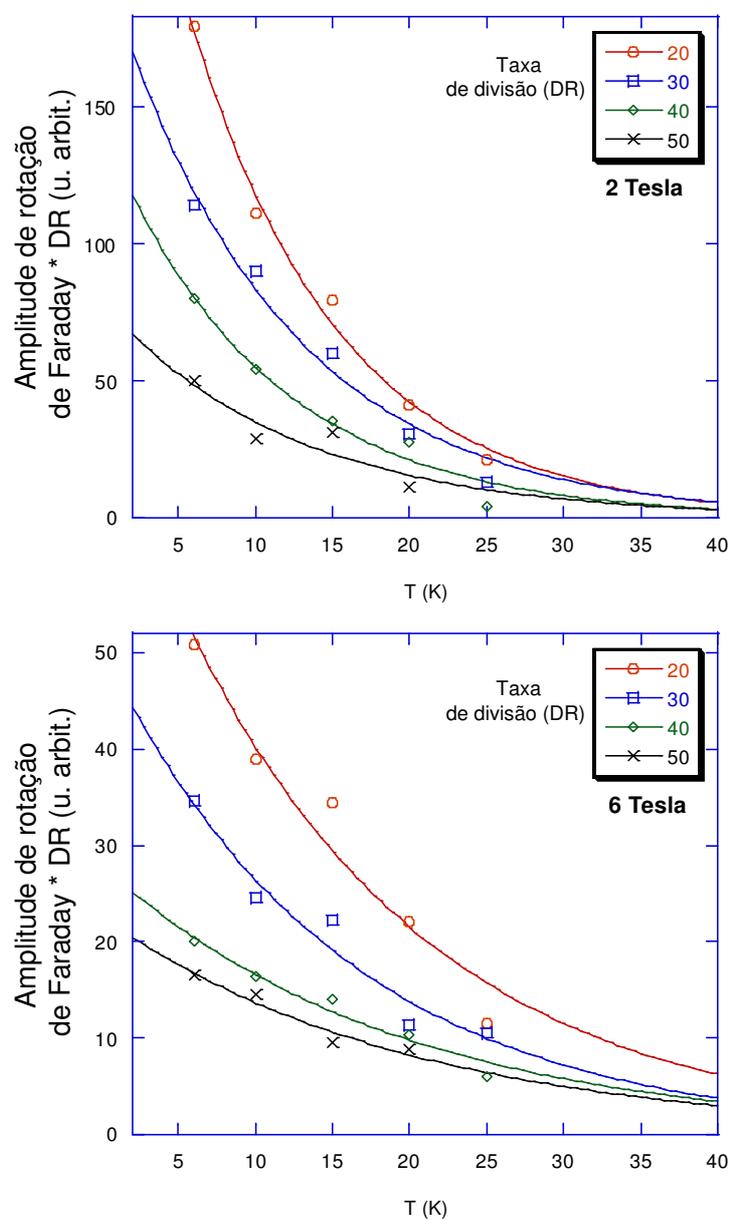


Figura 7.14: Dependência da amplitude da FR para atrasos negativos como função da temperatura para diferentes períodos de repetição do laser T_R em 2 e 6 Tesla. Ao multiplicar $FR \times DR$ pode-se normalizar aos espectros pela potência média. As linhas correspondem a ajustes assumindo que o decaimento é uma função exponencial. A energia de ativação obtida nestes ajustes encontra-se graficada na figura 7.16.

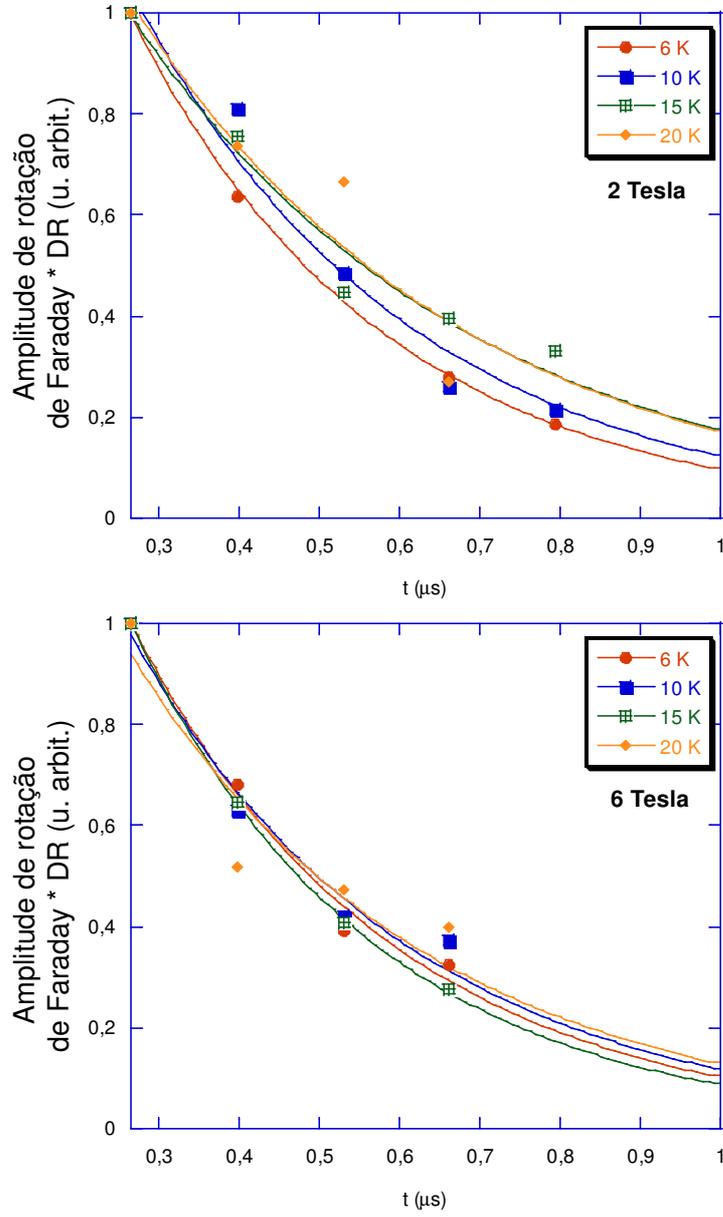


Figura 7.15: Medida de T_2 como função da temperatura para 2 e 6 T. Para cada temperatura foi ajustado um decaimento exponencial.

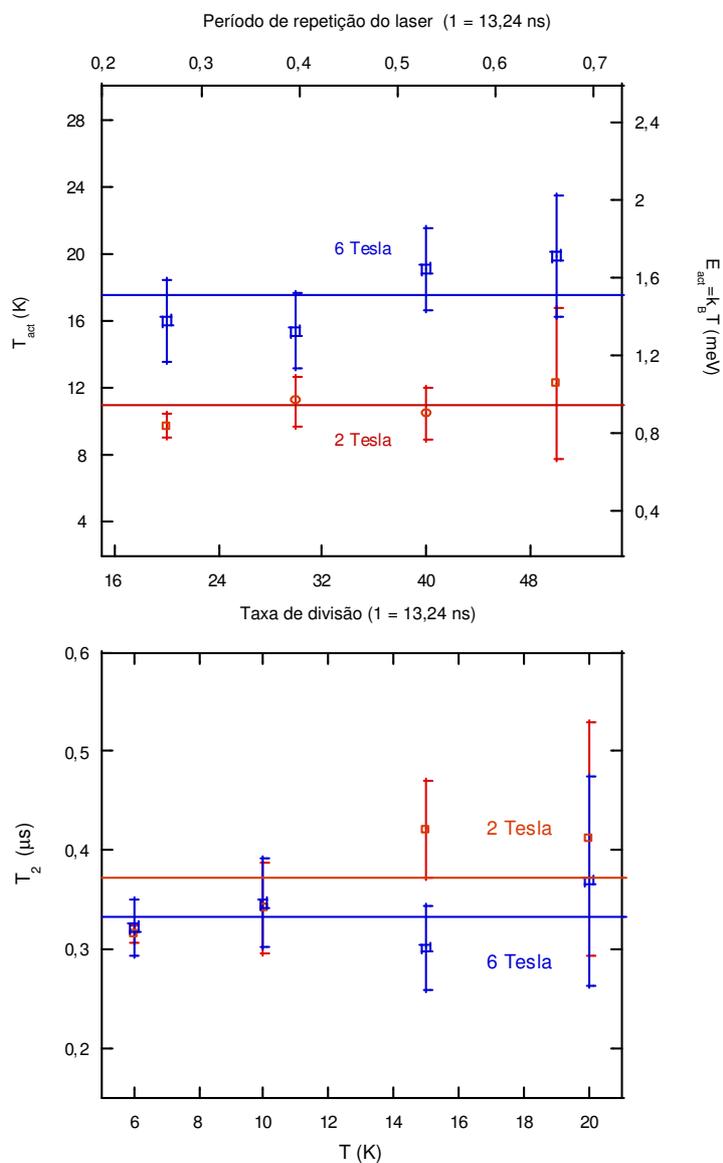


Figura 7.16: Superior: Dependência de T_{act} como função do período de repetição do laser para 2 e 6 T. Inferior: Dependência de T_2 com a temperatura: constante até 20 K. As linhas correspondem aos valores médios para cada campo.

Capítulo 8

Conclusões

8.1 Sumário de escalas de tempo e energias

A rápida defasagem de spins (~ 10 ns) é um dos principais argumentos contra a funcionalidade de dispositivos contendo ensembles de pontos quânticos. Embora o tempo de relaxação (~ 100 ms) e de decoerência em pontos individuais sejam grandes (~ 1 μ s) existem problemas relacionados a medidas em dispositivos de um único ponto quântico. Por exemplo: a dificuldade de crescer amostras com pontos auto-formados com uma energia de confinamento específica e com baixa densidade; intensidade de sinal muito baixa para experimentos ópticos; problemas de ruído em medidas sistemáticas para melhorar a estatística do sinal. Considerando estas dificuldades em experimentos de um único ponto quântico, nesta tese foram demonstradas as características mais importantes do ensemble de pontos quânticos auto-formados como um candidato mais viável para a implementação de computação quântica (vide figura 8.1).

No capítulo 5, foram medidos pontos quânticos que podem ser carregados com elétrons individuais através de um potencial de eletrodo. As populações dos níveis de spin foram medidas para diferentes relações de energia magnética e energia térmica. A polarização líquida foi incluída no cálculo das energias de adição permitindo obter o tensor g de Landé para as camadas s e p . Utilizando os parâmetros medidos, foi inferida uma escala para T_1 de 100 ms a 4 T. Este capítulo representou o estudo do spin num estado parcialmente polarizado no equilíbrio termodinâmico. Em termos da evolução do estado do spin eletrônico, este estado é imediatamente anterior à inicialização

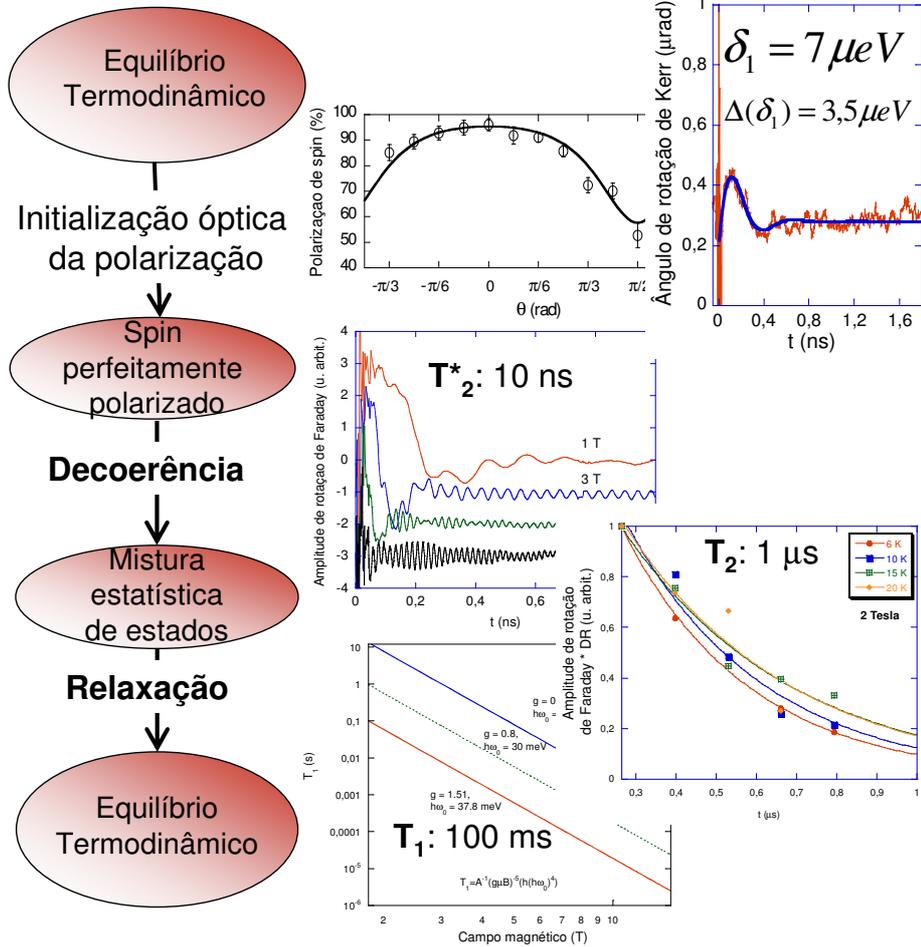


Figura 8.1: Resultados mais significativos desta tese em termos da evolução do estado do spin eletrônico.

de um estado puro perfeitamente polarizado através de pulsos de luz.

Recentemente num experimento óptico foi obtida a anisotropia de fatores g para pontos quânticos menores [153]. Esta referência cita o presente trabalho como complementar considerando a dependência com o tamanho.

No capítulo 6, foram medidos pontos quânticos neutros para estudar a estrutura fina δ_1 dos níveis de exciton. No primeiro caso, foi obtido $\delta_1 = 7 \mu\text{eV}$ com uma distribuição no ensemble de $\Delta(\delta_1) = 3,5 \mu\text{eV}$. O valor medido de

δ_1 concorda com amostras de confinamento semelhante preparadas através de tratamento térmico [139]. Este parâmetro está relacionado com a baixa anisotropia no plano dos pontos dentro de um ensemble homogêneo. A realização do emaranhamento de pares de fótons mediante o decaimento de um biexciton foi demonstrado em pontos quânticos com $\delta_1=27\pm 3\mu\text{eV}$ [130]. Desta forma, a amostra estudada pode servir tais propósitos de informação quântica.

No capítulo 7, foram medidos pontos quânticos dopados com um único elétron. A inicialização da polarização de spin foi demonstrada através da aplicação de pulsos de luz circularmente polarizados sob a ação de campo magnético transversal. A refocalização da defasagem do ensemble foi conseguida utilizando pulsos π ressonantes em analogia a técnica de spin-eco em experimentos de ressonância magnética nuclear. Com esta técnica foi possível obter o tempo de decoerência T_2 em uma medida de T_2^* . Em consequência obtêm-se varias vantagens relacionadas a utilização de um ensemble: boa relação sinal/ruído; não é necessário realizar repetidas vezes uma medida; alta estabilidade com a temperatura. Ao respeito de este último fator é importante comentar que T_2 se manteve constante ao aumentar a temperatura até 25 K para 2 e 6 T.

8.2 Propostas Experimentais

Pelo menos cinco medidas experimentais podem ser realizadas com objetivo de complementar os resultados descritos nesta tese. Elas são:

1. Medida da estrutura fina como função do campo magnético externo

Repetir as medidas de batimentos quânticos por rotação de Kerr na amostra de pontos quânticos neutros de InAs como função do campo externo.

2. Medida da estrutura fina de pontos quânticos de InP

Pontos quânticos de InP possuem uma forma elíptica no plano que poderia implicar em um número grande de oscilações em medidas de batimentos quânticos por rotação de Kerr.

3. Medida do tempo de defasagem em pontos quânticos com alinhamento tipo II.

O fato de que pontos quânticos de InP ter alinhamento de bandas tipo II implica que o confinamento de elétrons e de buracos ocorre em materiais diferentes. O tempo de defasagem poderia ser maior do que em pontos com alinhamento de banda tipo I.

4. Medida do tempo de decoerência como função do número de elétrons no ponto quântico

Repetir a medida de T_2 com a técnica refocalização com pulsos de luz como função do carregamento do ponto quântico. No capítulo 7 a medida foi feita com uma dopagem fixa dos pontos de 1 elétron por ponto quântico. Poderia ser estudado o tempo de decoerência para estados excitados.

5. Ressonância magnética nuclear

Inserir um campo magnético alternado utilizando uma bobina em MHz e detetar a ressonância dos núcleos dos isótopos de Ga, In e As através de rotação de Faraday.

Apêndice A

Curriculum Vitae

Félix Guillermo González Hernández (F. G. G. Hernández)

1. 07 october 1979: Born in San José, Costa Rica.
2. 1992-1996: Bach. Middle Education, Liceo de Heredia, Costa Rica.
3. 1997-2001: Bach. Physics, Universidad de Costa Rica (UCR), Costa Rica.
4. 2002-2003: MSc. Physics, State University of Campinas (UNICAMP), Brazilian Synchrotron Light Source LNLS, Brazil, 2003. Advisor: G. Medeiros-Ribeiro. Thesis: Photocurrent Spectroscopy of InAs Self-assembled Quantum Dots.
5. 2004-2007 PhD. Physics Candidate, State University of Campinas, (UNICAMP), Brazilian Synchrotron Light Source LNLS, Brazil, 2004-2007. Advisor: G. Medeiros-Ribeiro. Thesis: Relaxation and Decoherence Time in Ensembles of Quantum Dots.

Symposiums:

1. Hewlett-Packard Laboratories Quantum Science Research Nanotechnology Symposium, Palo Alto, USA, 2005. Invitation-only meeting. Presentation (POSTER): Landé g-tensor evaluation in semiconductor quantum dots.

Conferences

1. XXX ENFMC, São Lourenço 2007. INVITED Presentation: Control of electron spin coherence in an ensemble of singly charged quantum dots.
2. 13th Brazilian Workshop on Semiconductor Physics (BWSP-13), São Paulo 2007. Presentations (POSTER): a) Robust control of electron spin coherence in an ensemble of singly charged quantum dots; b) Landé g-tensor in semiconductor nanostructures.
3. 28th International Congress on Physics of Semiconductors, ICPS Vienna, Austria 2006. Presentation (POSTER): Landé g-tensor in semiconductor nanostructures.
4. XII Latin American Congress of Surface Science and its applications CLACSA, RJ 2005, Brazil. Co-autor Invited Presentation: g-tensor evaluation of InAs SAQDs.
5. American Physical Society March Meeting, Los Angeles, USA, 2005. Presentation (ORAL): Landé g-tensor evaluation in self-assembled quantum dots.
6. Brazilian MRS Meeting, Foz do Iguaçu, Brazil, 2004. Presentation (POSTER): Energy Shell Structure Properties of Chemically Disordered InAs/GaAs QDs.
7. XXVIII National Meeting on Condensed Matter Physics, Santos, Brazil, 2005. Presentation (ORAL): g-tensor evaluation in SAQDs. Presentation (POSTER): Heterodyne pump-probe detection scheme for semiconductor QDs.

Workshops:

1. European School of Nanotechnology and Nanosciences, Grenoble, France, 2005. Presentation Poster. Practical works: Microfabrication and characterization of MOSFET transistors, Scanning Tunneling Microscopy /

Atomic Force Microscopy, Optimization of nanoimprint lithography on large surfaces, Cathodoluminescence characterization of semiconductor quantum dots, Use of MFM to image the micromagnetic structure of spintronic devices.

2. International Center of Condensed Matter Physics ICCMP "Quantum Computation" Workshop, Brasilia, Brazil, 2004. Presentation (POSTER): Energy Shell Structure Properties of Chemically Disordered InAs/GaAs QDs.
3. 12th Brazilian Workshop of Semiconductor Physics, São Jose dos Campos, Brazil, 2005. Presentation (POSTER): Measurement and control of g-tensor in self-assembled quantum dots.

Scholarships and Fellowships:

1. Deutscher Akademischer Austauschdienst DAAD, March-August 2006. Universitat Dortmund, Supervisor: Prof. Dr. Manfred Bayer.
2. FAPESP, August 2004- August 2007. Nanoscience and New Materials Division, AFM and STM Group, National Synchrotron Light Laboratory LNLS, Brazil. Group Leader: Dr. Gilberto Medeiros Ribeiro. Project: Decoherence in Quantum Dots.
3. CNPq. National Nanotechnology Program, March 2004-August 2004. Nanoscience and New Materials Division, AFM and STM Group, National Synchrotron Light Laboratory LNLS, Brazil. Group Leader: Dr. Gilberto Medeiros Ribeiro.

Apêndice B

Lista de publicações

1. T.P. Mayer Alegre, F.G.G. Hernández, A.L.C. Pereira, G.Medeiros-Ribeiro. "Landé g Tensor in Semiconductor Nanostructures", *Physical Review Letters* **97**, 236402 (8 de Dezembro de 2006). Selecionado para o *Virtual Journal of Nanoscale Science and Technology* (jornal virtual do AIP/APS editado por D. Awschalom) de 18 de dezembro 2006.
2. A. Greilich, M. Wiemann, F.G.G. Hernández, D.R. Yakovlev, I.A. Yugova, and M. Bayer, A. Shabaev and Al. L. Efros, D. Reuter and A.D. Wieck. "Robust manipulation of electron spin coherence in an ensemble of singly charged quantum dots", *Physical Review B* **75** 233301, (6 de Junho de 2007).
3. F.G.G. Hernández, T.P. Mayer Alegre, G.Medeiros-Ribeiro. "Determination of spin polarization in InAs/GaAs self-assembled quantum dots". arXiv:arXiv:0710.4542v1 [cond-mat.mtrl-sci]

Em preparação 2007

1. F.G.G. Hernández, G.Medeiros-Ribeiro. Seção "Superposição e decoerência de estados de exciton" do Capítulo 6.
2. F.G.G. Hernández, A. Greilich, F. Brito, D.R. Yakovlev, M. Bayer, D. Reuter, A.D. Wieck. "Spin coherence dissipation in quantum dots". Medidas do tempo de decoerência de único spin (T_2) com função da temperatura, figura 7.16 do Capítulo 7, e um tratamento teórico de decoerência utilizando o formalismo de Caldeira-Leggett.

Lista de Figuras

1.1	Gato de Schödinger	5
1.2	Sistema e ambiente	6
2.1	Potencial de confinamento lateral para um átomo artificial	14
2.2	Estrutura de camadas eletrônicas.	17
2.3	Gráfico bi-dimensional das possíveis combinações lineares das funções de onda para cada camada eletrônica	18
2.4	Diagrama de um experimento de ressonância magnética nuclear	19
2.5	Exemplos de soluções para as equações de Bloch	23
3.1	Sistema de dois níveis e oscilações de Rabi	26
3.2	Efeito do amortecimento da amplitude na esfera de Bloch.	31
3.3	Efeito do amortecimento da fase na esfera de Bloch.	32
3.4	Decaimento e soma de oscilações coerentes para diferentes val- ores de T_2	33
3.5	Fatores g para materiais bulk.	35
3.6	Anisotropia do fator g para poços quânticos de GaAs/AlGaAs de diferente espessura e composição	36
3.7	Mistura de níveis de spin e acoplamento com fônons.	37
3.8	Medidas experimentais de T_1	42
3.9	Mapa de densidade para a função espectral efetiva do banho de fônons piezo-elétricos.	44
3.10	Interação hiperfina dos núcleos da rede e do spin eletrônico confinado.	45
3.11	Comparação das interações spin-órbita e hiperfina como função do tamanho do ponto quântico	49
4.1	Modos de crescimento de QDs	55

4.2	Espectro de PL após o tratamento térmico	58
4.3	Ocupação de níveis no QD resultado de medidas de capacitância	61
4.4	Modelo e convenção utilizados na obtenção do campo elétrico .	62
4.5	Montagem experimental para espectroscopia de capacitância .	65
4.6	Montagem experimental para mudar o alinhamento do vetor do campo magnético e os eixos da amostras	65
4.7	Montagem experimental para espectroscopia de rotação de Faraday	66
4.8	Rotação de Faraday em poços quânticos perto da ressonância .	67
4.9	Rotação de Faraday em poços quânticos de GaAs como função do campo magnético	68
4.10	Transformada de Fourier do sinal de rotação de Faraday . . .	69
4.11	Detalhes da montagem do Ti:Safira	70
4.12	Desenho esquematizado da cavidade do laser pulsado	71
4.13	Beamsplitter polarizador divide em duas partes o laser pul- sado: bombeio e prova.	72
4.14	Lentes para evitar variações de potência no pump.	73
4.15	Linha de atraso	74
4.16	Modulação da polarização do bombeio.	75
4.17	Pulse shaper	77
4.18	Pulso de laser original (100 fs) e do laser cortado em energia (1 ps).	77
4.19	Filtro espacial do feixe de prova.	78
4.20	Lente para focalizar o pulso de bombeio e prova e Ponte de polarização.	79
4.21	Magneto e criostato	81
4.22	Montagem final	82
5.1	Tunelamento individual de elétrons no ponto quântico.	89
5.2	Energias de adição e polarização para o estado s como função do campo magnético e da temperatura.	91
5.3	Espectros de magneto-capacitância medidas mudando a di- reção do campo magnético em uma varredura polar	94
5.4	Tensor g: Varredura Polar.	96
5.5	Tensor g: Varredura Azimutal.	97
5.6	Mapas de polarização	100
5.7	Escala teórica de T_1 para 2 Kelvin como função do campo magnético.	101

6.1	Esquema para as regras de seleção ópticas	104
6.2	Diagrama dos estados do exciton no ponto quântico no caso de alta e baixa simetria	106
6.3	Desdobramento de estrutura fina dos níveis de exciton induzida pela interação de exchange anisotrópica.	107
6.4	Decaimento de um biexciton criando um par de fótons emaranhados.	108
6.5	Estrutura fina do nível de exciton para pontos quânticos individuais.	109
6.6	Determinação espectral e temporal da defasagem	110
6.7	Posição do laser com respeito ao espectro de emissão	111
6.8	Batimentos quânticos produzidas pela superposição de estados de excitons	112
6.9	Imagens de XTEM e AFM de um ensemble de pontos quânticos de InAs.	113
7.1	Esfera de Bloch e oscilações de Rabi	117
7.2	Rotação de Faraday em um ensemble de pontos quânticos dopados como função da magnitude do campo aplicado.	120
7.3	Rotação de Faraday em um ensemble de pontos quânticos dopados como função da potência de bombeio: Oscilações de Rabi.	121
7.4	Reorientação da polarização do spin eletrônico pela aplicação de pulsos ópticos ressonantes.	123
7.5	Representação esquemática da criação da superposição eletrônica.	124
7.6	Grau de polarização do spin eletrônico como função do número de pulsos π polarizados σ^+ (N).	125
7.7	Medida de T_2 usando a técnica de spin-echo.	128
7.8	Tempo de defasagem para atrasos positivos e negativos: Sinal de sincronização.	129
7.9	Representação esquemática da sincronização: efeito mode-locking.	131
7.10	Mode-locking usando dois pulsos de bombeio.	133
7.11	FR como função da temperatura para diferentes campos magnéticos na configuração de dois bombeios.	134
7.12	Tempos ultralongos do sinal de sincronização.	136
7.13	Dependência da amplitude da FR como função da temperatura para diferentes períodos de repetição do laser T_R	137

7.14	Dependência da amplitude da FR como função da temperatura para diferentes períodos de repetição do laser T_R	139
7.15	Medida de T_2 como função da temperatura.	140
7.16	Dependência de T_{act} como função do período de repetição do laser e de T_2 com a temperatura	141
8.1	Conclusões	144

Lista de Tabelas

1.1	Comparação entre o escalamento do tempo consumido $t(n)$ para os melhores algoritmos clássicos e quânticos conhecidos como função do tamanho da entrada n	2
3.1	Escalas relevantes dos mecanismos de relaxação e decoerência	51
4.1	Tabela de amostras por experimento.	56
4.2	Tabela de crescimento da amostra contendo um ensemble de pontos quânticos de carregamento ajustável por um potencial elétrico.	57
4.3	Tabela de crescimento da amostra contendo um ensemble de pontos quânticos dopados.	59
5.1	Configuração para o preenchimento seqüencial de seis elétrons nas camadas s e p do ponto quântico usada como referencia na obtenção do número quântico J	85
5.2	Parâmetros do potencial de confinamento.	92
5.3	Fatores g de Landé	93
6.1	Autoestados de exciton em estruturas de simetria D_{2d} ou menor.	107
6.2	Parâmetros dos batimentos quânticos de níveis de estrutura fina de exciton.	112
6.3	Fatores de estrutura fina e distribuição no ensemble de pontos quânticos e na wetting layer.	113
7.1	Processos de um e dois fônons a 30 K em pontos de GaAs. . .	135

Bibliografia

- [1] P. W. Shor, Proc. 35th Symposium on the Foundations of Computer Science (IEEE Computer Society Press, Los Alamitos, CA, 1994).
- [2] A. Ekert and R. Jozsa, Quantum computation and Shor's factoring algorithm. *Rev. Mod. Phys.* **68**, 733 (1996).
- [3] L. K. Grover, Quantum Mechanics Helps in Searching for a Needle in a Haystack. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 325 (1997).
- [4] Experimental Proposals for Quantum Computation, edited by S. Braunstein and H.-K. Lo (Wiley, Berlin, 2000), Vol. 48, Special Focus Issue of Fortschritte der Physik.
- [5] J. I. Cirac and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4091 (1995).
- [6] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4714 (1995).
- [7] T. Pellizzari, S. A. Gardiner, J. I. Cirac, and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3788 (1995).
- [8] Q. A. Turchette, C. J. Hood, W. Lange, H. Mabuchi, and H. Kimble, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4710 (1995).
- [9] D. Cory, A. Fahmy, and T. Havel, *Proc. Nat. Acad. Sci. U.S.A.* **94**, 1634 (1997).
- [10] I. L. Chuang, N. A. Gershenfeld, and M. Kubinec, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3408 (1998).
- [11] J. A. Jones, M. Mosca, and R. H. Hansen, *Nature* **393**, 344 (1998).

-
- [12] E. Knill, R. Laflamme, R. Martinez, and C.-H. Tseng, *Nature* 404, 368 (2000).
- [13] B. E. Kane, *Nature* 393, 133 (1998).
- [14] R. Vrijen, E. Yablonovitch, K. Wang, H. W. Jiang, A. Balandin, V. Roychowdhury, T. Mor, and D. DiVincenzo, *Phys. Rev. A* 62, 012306 (2000).
- [15] C. H. W. Barnes, J. M. Shilton, and A. M. Robinson, *Phys. Rev. B* 62, 8410 (2000).
- [16] A. Barenco, D. Deutsch, A. Ekert, and R. Josza, *Phys. Rev. Lett.* 74, 4083 (1995).
- [17] R. Landauer, *Science* 272, 1914 (1996).
- [18] J. A. Brum and P. Hawrylak, *Superlattices and Microstructures* 22, 431 (1997).
- [19] P. Zanardi and F. Rossi, *Phys. Rev. Lett.* 81, 4752 (1998).
- [20] T. Tanamoto, *Phys. Rev. A* 61, 022305 (2000).
- [21] D. Averin, *Solid State Commun.* 105, 659 (1998).
- [22] A. Shnirman, G. Schon, and Z. Hermon, *Phys. Rev. Lett.* 79, 2371 (1997).
- [23] T. P. Orlando, J. E. Mooij, L. Tian, C. H. van der Wal, L. Levitov, S. Lloyd, and J. J. Mazo, *Phys. Rev. B* 60, 15398 (1999).
- [24] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter, J.J. Finley, Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots. *Nature* **432**, 81 (2004).
- [25] J.M. Elzerman, R. Hanson, L.H. Willems van Beveren, B. Witkamp, L.M.K. Vandersypen, and L.P. Kouwenhoven, Single-shot read-out of an individual electron spin in a quantum dot. *Nature* **430**, 431 (2004).
- [26] R. Landauer, Irreversibility and heat generation in the computing process. *IBM J. Res. Dev.*, 5:183 (1961).

- [27] J.R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson, A. C. Gossard, Coherent manipulation of coupled electron spins in semiconductor quantum dots. *Science* **309**, 2180 (2005).
- [28] A. Grelich, D. R. Yakovlev, A. Shabaev, Al. L. Efros, I. A. Yugova, R. Oulton, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck, M. Bayer, Mode Locking of Electron Spin Coherences in Singly Charged Quantum Dots. *Science* **313**, 341 (2006).
- [29] F. Bloch, Nuclear Induction. *Phys. Rev.* **70**, 460 (1946).
- [30] A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard, L. Jacak, Electronic structure and magneto-optics of self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B* **54**, 5604 (1996).
- [31] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Europhys. Lett* **36**, 197 (1996); R. J. Warburton, C. S. Durr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997); S. Raymond, S. Studenikin, A. Sachrajda, Z. Wasilewski, S. J. Cheng, W. Sheng, P. Hawrylak, A. Babinski, M. Potemski, G. Ortner, and M. Bayer, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 187402 (2004).
- [32] L. He, A. Zunger, Multiple charging of InAs/GaAs quantum dots by electrons or holes: addition energies and ground-state configurations. *Phys. Rev. B* **73**, 115324 (2006).
- [33] A. J. Williamson, L.-W. Wang, and A. Zunger, Theoretical interpretation of the experimental electronic structure of lens-shaped self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **62**, 12963 (2000).
- [34] R. Magri and A. Zunger, Effects of interfacial atomic segregation and intermixing on the electronic properties of InAs/GaSb superlattices. *Phys. Rev. B* **65**, 165302 (2002).
- [35] S. Flügge, Practical Quantum Mechanics (Springer-Verlag, Berlin, 1971).
- [36] M. Abramowitz and I. A. Stegun, Handbook of Mathematical Functions (Ed: Dover, New York, 1972).

- [37] Massimo Rontani, Tese de Doutorado, Università degli Studi di Modena e Reggio Emilia, Modena, Italia (1999).
- [38] H. C. Torrey, Bloch Equations with Diffusion Terms. *Phys. Rev.* **104**, 563 (1956).
- [39] P. Borri, Coherent light-matter interaction in semiconductor quantum dots (Shaker Verlag GmbH, 2003).
- [40] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions* (JohnWiley and Sons, New York, 1992).
- [41] M. A. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information* (Cambridge University Press, UK, 2000).
- [42] G. Dresselhaus, Spin-orbit coupling effects in zinc blende structures. *Phys. Rev.* **100**, 580 (1955).
- [43] M. I. Dyakonov and V. Yu. Kachorovskii, Spin relaxation of two-dimensional electrons in noncentrosymmetric semiconductors. *Sov. Phys. Semicond.* **20**, 110 (1986).
- [44] E. I. Rashba, Properties of semiconductors with an extremum loop. Cyclotron and combinational resonance in a magnetic field perpendicular to the plane of the loop. *Sov. Phys. Solid State* **2**, 1109 (1960).
- [45] Yu. A. Bychkov and E. I. Rashba, Properties of a 2D electron-gas with lifted spectral degeneracy. *JETP Lett.* **39**, 78 (1984).
- [46] Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions, A. Abragam, Clarendon Press, Oxford, 1970.
- [47] L. M. Roth et al, Theory of Optical Magneto-Absorption Effects in Semiconductors. *Phys. Rev.* **114**, 90 (1959).
- [48] R. J. Elliot, Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors. *Phys. Rev.* **96**, 266 (1954).
- [49] For example, C. Weisbuch and C. Hermann, Optical detection of conduction-electron spin resonance in $GaAs$, $Ga_{1-x}In_xAs$, and $Ga_{1-x}Al_xAs$. *Phys. Rev. B* **15**, 816 (1977).

- [50] E. L. Ivchenko and G. E. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures* (Springer, New York, 1997).
- [51] H. Kosaka, A.A. Kiselev, F.A. Baron, Ki Wook Kim, and E. Yablonovitch, Electron g factor engineering in III-V semiconductors for quantum communications *Electronics Letters* **37**, 464 (2001).
- [52] F. G. Anderson et al., EPR investigation of Pt- in silicon. *Phys. Rev. B* **45**, 3279 (1992).
- [53] L. M. Roth, g Factor and Donor Spin-Lattice Relaxation for Electrons in Germanium and Silicon. *Phys. Rev.* **118**, 1534 (1960).
- [54] C. Calero et al., Field Dependence of the Electron Spin Relaxation in Quantum Dots *Phys. Rev. Lett.* **95**, 166603 (2005).
- [55] A. Malinowski et al., Anisotropy of the electron g factor in lattice-matched and strained-layer III-V quantum wells. *Phys. Rev. B* **62**, 2051 (2000).
- [56] M. Oestreich et al., Extreme Anisotropy of the g-Factor in Quantum Wires. *Europhys. Lett.* **31**, 399 (1995).
- [57] I. A. Yugova, A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. A. Kiselev, M. Bayer, V. V. Petrov, Yu. K. Dolgikh, D. Reuter, and A. D. Wieck, Universal behavior of the electron g factor in $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells. *Phys. Rev. B* **75**, 245302 (2007).
- [58] J. R. Petta and D. C. Ralph, Measurements of Strongly Anisotropic g Factors for Spins in Single Quantum States. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 156802 (2002); J. R. Petta and D. C. Ralph, Studies of Spin-Orbit Scattering in Noble-Metal Nanoparticles Using Energy-Level Tunneling Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 266801 (2001).
- [59] S. Lindemann et al., Stability of spin states in quantum dots. *Phys. Rev. B* **66**, 195314 (2002).
- [60] R. Hanson, B. Witkamp, L. M. K. Vandersypen, L. H. Willems van Beveren, J.M. Elzerman, and L.P. Kouwenhoven, Zeeman Energy and Spin Relaxation in a One-Electron Quantum Dot. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 196802 (2003).

- [61] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke and S. N. Walck, Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in $In_{0.60}Ga_{0.40}As$ Quantum Dots. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1748 (1999).
- [62] A. R. Goñi et al., Magnetoluminescence Study of Annealing Effects on the Electronic Structure of Self-organized InGaAs/GaAs Quantum Dots. *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, 3907-3914 (2000).
- [63] G. Medeiros-Ribeiro, M. V. B. Pinheiro, V. L. Pimentel, and E. Marega, Spin splitting of the electron ground states of InAs quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **80**, 4229 (2002).
- [64] G. Medeiros-Ribeiro, E. Ribeiro, and H. Westfahl Jr., g-factor engineering and control in self-assembled quantum dots. *Appl. Phys. A* **77**, 725 (2003).
- [65] C. E. Pryor, and M. E. Flatté, Landé g Factors and Orbital Momentum Quenching in Semiconductor Quantum Dots. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 026804 (2006).
- [66] A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov, Spin relaxation in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B* **61**, 12639 (2000).
- [67] A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov, Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B* **64**, 125316 (2001).
- [68] L. M. Woods, T. L. Reinecke, Y. Lyanda-Geller, Spin relaxation in quantum dots. *Phys. Rev. B* **66**, 161318(R)(2002).
- [69] R. Hanson, L. H. Willems van Beveren, I. T. Vink, J. M. Elzerman, W. J. M. Naber, F. H. L. Koppens, L. P. Kouwenhoven, and L. M. K. Vandersypen, Singleshot readout of electron spin states in a quantum dot using spin-dependent tunnel rates. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 196802 (2005).
- [70] T. Fujisawa, D.G. Austing, Y Tokura, Y. Hirayama, and S. Tarucha, Allowed and forbidden transitions in artificial hydrogen and helium atoms. *Nature* **419**, 278 (2002).

-
- [71] S. Sasaki, T. Fujisawa, T. Hayashi, and Y. Hirayama, Electrical Pump-and-Probe Study of Spin Singlet- Triplet Relaxation in a Quantum Dot. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 056803 (2005).
- [72] S. Amasha, K. MacLean, I. Radu, D. M. Zumbuhl, M. A. Kastner, M. P. Hanson, A. C. Gossard, condmat/0607110.
- [73] T. Meunier, I. T. Vink, L. H. Willems van Beveren, K-J. Tielrooij, R. Hanson, F. H. L. Koppens, H. P. Tranitz, W. Wegscheider, L. P. Kouwenhoven, and L. M. K. Vandersypen, Experimental signature of phonon-mediated spin relaxation. cond-mat/0609726.
- [74] T. Fujisawa, Y. Tokura, Y. Hirayama, Transient current spectroscopy of a quantum dot in the Coulomb blockade regime. *Phys. Rev. B* **63**, 081304(R) (2001).
- [75] N. Borhani, V.N. Golovach, D. Loss, Spin decay in a quantum dot coupled to a quantum point contact. *Phys. Rev. B* **73**, 155311 (2006).
- [76] F. Marquardt, V.A. Abalmassov, Spin relaxation in a quantum dot due to Nyquist noise. *Phys. Rev. B* **71**, 165325 (2005).
- [77] Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter. Semiconductors Volume 17 Subvolume a Physics of Group IV Elements and III-V Compounds (Springer-Verlag, ISBN 3-540-10610-3, 1982).
- [78] T. Fujisawa, T.H. Oosterkamp, W.G. van der Wiel, B.W. Broer, R. Aguado, S. Tarucha, L.P. Kouwenhoven, *Science* **282**, 932 (1998).
- [79] V. I. Fal'ko, B. L. Altshuler, and O. Tsyplyatyev, Anisotropy of Spin Splitting and Spin Relaxation in Lateral Quantum Dots, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 076603 (2005).
- [80] U. Bockelmann, Phonon scattering between zerodimensional electronic state: spatial versus Landau quantization. *Phys. Rev. B* **50**, 17271 (1994).
- [81] D.V. Bulaev and D. Loss, Spin relaxation and anticrossing in quantum dots: Rashba versus Dresselhaus spin-orbit coupling. *Phys. Rev. B* **71**, 205324 (2005).

- [82] V. N. Golovach, A. V. Khaetskii, D. Loss, Phononinduced decay of the electron spin in quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 016601 (2004).
- [83] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, and A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, and K. Hinzer, T. L. Reinecke and S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer, Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **65**, 195315 (2002).
- [84] R. Oulton, et al. Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled Stranski-Krastanow quantum dots. *Phys. Rev. B* **68**, 235301 (2003).
- [85] R. Hanson, L. P. Kouwenhoven, J. R. Petta, S. Tarucha, M. K. Vandersypen, Spins in few-electron quantum dots, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 1217 (2007).
- [86] H. Westfahl Jr., A. O. Caldeira, G. Medeiros-Ribeiro, and M. Cerro, Dissipative dynamics of spins in quantum dots. *Phys. Rev. B* **70**, 195320 (2004).
- [87] I. A. Merkulov, A. L. Efros, J. Rosen, Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B* **65**, 205309 (2002).
- [88] R. Oulton, A. Grelich, S.Yu. Verbin, R.V. Cherbunin, T. Auer, D. R. Yakovlev, M. Bayer, I. A. Merkulov, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck, Subsecond Spin Relaxation Times in Quantum Dots at Zero Applied Magnetic Field Due to a Strong Electron-Nuclear Interaction. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 107401 (2007).
- [89] I. A. Merkulov, Formation of a nuclear spin polaron under optical orientation in GaAs-type semiconductors. *Phys. Solid State* **40**, 930 (1998).
- [90] D. Klauser, W. A. Coish, D. Loss, Nuclear spin state narrowing via gate-controlled Rabi oscillations in a double quantum dot, *Phys. Rev. B* **73**, 205302 (2006).
- [91] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, V. I. Safarov, Low field electron-nuclear spin coupling in gallium-arsenide under optical-pumping conditions. *Phys. Rev. B* **15**, 5780 (1977).

- [92] A. V. Khaetskii, D. Loss, L. Glazman, Electron spin decoherence in quantum dots due to interaction with nuclei. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 186802 (2002).
- [93] A. V. Khaetskii, D. Loss, L. Glazman, Electron spin evolution induced by interaction with nuclei in a quantum dot. *Phys. Rev. B* **67**, 195329 (2003).
- [94] P. F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, Y. Masumoto, Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 116601 (2005).
- [95] M. V. G. Dutt, J. Cheng, N. Li, X. D. Xu, X. Q. Li, P. R. Berman, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, S.E. Economou, R.B. Liu, L. J. Sham, Stimulated and Spontaneous Optical Generation of Electron Spin Coherence in Charged GaAs Quantum Dots. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 227403 (2005).
- [96] A. C. Johnson, J. R. Petta, J. M. Taylor, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson, A. C. Gossard, Triplet-singlet spin relaxation via nuclei in a double quantum dot. *Nature* **435**, 925 (2005).
- [97] F. Koppens, J. A. Folk, J. M. Elzerman, R. Hanson, L. H. W. van Beveren, I. T. Vink, H. P. Tranitz, W. Wegscheider, L. P. Kouwenhoven, L. M. K. Vandersypen, Control and detection of singlet-triplet mixing in a random nuclear field. *Science* **309**, 1346 (2005).
- [98] J. R. Klauder, P. W. Anderson, Spectral diffusion decay in spin resonance experiments. *Phys. Rev.* **125**, 912 (1962).
- [99] B. Herzog and E. L. Hahn, Transient nuclear inductions and double nuclear resonance in solids. *Phys. Rev.* **103**, 148 (1956).
- [100] W. M. Witzel, R. de Sousa and S. Das Sarma, Quantum theory of spectral-diffusion-induced electron spin decoherence. *Phys. Rev. B* **72**, 161306(R) (2005).
- [101] W. Yao, R. -B. Liu and L. S. Sham, Theory of electron spin decoherence by interacting nuclear spins in a quantum dot. arXiv:cond-mat/0508441

- [102] R. de Sousa and S. Das Sarma, Theory of nuclear induced spectral diffusion: Spin decoherence of phosphorus donors in Si and GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **68**, 115322 (2003).
- [103] W. A. Coish, D. Loss, Hyperfine interaction in a quantum dot: Non-Markovian electron spin dynamics. *Phys. Rev. B* **70**, 195340 (2004).
- [104] N. Shenvi, R. de Sousa, K. B. Whaley, Universal scaling of hyperfine-induced electron spin echo decay. *Phys. Rev. B* **71**, 224411 (2005).
- [105] E. L. Hahn, Spin Echoes. *Phys. Rev.* **80**, 580 (1950).
- [106] R. C. Weast, Handbook of Chemistry and Physics (The Chemical Rubber Co, Ohio, 1968).
- [107] V. Cerletti, W. A. Coish, O. Gywat and D. Loss, Recipes for spin-based quantum computing. *Nanotechnology* **16**, R27-R49 (2005).
- [108] I. Daruka, A. -L. Barabási, Dislocation-Free Island Formation in Heteroepitaxial Growth: A Study at Equilibrium. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3708 (1997).
- [109] Félix G. G. Hernández. Tese de Mestrado: Espectroscopia de Fotocorrente em Pontos Quânticos Auto-organizados de InAs:GaAs. UNICAMP. Março 2004.
- [110] A. Greilich, R. Oulton, E. A. Zhukov, I. A. Yugova, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. Shabaev, Al. L. Efros, I. A. Merkulov, V. Stavarache, D. Reuter, and A. Wieck, Optical Control of Spin Coherence in Singly Charged (In;Ga)As/GaAs Quantum Dots. *Phys. Rev. Lett* **96**, 227401 (2006).
- [111] I. A. Yugova, A. Greilich, E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, D. Reuter, and A. D. Wieck, Exciton fine structure in InGaAs/GaAs quantum dots revisited by pump-probe Faraday rotation. *Phys. Rev. B* **75**, 195325 (2007).
- [112] T. P. Mayer Alegre, F. G. G. Hernandez, A. Pereira, and G. Medeiros-Ribeiro, Landé g Tensor in Semiconductor Nanostructures. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 236402 (2006).

- [113] D. D. Awschalom, D. Loss, N. Samarth, Semiconductor Spintronics and Quantum Computation, Nanoscience and Technology Series (Ed. Springer, 2002).
- [114] J.M. Kikkawa, I.P. Smorchkova, D.D. Awschalom, Room Temperature Spin Memory in Two-Dimensional Electron Gases. *Science* **277**, 1284 (1997).
- [115] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, 60-fsec Pulse Generation From a Self-Mode- Locked Ti:Sapphire Laser. *Opt.Lett.* **16**, 42 (1991).
- [116] N. Sarukura, Y. Ishida, and H. Nakano, Generation of 50-fsec Pulses From a Pulse Compressed, Cw, Passively Mode-Locked Ti:Sapphire Laser. *Opt.Lett.* **16**, 153 (1991).
- [117] C. H. de Brito Cruz, H. L. Fragnito, Fenômenos Ultrarápidos: Geração de Pulsos de Laser Ultracurtos e suas aplicações. VII Escola Jorge André Swieca (2000).
- [118] A. Stingl, Ch. Spielmann, T. Brabec, M. Lenzner, and F. Krausz, Advances in Ultrafast Solid State Lasers. *Braz.J.Phys.* **26** [2], 510, (1996).
- [119] W. E. Henry, Spin Paramagnetism of Cr^{+++} , Fe^{+++} , and Gd^{+++} at Liquid Helium Temperatures and in Strong Magnetic Fields. *Phys. Rev.* **88**, 559 (1952).
- [120] A. Högele, M. Kroner, S. Seidl, K. Karrai, M. Atatüre, J. Dreiser, A. Imamoglu, A. Badolato, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff, Spin-selective optical absorption of singly charged excitons. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 221905 (2005).
- [121] A. Ebbens, D. N. Krizhanovskii, A. I. Tartakovskii, F. Pulizzi, T. Wright, A. V. Savelyev, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson, Optical orientation and control of spin memory in individual InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **72**, 073307 (2005).
- [122] A. S. Bracker, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. E. Ware, J. G. Tischler, A. Shabaev, Al. L. Efros, D. Park, D. Gershoni, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov, Optical pumping of the electronic and nuclear spin of single charge-tunable quantum dots. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047402 (2005).

-
- [123] C. E. Pryor and M. E. Flatté, Accuracy of circular polarization as a measure of spin polarization in quantum dots qubits. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 257901 (2003).
- [124] Weidong Sheng and Pawel Hawrylak, Spin polarization in self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B* **73**, 125331 (2006).
- [125] J. M. Villas-Boas, Sergio E. Ulloa, A. O. Govorov, Spin polarized photocurrent from quantum dots. cond-mat/0509731, June 2006. *AIP Conf. Proc.* **772**, 683 (2005).
- [126] G. Medeiros-Ribeiro, F. G. Pikus, P. M. Petroff, and A. L. Efros, Single-electron charging and Coulomb interaction in InAs self-assembled quantum dot arrays. *Phys. Rev. B* **55**, 1568 (1997).
- [127] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Durr, C. Bodefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff, and S. Huant, Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model. *Phys. Rev. B* **58**, 16221 (1998).
- [128] T. Nakaoka et al., Tuning of g-factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots through strain engineering. *Phys. Rev. B* **71**, 205301 (2005).
- [129] M. T. Björk et al., Tunable effective g factor in InAs nanowire quantum dots. *Phys. Rev. B* **72**, 201307(R) (2005).
- [130] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, and D. Gershoni, B. D. Gerardot and P. M. Petroff, Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 130501 (2006).
- [131] D. Bouwmeester, A. Ekert, and A. Zeilinger, *The Physics of Quantum Information* (Springer, Berlin, 2000).
- [132] F. Meier, B. P. Zakharchenya, *Optical Orientation* (North-Holland, Amsterdam, 1984).
- [133] H. W. van Kasteren, E. C. Cosman, W. A. J. A. van der Poel, and C.T. Foxon, Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells. *Phys. Rev. B* **41**, 5283 (1990).

- [134] A. I. Tartakovskii, M. N. Makhonin, I. R. Sellers, J. Cahill, A. D. Andreev, D. M. Whittaker, J-P. R. Wells, A. M. Fox, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, K. M. Groom, M. J. Steer, H. Y. Liu, and M. Hopkinson, Effect of thermal annealing and strain engineering on the fine structure of quantum dot excitons. *Phys. Rev. B* **70**, 193303 (2004).
- [135] M. Bayer, O. Stern, A. Kuther, and A. Forchel, Spectroscopic study of dark excitons in $In_xGa_{1-x}As$ self-assembled quantum dots by a magnetic-field-induced symmetry breaking. *Phys. Rev. B* **61**, 7273 (2000).
- [136] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto, . *Phys. Rev. B* **84**, 2513 (2000).
- [137] Por exemplo:
C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto, Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot. *Phys. Rev. B* **66**, 045308 (2002)
R. M. Stevenson, R. M. Thompson, A. J. Shields, I. Farrer, B. E. Kardynal, D. A. Ritchie, and M. Pepper, Quantum dots as a photon source for passive quantum key encoding. *Phys. Rev. B* **66**, 081302 (R) (2002).
- [138] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck, Control of fine-structure splitting and biexciton binding in $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots by annealing. *Phys. Rev. B* **69**, 161301 (R) (2004).
- [139] A. Grelich, M. Schwab, T. Berstermann, T. Auer, R. Oulton, D. R. Yakovlev, M. Bayer, V. Stavarache, D. Reuter, and A. Wieck, Tailored Quantum Dots for Entangled Photon Pair Creation. *Phys. Rev. B* **73**, 045323 (2006).
- [140] J. M. Hvam, Coherent Dynamics in Semiconductors. Ultrafast Dynamics of Quantum Systems: Physical Processes and Spectroscopic Techniques, Ed. Di Bartolo and Gambarota, Plenum Press, New York, 1998.
- [141] L. Mandel and E. Wolf, Optical coherence and quantum optics (Cambridge University Press, New York, 1995).

- [142] A. Shabaev, Al. L. Efros, D. Gammon, and I. A. Merkulov, Optical readout and initialization of an electron spin in a single quantum dot. *Phys. Rev. B* **68**, 201305 (R) (2003).
- [143] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler, G. Abstreiter, Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode. *Nature* **418**, 612 (2002).
- [144] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, L. J. Sham, Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 133607 (2001).
- [145] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, D. Bimberg, Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **66**, 081306(R) (2002).
- [146] J. G. Tischler, A. S. Bracker, D. Gammon, D. Park, Fine structure of trions and excitons in single GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B* **66**, 081310(R) (2002).
- [147] G. Morigi, E. Solano, B.-G. Englert, H. Walther, *Phys. Rev. A* **65**, 040102(R) (2002).
- [148] C. P. Slichter, Principles of Magnetic Resonance (Springer-Verlag, Berlin, 1996).
- [149] J.M. Kikkawa, D.D. Awschalom, Resonant spin amplification in n-type GaAs. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4313 (1998).
- [150] A. Greilich, M. Wiemann, F.G.G. Hernández, D.R. Yakovlev, I.A. Yugova, and M. Bayer, A. Shabaev and Al. L. Efros, D. Reuter and A.D. Wieck, Robust manipulation of electron spin coherence in an ensemble of singly charged quantum dots. *Phys. Rev. B* **75**, 233301 (2007).
- [151] T. Takagahara, Theory of exciton doublet structures and polarization relaxation in single quantum dots. *Phys. Rev. B* **62**, 16840 (2000).
- [152] Alex Greilich, Spin coherence of carriers in InGaAs/GaAs quantum wells and quantum dots. Ph.D. thesis, University of Dortmund (2007).

-
- [153] E. Aubry, C. Testelin, F. Bernardot, and M. Chamarro, Anisotropic spin splitting of the electron ground state in InAs quantum dots. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 242113 (2007).