

TESIS DE DOCTORADO EN FÍSICA

UNIVERSIDAD NACIONAL DEL NORDESTE



PROPIEDADES ELÉCTRICAS Y MAGNÉTICAS DE
SISTEMAS DE ELECTRONES CONFINADOS

DIEGO SEBASTIAN ACOSTA CODEN

DOCTORANDO

RODOLFO HORACIO ROMERO

DIRECTOR DE TESIS

ÍNDICE GENERAL

1	INTRODUCCIÓN	3
1.1	SISTEMAS MESOSCÓPICOS	3
1.2	COMPUTACIÓN CUÁNTICA	4
1.3	CONTROL EN SISTEMAS CUÁNTICOS	7
2	METODOLOGÍA	10
2.1	ESTRUCTURA ELECTRÓNICA	10
2.1.1	APROXIMACIÓN DE HARTREE-FOCK	11
2.1.2	INTERACCIÓN DE CONFIGURACIONES	15
2.1.3	EL CONJUNTO DE FUNCIONES DE BASE	17
2.2	SISTEMAS DEPENDIENTES DEL TIEMPO	18
2.2.1	RESOLUCIÓN DE LA ECUACIÓN DE SCHRÖDINGER DEPENDIENTE DEL TIEMPO	18
2.2.2	TEORÍA DEL CONTROL ÓPTIMO	20
3	RESPUESTA ELÉCTRICA Y MAGNÉTICA DE ÁTOMOS CONFINADOS	22
3.1	INTRODUCCIÓN	23
3.2	MÉTODO DE CÁLCULO	24
3.2.1	HAMILTONIANO Y CONJUNTO DE BASE	24
3.2.2	RESPUESTA ELÉCTRICA Y MAGNÉTICA	25
3.3	CÁLCULOS Y RESULTADOS	27
3.4	CONCLUSIONES	34
4	EFFECTOS DE IMPUREZAS EN PUNTOS CUÁNTICOS DOBLES: MODULACIÓN DEL ENTRELAZAMIENTO	35

4.1	INTRODUCCIÓN	35
4.2	MODELO Y MÉTODO DE CÁLCULO	36
4.3	ENTROPÍA DE ENTRELAZAMIENTO Y ACOPLAMIENTO DE INTERCAMBIO	38
4.4	EFECTOS DE IMPUREZA EN LAS PROPIEDADES ÓPTICAS	48
4.5	CONCLUSIONES	55
5	NAVEGACIÓN CONTROLADA DE ALTA FIDELIDAD EN EL DIAGRAMA DE ESTABILIDAD DE CARGA DE UN PUNTO CUÁNTICO DOBLE	56
5.1	INTRODUCCIÓN	57
5.2	TEORÍA Y MÉTODOS	58
5.2.1	MODELO	58
5.3	RESULTADOS	60
5.3.1	DIAGRAMA DE ESTABILIDAD DE CARGA	60
5.3.2	EFICIENCIA Y VELOCIDAD DE LOS PROTOCOLOS DE CONTROL PARA LA NAVEGACIÓN DEL CSD	61
5.3.3	PROTOCOLO DE CONTROL BASADO EN UN ANSATZ PARAMÉTRICO	67
5.4	CONCLUSIONES	68
6	CONCLUSIONES	71
A	INTEGRALES BIELECTRÓNICAS EN DOS DIMENSIONES	74
	REFERENCIAS	81
	AGRADECIMIENTOS	92
	LISTA DE TRABAJOS PUBLICADOS	93

RESUMEN

En esta tesis abordamos el estudio de las propiedades de electrones confinados en sistemas de baja dimensionalidad. Los diferentes sistemas estudiados incluyen casos tri y bidimensionales donde uno o varios electrones son confinados por potenciales fenomenológicos y sometidos a la atracción de centros coulombianos. Concretamente, se estudia la respuesta de estos sistemas frente a campos externos así como también su factibilidad como qubits para el procesamiento de información cuántica.

Se efectúan cálculos numéricos de la polarizabilidad y del tensor de apantallamiento nuclear de átomos de dos electrones confinados dentro de un pozo de potencial Gaussiano atractivo. Se analizan las respuestas eléctricas y magnéticas obtenidas dentro de la aproximación de fase aleatoria del propagador de polarización. También se estudia la influencia de la profundidad y el alcance del potencial sobre la estructura electrónica. Se calcula la dependencia de las componentes paralela (a lo largo de la dirección de separación) y perpendicular de la polarizabilidad y del tensor de apantallamiento nuclear con la distancia del átomo al centro del pozo.

A continuación, se estudian numéricamente las propiedades electrónicas y ópticas de dos electrones confinados en un doble punto cuántico bidimensional. El confinamiento de los electrones en estas pequeñas regiones del espacio, cuyas dimensiones se encuentran en el orden de las decenas de nanómetros, se modela por medio de un potencial de doble pozo Gaussiano. Además, se analizan los efectos de potenciales Coulombianos producidos por la introducción de cargas eléctricas debidas a impurezas

en los materiales y la posibilidad de manipular el entrelazamiento de los electrones mediante el control de los parámetros del potencial de confinamiento. Se muestra que el grado de entrelazamiento se encuentra altamente modulado por la ubicación y la magnitud del apantallamiento de la carga del átomo de impureza. Pueden definirse dos regímenes: uno de bajo y otro de alto entrelazamiento, ambos determinados principalmente por la magnitud de la carga. Se muestra que la magnitud de la intensidad del oscilador del sistema es un indicativo de la presencia y características de impurezas y, por lo tanto, del grado de entrelazamiento.

Además, para el sistema descrito en el párrafo anterior se resuelve el problema del control por medio de campos de láser pulsados. Estos campos se encuentran numéricamente usando la teoría del control óptimo. En nuestro estudio hacemos énfasis en el control de la localización de la carga. Analizamos los tiempo típicos y los pulsos láser encontrados para este tipo de transiciones. Se analiza el efecto de las impurezas en los protocolos de control diseñados para sistemas limpios.

Finalmente, se propone un protocolo de control para la transferencia de carga en un doble punto cuántico. La teoría del control óptimo se usa para obtener resultados numéricos para controlar la localización de la carga en un sistema bi-dimensional a través de campos eléctricos dependientes del tiempo correspondientes a los voltajes de gate experimentales. Nuestro protocolo de control resulta en una prescripción para la navegación del diagrama de estabilidad de carga para producir una transferencia de alta fidelidad del electrón desde un estado fundamental arbitrario a otro a través de la variación de las tensiones de puerta. Se muestra que este esquema permite controlar el sistema con una calidad y eficiencia similar a la del pulso compuesto que permite conducir el sistema al límite de velocidad permitido por la mecánica cuántica.

CAPÍTULO 1

INTRODUCCIÓN

1.1. SISTEMAS MESOSCÓPICOS

Los sistemas mesoscópicos constituyen un nexo entre los sistemas macroscópicos de los sólidos y los sistemas microscópicos de átomos y moléculas. Caracterizados por longitudes del orden del nanómetro, estos sistemas con propiedades altamente ajustables se han vuelto muy importantes en la ciencia moderna y potencialmente en aplicaciones tecnológicas. Una característica importante de las estructuras mesoscópicas es que sus dimensiones son comparables con la longitud de onda de De Broglie de los electrones y, por lo tanto, sus propiedades eléctricas están fuertemente influenciadas por la Mecánica Cuántica. Desde el punto de vista teórico, las propiedades físicas y químicas de estos materiales difieren significativamente de las propiedades de los sólidos o átomos, y su estudio requiere de un nuevo marco conceptual.

La gran variedad de nanoestructuras incluye sistemas como cluster de átomos, puntos cuánticos, nanocristales, nanocables, nanotubos, fullerenos, nanoestructuras de grafenos, entre otras. Si bien las unidades elementales que componen estos sistemas siguen siendo átomos, los electrones externos (menos ligados?, de valencia?) no

ocupan estados localizados en dichos átomos y su naturaleza cuántica se encuentra determinada por el sistema como un todo. Estos efectos de confinamiento sobre los electrones de parte de las nanoestructuras pueden resumirse en la acción de un potencial de confinamiento fenomenológico. La forma y el tamaño de este potencial, que modela la nanoestructura, determina entonces propiedades fundamentales, como por ejemplo, el espectro de energías o la conductancia de los electrones.

A diferencia de los sistemas atómicos, las propiedades de los sistemas mesoscópicos pueden ser ajustadas experimentalmente. Es decir, que la variación los parámetros de los potenciales fenomenológicos, que podrían considerarse de interés meramente académico, poseen ahora un correlato experimental. En esta tesis comenzaremos el estudio de los sistemas de electrones confinados considerando un sistema combinado en el cual una carga Coulombiano se encuentra en el seno de una nanoestructura. El interés en las propiedades de los átomos confinados se remonta a los trabajos fundacionales de Michels, de Boer y Bijl [1], y Sommerfeld y Welker [2]. El sistema consistente en un átomo encerrado en un pozo, cuya función de onda se encuentra espacialmente restringido, proporciona un modelo simple para muchos fenómenos de interés en diversas ramas de la física [3–9]. El sistema de uno o más átomos sujeto a un pozo de potencial atractivo ha sido usado para modelar átomos bajo presión [3,4], átomos dentro de cavidades, nanoporos [6,7] o fullerenos [8], e impurezas en puntos cuánticos o nanocristales [9]. Aún desde un punto de vista teórico, en los átomos confinados surgen nuevas simetrías debido al efecto de las condiciones de contorno sobre la función de onda electrónica respecto del estado del átomo libre [10]. Una reseña del tratamiento teórico y de los hechos experimentales relevantes de los sistemas de electrones confinados puede encontrarse en la literatura publicada [4,5,11,12].

1.2. COMPUTACIÓN CUÁNTICA

En contraposición con la tecnología usada en la electrónica convencional, donde la clave para lograr operaciones más rápidas y menos costosas se encuentra en la miniaturización, la revolución de la nanotecnología propone el paso a computadores basadas en algoritmos puramente cuánticos. Formuladas en la década de los ochenta [13], la idea de las computadoras cuánticas han atraído un creciente interés tanto

desde el punto de vista teórico como experimental. Estas computadoras hipotéticas aprovechan las propiedades cuánticas de la materia para lograr una enorme ganancia frente a su contraparte digital. A diferencia de las computadoras clásicas, en las que el voltaje entre las placas de un capacitor representa un bit de información, las computadoras cuánticas explotan la complejidad de la función de onda de un sistema de muchas partículas para resolver problemas computacionales [14, 15]. Una computadora cuántica sería capaz de hacer cálculos que se encuentran fuera del alcance de su contraparte clásica. Un ejemplo concreto se encuentra en la factorización de enteros: mientras que a una computadora tradicional le llevarían décadas factorizar un número entero de 300 dígitos, y un tiempo del orden de la edad del universo factorizar uno de 400 dígitos, una computadora cuántica podría hacerlo en horas o días [16]. La razón de esta ganancia consiste en la capacidad de hacer un gran cantidad de cálculos simultáneamente, lo que se debe al principio cuántico de la superposición. Existe un gran número de sistemas físicos en los que esta propiedad puede ser aprovechada para hacer cálculos, y por lo tanto, en lo que respecta al “hardware”, las computadoras cuánticas cuentan con una gran variedad de posibilidades [14]. Explorar las características de una de dichas posibilidades de implementación, los puntos cuánticos semiconductores, es el objetivo de esta tesis.

La naturaleza cuántica de los electrones confinados en puntos cuánticos semiconductores, regiones del orden de las decenas de nanómetros, puede ser aprovechada para el procesamiento de información cuántica. Para procesar dicha información es necesario definir cuales serán los estados del *qubit*¹ y como se podrá operar sobre ellos. La idea de utilizar el grado de libertad de espín de un electrón confinado en un punto cuántico para el almacenamiento de información fue propuesta por primera vez en 1997 por Daniel Loss y David DiVincenzo [17]. Estos autores propusieron que cada punto cuántico sería un qubit y las operaciones se llevarían a cabo controlando la intensidad de la barrera que separa dos qubits vecinos. Ellos demostraron como, mediante la aplicación campos eléctricos externos, sería posible controlar la interacción entre los espines electrónicos para producir un conjunto universal de operaciones lógicas [17]. Otra manera de codificar los estados de un qubit utilizando puntos cuánticos

¹El *qubit* es el análogo cuántico del *bit* clásico en el cual la información se almacena dos estados posibles: 0 o 1.

consiste en considerar un electrón atrapado en un doble pozo de potencial. En este sistema, conocido como qubit de carga, los estados del qubit se definen a partir de la localización del electrón en cada uno de los pozos [18]. Las operaciones se realizan mediante la aplicación de campos láser pulsados o por medio de pulsos eléctricos generados excitando electrodos locales [19–21].

Desde el punto de vista teórico, una gran variedad de métodos se han aplicado para calcular propiedades de sistemas de electrones en puntos cuánticos. En vistas a las aplicaciones mencionadas es necesario conocer la estructura electrónica del sistema y su respuesta a campos externos aplicados. Mientras que la primera brinda información sobre los estados del qubit, la segunda, caracteriza la forma en la que ese qubit opera. Los métodos para calcular la estructura electrónica, en su mayoría, pueden clasificarse en métodos de diagonalización y métodos de campo medio [22]. Los métodos de campo medio, como Hartree-Fock (HF) y la teoría de la funcional densidad (Density Functional Theory, DFT), en general tienen la ventaja de poder tratar con un gran número de electrones mientras carecen de una descripción detallada de la correlación que existe entre ellos. Por otra parte, los métodos de diagonalización, como el de interacción de configuraciones (CI), incluyen dicha correlación pero sólo pueden tratar con un número reducido de electrones [23].

Para poder efectuar operaciones sobre los qubits es necesario manipular la dependencia temporal del sistema. Por medio de un campo eléctrico dependiente del tiempo Murgida *et al.* demostraron teóricamente como un electrón puede ser transferido de un pozo al otro en un sistema de doble pozo [24]. Si bien la estrategia utilizada por los autores permite operar sobre el qubit, no logra hacerlo en la escala de tiempo apropiada para evitar uno de los principales obstáculos experimentales: la decoherencia [25]. Esencialmente la decoherencia implica la pérdida de la información almacenada en el qubit debido a las interacciones con su entorno. Incluso, tener una sola impureza cargada podría inducir decoherencia en el qubit si esta impureza es dinámica y tiene una escala de tiempo de fluctuación comparable a la escala de tiempo de operación de puerta [26]. La decoherencia es un fenómeno que juega un papel central en la información cuántica y sus aplicaciones tecnológicas [27–32, 128]. Debido a que este fenómeno ocurre en períodos de tiempo del orden del nanosegundo [34] la operación del qubit debe ser realizada en tiempos del orden de los picosegundos. Hoy en día la tecnología

disponible permite la aplicación de campos laser pulsados en el orden del femtosegundo (10^{-15} s) que son capaces de manipular el sistema en la escala apropiada [35]. Por otro lado, en las décadas pasadas se establecieron rigurosas teorías para diseñar pulsos óptimos que permitan operar al qubit llevando el sistema desde un estado a otro [36,37].

Se sabe que la presencia de centros de impurezas tiene una gran influencia sobre las propiedades ópticas y electrónicas de los materiales nanoestructurados. Desde el trabajo pionero de Bastard [38] muchos autores han investigado los efectos de las impurezas en las diferentes propiedades de los átomos y moléculas artificiales. Un trabajo reciente [26] estudió los efectos de impurezas cargadas no intencionales en los sistemas de puntos cuánticos dobles de dos electrones en dos dimensiones. En este trabajo se analizaron la influencia de impurezas cargadas aleatoriamente distribuidas sobre el acoplamiento de intercambio singulete-triplete en puntos cuánticos dobles de dos electrones. Aunque existe un interés enorme en la aplicación de estos sistemas en tecnologías para información cuántica, son escasos los trabajos que tratan de cuantificar el efecto de impurezas en este tipo de sistemas. Su presencia afecta seriamente la posibilidad de utilizar estos dispositivos como bits cuánticos. Aunque la distribución y concentración de impurezas en estos sistemas resultan parámetros desconocidos, hay algunos trabajos recientes que proponen la posibilidad de controlar experimentalmente estos parámetros [39–41]. El dopaje con impureza en materiales semiconductores es una tecnología útil que ha sido explotada para controlar las propiedades ópticas y electrónicas en diferentes nanodispositivos.

1.3. CONTROL EN SISTEMAS CUÁNTICOS

En los últimos años ha habido un creciente interés en el control de sistemas moleculares y nanodispositivos [42–44]. La función de onda de un sistema cuántico se puede manipular a través de campos externos, tales como pulsos de láser, y por lo tanto, se ha abierto el interrogante sobre la forma funcional que deben tener estos campos externos para lograr transiciones predefinidas necesarias, por ejemplo, en el procesamiento de información cuántica [45–47]. Se han realizado varios estudios sobre el control de dobles puntos cuánticos (DQDs) mediante tensiones de puerta y pulsos

láser optimizados [48–50]. Además, las técnicas experimentales han incrementado la velocidad y precisión de control mediante el diseño de la distribución espectral en frecuencia de los pulsos y aprendizaje por realimentación [48–50].

Controlar con alta fidelidad la dinámica de los electrones en un sistema cuántico es de suma importancia para el procesamiento de información cuántica [15]. La información cuántica, codificada en qubits, se procesa por la acción de puertas cuánticas que deben actuar con precisión en escalas de tiempo mucho más cortas que el tiempo de coherencia y bajo el umbral de tolerancia a fallos [51]. Además, las limitaciones experimentales y el límite de velocidad cuántica (QSL, por las siglas en inglés de *quantum speed limit*) [52, 53] (un límite fundamental impuesto por la mecánica cuántica) determinan, respectivamente, las dependencias temporales posibles y el tiempo de duración mínimo de las puertas cuánticas realistas. En la terminología del control cuántico, la acción de una puerta cuántica corresponde a diseñar la dependencia temporal de los parámetros externos de tal manera que conduzcan al qubit de un estado inicial a un estado final definido de antemano.

Dentro de la evolución histórica de este tema, una de las contribuciones más importantes fue el desarrollo de la teoría de control óptimo (Optimal Control Theory, OCT) [54–57]. Este método resulta una herramienta eficaz para el diseño de pulsos láser capaces de controlar los procesos cuánticos. El campo óptimo es el campo utilizado para dirigir un sistema dinámico de un estado inicial a un estado objetivo deseado minimizando la funcional de costo que generalmente penaliza a la energía (fluencia) del pulso. Un gran esfuerzo se ha invertido en los últimos años en el desarrollo de diferentes métodos con el fin de resolver las ecuaciones óptimas. Esquemas iterativos monótonamente convergentes propuestas por Tannor et al. [58] y Rabitz et al. [59] se han aplicado con éxito para el control de diferentes fenómenos cuánticos, principalmente relacionados con procesos químicos [60, 61]. El análisis teórico de pulsos electromagnéticos sobre OCT puede ser útil a fin de obtener transiciones controladas usando pulsos a medida y para entender la forma de los pulsos obtenidos en varios experimentos. En los últimos años, la teoría de control óptimo se convirtió en un área de investigación que ha recibido cada vez más interés por parte de los investigadores que estudian los campos emergentes dentro de la ciencia de la información cuántica [15]. Los dispositivos cuánticos modernos son sistemas en los que la función de

onda debe ser manipulada con la mayor precisión posible, utilizando, por ejemplo, puertas cuánticas.

Esta ingeniería cuántica de alta fidelidad necesita estrategias nuevas y eficaces que permitan una supresión óptima de las pérdidas de entorno durante gating o control óptico. Además, la computación cuántica requiere teóricamente extremadamente alta fidelidad en las transformaciones de estados cuánticos elementales. Control óptico de dispositivos basados en puntos cuánticos es de fundamental interés para una amplia gama de aplicaciones en la información cuántica. Por ejemplo, la manipulación óptica es una alternativa con el fin de almacenar los qubits en el espín del electrón [63], Hansen *et. al* [64] muestran que los pulsos de microondas cuidadosamente seleccionados se puede utilizar para llenar un solo estado de la primera banda de excitación en un DQD de dos electrones y que el tiempo de transición se puede disminuir mediante un control óptimo del pulso. Heller *et. al* [65] muestran que la calidad de la recurrencia periódica (*quantum revival*) en la evolución temporal de un pozo cuántico, se puede restaurar casi por completo mediante el acoplamiento del sistema a un campo electromagnético obtenido usando la teoría cuántica del control óptimo. Resulta claro que el estudio de la dinámica cuántica de nanodispositivos y la posibilidad de controlar los diferentes procesos en estos sistemas representan un campo de investigación importante con interesantes aplicaciones tecnológicas. La aplicación de técnicas numéricas como OCT nos permite analizar diferentes posibilidades y escenarios con el fin de construir y mejorar bits cuánticos basados en nanodispositivos.

CAPÍTULO 2

METODOLOGÍA

En este Capítulo se presentan los métodos de la Mecánica Cuántica que se usan para estudiar los sistemas presentados en esta tesis. En particular, se presentan los métodos de cálculo de la estructura electrónica de sistemas con uno y dos electrones, los métodos de solución de la ecuación de Schroedinger dependiente del tiempo y la teoría del control óptimo.

2.1. ESTRUCTURA ELECTRÓNICA

La función de onda electrónica estudiada en esta tesis satisface la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo

$$H\psi = E\psi, \tag{2.1}$$

donde el Hamiltoniano electrónico en unidades atómicas ($E = \hbar = m = \varepsilon = 1$) es

$$H = \sum_i h(\mathbf{r}_i) + \sum_{i>j} v(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j), \tag{2.2}$$

con

$$h(\mathbf{r}_i) = -\frac{1}{2}\Delta_i - \sum_p \frac{Z_p}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_p|} + V(\mathbf{r}_i), \quad v(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) = \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \quad (2.3)$$

$V(r)$ es el potencial que será utilizado para modelar fenomenológicamente el efecto de la restricción espacial de la función de onda, \mathbf{R}_p es la posición del núcleo Coulombiano de carga Z_p y $v(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j)$ tiene en cuenta la repulsión entre los electrones. La función de onda ψ es un autoestado del Hamiltoniano electrónico Ec. (2.2) que depende de las coordenadas espaciales y del espín y E es la autoenergía electrónica total asociada.

La ecuación de onda de la Ec. (2.1) puede obtenerse por medio de diferentes aproximaciones y, por lo tanto, modela en movimiento de los electrones en situaciones diferentes. En los sistemas de la física molecular, la ecuación (2.1) modela el movimiento de los electrones alrededor de los núcleos fijos en sus posiciones de acuerdo a la aproximación de Born-Oppenheimer [66]. En el contexto de la física del estado sólido, la ecuación de onda (2.1) describe el movimiento de los electrones en torno a impurezas Coulombianas en cristales infinitos o el movimiento en heteroestructuras bidimensionales, de acuerdo a la aproximación de masa efectiva [67]. La solución de la Ec. (2.1) es compleja y, en general, soluciones analíticas solo pueden ser encontradas en algunos sistemas monoeléctricos simples. En las secciones siguientes introduciremos los métodos aproximados que se usaron en esta tesis para resolver la ecuación de onda Ec. (2.1).

2.1.1. APROXIMACIÓN DE HARTREE-FOCK

La aproximación de Hartree-Fock o aproximación del campo medio, es un método aproximado con el que puede tratarse el problema de muchos cuerpos dado por la ecuación (2.1). En esta aproximación, la función de onda de multieletrónica ψ_e se construye tomando el determinante de Slater de funciones de onda monoeléctricas (orbitales)

$$\psi_e(1, 2, \dots, N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \varphi_1(1) & \dots & \varphi_1(N) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \varphi_N(1) & \dots & \varphi_N(N) \end{vmatrix} \quad (2.4)$$

donde $\varphi_i(i)$ son funciones normalizadas y ortogonales entre sí, construidas como producto de una función espacial y una función de espín

$$\varphi_j(i) = \varphi_j(\mathbf{r}_i) \chi_j(m_{s_i}), \quad (2.5)$$

dadas por $\chi_i(\frac{1}{2}) = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ y $\chi_i(-\frac{1}{2}) = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$.

El valor esperado del Hamiltoniano \hat{H}_e en el estado (2.4) es

$$\begin{aligned} \langle \hat{H}_e \rangle &= \sum_i \int d^3\mathbf{r} \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 \varphi_i(\mathbf{r}) - \sum_p \frac{Z_p}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_p|} |\varphi_i(\mathbf{r})|^2 + V(\mathbf{r}) \right] \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{ij} \int d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} |\varphi_i(\mathbf{r})|^2 |\varphi_j(\mathbf{r}')|^2 \\ &- \frac{1}{2} \sum_{ij} \delta_{m_{s_i} m_{s_j}} \int d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \varphi_i^*(\mathbf{r}) \varphi_i^*(\mathbf{r}') \varphi_j^*(\mathbf{r}) \varphi_j^*(\mathbf{r}'). \end{aligned} \quad (2.6)$$

Los orbitales espaciales, se construyen mediante el principio variacional de Ritz, donde la condición de normalización se introduce mediante los multiplicadores de Lagrange ε_i . Es así que los orbitales espaciales deben minimizar la cantidad

$$\langle \tilde{H}_e \rangle = \langle \hat{H}_e \rangle - \sum_i \varepsilon_i \left(\int d^3\mathbf{r} |\varphi_i(\mathbf{r})|^2 - 1 \right). \quad (2.7)$$

Tomando la derivada funcional de la ecuación (2.7) la condición estacionaria se cumple si

$$\begin{aligned} h(\mathbf{r})\varphi_i(\mathbf{r}) + \int d^3\mathbf{r}' \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \sum_j \varphi_j^*(\mathbf{r}') [\varphi_j(\mathbf{r}')\varphi_i(\mathbf{r}) - \varphi_j(\mathbf{r})\varphi_i(\mathbf{r}')\delta_{m_i, m_j}] \\ = \varepsilon_i \varphi_i(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (2.8)$$

con $i = 1, 2, \dots, M$; estas ecuaciones integro-diferenciales se conocen como ecuaciones de Hartree-Fock. Puede demostrarse multiplicando la ecuación (2.8) a izquierda por φ_i^* e integrando, que $-\varepsilon_i$ es la energía necesaria para extraer una partícula del estado φ_i , bajo la suposición de que los otros orbitales permanecen inalterados. Esta afirmación constituye el teorema de Koopmans y los multiplicadores de Lagrange ε_i son las energías orbitales.

La energía total en función de las energías orbitales, usando (2.6) y (2.8), queda de la forma

$$E_e \equiv \langle \tilde{H}_e \rangle = \sum_{i=1}^M \varepsilon_i - \frac{1}{2} \sum_{ij} \int d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} |\varphi_i(\mathbf{r})|^2 |\varphi_j(\mathbf{r}')|^2 \quad (2.9)$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_{ij} \delta_{m_{s_i} m_{s_j}} \int d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \varphi_i^*(\mathbf{r}) \varphi_i^*(\mathbf{r}') \varphi_j^*(\mathbf{r}) \varphi_j^*(\mathbf{r}').$$

Las ecuaciones de Hartree-Fock pueden escribirse en forma de problema de autovalores

$$\hat{F} \varphi_i = \varepsilon_i \varphi_i, \quad (2.10)$$

definiendo el operador de Fock \hat{F} ,

$$\hat{F} = h(\mathbf{r}) + \sum_j \mathcal{J}_j(\mathbf{r}) - \sum_j \mathcal{K}_j(\mathbf{r}), \quad (2.11)$$

que se construye a partir de los operadores de Coulomb \mathcal{J} y de intercambio \mathcal{K}

$$\mathcal{J}_j = \int d^3\mathbf{r}' \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} |\varphi_j(\mathbf{r}')|^2 \quad (2.12)$$

$$\mathcal{K}_j = \int d^3\mathbf{r}' \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \varphi_j^*(\mathbf{r}') \mathcal{P}_{ij} \varphi_j(\mathbf{r}'). \quad (2.13)$$

El operador \mathcal{P}_{ij} actúa sobre los orbitales a su derecha permutando las coordenadas de los electrones i y j ,

$$\mathcal{P}_{ij} \varphi_j(\mathbf{r}') \varphi_i(\mathbf{r}) = \varphi_i(\mathbf{r}') \varphi_j(\mathbf{r}). \quad (2.14)$$

Sea $\{\phi_i(\mathbf{r})\}$ un conjunto de K funciones conocidas que forman una base. Los orbitales espaciales en esta base tienen el desarrollo

$$\varphi_i = \sum_{j=1}^K C_{ij} \phi_j. \quad (2.15)$$

Si el conjunto $\{\phi_i(\mathbf{r})\}$ fuera completo la expansión sería exacta. Computacionalmente, sin embargo, el desarrollo consiste en un número K finito de elementos. Si se sustituye el desarrollo (2.15) en la ec. (2.10), se obtiene

$$\hat{F} \sum_j C_{ij} \phi_j = \varepsilon_i \sum_j C_{ij} \phi_j. \quad (2.16)$$

Multiplicando la ecuación anterior a izquierda por ϕ_i^* y luego integrando, las ecuaciones integro-diferenciales (2.10) se transforman en la ecuación matricial

$$\mathbf{FC} = \mathbf{SC}\boldsymbol{\varepsilon} \quad (2.17)$$

donde \mathbf{F} y \mathbf{S} son las matrices de Fock y de solapamiento respectivamente. Estas matrices están definidas por sus elementos:

$$F_{ij} = \int d^3\mathbf{r} \phi_i^*(\mathbf{r}) \hat{F}(\mathbf{r}) \phi_j(\mathbf{r}) \quad S_{ij} = \int d^3\mathbf{r} \phi_i^*(\mathbf{r}) \phi_j(\mathbf{r}). \quad (2.18)$$

\mathbf{C} es la matriz de los coeficientes $\{C_{ij}\}$ y $\boldsymbol{\varepsilon}$ la de energías orbitales $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_i \delta_{ij}$. El conjunto de ecuaciones matriciales (2.17), se conoce como ecuaciones de Roothaan.

Como la matriz de Fock depende de los coeficientes, $\mathbf{F}(\mathbf{C})$, las ecuaciones de Roothaan son ecuaciones no lineales y deben ser resueltas autoconsistentemente. Este procedimiento consiste en suponer valores iniciales para los coeficientes de (2.15), con los cuales se obtienen funciones $\varphi_1, \varphi_2, \dots, \varphi_M$. Luego se calcula la matriz de Fock \mathbf{F} y se resuelve (2.17). Con los nuevos coeficientes, se calcula nuevamente \mathbf{F} y así sucesivamente hasta que las magnitudes calculadas tengan, entre iteraciones consecutivas, variaciones menores que una tolerancia prefijada.

El conjunto de base $\{\phi_i(\mathbf{r})\}$ generalmente no es ortogonal, y por lo tanto, la matriz de solapamiento no es la identidad. Cuando esto ocurre, el primer paso del proceso autoconsistente no conduce a una ecuación matricial de autovalores. Para transformar las ecuaciones de Roothaan (2.17) en un problema convencional de autovalores se elige una nueva base formada por K combinaciones lineales de las funciones ϕ_i ortogonales entre si

$$\phi'_i = \sum_j X_{ij} \phi_j \quad \langle \phi'_i | \phi'_j \rangle = \delta_{ij}. \quad (2.19)$$

La condición de ortogonalidad (2.19) puede escribirse matricialmente

$$\mathbf{X}^\dagger \mathbf{S} \mathbf{X} = \mathbf{I}, \quad (2.20)$$

donde la matriz de la transformación \mathbf{X} está formada por los coeficientes X_{ij} .

Hay dos formas usadas comúnmente de construir la matriz \mathbf{X} a partir de la matriz de solapamiento:

i) la ortogonalización simétrica, donde la matriz de transformación es

$$\mathbf{X} = \mathbf{S}^{-1/2} = \mathbf{U} \mathbf{s}^{-1/2} \mathbf{U}^\dagger \quad (2.21)$$

con \mathbf{U} la matriz que diagonaliza a la matriz de solapamiento, $\mathbf{U}^\dagger \mathbf{S} \mathbf{U} = \mathbf{s}$; *ii)* la ortogonalización canónica cuya matriz es

$$\mathbf{X} = \mathbf{U} \mathbf{s}^{-1/2}. \quad (2.22)$$

Finalmente para eliminar la matriz de solapamiento explícitamente de las ecuaciones, se propone una nueva matriz de coeficientes \mathbf{C}' ,

$$\mathbf{C} = \mathbf{X}^{-1} \mathbf{C}'. \quad (2.23)$$

Sustituyendo (2.23) en las ecuaciones de Roothaan

$$\mathbf{F} \mathbf{X}^{-1} \mathbf{C}' = \mathbf{S} \mathbf{X}^{-1} \mathbf{C}' \boldsymbol{\varepsilon} \quad (2.24)$$

y multiplicando a izquierda por \mathbf{X}^\dagger se obtienen las ecuaciones de Roothaan transformadas

$$\mathbf{F}' \mathbf{C}' = \mathbf{C}' \boldsymbol{\varepsilon}, \quad (2.25)$$

con $\mathbf{F}' = \mathbf{X}^\dagger \mathbf{F} \mathbf{X}^{-1}$. Esta ecuación matricial puede resolverse con los procedimientos usuales de cálculo de autovalores y autovectores.

Finalmente se calculan los coeficientes C'_{ij} y las energías orbitales ε_i resolviendo autoconsistentemente la ecuación (2.25); se inicializan los coeficientes C'_{ij} y se calcula la matriz \mathbf{F}' , luego se resuelve el problema de autovalores y se determinan las energías orbitales ε_i y los coeficientes \mathbf{C}' . Con estos coeficientes, se calcula nuevamente la matriz \mathbf{F}' , y se repite el procedimiento hasta lograr la convergencia de las soluciones. Con los coeficientes C'_{ij} convergidos se calculan mediante (2.23) los coeficientes C_{ij} de los desarrollos (2.15). Estos desarrollos son los orbitales monoeléctricos que minimizan la energía (2.8) exactos dentro del subespacio del espacio de Hilbert expandido por el conjunto $\{\phi_i(\mathbf{r})\}$. Con estos orbitales puede calcularse la función de onda del sistema (2.4) y la energía electrónica total (2.10).

2.1.2. INTERACCIÓN DE CONFIGURACIONES

Dado un determinado conjunto base de M funciones monoeléctricas es posible construir una función de N partículas dada por un determinante de Slater en el cual

N de los M orbitales de la base están ocupados. Con M de estos orbitales se podrían armar $M!/N!(M - N)!$ determinantes de Slater distintos para diagonalizar el problema de N partículas. Esta diagonalización del Hamiltoniano electrónico de la Ec. (2.2) en la base de los determinantes de Slater así construidos se conoce como el método de interacción de configuraciones (Configuration Interaction, CI). Respecto del método de Hartree-Fock esta metodología tiene la ventaja de considerar la correlación electrónica. Sin embargo, los cálculos de CI resultan mucho más costoso computacionalmente que los cálculo HF para el mismo sistema.

Para los sistemas de dos electrones estudiados en esta tesis el método CI es, para todos los fines prácticos, exacto. Dado que el Hamiltoniano de la Ec. (2.2) no depende del espín electrónico, sus autoestados pueden ser factorizados como un producto de parte espacial y de espín

$$\Psi_i(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, m_{s_1}, m_{s_2}) = \Psi_i^S(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\chi_{S,M}, \quad (2.26)$$

donde $S = 0, 1$ para estados singulete y triplete, respectivamente, y $M = m_{s_1} + m_{s_2}$ es la proyección total de espín. La parte espacial se obtiene del cálculo de interacción configuraciones, como

$$\Psi_m^S(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \sum_{n=1}^{N_{\text{conf}}} c_{mn}^S \Phi_n^S(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \quad (2.27)$$

donde N_{conf} es el número de configuraciones bielectrónicas singulete ($S = 0$) o triplete ($S = 1$) $\Phi_n^S(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ considerado, y $n = (i, j)$ es una etiqueta de configuración obtenida de los índices i y j de una base monoeléctronica, por ejemplo,

$$\Phi_n^S(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} [\phi_i(\mathbf{r}_1)\phi_j(\mathbf{r}_2) + (1 - 2S)\phi_j(\mathbf{r}_1)\phi_i(\mathbf{r}_2)] \quad (2.28)$$

para $i \neq j$, y $\Phi_n^{S=0}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \phi_i(\mathbf{r}_1)\phi_i(\mathbf{r}_2)$ para estados singulete doblemente ocupados.

En esta tesis usamos CI para estudiar las propiedades de sistemas de dos electrones en dobles puntos cuánticos y en ausencia de campos magnéticos. Para estos sistemas el estado fundamental posee siempre simetría singulete [68] y el espectro de energías se construye por la diagonalización del Hamiltoniano electrónico en los subespacio singulete y triplete por separado [69].

No existen restricciones sobre el conjunto de base monoeléctronico que se debe usar para construir la base para sistemas de muchas partículas. Como conjunto de

funciones pueden tomarse los orbitales de HF, orbitales que diagonalizan el problema monoeléctrico o cualquier otro conjunto de funciones arbitrario. Cuando los orbitales monoeléctricos no satisfacen la condición de ortogonalidad, el problema de autovalores de la Ec. (2.1) depende de la matriz de solapamiento como se discutió para la matriz de Fock en la Ec. (2.16). Cuando ese es el caso, antes de resolver el problema de autovalores es necesario reescribirlo por una de las dos clases de transformaciones (simétrica o canónica) presentadas en la sección anterior.

El tamaño de las representación matricial del operador Hamiltoniano crece como el factorial del número de funciones monoeléctricas que se deseen incluir y frecuentemente, aún para conjuntos de base chicos, se llegan a construir representaciones matriciales de gran tamaño llamadas *matrices monstruos* cuya diagonalización requiere de técnicas especiales [70]. Además, el elevado número de operaciones necesarias para el cálculo de los autovalores en un problema de CI puede requerir aritmética de múltiple precisión tal como, por ejemplo, la que se encuentra implementada en las librerías GMP de precisión arbitraria.

2.1.3. EL CONJUNTO DE FUNCIONES DE BASE

En esta tesis utilizaremos un conjunto de funciones de base de Gaussianas cartesianas

$$\phi_l^{(i)} = \mathcal{N} x_i^m y_i^n z_i^p e^{-\alpha_l^{(i)} |\mathbf{r} - \mathbf{R}_i|^2}, \quad (2.29)$$

donde \mathcal{N} es la constante de normalización y $\ell = m + n + p$ es el momento angular de la función. Usando la notación espectroscópica s, p, d, f, \dots para $l = 0, 1, 2, \dots$, la base esta compuesta por

$$\left\{ \phi_l^{(i)} \right\} = \left\{ \phi_s^{(i)}, \phi_{p_x}^{(i)}, \phi_{p_y}^{(i)}, \phi_{p_z}^{(i)}, \phi_{d_{xx}}^{(i)}, \phi_{d_{xy}}, \dots \right\}. \quad (2.30)$$

Las propiedad clave de este conjunto de funciones de base es que permite obtener expresiones analíticas de las integrales de uno y de dos cuerpos del Hamiltoniano Ec. (2.2). Las expresiones y los esquemas de recurrencia para las integrales moleculares en tres dimensiones pueden verse en la referencia [66]. Para estudiar sistemas bidimensionales con este conjunto de funciones de base se desarrollaron nuevas ecuaciones de

recurrencia para sus análogos en dos dimensiones. Para los operadores de un cuerpo, la obtención de estas ecuaciones es directa. Las relaciones de recurrencia de las integrales bielectrónicas resultan más complejas y se presentan en el Apéndice A.

2.2. SISTEMAS DEPENDIENTES DEL TIEMPO

Hasta aquí supusimos que los potenciales en la Ec. (2.3) son independientes del tiempo y la energía era una constante del movimiento. Sin embargo, cuando el sistema interactúa con campos externos dependientes del tiempo, como pueden ser campos electromagnéticos o voltajes de puerta aplicados, la energía ya no es constante y la dinámica de los electrones está gobernada por la Ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo. En esta sección se presentan los métodos numéricos utilizados para estudiar la dinámica del sistema cuando el Hamiltoniano depende del tiempo.

2.2.1. RESOLUCIÓN DE LA ECUACIÓN DE SCHRÖDINGER DEPENDIENTE DEL TIEMPO

Nuestro objetivo es controlar el vector de estado del sistema $|\Psi(t)\rangle$ variando los parámetros externos con el tiempo que supondremos por simplicidad están resumidos en el término $\hat{V}(t)$ del Hamiltoniano dependiente del tiempo $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{V}(t)$. Para una dada función $V(t)$, la evolución del vector de estado $|\Psi(t)\rangle$ esta gobernada por la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (Time Dependent Schrödinger Equations, TDSE)

$$i\frac{\partial|\Psi(t)\rangle}{\partial t} = \hat{H}(t)|\Psi(t)\rangle \quad (2.31)$$

donde $\hat{H}(t)$ depende del tiempo a través de $V(t)$.

El vector de estado puede ser expandido en cualquier conjunto de autovectores del espacio de Hilbert, en particular, en la así llamada base diabática que es la base estacionaria del sistema, que involucra los autovectores de la parte independiente del tiempo del Hamiltoniano \hat{H}_0 ,

$$\hat{H}_0|\Phi_i^D\rangle = \varepsilon_i^D|\Phi_i^D\rangle, \quad (2.32)$$

La expansión del vector de estado en la base diabática es

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_i D_i(t) e^{-i\varepsilon_i^D t} |\Phi_i^D\rangle, \quad (2.33)$$

y la dinámica está gobernada por la evolución de los coeficientes de la expansión $D_i(t)$,

$$\dot{D}_i(t) = -i \sum_j D_j(t) e^{-i(\varepsilon_j^D - \varepsilon_i^D)t} V_{ij}(t), \quad (2.34)$$

donde $V_{ij}(t) = \langle \Phi_i^D | \hat{V}(t) | \Phi_j^D \rangle$.

Otro conjunto de base posible, que facilita la discusión de los sistemas cuánticos que evolucionan en el tiempo, es la base adiabática hecha de los autoestados del Hamiltoniano instantáneo,

$$\hat{H}(t) |\Phi_i^A(t)\rangle = \varepsilon_i^A(t) |\Phi_i^A(t)\rangle, \quad (2.35)$$

donde los autoenergías $\varepsilon_i^A(t)$ y los autoestados $|\Phi_i^A(t)\rangle$ son las autoenergías y autovectores instantáneos del Hamiltoniano al tiempo t , es decir, para una dada $V(t)$. La expansión del vector de estado en la base adiabática,

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_i A_i(t) |\Phi_i^A(t)\rangle, \quad (2.36)$$

conduce a la siguiente ecuación para los coeficientes de la expansión $A_i(t)$

$$\dot{A}_j(t) = -i \sum_{ikk'} \left[R_{jk}^{-1} H_{kk'} R_{k'i} - i R_{jk}^{-1} \dot{R}_{ki} \right] A_i(t), \quad (2.37)$$

donde $H_{ij} = \langle \Phi_i^A(t) | \hat{H}(t) | \Phi_j^A(t) \rangle$, R_{ij} conecta los coeficientes de la superposición del vector de estado (2.33) y (2.36)

$$D_i(t) = \sum_j R_{ij}(t) A_j(t), \quad (2.38)$$

y $R_{ij}^{-1}(t)$ es la matriz de la transformación diabática-adiabática

$$|\Phi_i^A(t)\rangle = \sum_j R_{ij}^{-1}(t) |\Phi_j^D\rangle. \quad (2.39)$$

El sistema de ecuaciones diferenciales para los coeficientes $D_i(t)$ y $A_i(t)$, dado por las ecuaciones (2.34) y (2.37), se resuelve numéricamente con el método de Runge-Kutta de cuarto orden [71]. Las matrices R^{-1} y R dependen en el tiempo a través de la función $V(t)$, y por lo tanto, deben estar disponibles para el algoritmo de integración en un tiempo arbitrario.

2.2.2. TEORÍA DEL CONTROL ÓPTIMO

Si asumimos que el sistema está inicialmente, a $t = 0$, en el estado $|\Phi_I\rangle$, la tarea clave de la teoría del control óptimo es determinar la función $V(t)$ que, después de un tiempo T , haga evolucionar el estado del sistema hacia un estado final predefinido $|\Phi_F\rangle$. Para este propósito, se construye una funcional de costo J que posteriormente será maximizada:

$$J[\Psi, \chi, V, V] = J_1[\Psi] + J_2[V] + J_3[\Psi, \chi, V]. \quad (2.40)$$

El primer término de la funcional, $J_1[\Psi] = |\langle \Psi(T) | \Phi_F \rangle|^2$ tiene en cuenta el requerimiento del estado final predefinido a través de la proyección del vector de estado a tiempo T sobre el estado blanco $|\Phi_F\rangle$. Esta cantidad es usualmente designada como el *yield* y sirve como medida de la calidad de la transición. La segunda funcional

$$J_2[V] = -\alpha \left[\frac{1}{T} \int_0^T dt V^2(t)/s(t) - f \right], \quad (2.41)$$

restringe la fluencia total f de la función $V(t)$. Aquí α es un multiplicador de Lagrange independiente del tiempo, y $s(t)$ sirve como una función envolvente para el campo que evita las discontinuidades en su encendido y apagado. En esta tesis usamos una función envolvente de la forma [72]

$$s(t) = \frac{1}{2} \left\{ \operatorname{erf} \left[\frac{a}{T} \left(t - \frac{T}{b} \right) \right] + \operatorname{erf} \left[\frac{-a}{T} \left(t - T + \frac{T}{b} \right) \right] \right\}. \quad (2.42)$$

El requerimiento de que la función de onda tenga que satisfacer la TDSE, formulada en forma integral, es expresada en término del multiplicador de Lagrange dependiente del tiempo $\chi(t)$ por la tercer funcional.

$$J_3[\Psi, \chi, V] = -2 \operatorname{Im} \int_0^T dt \langle \chi(t) | (i\partial_t - \hat{H}(t)) | \Psi(t) \rangle. \quad (2.43)$$

Las ecuaciones de control a resolver para nuestro problema se obtienen haciendo cero las variaciones de la funcional total, $\delta J = 0$, estas resultan

$$i\partial_t |\Psi(t)\rangle = \hat{H}(V, t) |\Psi(t)\rangle, \quad |\Psi(0)\rangle = |\Phi_I\rangle, \quad (2.44)$$

$$i\partial_t |\chi(t)\rangle = \hat{H}(V, t) |\chi(t)\rangle, \quad |\chi(T)\rangle = |\Phi_F\rangle, \quad (2.45)$$

$$V(t) = -\frac{1}{\alpha} \operatorname{Im} \langle \chi(t) | V(t) | \Psi(t) \rangle, \quad (2.46)$$

Para resolver el sistema anterior de ecuaciones diferenciales lineales acopladas usamos el algoritmo iterativo propuesto por Werschnik y Gross [73]. Este algoritmo nos permite introducir restricciones experimentales, en particular, la frecuencia de filtro ω_c definida como la máxima frecuencia permitida en el pulso optimizado.

CAPÍTULO 3

RESPUESTA ELÉCTRICA Y MAGNÉTICA DE ÁTOMOS CONFINADOS

En este capítulo estudiamos cómo el confinamiento y el potencial de Coulomb nuclear compiten para determinar la estructura electrónica de un átomo confinado, y cómo las propiedades eléctricas y magnéticas son modificadas por la ruptura de la simetría esférica cuando se lleva el átomo fuera del centro del pozo de confinamiento. En particular, se analizamos el efecto sobre la polarizabilidad atómica y el apantallamiento magnético nuclear. El primero es una magnitud que describe globalmente la respuesta de la molécula a la aplicación de un campo eléctrico, mientras que el segundo da una medida del efecto de apantallamiento de los electrones sobre el campo magnético aplicado a un núcleo magnético. Puesto que esta propiedad es muy sensible al medio ambiente del núcleo, resulta adecuada para estudiar el efecto del potencial de confinamiento.

3.1. INTRODUCCIÓN

Numerosos métodos se han utilizado para calcular las funciones de onda y los valores propios de la energía de un electrón confinado [5, 12, 74–81] y de átomos de dos electrones [82–93]; Por el contrario, los sistemas de muchos electrones han sido menos estudiados [94–98]. Se han propuesto diversos potenciales fenomenológicos para modelar el confinamiento. La función de onda del átomo de hidrógeno encerrado por una caja esférica impenetrable ha sido tratada por varios métodos [74–78] tanto con el átomo en el centro y fuera del centro de potencial. Los sistemas de dos electrones, se han estudiado mediante el uso de los potenciales de confinamiento representados por cajas esféricas y elipsoidales impenetrables [86–88, 91, 93], [82–84], pozos Gaussianos [85, 89, 90, 92, 93] y pozos de potencial de capa [81, 99–101].

La mayoría de los trabajos suponen la situación de simetría esférica con el átomo de encapsulado en el centro de la potencial de confinamiento, lo que representa cualitativamente, de una manera fenomenológica, las propiedades de los átomos en cavidades, así como las de los átomos de gas noble en fullerenos endohedricos. Sin embargo, los iones de los metales alcalinos son conocidos por localizarse en posiciones de equilibrio fuera del centro en la formación de complejos endohedricos. La ruptura de la simetría esférica se ha atribuido a la transferencia de carga entre el átomo encapsulado y la jaula huésped. El cambio en la posición de equilibrio da lugar a la redistribución de las intensidades del oscilador [11], las oscilaciones de confinamiento en la sección transversal de foto-ionización [81] o modificaciones en la dinámica de roto-vibracional del complejo [94]. Como otro ejemplo, los cristales semiconductores de tamaño nanométrico dopados se pueden modelar como un sistema de electrones confinados en un potencial esférico, cada centro de impureza donante está representado por un átomo de hidrogenoide. Sin embargo, experimentalmente, tales impurezas dopantes pueden ser depositadas por el crecimiento epitaxial en posiciones que van desde el centro a la superficie de la nanopartícula. La posición del átomo afecta a propiedades tales como su energía de enlace y los espectros ópticos de absorción calculado [38]. Una serie de trabajos teóricos han considerado átomos descentrados que son tratables por métodos de teoría de perturbaciones cuando este desplazamiento del centro representa una ligera modificación de la simetría esférica [81, 101]. En este

capítulo se estudia el efecto sobre la respuesta eléctrica y magnética de la variación de la posición del átomo confinado en un amplio intervalo. El uso de un potencial penetrable permite variar la ubicación del átomo desde el centro hasta grandes desplazamientos fuera del centro e incluso considerar el átomo fuera del pozo. Cuando el átomo se encuentra en el centro, el potencial Coulombiano y el de confinamiento se refuerzan mutuamente; por el contrario, cuando el átomo está fuera de centro, los potenciales compiten entre sí y la estructura electrónica depende de sus intensidades relativas, de forma análoga a los dos potenciales de Coulomb en una molécula diatómica. La utilización de los métodos de cálculo de estructura y propiedades electrónica, bien conocidos en la química cuántica, es impulsado por esta analogía.

3.2. MÉTODO DE CÁLCULO

3.2.1. HAMILTONIANO Y CONJUNTO DE BASE

El Hamiltoniano electrónico para un sistema de dos electrones, Ec (2.2), es

$$H(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = h(\mathbf{r}_1) + h(\mathbf{r}_2) + \frac{1}{r_{12}}, \quad (3.1)$$

con

$$h(\mathbf{r}_i) = -\frac{1}{2}\nabla_i^2 - \frac{Z}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{D}|} + V(r_i), \quad (3.2)$$

donde Z es la carga del electrón ubicado en \mathbf{D} y $V(r)$ es el potencial de confinamiento que modelaremos con un pozo Gaussiano

$$V(r_i) = -V_0 \exp(-\lambda r_i^2) = -V_0 \exp(-r_i^2/R_c^2), \quad (3.3)$$

centrado en el origen de coordenadas. El Hamiltoniano (3.1) describe dos electrones sometidos a dos potenciales atractivos (el potencial Coulombiano y de confinamiento) centrados en dos posiciones ($\mathbf{r} = 0$ y $\mathbf{r} = \mathbf{D}$). Por lo tanto, el sistema puede ser visto como una “molécula” formada entre el núcleo y el centro del potencial de confinamiento Gaussiano. Por lo tanto, un tratamiento molecular basado en el método de Hartree-Fock, en su forma de matriz de Roothan, será empleado en este capítulo para el cálculo de sus niveles de energía.

Para la descripción de los estados ligados de un electrón en el potencial de confinamiento, el operador Hamiltoniano se representa en un conjunto de funciones de base de Gaussianas Cartesianas, Ec. (2.29), formado por un conjunto de base cc-pVTZ centrada en el átomo, y una base $4s4p4d$ centrada en el punto cuántico. El criterio para generar conjuntos de funciones de base apropiados para el problema monoeléctrico de un electrón en un pozo atractivo Gaussiano fue dado en la referencia [98]. Los exponentes α_i son los mismos para cada bloque de momento angular; ellos siguen un criterio equiponderado, $\alpha^{(i+1)} = \alpha^{(i)}/2$, comenzando desde el exponente óptimo variacional, $\alpha^{(0)}$, que minimiza el valor esperado

$$E(\alpha) = \frac{3}{2}\alpha - V_0 \left(\frac{2\alpha}{\lambda + 2\alpha} \right)^{3/2} \quad (3.4)$$

del Hamiltoniano de un electrón en el potencial de confinamiento para un orbital Gaussiano de prueba tipo s .

3.2.2. RESPUESTA ELÉCTRICA Y MAGNÉTICA

La introducción de un campo eléctrico externo uniforme \mathbf{F} induce un momento dipolar eléctrico \mathbf{d} que, en el límite de campo pequeño, es proporcional a \mathbf{F} , es decir,

$$\mathbf{d} = \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{F}, \quad (3.5)$$

donde $\boldsymbol{\alpha}$ es el tensor de polarizabilidad eléctrica del sistema. Teniendo en cuenta que la contribución del dipolo inducido a la energía es $E = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{F}$, las componentes del tensor de polarizabilidad α_{ij} pueden ser expresadas

$$\alpha_{ij} = - \left. \frac{\partial E}{\partial F_i \partial F_j} \right|_{\mathbf{F}=0}. \quad (3.6)$$

Cuando el átomo está ubicado fuera del centro del pozo de potencial, α tiene dos componentes independientes, a saber, a lo largo del vector desplazamiento $\mathbf{D}=(D,0,0)$ ($\alpha_{\parallel} = \alpha_{xx}$) y transversal a este ($\alpha_{\perp} = \alpha_{yy} = \alpha_{zz}$). Desde el punto de vista computacional, la polarizabilidad estática puede ser calculada perturbativamente mediante el método del propagador de polarización [102],

$$\alpha_{ij} = \langle \langle x_i; x_j \rangle \rangle_{\omega=0}, \quad (3.7)$$

la que provee una medida de la respuesta del sistema electrónico a un campo eléctrico aplicado.

Otra propiedad de interés es el tensor de apantallamiento magnético nuclear $\boldsymbol{\sigma}$. Este es un parámetro importante para la espectroscopia de resonancia magnética nuclear (NMR). Este parámetro se define por la contribución a la energía de la interacción de un campo magnético aplicado \mathbf{B} y un isótopo magnético de un núcleo N, cuyo momento dipolar magnético nuclear permanente se simboliza con $\boldsymbol{\mu}_N$. Entonces, $E_N = -\boldsymbol{\mu}_N \cdot (\mathbf{1} - \boldsymbol{\sigma}) \cdot \mathbf{B}$, da la corrección a la energía de un dipolo en un campo magnético debido al apantallamiento de los electrones. Desde el punto de vista teórico, el efecto en los electrones proviene de dos fuentes magnéticas, a saber, el campo uniforme externo y el generado por el momento dipolar, es decir,

$$\mathbf{A} = \mathbf{A}_B + \mathbf{A}_N = \frac{1}{2}\mathbf{B} \times \mathbf{r} + \frac{1}{c^2} \frac{\gamma_N \mathbf{I}_N \times \mathbf{r}_N}{r_N^3}, \quad (3.8)$$

donde $\mathbf{r}_N = \mathbf{r} - \mathbf{D}$ es el vector posición referido a la posición del núcleo, $\boldsymbol{\mu}_N = \gamma_N \hbar \mathbf{I}_N$ es el momento dipolar magnético permanente debido al espín nuclear \mathbf{I}_N , γ_N es la razón giromagnética del isótopo, y c es la velocidad de la luz cuyo valor, en unidades atómicas, es la inversa de la constante de estructura fina. El potencial vector \mathbf{A}_B depende del origen del sistema de coordenadas elegido, que corresponde a la elección del *gauge*. Introduciendo el potencial vector en el Hamiltoniano por la sustitución $\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p} - \mathbf{A}$, se obtienen los términos del tensor día y paramagnético $\boldsymbol{\sigma}$,

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ij}^d + \sigma_{ij}^p = \frac{1}{2c^2} \left(\delta_{ij} \left\langle \frac{1}{r} \right\rangle - \left\langle \frac{x_i x_j}{r^3} \right\rangle \right) + \frac{1}{2c^2} \sum_n \frac{\langle 0 | \ell_{Ni} / r_N^3 | n \rangle \langle n | \ell_j | 0 \rangle}{E_0^{(0)} - E_n^{(0)}}, \quad (3.9)$$

donde $\boldsymbol{\sigma}^d$ está calculado como un valor esperado en el estado fundamental, mientras $\boldsymbol{\sigma}^p$ se obtiene de teoría de perturbaciones de segundo orden; los operadores ℓ_{Ni} y ℓ_j son las componentes del momento angular $\boldsymbol{\ell}$ centrado alrededor del núcleo y del origen de coordenadas, respectivamente, y $E_0^{(0)}$ y $E_n^{(0)}$ son las energías de dos electrones no perturbadas. Nosotros calculamos $\boldsymbol{\sigma}^p$ dentro de la aproximación del propagador de polarización, en la aproximación de la fase aleatoria (RPA), con las energías de dos electrones de Hartree-Fock y funciones de onda [102]. El tensor paramagnético $\boldsymbol{\sigma}^p$ se anula idénticamente para sistemas esféricamente simétricos, al igual que su componente paralela σ^p para sistemas con simetría axial.

3.3. CÁLCULOS Y RESULTADOS

En primer lugar, la precisión del método y la completitud de los conjuntos de base fueron validados mediante el cálculo de los niveles de energía del átomo de He confinado en el centro de un potencial de Gaussiano, que tiene profundidades $V_0 = 25, 50$ y 100 au y radios de $R_C = 1, \dots, 100$ au, tratados en la referencia [93]. El umbral de convergencia de la energía total se fijó en 10^{-8} au como en los cálculos moleculares típicos. Los conjuntos de base utilizados proporcionan una precisión de unos 0.001 au para las energías de una partícula en el pozo Gaussiano [98]. La diferencia entre los valores de las energías de alta precisión de Ref. [93] y los de Hartree-Fock no restringido (UHF) dan típicamente $-0,04$ au para todos los radios y profundidades posibles. Cálculos de interacción de configuraciones, incluyendo excitaciones simples y dobles del estado fundamental de Hartree-Fock, para $R_C = 3$ a.u., dan energías de correlación $-0,038, -0,038$ y $-0,037$ para $V_0 = 25, 50$ y 100 au, respectivamente, mostrando de esta manera que los cálculos de UHF, aún estando lejos de los métodos computacionalmente exigentes como el de interacción de configuraciones, pueden proporcionar energías muy precisas que son correctas hasta aproximadamente $0,04$ au.

Los casos de prueba tratados anteriormente corresponden al régimen de confinamiento fuerte donde el potencial de confinamiento domina al potencial de Coulomb, que, por lo tanto, puede ser considerado como una perturbación. Estudiamos ahora una situación en la que la influencia del potencial Gaussiano se vuelve comparable a la del núcleo. Elegimos un pozo de potencial que tiene una profundidad $V_0 = 6,5$ au y un radio $R_C = 2$ Au, cuyo estado fundamental de dos electrones tiene una energía similar a la de Li^+ ; es decir, los dos electrones en este potencial tienen aproximadamente la misma energía total que los dos electrones en litio ionizado. Por lo tanto, para la serie isoelectrónica de He, Li^+ y Be^{++} confinados, la atracción nuclear Coulombiana del núcleo se vuelve más débil, comparable y más fuerte que la del potencial de confinamiento, respectivamente. La competencia entre el potencial de pozo y el Coulombiano se puede ver en la Fig. 3.1 donde se grafican los orbitales UHF a lo largo del eje (tomado como eje x) entre el núcleo y el centro de potencial como una función de su separación D . En la Figura se pueden ver distintas instantáneas

del estiramiento adiabático de la carga electrónica cuando el átomo se aleja del centro del pozo. También hemos calculado la función de onda de los iones de hidrógeno con carga negativa de H^- , aunque no se muestran aquí ya que su comportamiento es cualitativamente similar al átomo de He.

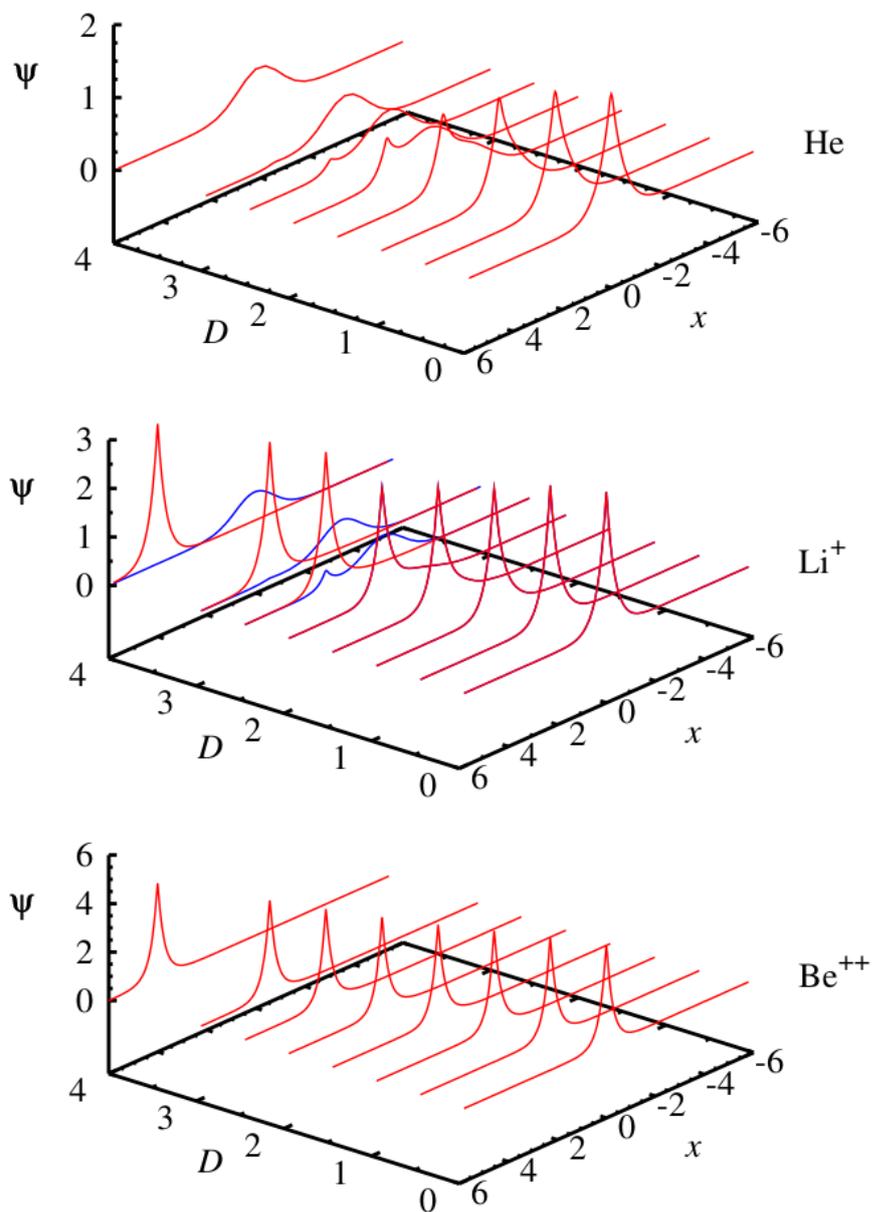


Figura 3.1: Orbitales de Hartree Fock no restringido a lo largo del eje que une el átomo y el centro de la potencial para distintas separaciones ($D = 0, 1, 1.5, 2, 2.5, 3, 4$ a.u.), para He, Li⁺ y Be⁺⁺. Las líneas roja y azul corresponden a los orbitales espín *up* y espín *down*, respectivamente. Para He y Be⁺⁺ ambos espín orbitales están superpuestos formando una capa cerrada junto con la solución restringida.

Cuando el átomo se encuentra centrado en el origen, los orbitales de los tres sistemas exhiben una cúspide con una anchura que disminuye en el orden creciente de carga nuclear $Z = 2, 3, 4$. Es decir, en el régimen centrado, tanto el potencial Coulombiano y el pozo de potencial se refuerzan entre sí y los electrones se ligan más fuertemente al centro común; cuanto mayor es la carga nuclear, más atraídos son los electrones y menor es el “radio del átomo”. A medida que el núcleo se aleja del centro del pozo aparecen algunas diferencias. La situación representada en la tercera curva de cada panel, que corresponde a $D = 1,0$ a.u., todavía muestra una función de onda tipo cúspide, pero con una asimetría dada por el He, un poco menos por el Li^+ y casi inobservable para Be^{++} . Para $D = 1,5$ a.u. tal asimetría crece provocando una fuerte deformación en la densidad electrónica del He de tal manera que, en $D = 2,0$ a.u., dos picos se hacen visibles, uno centrado en el pozo y otro en el núcleo; su naturaleza también es clara: el orbital es una superposición de un orbital Gaussiano centrado en el pozo y un orbital de cúspide centrado en el núcleo. Se parece a la función de onda del estado fundamental de la unión de una molécula heteronuclear. Un posterior “estiramiento” ($D = 2,5$ a.u.) produce un crecimiento de la densidad en el pozo a expensas de la disminución en el núcleo. Por último, en $D \geq 3,0$ au, la densidad se encuentra sólo en el pozo y el núcleo de He se separa de sus electrones.

El panorama descrito anteriormente está en marcado contraste con los casos de Li^+ y Be^{++} ; cuando el núcleo de Li sale del pozo ($D > 2$ a.u.) el orbital muestra una protuberancia en el centro del pozo que crece a medida que el núcleo se aleja y, finalmente, se deriva en una situación en la que hay una probabilidad no nula de encontrar un electrón tanto en el pozo y el ion de litio. Por otra parte, la carga electrónica se adjunta al ion de berilio cuando se aleja del pozo, revelando así que el pozo Gaussiano representa sólo una ligera perturbación y que la estructura electrónica está dominado por el potencial de Coulomb.

Discutiremos ahora cómo las estructuras electrónicas calculadas afectan los resultados de los cálculos de RPA de la polarizabilidad α (que se muestra en la Fig. 3.2) y de los tensores de apantallamiento magnético nuclear (que se muestran en la Fig. 3.3) $\sigma(A) = \sigma^p(A) + \sigma^d(A)$, para $A = \text{H}^-$, He, Li^+ y Be^{++} , como una función de la distancia D entre el átomo y el centro del pozo. El eje determinado por los núcleos y el centro del pozo, nos permite analizar la dependencia con D de las componentes

paralela y perpendicular del tensor. Debido a la simetría esférica, tanto α como $\sigma^p(A)$ son iguales a cero cuando el átomo se encuentra en el centro ($D = 0$). Cuando el átomo se desplaza desde el centro, tanto las componentes paralelas y perpendiculares de α , σ^p , σ^d asumen valores no nulos excepto para σ_{\parallel}^p que es cero debido a la simetría axial. Los tensores de apantallamiento magnético nuclear se calcularon con el origen de gauge en la posición de núcleo, como es habitual en los cálculos moleculares, pero no hemos realizado ningún intento sistemático del estudio de su dependencia con este parámetro.

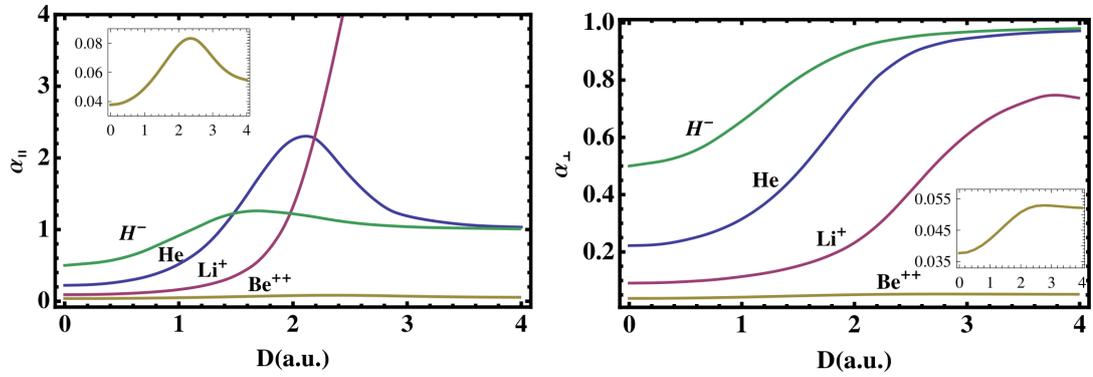


Figura 3.2: Componentes paralela (panel izquierdo) y perpendicular (panel derecho) de la polarizabilidad estática del anión H^- , el átomo de He, y los cationes de Li^+ y Be^{++} , como una función de la distancia al centro del potencial de confinamiento, D . Todas las cantidades están dadas en unidades atómicas. El recuadro muestra las polarizabilidad del Be^{++} en más detalle.

La Fig. 3.2 muestra $\alpha_{\parallel}(D)$ y $\alpha_{\perp}(D)$ obtenidos de los cálculos de RPA incluyendo también al ión isoelectrónico H^- . A medida que el átomo se aleja del centro del pozo, las componentes paralelas $\alpha_{\parallel}(H^-)$, $\alpha_{\parallel}(He)$ y $\alpha_{\parallel}(Be^{++})$ crecen desde cero, llegan a un máximo alrededor del radio del pozo ($D = 2$ a.u.) y después disminuyen hasta un valor constante. Para valores de D pequeños, la carga se distribuye de manera asimétrica entre los centros, induciendo así un momento dipolar a lo largo de la dirección longitudinal. Cuando D se aproxima y supera el radio del pozo, la carga del electrón tiende a acumularse en un solo centro, por ejemplo, dentro del pozo (para H^- y He) y alrededor de los núcleos, para el Be^{++} , como se puede ver en la Fig. 3.1; por lo tanto,

los valores asintóticos para $D = 4$ a.u. corresponden a las polarizabilidades de un pozo Gaussiano con dos electrones y un ión Be^{++} , respectivamente. La polarizabilidad de los iones de berilio confinados muestran una dependencia similar de la ubicación del átomo pero en una escala más pequeña, como se muestra en el recuadro de la Fig. 3.2. El ion de Li^+ confinado es intermedio entre los dos casos mencionados anteriormente. Como se muestra en la Fig. 3.1, la intensidad del pozo y del potencial de Coulomb son comparables entre sí, y la carga se distribuye más o menos por igual entre ellos para todas las distancias D ; el momento dipolar inducido y, por lo tanto, la polarizabilidad llega a depender linealmente con la separación D . La componente perpendicular α_{\perp} también aumenta de forma monótona desde cero, (es decir, su valor isotrópico) hasta un valor constante. Sin embargo, dicha componente es menos sensible a los cambios en la posición atómica D y se ve menos afectada por la separación entre los centros debido a la distribución de carga en la dirección perpendicular al eje de simetría.

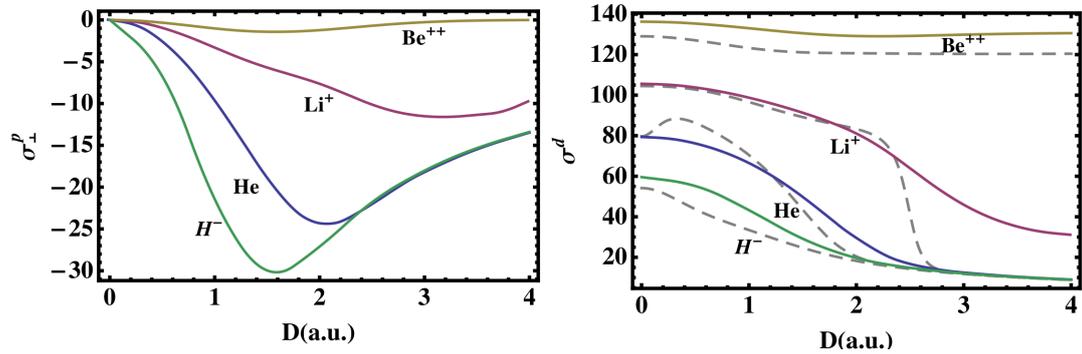


Figura 3.3: Componente perpendicular del término paramagnético (panel izquierdo) y diamagnético isotrópico (panel derecho) del apantallamiento magnético nuclear del anión H^- , el átomo de He , y los cationes Li^+ y Be^{++} , como una función de la distancia al centro del potencial de confinamiento, D . Las curvas en líneas de trazo representan los resultados del modelo isotrópico descrito en la Ref [103]. Los valores del apantallamiento magnético nuclear está dados en partes por millón (ppm).

La Fig. 3.3 muestra la componente perpendicular del término paramagnético del apantallamiento magnético nuclear σ_{\perp}^p y el valor isotrópico del apantallamiento diamagnético, $\sigma^d = (\sigma_{\parallel}^d + 2\sigma_{\perp}^d)/3$, en función de D . Análogamente a los cálculos molec-

ulares habituales, σ^p es negativo, y se anula para el confinamiento centrado debido a la simetría esférica. En cuanto D aumenta, la simetría esférica se rompe y σ_{\perp}^p se hace más negativa, hasta un mínimo cuando la distancia D se acerca al radio del pozo. Para distancias más grandes, la influencia del pozo de potencial en el núcleo se debilita y, asintóticamente, el núcleo queda libre en $D \rightarrow \infty$. Sería de esperar que la simetría esférica se restaura y σ^p se convierta en cero a medida que el átomo va quedando libre. Sin embargo, esto sólo ocurre para Be^{++} . La razón detrás de un comportamiento tal es la siguiente: como se discutió anteriormente, en grandes separaciones, sólo el ión de berilio conserva sus dos electrones como en el ión libre; los núcleos de H, He y Li se encuentran completa y parcialmente separada de sus electrones, respectivamente, de manera que, a grandes distancias, las funciones de onda son esencialmente el estado fundamental del pozo de potencial (para el H^- y el átomo de He) y la función de onda del estado ligado (para el ion Li). Ninguno de ellos tiene la simetría esférica alrededor del núcleo, requerido para que los operadores den un apantallamiento nuclear paramagnético nulo.

El panel derecho de la Fig. 3.3 representa la constante de apantallamiento magnético nuclear $\sigma^d = (\sigma_{\parallel}^d + 2\sigma_{\perp}^d)/3$, que es positivo ya que σ_{\parallel}^d y σ_{\perp}^d son los valores medios en el estado fundamental de operadores definidos positivos.

Teniendo en cuenta la isotropía del tensor σ^d , se explica su comportamiento con un modelo isotrópico originalmente formulado para átomos libres [103]. Dentro de este modelo, el efecto de la interacción entre el espín nuclear y el campo magnético reescala la carga nuclear a un valor efectivo Z^* y las energías se obtienen dentro de un conjunto base minimal (en este capítulo, dos funciones gaussianas de tipo s centrados en el pozo y el núcleo). Los resultados del modelo se representan en líneas discontinuas junto con los cálculos RPA. Para H^- , y He, el modelo describe bastante bien el apantallamiento diamagnético para toda la gama de D ; por $\sigma^d(\text{Li}^+)$, la descripción es bastante buena, especialmente cuando el núcleo se encuentra en el pozo ($D \lesssim 2$). Por último, para Be^{++} , el modelo describe la tendencia correcta, pero subestima el cálculo RPA, casi de manera constante, en alrededor de 7 ppm lo que representa menos del 5% de su valor. Cabe señalar que el uso de una sola función gaussiana para describir el estado fundamental da un error de aproximadamente 15% en la energía de un átomo de hidrógeno pero sólo alrededor del 5% para la de un pozo Gaussiano. Por lo tanto,

cuanto mejor la función de onda pueda ser aproximada por una función Gaussiana, más precisa serán las propiedades calculadas. Por lo tanto, aunque los resultados del modelo tienen errores que aumentan con Z , para los elementos livianos considerados aquí, la descripción física del apantallamiento diamagnético es el de un átomo en un entorno isotrópico.

3.4. CONCLUSIONES

En resumen, en este capítulo se han reportado resultados de los cálculos de las propiedades eléctricas y magnéticas de los átomos de dos electrones bajo confinamiento Gaussiano en función de la posición atómica con respecto al centro del pozo. Los diferentes comportamientos de las propiedades de cada átomo puede ser entendida como un proceso de disociación de la molécula artificial diatómica formada entre ambos centros. La competencia entre el pozo y el potencial de Coulomb da lugar a tres escenarios diferentes según si uno de ellos es dominante o ambos se vuelven comparables. Hemos proporcionado cálculos ilustrativos de la dependencia de los componentes de la polarizabilidad y los tensores de apantallamiento magnético nuclear con la posición nuclear para estas tres situaciones. Para las posiciones atómicas fuera del centro, donde el uso de los métodos analíticos se vuelve muy complicado, el método de Hartree-Fock auto-consistente, en conjunto con la aproximación RPA para el propagador de polarización, proporciona una herramienta útil y versátil.

CAPÍTULO 4

EFFECTOS DE IMPUREZAS EN PUNTOS CUÁNTICOS DOBLES: MODULACIÓN DEL ENTRELAZAMIENTO

En este capítulo se muestra un análisis detallado de las propiedades electrónicas y ópticas de dos puntos cuánticos acoplados de dos electrones bidimensionales y el efecto de una carga de Coulomb debido a la presencia de una impureza. En particular, se muestra que el entrelazamiento de los electrones está fuertemente modulado por la posición y la carga de la impureza. Además se muestran modificaciones de las propiedades ópticas, caracterizadas por la intensidad de oscilador, por la presencia de una impureza cargada con el objetivo de correlacionar las mediciones ópticas con el grado de entrelazamiento del sistema.

4.1. INTRODUCCIÓN

El entrelazamiento, que es uno de los fenómenos más curiosos de la mecánica cuántica, se está estudiando en los últimos años como un recurso físico que se puede utilizar para los procesos de información cuántica como la teleportación de estados cuánticos [104–106]. Existe la posibilidad de manipular la cantidad de entrelazamiento

en una QD molécula mediante el control de los parámetros de la nanoestructura que definen el nanodispositivo. Zunger y He [107] estudiaron el efecto de la distancia interdó y la asimetría en el entrelazamiento espacial de dos electrones en puntos cuánticos acoplados. Ellos demostraron que la asimetría en estos sistemas reduce significativamente el grado de entrelazamiento de los dos electrones. El entrelazamiento de dos electrones de diferentes puntos cuánticos de átomos y moléculas se han estudiado por varios autores en la última década [106–115]. La presencia de impurezas cargadas en las inmediaciones, como Das Sarma y Nguyen especularon, tiene un efecto importante en el acoplamiento singlete-triplete, con un impacto indeseable para las manipulaciones previstas en el procesamiento cuántico de información. Uno de los principales objetivos de este capítulo es el cálculo del entrelazamiento espacial [106, 109, 111] de dos electrones en una molécula de doble QD en presencia de impurezas cargadas. Experimentalmente, la cantidad de entrelazamiento de dos electrones en un QD acoplado directamente resulta muy difícil de medir. Existen varias técnicas que permiten medir la posibilidad de una doble ocupación [107] y las propiedades ópticas tales como la transición dipolar, la intensidad del oscilador y la sección transversal de fotoionización [116–121] de estos sistemas.

Si conociéramos la relación entre estas cantidades y el grado de entrelazamiento, podríamos inferir, a partir de mediciones experimentales, la magnitud del entrelazamiento espacial de los electrones del sistema físico de interés. La posibilidad de utilizar esta información para diseñar nanodispositivos de acuerdo con el nivel de entrelazamiento deseado resulta bastante difícil porque las posiciones y la carga de las impurezas son desconocidas. A pesar de esto, hay algunos experimentos recientes que muestran el mecanismo de incorporación dopante y cómo la incorporación de defectos de impurezas puede ser controlado [39, 40, 122].

4.2. MODELO Y MÉTODO DE CÁLCULO

Consideraremos dos puntos cuánticos bidimensionales acoplados lateralmente cuyos centros están separados una distancia d uno de otro, y que contienen dos electrones. En los puntos cuánticos producidos electrostáticamente, tanto su tamaño y separación pueden ser controlados por tensiones de puerta variables a través de electrodos

metálicos depositados en la interfaz de la heteroestructura. La existencia eventual de dopaje por impurezas hidrogenoides, probablemente derivado de átomos dopantes de Si en el QD de GaAs, ha sido estudiado experimentalmente [123]. Estas impurezas se han analizado teóricamente con un potencial superpuesto atractivo dependiente de $1/r$ [124, 125]. Por otra parte, algunos cruces evitados y rotura de la degeneración en los espectros de experimentos de transporte de un solo electrón se han atribuido a las impurezas de Coulomb cargadas negativamente y situadas cerca del QD [126]. Del ajuste de los espectros de transporte experimental a un modelo de un solo electrón con confinamiento parabólico con una carga de Coulomb q , se obtiene un conjunto de parámetros; entre ellos, un radio de confinamiento de 15,5 nm, una frecuencia de confinamiento $\hbar\omega = 13,8$ MeV y una carga de impurezas de aproximadamente 1 o 2 cargas de electrones. En efecto, la incertidumbre en los parámetros y las suposiciones introducidas en el modelo no permiten garantizar precisamente el valor de la carga de las impurezas. Por lo tanto, consideramos que la carga del átomo dopante Ze como un parámetro que varía en el rango de $0 \leq Z \leq 1$, con el fin de explorar su efecto sobre las propiedades del sistema.

El Hamiltoniano de nuestro problema corresponde a

$$H = h(\mathbf{r}_1) + h(\mathbf{r}_2) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 r_{12}}, \quad (4.1)$$

donde $\mathbf{r}_i = (x_i, y_i)$ ($i = 1, 2$) y

$$h(\mathbf{r}) = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V_L(\mathbf{r}) + V_R(\mathbf{r}) + V_A(\mathbf{r}), \quad (4.2)$$

m^* es la masa efectiva de los electrones, ϵ es la constante dieléctrica efectiva, V_L y V_R son los potenciales de confinamiento para los puntos cuánticos izquierdo y derecho y V_A representa la interacción de los electrones con las impurezas coulombianas cargadas. Modelamos el confinamiento con potenciales Gaussianos atractivos

$$V_i(\mathbf{r}) = -V_0 \exp\left(-\frac{1}{2a^2} |\mathbf{r} - \mathbf{R}_i|^2\right), \quad (i = L, R), \quad (4.3)$$

donde \mathbf{R}_L y \mathbf{R}_R son las posiciones del centro de los puntos izquierdo y derecho respectivamente, V_0 denota la profundidad del potencial y a puede tomarse como una medida

de su rango. Consideraremos una impureza simple centrada en \mathbf{R}_A , y modelada como un potencial de Coulomb hidrogenoide bidimensional

$$V_A(\mathbf{r}) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0|\mathbf{R}_A - \mathbf{r}|} \quad (4.4)$$

Elegimos una base monoeléctronica de funciones Gaussianas, centradas en los puntos cuánticos y en las posiciones atómicas \mathbf{R}_P ($P = L, R, A$). Los exponentes de estas gaussianas fueron optimizados para un pozo Gaussiano y un átomo separadamente, además, estos conjuntos de exponentes fueron suplementados con funciones de valencia y polarización. Para nuestros cálculos un conjunto de funciones de base de $2s2p$ funciones para los QDs, y $5s5p1d1f$ para el átomo resulto ser apropiado para alcanzar la convergencia de las autoenergías.

Los resultados numéricos presentados en este capítulo se refieren a los que corresponden a los parámetros de GaAs: masa efectiva $m^* = 0,067m_e$, constante dieléctrica efectiva $\epsilon = 13,1$, radio de Bohr $a_B^* = 10$ nm y unidad atómica de energía efectiva de 1 Hartree* = 10,6 meV fueron tomados de [26, 126]. La profundidad de los potenciales Gaussianos que modelan los pozos fue tomada como $V_0 = 4$ Hartree* = 40,24 meV, y su rango típico $a = \sqrt{2}a_B^* = 14,1$ nm.

4.3. ENTROPÍA DE ENTRELAZAMIENTO Y ACOPLAMIENTO DE INTERCAMBIO

Las aplicaciones propuestas de puntos cuánticos para la computación cuántica requieren un acoplamiento de intercambio grande entre los electrones a lo largo de regiones separadas del espacio. Hasta cierto punto, los dos requisitos compiten entre sí. En una imagen simple, uno podría tener un acoplamiento de intercambio grande para electrones que ocupan doblemente el mismo punto o átomo. En tal caso, el estado singlete tiene la forma de una función de onda producto $\varphi_0(\mathbf{r}_1)\varphi_0(\mathbf{r}_2)$ con la correspondiente función de espín singlete; el estado triplete más bajo, sin embargo, tiene la forma del producto antisimetrizado de dos funciones de un solo electrón, $\varphi_0(\mathbf{r}_1)\varphi_1(\mathbf{r}_2) - \varphi_0(\mathbf{r}_2)\varphi_1(\mathbf{r}_1)$, de diferentes energías de partículas solo ϵ_0 y ϵ_1 . Por lo tanto, el estado triplete tendrá una energía bastante más alta que el estado singlete,

dando así un acoplamiento de intercambio grande. Sin embargo, un acoplamiento tan grande no es favorable para tareas de computación cuántica porque los estados se localizan en el espacio. El uso de estados electrónicos como qubits requiere, por ejemplo, la posibilidad de detectar la ocupación simple o doble de dos puntos cuánticos, separados una distancia medible, manteniendo ambos electrones correlacionados.

Cuando la separación interdot aumenta, la interacción electrón-electrón disminuye y su importancia relativa con respecto al potencial de confinamiento tiende a desaparecer. En el límite de grandes separaciones interdot, la repulsión de Coulomb se minimiza ocupando simplemente cada QD con un electrón. En este límite, las energías tanto del singulete (+) triplete (-) estados, $\varphi_0(\mathbf{r}_1)\varphi_1(\mathbf{r}_2) \pm \varphi_0(\mathbf{r}_2)\varphi_1(\mathbf{r}_1)$ se aproximan a la suma de QDs simplemente ocupados y su diferencia J tiende a cero. En otras palabras, las mejores condiciones para las aplicaciones de procesamiento de información cuántica surgen de un compromiso entre una alta correlación espacial de los pares de electrones que se da para las separaciones más largas posibles donde el acoplamiento de intercambio J sigue siendo considerable. Este comportamiento se ilustra en la Fig. 4.1, suponiendo una impureza de carga positiva de una carga del electrón ($Z = 1$).

La Fig 4.1 muestra las energías del singulete y triplete del estado fundamental para el doble QD, separados una distancia $d = 30$ nm, en función de la posición de la impureza x_A . El recuadro muestra el comportamiento del acoplamiento de intercambio singulete-triplete como una función de la posición de la impureza. Estos resultados están de acuerdo cualitativamente con los de Ref. [26]. El acoplamiento de intercambio singulete-triplete esta fuertemente afectada por la presencia de la impureza cargada, y tiene el valor máximo cuando la impureza está centrada entre los dos puntos, y tiene un mínimo próximo a cero cuando la impureza se encuentra en $x_A = d$. Como era de esperar, la separación tiende asintóticamente al caso de doble QD libre de impurezas cuando el átomo de impureza se encuentra muy lejos del sistema de doble QD. Vamos a mostrar a continuación que las posiciones de impurezas que dan la mayor separación de las energías, es decir, los que están cerca de la mitad de la distancia interdot, corresponden a un estado fundamental de dos electrones cuya función de onda espacial es muy localizada en el átomo de impureza, por lo tanto tiene un pequeña valor del entrelazamiento espacial.

En lo que sigue nos limitaremos a la impureza situada a lo largo del interdot x , $\mathbf{R}_A = (x_A, 0)$.

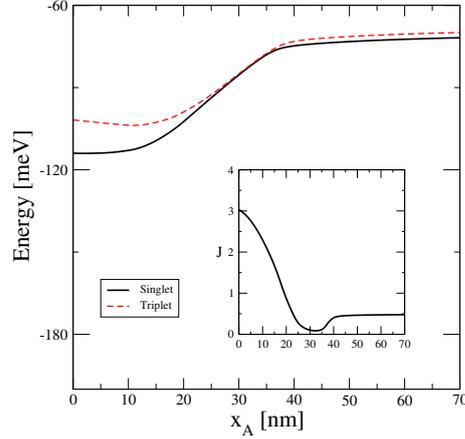


Figura 4.1: Energía del estado fundamental calculado de dos electrones en el doble QD para una distancia interdot $d = 30$ nm, con un átomo de impureza de carga de $Z = 1$ situado a lo largo del eje de interdot en función de la posición de la impureza. La línea de color negro (línea roja-discontinua) muestra la energía del estado fundamental singlete (triplete). El recuadro muestra el acoplamiento de intercambio singlete-triplete J en función de la posición de la impureza.

Vamos a estudiar ahora cómo el grado de correlación cuántica espacial de dos electrones en el QD acoplado es modificado por la posición y la carga de una impureza atómica apantallada. Como se mencionó anteriormente, las funciones de onda de los autoestados se pueden factorizar en su parte orbital y de espín. Para el estado fundamental, la parte de espín es una función de onda singlete, que es máximamente entrelazada y constante. Por lo tanto, a lo largo de este capítulo, vamos a considerar solamente el entrelazamiento espacial [106, 109, 111–113].

La entropía de Von Neumann de la matriz densidad reducida cuantifica el entrelazamiento para un estado puro bipartito y se puede calcular utilizando [109, 111–113, 127]

$$S = -\text{Tr}(\hat{\rho}^{\text{red}} \log_2 \hat{\rho}^{\text{red}}), \quad (4.5)$$

donde $\hat{\rho}^{\text{red}} = \text{Tr}_2|\Psi\rangle\langle\Psi|$ es el operador densidad reducida, Ψ es la función de onda de dos electrones y la traza se toma sobre las coordenadas de un electrón. La entropía de Von Neumann puede ser escrita como

$$S = - \sum_i \lambda_i \log_2 \lambda_i, \quad (4.6)$$

donde λ_i son los autovalores de la parte espacial del operador densidad reducida

$$\int \rho^{\text{red}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1) \phi_i(\mathbf{r}'_1) d\mathbf{r}'_1 = \lambda_i \phi_i(\mathbf{r}_1). \quad (4.7)$$

donde

$$\rho^{\text{red}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1) = \int \Psi^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \Psi(\mathbf{r}'_1, \mathbf{r}_2) d\mathbf{r}_2. \quad (4.8)$$

En la Fig. 4.2 se muestra la entropía de Von Neumann para dos electrones en el doble QD en función de la distancia interdot, en ausencia de impurezas (línea discontinua negra) y con cargas atómicas $Z = 1$ (línea azul discontinua con puntos) y $Z = 0, 1$ (línea roja continua) situado en el centro del doble QD. En todos los casos se observa que, para las pequeñas separaciones interdot, la entropía es pequeña, y aumenta levemente con el aumento de la separación interdot. El aumento del entrelazamiento espacial es debido a una deslocalización gradual de la función de onda del estado fundamental. Para distancias interdot entre 20 y 40 nm, hay un gran aumento de la entropía de entrelazamiento, lo que indica un cambio cualitativo de la función de onda del estado fundamental de un estado doblemente ocupado en el átomo a un estado con los dos puntos cuánticos ocupados por separado, alcanzado en grandes separaciones interdot ($d \gtrsim 50$ nm), donde la entropía satura a su valor máximo $S = 1$. La variación de S es similar para todos los casos, aunque la presencia de la impureza disminuye el entrelazamiento para cada separación interdot, debido al hecho de que el potencial atómico contribuye a localizar la densidad electrónica en el centro del sistema.

El efecto de la carga y la ubicación de la impureza en el entrelazamiento espacial, para la geometría de puntos cuánticos fijos, se puede observar en la Fig. 4.3 donde la entropía se representa como una función de la posición de la impureza. La separación entre los dos puntos cuánticos se mantiene fija a 30 nm, y se consideran dos casos límite: una carga atómica altamente apantallada $Z = 0,1$ y una carga no apantallada

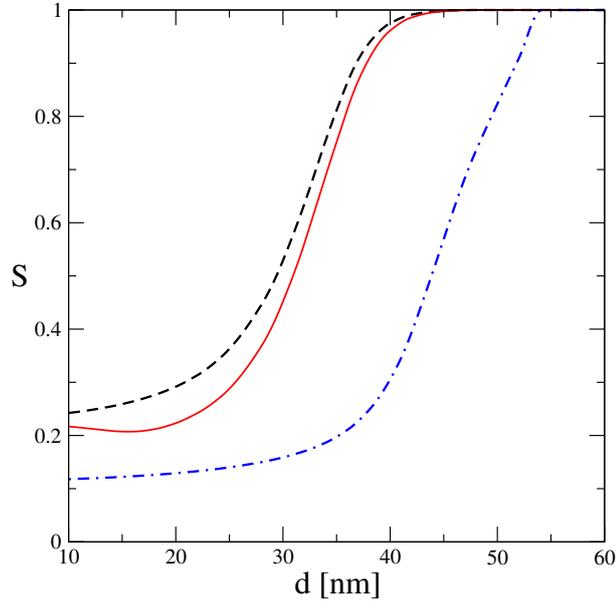


Figura 4.2: La entropía de Von Neumann de la matriz densidad reducida para QD acoplados de dos electrones como una función de la distancia interdot. La línea negra discontinua muestra la entropía cuando no hay impureza presente en la muestra, la línea roja corresponde a la entropía cuando una impureza de $Z = 0,1$ se encuentra en $x = y = 0$ y la línea azul discontinua corresponde a $Z = 1,0$.

$Z = 1$. En ambos casos, la entropía de entrelazamiento crece cuando la impureza se desplaza fuera del centro del doble QD hasta una posición en la que S alcanza un máximo y, finalmente, baja a un valor $S = 0,53$, cuando el átomo está distante de los puntos ($x \gtrsim 40$ nm).

Los valores mínimo y máximo del entrelazamiento producido por una carga pequeña de $Z = 0,1$ son menos pronunciados que los debidos a las impurezas altamente cargadas $Z = 1$. Esta modulación del entrelazamiento por la posición de las impurezas refleja la existencia de dos regímenes: uno de bajo entrelazamiento de impurezas en (o cerca de) el centro de la distancia interdot, y otro de mayor (pero no máximo) entrelazamiento para posiciones atómicas externas al segmento interdot. Estas dos regiones son las que se encuentran a la izquierda y a la derecha del pico en forma de campana de S en la Fig. 4.3, respectivamente. La posición del pico depende de la magnitud de

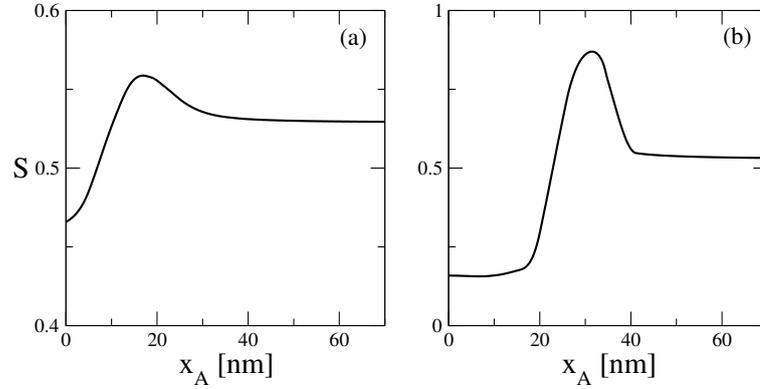


Figura 4.3: Entropía de Von Neumann de la matriz densidad reducida para el punto cuántico acoplado de dos electrones como una función de la posición de la impureza (a lo largo del eje interdot) para $d = 30$ nm y diferentes intensidades de impurezas: (a) $Z = 0,1$ y (b) $Z = 1,0$.

la carga. Para cargas pequeñas, el máximo grado de entrelazamiento se produce en $x_A \approx 17$ nm, es decir, cerca del centro del punto cuántico de la derecha. Para las cargas grandes $Z = 1$, sin embargo, el pico de S se produce en $x \approx 30$ nm. La razón de ello es que, para las impurezas débilmente cargadas, el potencial atómico es una perturbación débil para los pozos de potencial de los puntos cuánticos. Por lo tanto, la entropía varía en un rango pequeño ($0,47 \leq S \leq 0,56$) en torno al valor libre de impurezas $S = 0,53$. Para impurezas de carga elevada, sin embargo, el potencial atómico es fuerte y la posición de su centro determina en gran medida la función de onda espacial. La gama de posiciones atómicas ($0 \leq x_A \lesssim 20$ nm) a lo largo de las cuales S se mantiene baja, se puede entender como debido a la localización de los electrones cercanos al átomo. Cuando el átomo está dentro de uno de los puntos (QD_R), el potencial atómico refuerza el potencial del pozo derecho y la localización de la densidad de electrones, dando así una bajo grado de entrelazamiento. Cuando el átomo se mueve hacia fuera del doble QD, la fuerza del doble pozo compite con el potencial atómico hasta una distancia QD-átomo doble de 30 nm, donde se convierte energéticamente conveniente deslocalizar la función de onda de los electrones, parecido al doble enlace QD en ausencia de impureza.

Para mostrar claramente la influencia de la carga atómica sobre la función de onda, vamos a considerar dos situaciones un poco menos extremas: $Z = 0,2$ y $Z = 0,8$ Fig. 4.4 muestra la densidad electrónica del estado fundamental en el eje interdot cuando el átomo de impureza se encuentra en $x_A = 15$ nm, en tres separaciones diferentes interdot, $d = 15, 25$ y 40 nm. Los paneles de la izquierda muestran que para la pequeña carga, como los puntos cuánticos se separan el uno del otro, la densidad electrónica desarrolla picos situados en los centros de potencial. Para cargas grandes $Z = 0,8$, sin embargo, la densidad posee siempre una cúspide en la posición de la impureza. Por lo tanto, en este último caso, la presencia de la impureza podría estropear el rendimiento del dispositivo para tareas de computación cuántica debido a la alta localización de la densidad de electrones implica un bajo grado de entrelazamiento.

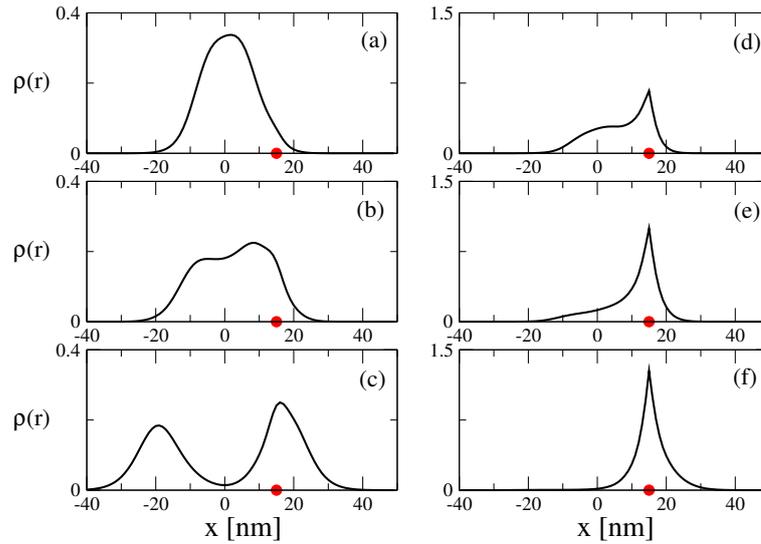


Figura 4.4: Densidad del estado fundamental de un electrón a lo largo del eje interdot. Los paneles izquierdo muestran el límite de impureza débil $Z = 0,2$ y los derechos el límite de impureza fuerte $Z = 0,8$: (a) y (d) $d = 15$ nm, (b) y (e) $d = 25$ nm y (c) y (f) $d = 40$ nm. Los círculos rojos muestran la posición de la impureza $x_A = 15$ nm

La Fig. 4.5 muestra la dependencia de la entropía de Von Neumann en la carga de la impureza y la distancia interdot para una posición dada del átomo de impureza: $x_A = 15$ nm. Idealmente, con tal de que el valor de la carga de las impurezas pueda ser

medido en una muestra dada, uno sería capaz de elegir la distancia interdot óptima para un determinado grado de entrelazamiento. La figura muestra claramente los regímenes antes mencionados, potencial de la impureza débil ($Z \lesssim 0,6$) y fuerte ($Z \gtrsim 0,6$), correspondiente al grado alto y bajo de entrelazamiento, respectivamente. Para una impureza dado (fija) de carga pequeña Z , la entropía aumenta monótonamente con la distancia interdot D . Por otro lado, para un determinado valor grande de Z , la entropía aumenta monótonamente cuando la distancia interdot d crece.

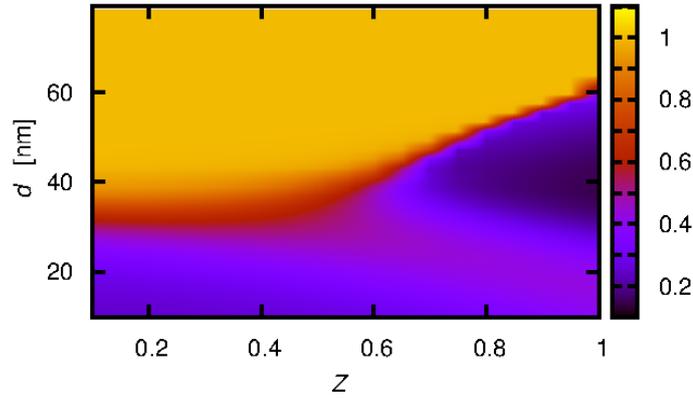


Figura 4.5: Mapa de colores para la entropía de Von Neumann de la matriz densidad reducida para los puntos cuánticos acoplados de dos electrones como función de la intensidad de la impureza y de la distancia interdot para $x_A = 15$ nm.

La Fig. 4.6 muestra la dependencia de la entropía en la distancia interdot, para diferentes posiciones de impureza ($x_A = 15$ y 20 nm) y cargas ($Z = 0,1, 0,5, 0,7$ y 1). La variación correspondiente en ausencia de impurezas también se representa en líneas discontinuas para referencia. Se puede ver dos comportamientos cualitativamente diferentes para cargas pequeñas ($Z = 0,1, 0,5$) y grandes ($Z = 0,7, 1$). El aumento monótono de S con d es característico del potencial atómico débil; la separación de los puntos cuánticos con una pequeña carga atómica en medio de ellos, produce pequeños cambios en la distribución de electrones en comparación con el

doble QD libre de impurezas. Por otra parte, potenciales atómicos fuertes inducen una modulación de la entropía cuando D aumenta; para pequeños valores de d , los tres potenciales están cerca uno al otro y la densidad de electrones se localiza alrededor de sus centros. Para grandes distancias interdot, la energía del sistema se reduce al mínimo por la disminución de la repulsión electrónica, es decir, por la deslocalización de la función de onda y, por lo tanto, por el aumento de su entrelazamiento.

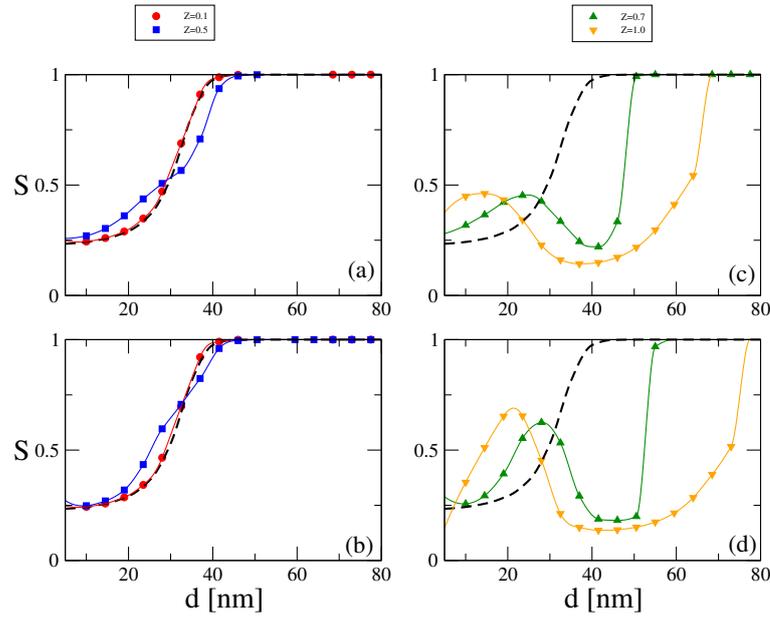


Figura 4.6: Entropía de Von Neumann de la matriz reducida para los puntos cuánticos acoplados de dos electrones como una función de la distancia interdot para $x_A = 15$ nm ((a) y (c)), $x = 20$ nm ((b) y (d)) y valores diferentes de la intensidad de la impureza. (a) y (b) muestran el límite de impureza débil ($Z = 0,1$ y $Z = 0,5$) mientras que en (c) y (d) observa el límite de impureza fuerte ($Z = 0,7$ y $Z = 1,0$). La línea negra discontinua muestra el comportamiento de la entropía cuando no hay impurezas en la muestra.

La Fig. 4.7 muestra este efecto en el acoplamiento de intercambio correspondiente a las situaciones de Fig. 4.6 (a) y 4.6 (c), que tienen el átomo en $x_A = 15$ nm. Se puede observar que S y J tienen, aproximadamente, las variaciones opuestas; donde el potencial atómico es débil, S aumenta y J disminuye a medida que los puntos cuánticos

se separan el uno del otro. Cuando el potencial atómico es fuerte, el máximo de S se produce en el mínimo de J y recíprocamente; Además, en grandes separaciones de los puntos cuánticos, como la entropía tiende a su valor asintótico $S = 1$ el acoplamiento de intercambio tiende a cero. Entonces, para aplicaciones de información cuántica específicas, podría ser deseable sintonizar la distancia interdot para el aprovechamiento de una o ambas propiedades.

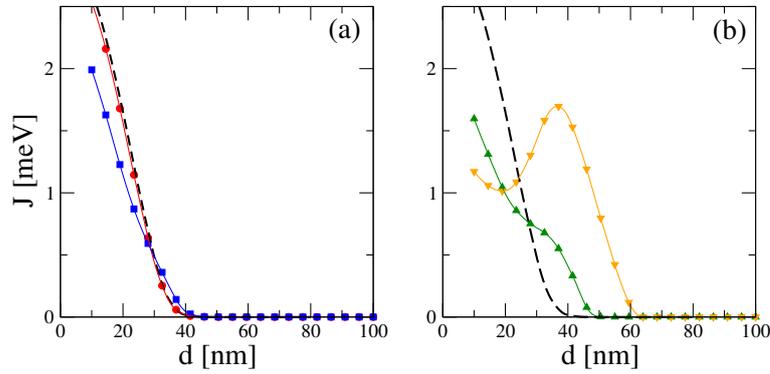


Figura 4.7: J como función de la distancia interdot d con un centro de impureza ubicados en $x_A = 15nm$. En el panel izquierdo (a) observamos el acoplamiento singlete-triplete para $Z = 0,1$ (círculos rojos) y $Z = 0,5$ (cuadrados azules). En (b) mostramos un acoplamiento singlete-triplete para $Z = 0,7$ (triángulos verdes hacia arriba) y $Z = 1,0$ (triángulos naranja hacia abajo). La línea negra discontinua representa la energía singlete triplete sin impureza.

La variedad de los comportamientos del grado de entrelazamiento espacial con los diversos parámetros del sistema, que se describen en esta sección, tiene sus raíces en la distribución espacial de la función de onda del electrón. Vamos a discutir en la siguiente sección una relación con una propiedad óptica, como la intensidad del oscilador, con el fin de proporcionar una conexión viable con magnitudes medibles.

4.4. EFECTOS DE IMPUREZA EN LAS PROPIEDADES ÓPTICAS

La susceptibilidad óptica de un sistema depende de la amplitud de transición para la interacción de su momento dipolar con el campo eléctrico óptico entre dos estados singuletes Ψ_i y Ψ_j , digamos el estado fundamental y algún excitado, y de las correspondientes diferencias de energía. La intensidad del oscilador para un campo eléctrico aplicado a lo largo del eje de interdot

$$f_{ij} = \frac{2m^*}{\hbar}(E_j - E_i)|\langle\Psi_0|x_1 + x_2|\Psi_1\rangle|^2, \quad (4.9)$$

proporciona información sobre la viabilidad de las transiciones ópticas.

Se estudia aquí cómo la impureza afecta a la intensidad del oscilador del doble QD. Los QD se mantienen 30 nm separados uno de otro y la posición de la impureza x_A se varía desde el centro del segmento de interdot ($x_A = 0$) a una gran separación de los puntos ($x_A = 70$ nm), incluyendo el caso de la impureza centrada en un solo punto ($x_A = 15$ nm). La carga Z del átomo se varía desde $Z = 0,1$ (impurezas altamente apantalladas) a $Z = 1$ (bajo apantallamiento). Para el sistema considerado, la intensidad del oscilador entre el estado fundamental y los primeros estados simplemente excitados, f_{12} , representan la contribución dominante con respecto a todos los otros f_{ij} . La precisión del cálculo se comprobó mediante la verificación de la regla de suma Thomas-Reiche-Kuhn, $\sum_{ij} f_{ij} = N$, con $n = 2$ es el número de electrones en el sistema. Los resultados se muestran en la Fig. 4.8 junto con la entropía de entrelazamiento por las mismas posiciones y cargas atómicas.

Los casos de carga débil y fuerte son claramente distinguibles. En el régimen de carga de impurezas pequeñas ($Z \lesssim 0,6$), la intensidad del oscilador f_{12} varía aproximadamente con una dependencia cuadrática en x_A ; es decir, se comienza desde $f_{12} \approx 2$, alcanza un mínimo alrededor de $x_A = 15$ nm, que aumenta finalmente hasta un valor de 2, en casi $x_A = 30$ nm. Cuanto mayor sea la carga de la impureza Z , más pronunciado será el mínimo de f_{12} . Colocando el átomo más lejos del sistema de doble punto ($x_A > 30$ nm) no cambia f_{12} .

Por otro lado, en el régimen de carga de alta impureza ($Z \geq 0,6$), la intensidad del

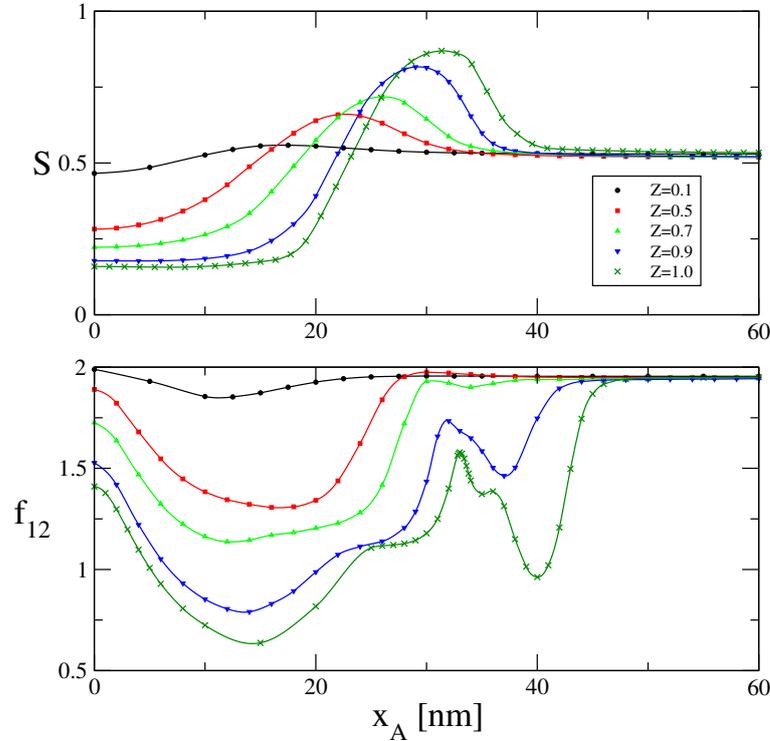


Figura 4.8: La entropía de Von Neumann de la matriz densidad reducida (panel superior) y la intensidad del oscilador f_{12} (panel inferior) entre el estado fundamental y el estado singlete primer excitado de un doble punto cuántico con una impureza de carga Z como una función de la posición de la impureza x_A , para diferentes valores de Z .

oscilador f_{12} exhibe características ricas en comparación con el caso de carga pequeña. El comportamiento más notable corresponde a $Z = 1$, que muestra sucesivamente una disminución similar, de $f_{12} = 1,4$ a $x_A = 0$, a $f_{12} = 0,6$ en $x_A = 15$ nm, seguido de un aumento de hasta $x_A = 25$ nm, una pequeña meseta en torno a 30 nm, un pico en $x_A = 33$ nm, un mínimo de $f_{12} \approx 1$ a 40 nm, por fin acercarse a la valor de saturación $f_{12} = 2$ para $x_A \geq 50$ nm. Para valores intermedios de $0,5 \leq Z \leq 1$, se observa una transición gradual entre ambos regímenes; a saber, por la disminución de Z de 1 a 0.5, el mínimo de la región $x_A \approx 40$ nm se hace menos profunda, el pico se achata, y la meseta se fusiona con el mínimo se producen en 15 nm, dando así al mínimo del régimen débil impureza.

Cabe señalar que el rango de $0 \leq x \leq 15$ nm corresponde a un átomo de impureza situado entre los puntos, mientras que para $x_A \geq 15$, el átomo está fuera del segmento definido por los centros de los pozos de potencial. En consecuencia, la existencia de una impureza en el sistema podría causar una disminución en f_{12} y, por lo tanto, en la absorción de luz o emisión del dispositivo de doble punto. Este efecto es más fuerte cuanto más cerca está el átomo a uno de los pozos. La situación más favorable para la excitación óptica (alta f_{12}) corresponden a una impureza centrada entre los puntos o fuera de la separación interdot, lejana a cada uno de ellos.

Vamos a discutir en lo que sigue, el comportamiento de la intensidad del oscilador debido a los cambios en la estructura electrónica inducidas por la variación de la posición de la impureza, comenzando por el caso más llamativo de una impureza altamente cargada $Z = 1$. Desplazaremos el átomo lo largo de la línea que une los puntos cuánticos, que tomamos como eje x ; por lo tanto, consideramos la función de onda de dos partículas a lo largo del eje x para las coordenadas x_1 y x_2 de cada electrón

$$\Psi_i(x_1, x_2) = \Psi_i(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \Psi_i(x_1, 0; x_2, 0), \quad (4.10)$$

para los dos estados singulete más bajos $\Psi_i(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$, $i = 0$ (estado fundamental) y $i = 1$ (primer estado excitado). La función $\Psi(x_1, x_2)$, representada como un gráfico de dos dimensiones en el plano (x_1, x_2) , permite visualizar las configuraciones más importantes que contribuyan a la función de onda total. Debido a la simetría de permutación, la función de onda espacial satisface $\Psi(x_1, x_2) = \Psi(x_2, x_1)$, convirtiéndose así en simétrica bajo reflexión con respecto a la diagonal $x_1 = x_2$. Los grandes valores de $\Psi(x, x)$, a lo largo de esta diagonal, corresponderían a configuraciones iónica o doblemente ocupadas. Por el contrario, los valores grandes de densidad $\Psi(x, -x)$ a lo largo de la diagonal $x_1 = -x_2$, corresponde a configuraciones donde los electrones están principalmente en semiplanos opuestos.

En los cálculos actuales, las coordenadas x de los centros de los pozos izquierdo $x_L = -15$ nm y derecho $x_R = 15$ nm se mantienen fijos mientras que la coordenada del átomo, $x_A = x$, varía. Los valores grandes de $\Psi(x_L, x_L)$, $\Psi(x_R, x_R)$ o $\Psi(x_A, x_A)$ representan una configuración doblemente ocupada en el punto izquierdo, el punto

derecho o el átomo, respectivamente.

Por otro lado, una configuración de un electrón en el átomo y el otro en un enlace (antienlace) entre los puntos izquierdo y derecho, estaría representada por

$$\Psi(x_1, x_2) = [c_L\varphi_L(x_1) \pm c_R\varphi_R(x_1)]\varphi_A(x_2) + (x_1 \leftrightarrow x_2), \quad (4.11)$$

donde el último término representa un término similar al primero con las variables intercambiadas, y φ_a es una función de onda centrada en torno a x_a ($a = L, R, A$). Entonces, $\Psi(x_1, x_2)$ tendrá grandes valores cercanos a (x_L, x_A) y (x_R, x_A) del mismo o de distinto signo para un enlazante o antibonding, respectivamente.

Las Figs. 4.9 y 4.10 muestran el estado fundamental $\Psi_0(x_1, x_2)$ y el primer estado excitado $\Psi_1(x_1, x_2)$.

Para un sistema de doble punto simétrico de un solo electrón sin impureza, los estados fundamental y primer excitado son el enlace y antienlace formados a partir de la combinación lineal de orbitales centrados en cada punto cuántico. Para el sistema de doble punto simétrico de dos electrones, las Figs. 4.9 y 4.10 muestran que cuando el átomo está en el centro de la línea que une los dos puntos ($x = 0$), la función de onda de dos partículas del estado fundamental (estado excitado) corresponde aproximadamente a un electrón en el átomo y el otro en el estado enlazante (antienlazante) del sistema de punto doble, la Ec. (4.11). Por lo tanto, el elemento de matriz $\langle \Psi_0 | x_1 + x_2 | \psi_1 \rangle$ corresponde aproximadamente a la suma de los elementos de matriz del átomo y el doble pozo por separados.

En $x = 15$ nm, el átomo está en el centro del punto cuántico a la derecha, el sistema se vuelve muy asimétrico, con el potencial de pozo a la derecha más profundo que el de la izquierda debido a la contribución de la impureza atractiva. El estado enlazante se convierte en un estado doblemente ocupado localizado cerca del centro del potencial combinado (QD_R y impureza), mientras que el antienlazante se vuelve más localizado alrededor para QD_L, debido la condición de ortogonalidad, lo que reduce los f_{12} . El comportamiento en el rango de $0 \leq x \leq 15$ nm refleja este cambio gradual.

De 15 a 30 nm, el efecto de la impureza se vuelve más débil a medida que el átomo se aleja, y los dos puntos cuánticos se convierten nuevamente en simétricos; esta redistribución de la carga hacia QD_L, recuperando parte del carácter enlazante y antienlazante para Ψ_0 y Ψ_1 , respectivamente. Esta configuración favorece un aumento

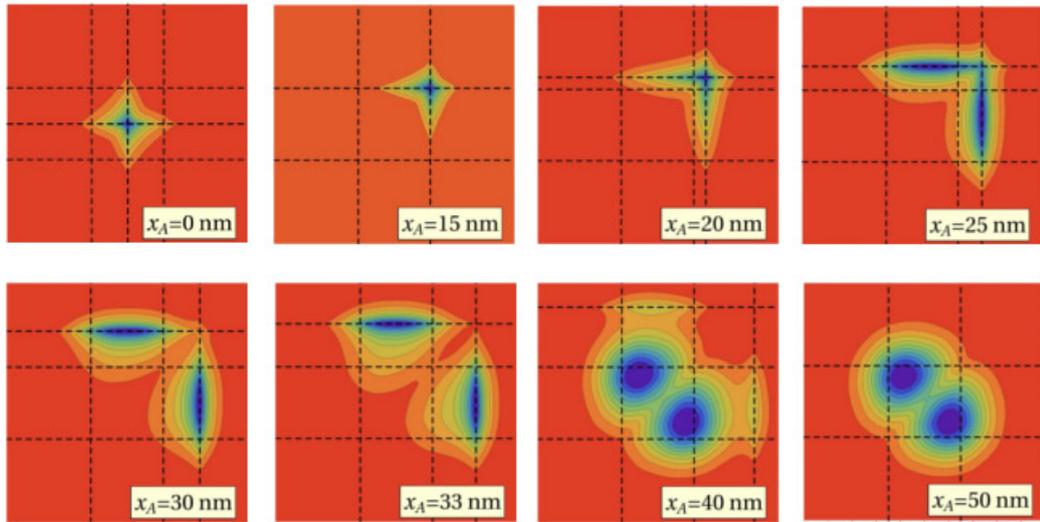


Figura 4.9: Gráfico de contorno en el plano (x_1, x_2) del estado fundamental singlete de dos electrones, $\Psi_0^0(x_1, x_2)$, a lo largo del eje interdot x para el estado fundamental de los puntos cuánticos dopados. Los pozos Gaussianos están centrados en $\mathbf{R}_L = (x_L, 0)$ y $\mathbf{R}_R = (x_R, 0)$ y el átomo de impureza de carga $Z = 1$, en $\mathbf{R}_A = (x_A, 0)$. Las líneas discontinuas vertical y horizontal $x_i = x_L, x_R$ o x_A ($i = 1, 2$), señalan la condición donde un electrón (electrón 1 o 2, respectivamente), está en el centro del pozo de la izquierda, a la derecha o en el átomo de impureza. Los centros de los pozos $x_R = -x_L = 15$ nm están fijos simétricamente con respecto al origen de coordenadas. El átomo esta sucesivamente ubicado en $x_A = 0, 15, 20, 25, 30, 33, 40$ and 50 nm.

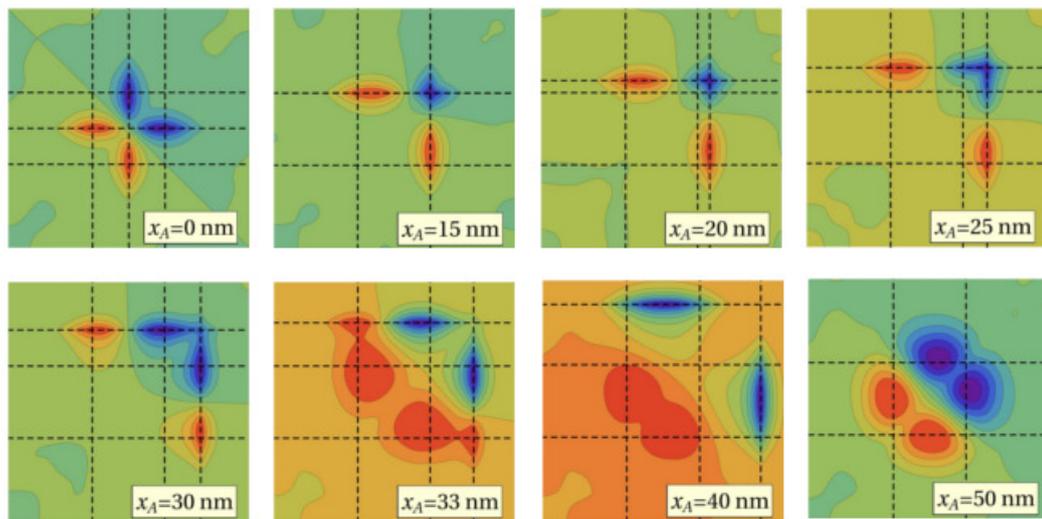


Figura 4.10: Al igual que en la Fig. 4.9 pero para el primer excitado singulete $\Psi_1^0(x_1, x_2)$.

de f_{12} . Además, como un electrón permanece en el átomo, que está más lejos del origen, el elemento de matriz de x se hace más grande que el correspondiente con al átomo en el origen. La intensidad del oscilador tiene un pico a 33 nm aumentando más o menos cuadráticamente con la posición del átomo como consecuencia del estiramiento de la carga.

Después de 33 nm, el electrón en el átomo no puede ser retenido por el potencial de la impureza, por lo tanto Ψ_0 se acerca a una configuración con un electrón en cada punto. Sin embargo, el estado excitado Ψ_1 todavía tiene una configuración en la que se ocupó el átomo, lo que reduce el valor de f_{01} .

Para las posiciones del átomo mayores que 40 nm, el estado excitado también libera su electrón y el punto cuántico doble se vuelve aún más simétrico, acercándose a su comportamiento en la ausencia de impurezas, de manera que se aproxima a su valor de $f_{01} = 2$. El límite de puntos aislados se ve claramente en las Figs. 4.9 y 4.10, donde para $x \gtrsim 50$ nm, los estados fundamental y primer excitados son, aproximadamente, $\Psi_0 \approx [\varphi_L(x_1)\varphi_R(x_2) + \varphi_R(x_1)\varphi_L(x_2)]/\sqrt{2}$ and $\Psi_1 \approx [\varphi_L(x_1)\varphi_L(x_2) - \varphi_R(x_1)\varphi_R(x_2)]/\sqrt{2}$.

Como se ve en la Fig. 4.8, la intensidad del oscilador para valores de carga de la impureza menores que $Z = 1$, tiene características más simples. Básicamente, parten de un valor F_{12} ligeramente menor que 2, disminuye hasta un mínimo cuando el átomo se acerca a un punto cuántico, por ejemplo QD_R , y aumenta de nuevo asintóticamente hasta alcanzar el valor libre de impurezas de 2.

La intensidad del oscilador es una propiedad muy sensible a la presencia de la impureza. Un valor de f_{12} cercano a 2, se produce ya sea cuando la impureza es débil dondequiera que se encuentre, o cuando un átomo de impureza altamente cargada está muy lejos del doble QD. Ambos casos son situaciones en las que la impureza es una perturbación de los puntos cuánticos acoplados y, por lo tanto, susceptibles de uso en la computación cuántica. Por el contrario, las desviaciones de la intensidad del oscilador respecto a un valor de 2, proporciona una indicación de una dificultad en la posibilidad de considerar el sistema como un doble QD.

4.5. CONCLUSIONES

En este capítulo, se ha estudiado la influencia de una impureza atómica Coulombiana sobre la entropía de entrelazamiento en puntos cuánticos dobles de dos electrones en dos dimensiones. La estructura electrónica se calculó mediante el uso de un método de interacción de configuraciones con una expansión en un conjunto de base gaussiana. El grado de entrelazamiento se mostró altamente modulado tanto por la ubicación y el apantallamiento de la carga del átomo de impureza. Dos regímenes están claramente identificados: uno de bajo entrelazamiento y otro de alto entrelazamiento, ambos determinados principalmente por la magnitud de la carga. El acoplamiento de intercambio entre los electrones, siendo proporcional al acoplamiento de intercambio singlete-triplete, tiene un comportamiento opuesto a la entropía. El uso eficiente de los dobles puntos cuánticos con impurezas, en tareas específicas de procesamiento de información cuántica podría requerir la puesta a punto de la separación interdoto o las profundidades de pozo cuántico, para optimizar el aprovechamiento del entrelazamiento, del acoplamiento de intercambio o de ambos. Finalmente, la magnitud de la intensidad del oscilador del sistema podría proporcionar una indicación de la presencia y características de impurezas que podrían influir en gran medida el grado de entrelazamiento del sistema. Está claro que las propiedades ópticas obtenidas experimentalmente pueden ayudar en el diseño de los puntos cuánticos dobles con propiedades deseables con el fin de utilizarlos para tareas de información cuántica.

El control cuántico de este tipo de sistemas se puede implementar utilizando pulsos de campos externos. Este problema, de gran importancia en la computación cuántica, se estudia en el capítulo que sigue. Por supuesto, la decoherencia, que no se considera aquí, juega un papel muy importante en la dinámica cuántica de este tipo de dispositivos. Los estudios realizados en escenarios Markovianos sugirieron que el entrelazamiento se desvanece debido a la decoherencia, mientras que el proceso de decoherencia en regímenes no Markovianos a veces da lugar a un nuevo efecto interesante: el resurgimiento repentino del entrelazamiento [128–131].

CAPÍTULO 5

NAVEGACIÓN CONTROLADA DE ALTA FIDELIDAD EN EL DIAGRAMA DE ESTABILIDAD DE CARGA DE UN PUNTO CUÁNTICO DOBLE

Luego de haber estudiado detalladamente la estructura electrónica y propiedades en los capítulos anteriores, en este capítulo nos proponemos estudiar distintas estrategias para controlar nuestro sistema por medio de parámetros externos. Aquí, se usa OCT para encontrar numéricamente los campos eléctricos (y por lo tanto los correspondientes voltajes de puerta) que conducen a la transferencia de carga deseada en un doble punto cuántico semiconductor. Se compara la eficiencia del método de OCT con el esquema de LZ, una de las estrategias más simples pero al mismo tiempo más lentas, y también con el protocolo de CP que permite conducir al sistema al QSL [132, 133]. Se muestra que los voltajes de puerta óptimos sintonizados para producir la transferencia de carga entre los puntos cuánticos son completamente parametrizables a través de una trayectoria de un parámetro en el diagrama de estabilidad de carga (CSD) definido por el punto de degeneración de las regiones sin electrones y con un electrón, así como también por las configuraciones inicial y final. Así, la información relevante

para producir la transferencia de carga entre los pozos puede ser extraída directamente del CSD. Este es un resultado notable por estar en contraste con la mayoría de las estrategias alternativas que requieren de un mayor conocimiento del espectro de energía del sistema para efectuar el control.

5.1. INTRODUCCIÓN

Qubits semiconductores, representados por grados de libertad de carga o de espín de electrones en puntos cuánticos, están en el corazón de las propuestas actuales como *hardware* para el procesamiento de información cuántica debido a su potencial escalabilidad con la tecnología actual de estado sólido. Particularmente, la disposición más usada para qubits consiste en dos puntos cuánticos semiconductores donde tanto el potencial de confinamiento y el estado de la carga pueden ser controlados con una gran precisión [134]. En principio, la carga y el espín del qubit pueden ser manipulados tanto por medios ópticos como eléctricos. Sin embargo, el control completamente eléctrico por puertas locales parece más atractivo que el control óptico debido a las dificultades prácticas para enfocar los rayos láser en forma óptima con la precisión espacial deseada. Por ejemplo, en dobles puntos cuánticos (DQD) el grado de libertad de carga es totalmente sintonizable polarizando el potencial de doble pozo y túnel, a través de la barrera, entre los pozos por voltajes de puerta [135].

Desde el trabajo seminal de Grossmann *et al.* [136] un número de trabajos experimentales y teóricos han abordado la cuestión del control de la localización de un estado electrónico en un doble pozo de potencial [24, 72, 135, 137–148]. Estas diferentes estrategias de control incluyen el uso de fenómenos analíticamente bien establecidas como la paradigmática transición de Landau-Zener (LZ) [24, 139, 140], la interferometría de Landau-Zener-Stückelberg [142, 143], el protocolo de pulso compuesto (CP) y varias otras estrategias de control de dos niveles aplicables a estos sistemas [132, 133, 139, 149, 150], y la OCT [72, 141, 145–148]. Para las estrategias de control experimentales, como puede verse en [137, 142–144], el primer paso es la medición del diagrama de estabilidad de carga (CSD). Este diagrama caracteriza la localización del electrón en función de los voltajes de puerta [134] y por lo tanto inicializa el escenario para la estrategia de control. Sin embargo, a diferencia de las

estrategias de control experimentales, este diagrama ha sido raramente empleado en el contexto de los esquemas de control teóricos.

5.2. TEORÍA Y MÉTODOS

5.2.1. MODELO

El Hamiltoniano de una partícula en la aproximación de masa efectiva para nuestro sistema

$$h(\mathbf{r}) = -\frac{1}{2m^*}\nabla^2 + V(\mathbf{r}) + V_b(\mathbf{r}) + W(\mathbf{r}), \quad (5.1)$$

consiste en el término de energía cinética, el potencial modelo del DQD $V(\mathbf{r})$, la barrera de potencial $V_b(\mathbf{r})$ y un potencial confinante $W(\mathbf{r})$ (ver abajo). Si bien el Hamiltoniano multielectrónico, Ec. (2.2), es usado para construir el CSD, en este capítulo nos enfocamos en las transiciones dependientes del tiempo que ocurren entre las regiones de un electrón. En adelante usaremos los parámetros del material del GaAs, es decir, una masa efectiva $m^* = 0.067 m_e$ y una constante dieléctrica $\varepsilon = 12.4$.

Inspirados por la disposición realista de los dobles puntos cuánticos acoplados [137], proponemos un modelo de potencial compuesto por un doble pozo

$$V(x, y, t) = -\frac{V_L(t)}{e^{(r_L-a)/b} + 1} - \frac{V_R(t)}{e^{(r_R-a)/b} + 1}, \quad (5.2)$$

donde las profundidades de los pozos izquierdo y derecho, $V_L(t)$ y $V_R(t)$, son funciones dependientes del tiempo que corresponden a los voltajes de puerta aplicados. Aquí a es el radio del pozo, b define la dureza de la frontera del potencial, $r_L = \sqrt{(x \mp d)^2 + y^2}$ es la distancia desde el centro del pozo derecho o izquierdo, y d es la mitad de la distancia entre los centros de los pozos. Los valores de los parámetros se ajustaron a $a = 40$ nm, $b = 1$ nm, and $d = 60$ nm. Este potencial es suplementado por una barrera de potencial central $V_b(\mathbf{r}) = v_b/(1 + e^{(x-b_x)/b})$ para separar los QDs así como también por una frontera rectangular definida por

$$W(\mathbf{r}) = 2 - \frac{1}{1 + e^{(|x|-l_x)/b}} - \frac{1}{1 + e^{(|y|-l_y)/b}}. \quad (5.3)$$

Este potencial evita que la función de onda se extienda sobre los contactos externos.

Usamos los valores $l_x = 180$ nm y $l_y = 100$ nm que corresponde a un área de 360 nm \times 200 nm. La altura de la barrera de potencial entre los pozos vale $v_b = 0.565$ meV.

Los autoestados del problema de una partícula se expanden en un conjunto de funciones de base Gaussianas Ec. (2.29). Para el caso de dos partículas consideramos solamente los estados singuletes cuya simetría es siempre la simetría del estado fundamental en ausencia de campo magnético externo aplicado [68]. Las autoenergías y las correspondientes autofunciones del problema de uno y dos electrones se obtienen usando el método variacional de Ritz para un conjunto de base no ortogonal. Para cada par (V_L, V_R) los exponentes α_i son optimizados simultáneamente usando el método de Nelder–Mead [151] para minimizar la energía del estado fundamental. Para obtener resultados convergidos para la energía del estado fundamental un conjunto de base $2s2p2d$ se encontró suficiente en todos los casos considerados aquí y todas las configuraciones de dos electrones para tal conjunto de base fueron incluidas en la expansión del los autoestados de dos partículas.

La estrategia de control que proponemos para controlar el sistema consiste en dividir la dependencia temporal de los voltajes de puerta en dos términos, $V_L = v_L^i + v_L$ y $V_R = v_R^i + v_R$, donde v^i es un ansatz inicial fijo que tiene en cuenta la información disponible del sistema físico (protocolos de control anteriores, estructura de cruces evitados, etc.), y v está optimizado con el algoritmo de OCT. En particular, definimos $v_L^i(t)$ y $v_R^i(t)$ como funciones lineales en el tiempo de acuerdo a la prescripción de LZ que será detallada más adelante. Este esquema corresponde a reexpresar las Ecs. (2.40), (2.41), y (2.43) de la OCT en término de las funciones v_L y v_R de manera que las ecuaciones (2.44) proporcionan las ecuaciones del campo óptimo.

Para las evoluciones de los campos en la base adiabática las matrices R^{-1} y R se calculan en una grilla sobre la región de interés del CSD y usamos una interpolación polinómica simple de primer orden para cada punto intermedio a los puntos de la grilla. Un espaciado de 0.01 meV entre los puntos de la grilla ha demostrado ser lo suficientemente pequeño para obtener una dinámica convergida en la base adiabática. En término del número de niveles, encontramos una dinámica convergida con los primeros ocho autoestados diabáticos para la evolución diabática, y con los primeros dos autoestados adiabáticos para la evolución adiabática. En este Capítulo utilizaremos los parámetros de la envolvente $a = 5,8$ ps y $b = 2,9$ ps, Ec. (2.42).

5.3. RESULTADOS

5.3.1. DIAGRAMA DE ESTABILIDAD DE CARGA

El CSD [Fig. 5.1(a)] especifica la configuración de carga del DQD en función del potencial de puerta en término del par (n_L, n_R) donde n_L (n_R) representa el número de electrones en el pozo izquierdo (derecho). Las regiones con localización del electrón en el pozo izquierdo y derecho están separadas por una línea de degeneración donde los electrones ocupan orbitales que se extienden en ambos pozos. La configuración de carga en cada región está determinada por la condición que el potencial electroquímico en los pozos $\mu(n_L + n_R)$, definido como

$$\mu(n_L + n_R) = E_G(n_L + n_R) - E_G(n_L + n_R - 1),$$

donde $E_G(n)$ representa la energía del estado fundamental del DQD con n electrones, es igual a el potencial electroquímico en los reservorios que supondremos iguales a cero.

La configuración del sistema con el potencial total V son visualizados en la Fig. 5.1(b) (para $y = 0$; notemos que el potencial real es bi-dimensional). El CSD en función de los voltajes de puerta V_L y V_R se muestran en Fig. 5.1(a). Las líneas de degeneración (líneas negras) están asociadas con el pasaje de un electrón entre el reservorio y el pozo izquierdo y derecho (líneas horizontal y vertical), o con el intercambio de un electrón entre los pozos (línea diagonal). En la línea diagonal hay dos puntos marcados en color gris, donde las configuraciones de un electrón $(1,0)$ y $(0,1)$ son igualmente probables que $(0,0)$ para $V_L = V_R \sim 0,53$ meV o con $(1,1)$ para $V_L = V_R \sim 2$ meV. En lo que sigue estos puntos serán referidos respectivamente como puntos de degeneración *playo* y *profundo*.

Los puntos negros marcados en el CSD en la Figura 5.1(a) corresponden a dos configuraciones que serán usadas como nuestros estados inicial y final del protocolo de control. El primer punto, ubicado en $(V_L, V_R) = (1,8, 0,9)$ meV, posee un Hamiltoniano y estado fundamental denotado por H_L and $|L\rangle$ respectivamente, mientras para el segundo punto, ubicado en $(V_L, V_R) = (0,9, 1,8)$ meV, el Hamiltoniano y el estado fundamental se denotan por H_R y $|R\rangle$.

La curva de línea de trazos roja corresponden a uno de los posibles caminos en el CSD para conectar los estados $|L\rangle$ y $|R\rangle$. Esta trayectoria corresponde a una relación lineal de los voltajes V_L y V_R asociada con la transición de LZ entre $|L\rangle$ y $|R\rangle$. En la Figura 5.1(c) mostramos las eigenenergías de los primeros dos autovectores sobre este camino LZ en función del detuning $\varepsilon = V_R - V_L$. Como es de esperar, las energías se encuentran claramente separadas para valores grandes del detuning. La pendiente positiva (negativa) de los autoestados está relacionada a su localización dominante izquierda (derecha). Para $\varepsilon = 0$ las energías forman un cruce evitado, que tiene un rol central en el proceso de transferencia de carga de LZ.

Nuestro CSD mostrado en la Figura 5.1(a) está de acuerdo con los CSD previos calculados con una teoría microscópica [152, 153]. En contraste con esos estudios, en los cuales se considera sólo el potencial de doble pozo, nosotros requerimos que los autoestados del DQD estén confinados en una región del tamaño de las dimensiones litográficas de la muestra a través del potencial $W(r)$ en Ecuación (5.3). Esta restricción espacial afecta principalmente los estados débilmente ligados y su principal efecto en el CSD es modificar la posición de los puntos de degeneración. Por ejemplo, el punto de degeneración calculado en ausencia del pozo de potencial $W(r)$ se corre a $V_L = V_R = 0.43$ meV, es decir 0.1 meV por debajo de su valor previo.

5.3.2. EFICIENCIA Y VELOCIDAD DE LOS PROTOCOLOS DE CONTROL PARA LA NAVEGACIÓN DEL CSD

Consideramos tres estrategias de control para variar $V_L(t)$ y $V_R(t)$, cada una correspondiendo a un camino diferente dentro del CSD.

Podemos considerar la localización en el pozo izquierdo y derecho, junto con una transición entre los estados $|L\rangle$ y $|R\rangle$ en operación simple de qubit. Para parámetros materiales realistas y dimensiones del dispositivo usadas en este capítulo, el tiempo de operación debe mantenerse dentro del tiempo máximo de coherencia del GaAs de alrededor de 7 ns [34] y el espectro de frecuencias de las funciones $V_L(t)$ y $V_R(t)$ no debe exceder el límite típico de alta frecuencias de operación con electrodos de puerta, alrededor de 50 GHz [154].

Primero consideraremos el pasaje de un electrón usando una transición de LZ [139].

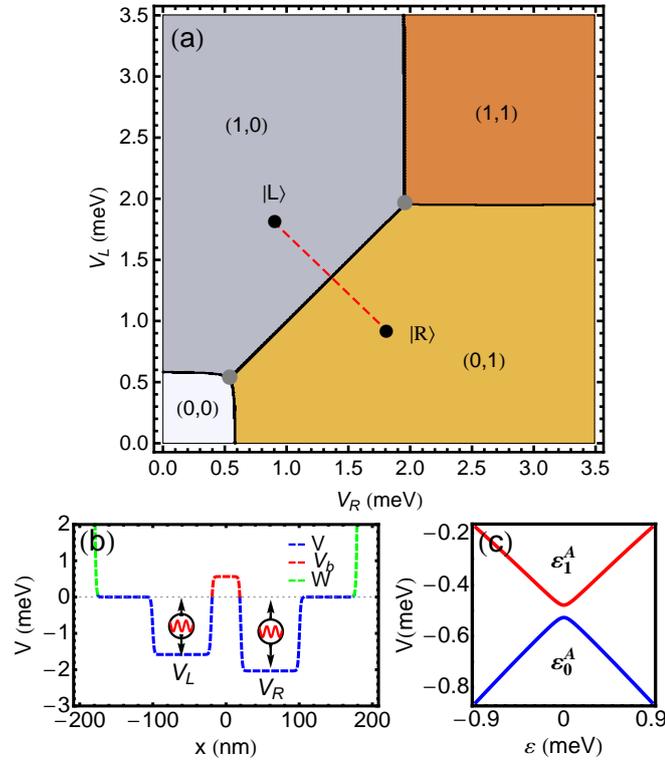


Figura 5.1: (a) Diagrama de estabilidad de carga de nuestro sistema de doble punto cuántico. La notación (n_1, n_2) identifica la localización dominante del estado fundamental y caracteriza las regiones del diagrama de estabilidad de carga. Estas regiones están separadas por líneas de degeneración (líneas negras), la intersección de estas líneas da lugar a puntos de degeneración (puntos grises). Los puntos negros, ubicados en $(0.9, 1.8)$ meV y $(1.8, 0.9)$ meV, denotados por los kets $|L\rangle$ y $|R\rangle$ respectivamente, corresponden a los estados inicial y final del protocolo de control. La línea de trazos roja representa un camino posible en el CSD, relacionado a la estrategia de LZ, para ir desde $|L\rangle$ a $|R\rangle$. (b) El potencial total $V(\mathbf{r}) + V_b(\mathbf{r}) + W(\mathbf{r})$ en función de x (para $y = 0$) coloreado de acuerdo a su contribución principal. (c) Las energías del estado fundamental y primer excitado en función del *detuning* ϵ ($\epsilon = V_R - V_L$) variado desde la configuración $(1,0)$ a $(0,1)$ a través de la línea roja desde $|L\rangle$ a $|R\rangle$.

En este protocolo la profundidad del pozo de la izquierda disminuye linealmente en el tiempo mientras la profundidad del pozo de la derecha aumenta en la misma razón, es decir, $V_{L,R}^{\text{LZ}}(t) = V_{L,R}^0 \pm (V_R^0 - V_L^0)t/T$, donde $V_L^0 = 1,8$ meV y $V_R^0 = 0,9$ meV.

El segundo esquema que consideramos es el protocolo CP [149]. Este esquema ha probado ser capaz de controlar un sistema descrito por un Hamiltoniano del tipo LZ a la máxima velocidad permitida por la mecánica cuántica [132, 150]. Además, recientemente ha sido probado que el esquema de CP corresponde a una solución analítica del problema de control óptimo formulado este tipo de sistemas [150]. La dependencia temporal de los voltajes de puerta, en este esquema, consisten en una función constante por tramos dada por

$$\varepsilon(t) = \begin{cases} -\varepsilon_0 & t \leq 0 \\ +\varepsilon_M & t \in (0, t_0] \\ 0 & t \in (t_0, T - t_0) \\ -\varepsilon_M & t \in [T - t_0, T) \\ +\varepsilon_0 & t \geq T, \end{cases} \quad (5.4)$$

donde $\varepsilon_0 = 0,9$ meV, $\varepsilon_M = 20$ meV, y t_0 satisface $\varepsilon_M t_0 = \pi/4$. En el primer y último tramo, los voltajes de puerta se eligen tal que los estados inicial $|L\rangle$ y final $|R\rangle$ sean autoestados del Hamiltoniano instantáneo para $t = 0$ y $t = T$, respectivamente. En el medio de estos intervalos, hay dos pulsos deltiformes separados por una parte central con $V_L = V_R$. Debe hacerse notar que los cambios abruptos en los campos hacen de este protocolo poco realistas para la aplicación experimental en puntos cuánticos semiconductores.

Finalmente, proponemos un tercer esquema en el cual los voltajes de puerta lineales del protocolo LZ $V_{L,R}^{\text{LZ}}(t)$ son corregidos por funciones optimizadas $v_{L,R}(t)$ obtenidas con OCT. Los voltajes compuestos tienen la forma

$$V_i(t) = V_i^{\text{LZ}}(t) + v_i(t), \quad (i = L, R). \quad (5.5)$$

donde el protocolo de LZ es conocido por producir transiciones lentas (adiabáticas) de alta fidelidad, la parte optimizada en la Ecuación (5.5) posibilita transiciones extremadamente rápidas, no adiabáticas como se verá a continuación.

La Figura 5.2(a) muestra el yield en función de la duración de los campos para la transición $|L\rangle \rightarrow |R\rangle$ obtenido con las estrategias LZ, CP, y OCT. La TDSE ha sido resuelta en la base diabática de autoestados del Hamiltoniano localizado a la izquierda H_L y los cálculos OCT han sido realizados con una fluencia de 0.31 meV².

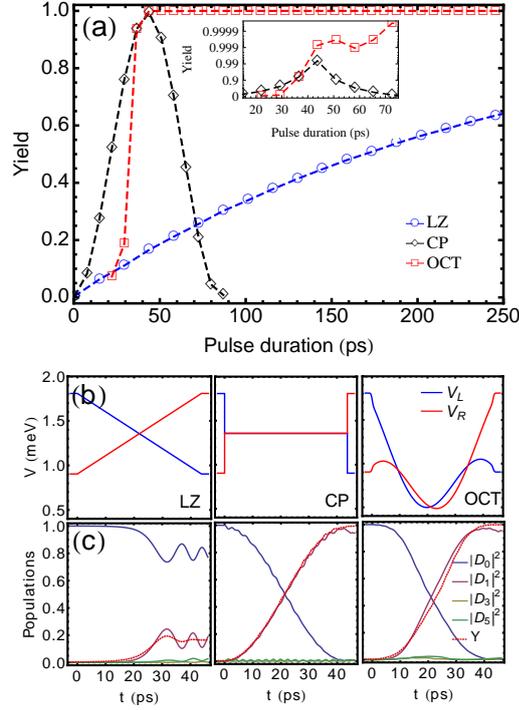


Figura 5.2: (a) Yield calculado en función de la duración del pulso para los protocolos de Landau-Zener (LZ), pulso compuesto (CP) y Landau-Zener suplementado con un pulso calculado con la teoría del control óptimo (OCT). El inset muestra una comparación más detallada entre CP y OCT, ambas alcanzan yields mayores que 99 % para una duración del pulso de 44 ps. El yield OCT crece sostenidamente hasta 99.99 % alrededor de 74 ps. (b) La variación temporal de los voltajes izquierdo y derecho en función del tiempo para LZ, CP y OCT, cuando la longitud del pulso está fija en 44 ps. (c) Poblaciones electrónicas diabaticas en los pozos izquierdo y derecho en función del tiempo para protocolos LZ, CP y OCT.

Los protocolos CP y OCT permiten transiciones eficientes con yields más altos que 99 % para una duración de campo de 44 ps, mientras el protocolo LZ requiere alrededor de 1000 ps para alcanzar una fidelidad comparable. Debe notarse [ver el inset de la Fig. 5.2(a)] que el campo OCT puede alcanzar yields aún mayores de $\sim 99,99\%$ con campos más largos. El hecho notable de que el CP y los protocolos OCT dan la misma duración de pulso mínimo para controlar la carga con una alta fidelidad está relacionado con la propiedad de estas estrategias para controlar el sistema al

QSL [133, 156]. La coincidencia entre estas estrategias, muy diferentes entre sí, sugiere que el tiempo de 44 ps es intrínseco de nuestro sistema. Para esta duración de pulso, las tensiones de puerta y las poblaciones de los estados diabáticos relevantes en función del tiempo son mostrados en la Figura 5.2(b-c). En este tiempo característico el proceso de LZ conduce a una transferencia de la población reducida, mientras los métodos CP y OCT muestran una tendencia similar de transición rápida de la configuración inicial a la de blanco.

Los tiempos de transición cortos (menores a 100 ps) obtenidos con los esquemas CP y OCT son naturalmente favorables para aplicaciones de DQDs en el régimen coherente. Una de las preguntas claves es sobre la habilidad de producir los pulsos sugeridos con los métodos experimentales disponibles. Al respecto, el campo OCT de la Fig. 5.2(b) tiene una apariencia suave, que también ha sido encontrado en estudios preliminares en transiciones eléctricamente controladas en DQD [157]. Por otra parte, los cambios abruptos característicos del CP son difíciles de obtener con métodos experimentales.

Luego examinamos en detalle diferentes caminos optimizados en el CSD. Fig. 5.3(a) muestra curvas en el plano $(V_L(t), V_R(t))$ obtenidas por una optimización OCT de las profundidades de los pozos izquierda y derecha [Eq. (5.5)]. Varios valores fijos para la fluencia entre 0 y 0.31 meV^2 son considerados, y el tiempo es fijado a 44 ps. Notablemente, el algoritmo de OCT para la maximización del yield provoca que $V_L(t)$ y $V_R(t)$ evolucionen a lo largo de una trayectoria de forma de bucle, que es axialmente simétrica con respecto a la diagonal $V_L = V_R$. Las trayectorias dan razón a fidelidades que crecen con la fluencia, desde 16.5% (que corresponden al proceso de LZ) hasta 99.9%. Debe notarse que el aumento de la fidelidad está relacionada con una aproximación de la trayectoria hacia el punto de degeneración playo. En particular, la fidelidad más alta corresponde a los voltajes de puerta dependientes del tiempo para los que la trayectoria pasa a través del punto triple de degeneración [158].

Las energías instantáneas, E_0^A y E_1^A , para los estados fundamental y excitados calculados con este campo son mostradas en las Fig. 5.3(b). Esta figura muestra que el efecto de los voltajes de puerta dependientes del tiempo es acercar estos niveles durante un intervalo de $8 \text{ ps} \lesssim t \lesssim 36 \text{ ps}$, así favoreciendo la interferencia entre estos estados. Este régimen corresponde a trayectorias cercanas a la línea de degeneración

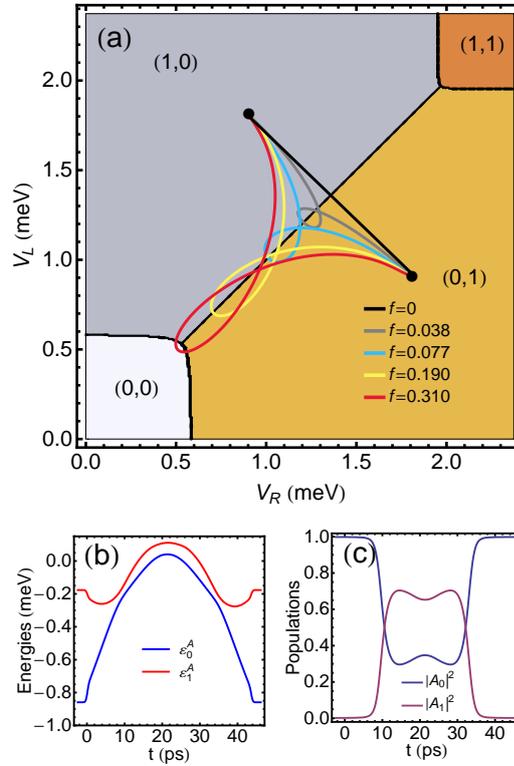


Figura 5.3: (a) Trayectorias optimizadas mostradas en el diagrama de estabilidad de carga para varios valores de la fluencia en meV^2 para una duración de pulso de 44 ps. Para la fluencia más grande (curva roja), la trayectoria pasa a través del punto de degeneración playo. Para esta trayectoria, las energías adiabáticas del estado fundamental y primer excitado como funciones del tiempo y sus poblaciones correspondientes son mostradas en (b) y (c), respectivamente.

que separa las regiones (1,0) y (0,1). Este efecto también se refleja en las poblaciones de los estados fundamental y primer excitado en función del tiempo mostrados en Fig. 5.3(c). En dicho intervalo de tiempo, ambos niveles son, en promedio, igualmente poblados alcanzando las ocupaciones finales en los últimos 8 ps del campo.

Como una conclusión de esta sección, debe ser puntualizado que la estrategia OCT, caracterizada por trayectorias en el CSD con forma de bucle, ha demostrado ser capaz de producir transferencia de carga a casi el QSL, en cuanto es medido por el protocolo CP, satisfaciendo de esa manera los requerimientos estrictos para la

corrección de errores cuántica (perdida de fidelidad que va entre 0.01 % y fracciones uno por ciento [159, 160]).

5.3.3. PROTOCOLO DE CONTROL BASADO EN UN ANSATZ PARAMÉTRICO

Basados en los resultados OCT anteriores, podemos proponer un protocolo de control que depende de un único parámetro, A_ε , cuyo significado es explicado abajo. De manera similar a Ec. (5.5) anterior, el *detuning* $\varepsilon(t) = V_R(t) - V_L(t)$ y la suma $\mu(t) = V_R(t) + V_L(t)$ puede ser expresado por

$$\varepsilon(t) = \varepsilon^{\text{LZ}}(t) + \varepsilon^{\text{OCT}}(t), \quad (5.6)$$

$$\mu(t) = \mu^{\text{LZ}}(t) + \mu^{\text{OCT}}(t). \quad (5.7)$$

Ya que el campo optimizado es cero a $t = 0$ y $t = T$ por definición, la misma condición se aplica a $\mu(t)$. Sugerimos el siguiente ansatz,

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_{\text{LZ}}(t) + A_\varepsilon \sin(2\pi t/T) \quad (5.8)$$

$$\mu(t) = \mu_0 + A_\mu [\cos(2\pi t/T) - 1], \quad (5.9)$$

donde A_ε y A_μ son los parámetros de ajuste del modelo. Como fue discutido previamente, las trayectorias que pasan cerca del punto de degeneración (DP), $(V_L, V_R) = (V_{DP}, V_{DP})$, poseen yields más altos que el 99 %. Por lo tanto, fijamos el valor de A_μ por la condición de que el punto de degeneración es el punto de retorno a $t = T/2$; por lo tanto, $A_\mu = (\mu_0 - 2V_{DP})/2$ con $\mu_0 = V_L(0) + V_R(0)$. Este ansatz, con tal parametrización, da un representación muy precisa del protocolo OCT para una variedad de trayectorias.

En la Fig. 5.4(a) mostramos tres transiciones parametrizadas diferentes (A, B, C) marcadas en el CSD [los valores de los parámetros se muestran en las Figs. 5.4(b-d)]. El protocolo se aplica para alcanzar el estados blanco simétricamente localizado en el pozo derecho desde el estado inicial localizado en el pozo izquierdo. En todos los casos, las trayectorias son curvas suaves que conducen el sistema al estado blanco con alta fidelidad.

En la Figs. 5.4(b-d) mostramos el yield en función de la duración del pulso para las tres trayectorias parametrizadas A, B y C y para la estrategia CP. Nótese que, para una dada trayectoria y valor de A_ϵ , nuestra estrategia de control tiene varios tiempos característicos donde el máximo yield es obtenido. El más corto de estos tiempos característicos, que se obtiene ajustando los valores de A_ϵ , es más grande que el tiempo en el cual el yield máximo es obtenido por el CP. Como con el caso de los pulsos optimizados, los pulsos parametrizados pueden en el mejor de los casos ajustar la velocidad del CP para el valor óptimo de parámetro A_ϵ . Para los procesos A, B y C encontramos que estos parámetros óptimos corresponden a $A_\epsilon = 0,452, 0.791$ y 1.085 meV, respectivamente. En las Figs. 5.4(b-d) también mostramos los yields para pulsos con valores diferentes de A_ϵ . Para la trayectoria A, una fidelidad del 98 % se obtiene al tiempo característico medido por el CP. Para esta trayectoria nuestro esquema conduce a un segundo máximo, a alrededor de cuatro veces el tiempo característico, con una fidelidad del 99.9 %. Para las trayectorias B y C el protocolo propuesto produce yields tan altos como el 99.99 % en tiempo similares al del CP con los valores óptimos de A_ϵ .

5.4. CONCLUSIONES

Hemos estudiado los procedimientos óptimos para controlar las transiciones de carga en un punto cuántico doble realista usando voltajes de puerta. Hemos demostrado que un campo sintonizado con la teoría del control óptimo encima de un protocolo de Landau-Zener es una estrategia eficaz para acelerar las transiciones sin comprometer la fidelidad. Por otra parte, los campos óptimos encontrados varían suavemente y, por lo tanto, son más realistas en comparación con los campos similares propuestos por el método de pulso compuesto. Los tiempos de transición el pulso optimizado y compuesto son comparables entre sí, siendo el último una referencia del límite de velocidad cuántica.

El análisis de la dinámica en el diagrama de estabilidad de carga muestra que la evolución sigue trayectorias en forma de bucle. Estas trayectorias se corresponden con voltajes de puerta dependientes del tiempo para los cuales los estados de carga del

sistema permanece, la mayor parte del tiempo, cerca de la línea de la degeneración, en el que el electrón se localiza parcialmente en los dos puntos cuánticos. Por último, hemos sido capaces de encontrar un ajuste simple de un solo parámetro para los campos óptimos, los cuales, en principio, podrían ser implementados en un montaje experimental.

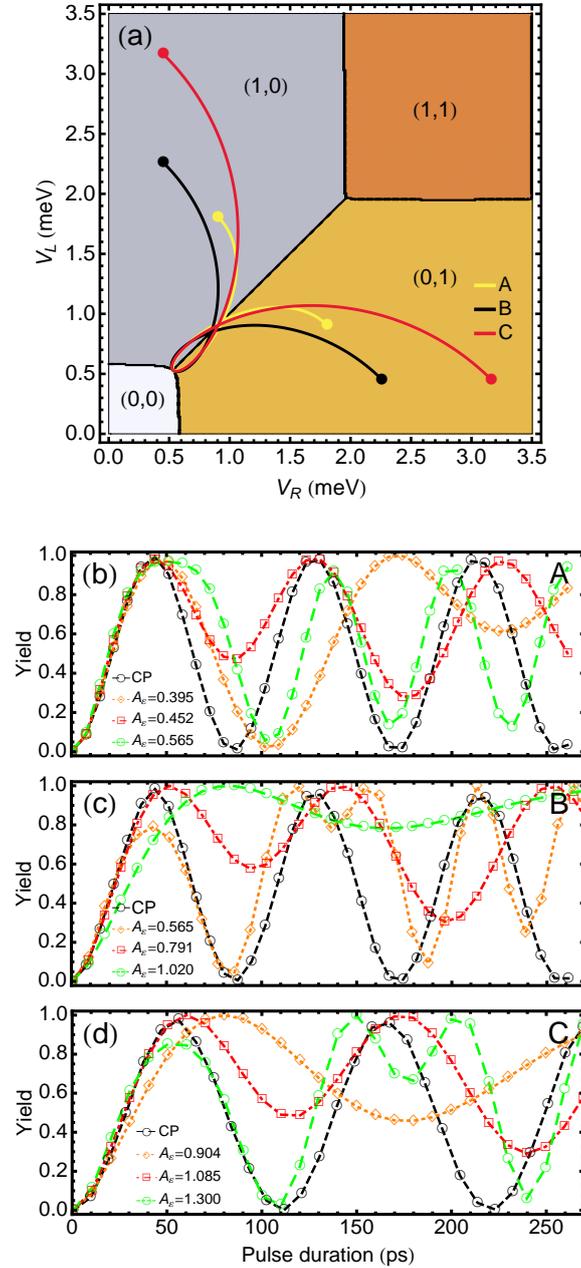


Figura 5.4: (a) Trayectorias para los protocolos parametrizados propuestos en Ecs. (5.8) y (5.9) para el valor óptimo de A_e en meV calculado fijando la duración del pulso al tiempo en el cual el CP alcanza su primer máximo. Los estados iniciales para las trayectorias A, B y C son los estados fundamentales para los voltajes de puerta $(V_L, V_R) = (1,8, 0,9)$ meV, $(2,26, 0,45)$ meV y $(3,16, 0,45)$ meV respectivamente. (b-d) Yield en función de la duración del pulso en el CSD para los puntos A, B and C con tres valores diferentes de A_e . El resultados para el protocolo del pulso compuesto (CP) se muestra por comparación.

CAPÍTULO 6

CONCLUSIONES

En síntesis, durante la presente tesis hemos estudiado sistemas de electrones bajo diversas condiciones de confinamiento espacial. En primer lugar hemos analizado el efecto de la restricción sobre la función de onda y las energías de átomos encapsulados por potenciales fenomenológicos, y las consecuencias sobre sus propiedades eléctricas y magnéticas. Estos efectos serán relevantes, por ej., en átomos en fullerenos endohédricos o átomos en nanoporos. Luego, analizamos electrones restringidos a moverse en dos dimensiones, tal como ocurre en la interfaz de separación de las heterojunturas semiconductoras de AsGa y AlAsGa. En estos sistemas, potenciales de puerta aplicados mediante electrodos metálicos depositados durante el crecimiento epitaxial, permite el control adicional del movimiento lateral, permitiendo la formación de regiones cargadas o puntos cuánticos. La presencia de átomos de impureza da lugar a cargas adicionales cuyos potenciales de Coulomb perturban la función de onda de los electrones de los puntos cuánticos. En este estudio se caracterizó las condiciones de magnitud y posición de la carga para los cuales es posible mantener el grado de entrelazamiento de los electrones necesario para su utilización como bits de información cuántica. Finalmente, se estudiaron diversos protocolos de control mediante la

variación temporal de los potenciales de puerta, necesarios para la inicialización, lectura y procesamiento de los qubits antes definidos. El protocolo propuesto presenta las ventajas de velocidad cercana a la máxima permitida por la mecánica cuántica, elevada fidelidad cercana a 1 y simplicidad de parametrización basada en el diagrama de estabilidad de carga experimental.

Las principales conclusiones de los estudios expuestos en los capítulos precedentes son las siguientes: En el Capítulo 3 estudiamos el efecto del confinamiento sobre las propiedades eléctricas y magnéticas de los átomos en función de la posición atómica con respecto al centro del pozo. El comportamiento de estas propiedades puede ser entendido como un proceso de disociación de la molécula artificial diatómica formada entre ambos centros. Hemos proporcionado cálculos de la dependencia de las componentes de la polarizabilidad y los tensores de apantallamiento magnético nuclear con la posición nuclear calculados dentro la aproximación de la fase aleatoria. Existen tres escenarios diferentes en función de las intensidades relativas del pozo y el potencial de Coulomb según si uno de ellos es dominante o ambos se vuelven comparables.

También hemos explorado en el Capítulo 4 la influencia de una impureza atómica sobre la entropía de entrelazamiento en puntos cuánticos dobles de dos electrones. El grado de entrelazamiento se mostró altamente modulado tanto por la ubicación y el apantallamiento de la carga del átomo de impureza. Dos regímenes están claramente identificados: uno de bajo entrelazamiento y otro de alto entrelazamiento, ambos determinados principalmente por la magnitud de la carga. El acoplamiento de intercambio entre los electrones, siendo proporcional a la diferencia de energía singulete-triplete, tiene un comportamiento opuesto a la entropía. Finalmente, la magnitud de la intensidad del oscilador del sistema podría proporcionar una indicación de la presencia y características de impurezas que podrían influir en gran medida el grado de entrelazamiento del sistema.

Finalmente, en el Capítulo 5 se presenta el estudio del control de un electrón en un doble punto cuántico acoplado. La estrategia de control propuesta consiste en superponer campos alternos sobre una variación lineal de Landau-Zener para producir transferencias de carga a la misma velocidad que el protocolo de pulso compuesto, que permite conducir el sistema en el límite de velocidad cuántica. La mayoría de las estrategias de control requieren de un conocimiento del espectro de

energía, sin embargo, nuestra estrategia de control puede ser parametrizada a partir de la información disponible en el CSD.

APÉNDICE A

INTEGRALES BIELECTRÓNICAS EN DOS DIMENSIONES

DISTRIBUCIONES DE CARGA GAUSSIANA ESFÉRICA

Consideremos la electrostática de dos distribuciones de carga gaussianas esféricas de exponentes p y q , centradas en \mathbf{P} y \mathbf{Q} ,

$$\rho_p(\mathbf{r}_P) = \frac{p}{\pi} \exp(-p \mathbf{r}_P^2), \quad (\text{A.1})$$

$$\rho_q(\mathbf{r}_Q) = \frac{q}{\pi} \exp(-q \mathbf{r}_Q^2), \quad (\text{A.2})$$

cada una de las cuales corresponde a una carga positiva unitaria.

En esta sección consideraremos el potencial electrostático en \mathbf{C} debido a $\rho_p(\mathbf{r}_P)$,

$$V_p(\mathbf{C}) = \int \frac{\rho_p(\mathbf{r}_P)}{r_C} d\mathbf{r}, \quad (\text{A.3})$$

y la energía de repulsión entre $\rho_p(\mathbf{r}_{1P})$ y $\rho_q(\mathbf{r}_{2Q})$

$$V_{pq} = \int \int \frac{\rho_p(\mathbf{r}_{1P}) \rho_q(\mathbf{r}_{2Q})}{r_{12}} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2. \quad (\text{A.4})$$

EL POTENCIAL DE UNA DISTRIBUCIÓN DE CARGA GAUSSIANA ESFÉRICA

El truco para resolver la integral (A.3) consiste en expresar el operador r_C^{-1} en termino de su transformada de Fourier, que es separable en las direcciones cartesianas:

$$\frac{1}{r_C} = \frac{1}{2\pi} \int k^{-1} \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_C) d\mathbf{k}. \quad (\text{A.5})$$

Obtenemos así la expresión para el potencial $V_p(\mathbf{C})$:

$$V_p(\mathbf{C}) = \frac{p}{2\pi^2} \int \int k^{-1} \exp(-p \mathbf{r}_P^2) \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_C) d\mathbf{k} d\mathbf{r}. \quad (\text{A.6})$$

Si realizamos una traslación, cambiando el origen de las coordenadas espaciales al punto \mathbf{P}

$$V_p(\mathbf{C}) = \frac{p}{2\pi^2} \int k^{-1} d\mathbf{k} e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_{PC}} \int \exp(-p \mathbf{r}^2) \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (\text{A.7})$$

y usamos la transformada de Fourier de la gaussiana

$$\int \exp(-p \mathbf{r}^2) \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} = \frac{\pi}{p} \exp(-\mathbf{k}^2/4p). \quad (\text{A.8})$$

la integral de cuatro variables (A.7) se reduce a una integral en dos dimensiones

$$V_p(\mathbf{C}) = \frac{1}{2\pi} \int k^{-1} e^{-\mathbf{k}^2/4p + i \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_{PC}} d\mathbf{k}. \quad (\text{A.9})$$

La integral (A.9) puede resolverse haciendo la integración en coordenadas polares y recurriendo a las definiciones de la función de Bessel de primera especie J_0 y la función de Bessel modificada también de primera especie I_0 :

$$V_p(\mathbf{C}) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty dk e^{-k^2/4p} \int_0^{2\pi} d\theta e^{i k R_{PC} \cos(\theta)} \quad (\text{A.10})$$

$$= \int_0^\infty dk e^{-k^2/4p} J_0(k R_{PC}), \quad (\text{A.11})$$

$$= \sqrt{\pi p} \exp(-p R_{PC}^2/2) I_0(p R_{PC}^2/2), \quad (\text{A.12})$$

REPULSIÓN ENTRE DISTRIBUCIONES DE CARGA GAUSSIANS ESFÉRICA

La interacción entre dos distribuciones de carga (A.4) puede ser calculada como la energía electrostática de la segunda distribución en el potencial de la primer

distribución:

$$V_{pq} = \int V_p(\mathbf{r}_2) \rho_q(\mathbf{r}_{2Q}) d\mathbf{r}_2. \quad (\text{A.13})$$

Para calcular esta interacción podemos reemplazar la expresión de V_p dada en la ecuación (A.30),

$$V_{pq} = \frac{qp}{2\pi^3} \int k^{-1} d\mathbf{k} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_{PQ}} \int \exp(-p\mathbf{r}_1^2) \exp(i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_1) d\mathbf{r}_1 \int \exp(-q\mathbf{r}_2^2) \exp(-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_2) d\mathbf{r}_2 \quad (\text{A.14})$$

y realizar, al igual que en la sección anterior, las integraciones espaciales haciendo uso de las traslaciones correspondientes y de la transformada de la gaussiana, con lo que obtenemos:

$$\begin{aligned} V_{pq} &= \frac{1}{2\pi} \int k^{-1} e^{-\rho k^2} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_{PQ}} d\mathbf{k} \\ &= \int_0^\infty e^{-\rho k^2} J_0(k R_{PQ}) dk \\ &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\rho}} \exp(-R_{PQ}^2/8\rho) I_0(R_{PQ}^2/8\rho) \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

donde $\rho = \frac{1}{4p} + \frac{1}{4q}$. Esta expresión se encuentra verificada por el paper G. Burkard, D. Loss y D.P. DiVicenzo, Phys. Rev. B **59**, 2070 (2003).

Para distribuciones de carga no normalizadas a la expresión anterior deberá multiplicarse un factor π^2/pq .

REPRESENTACIONES INTEGRALES ALTERNATIVAS

Otro camino para resolver la integral (A.3) consiste en expresar el operador r_C^{-1} en termino de una integral unidimensional sobre una función gaussiana, que es separable en las direcciones cartesianas:

$$\frac{1}{r_C} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-\mathbf{r}_C^2 t^2) dt. \quad (\text{A.16})$$

Obtenemos la siguiente expresión para el potencial $V_p(\mathbf{C})$:

$$V_p(\mathbf{C}) = \frac{p}{\pi^{3/2}} \int \exp(-p\mathbf{r}_P^2) \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-\mathbf{r}_C^2 t^2) dt d\mathbf{r}, \quad (\text{A.17})$$

Ahora invocamos regla del producto de gaussianas

$$V_p(\mathbf{C}) = \frac{p}{\pi^{3/2}} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \int \exp(-(t^2 + p) \mathbf{r}_S^2) d\mathbf{r} \right\} \exp\left(-\frac{pt^2}{t^2 + p} R_{PC}^2\right) dt, \quad (\text{A.18})$$

donde \mathbf{S} es un punto en la línea que conecta \mathbf{C} con \mathbf{P} :

$$\mathbf{S} = \frac{t^2 \mathbf{C} + p \mathbf{P}}{t^2 + p}. \quad (\text{A.19})$$

Si realizamos la integración sobre la coordenada espacial tenemos

$$V_p(\mathbf{C}) = \frac{2p}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} (t^2 + p)^{-1} \exp\left(-\frac{pt^2}{t^2 + p} R_{PC}^2\right) dt, \quad (\text{A.20})$$

Para calcular V_{PQ} podemos reemplazar (A.30) en (A.4)

$$V_{pq} = \int V_p(\mathbf{r}_2) \rho_q(\mathbf{r}_2Q) d\mathbf{r}_2. \quad (\text{A.21})$$

En término de la integración (A.30) puede demostrarse que

$$V_{pq} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} a(t) \exp(-a(t) R_{PQ}^2 t^2) dt. \quad a(t) = \frac{pq}{t^2(p+q) + pq} \quad (\text{A.22})$$

Antes de continuar con las evaluaciones correspondientes es conveniente realizar un cambio de variable que nos lleve a un dominio de integración finito, y en particular, para establecer correspondencias con el caso tridimensional de (0,1). Para esto definimos la nueva variable

$$t^2 = \frac{pq}{pq + (p+q)(u^2 - 1)} u^2, \quad (\text{A.23})$$

y la integral (A.22) resulta

$$V_{pq} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\sqrt{\frac{pq+p+q}{p+q}}} \frac{\sqrt{pq}}{\sqrt{\frac{pq+p+q}{p+q} - u^2}} e^{-\frac{pq}{pq+p+q} u^2 R_{PQ}^2} du, \quad (\text{A.24})$$

finalmente mediante el escalamiento

$$u \rightarrow u \sqrt{\frac{pq + p + q}{p + q}} \quad (\text{A.25})$$

tenemos la integral

$$V_{pq} = 2 \sqrt{\frac{\alpha}{\pi}} \int_0^1 \frac{e^{-\alpha R_{PQ}^2 u^2}}{\sqrt{1 - u^2}} du, \quad \alpha = \frac{pq}{p + q}, \quad (\text{A.26})$$

que no es otra cosa que una representación integral de la solución (A.15), ya que

$$\int_0^1 \frac{e^{-\alpha R_{PQ}^2 u^2}}{\sqrt{(1-u^2)}} du = \frac{\pi}{2} e^{-\alpha R_{PQ}^2/2} I_0(\alpha R_{PQ}^2/2). \quad (\text{A.27})$$

Antes de finalizar esta sección vamos a demostrar que partiendo de la Ec. (A.30) el potencial V_p puede escribirse a través de la integral (A.27). Si en la Ec. (A.30) hacemos el cambio de variables

$$t \rightarrow \sqrt{\frac{pu^2}{p-u^2}} \quad (\text{A.28})$$

la integral resulta

$$V_p(\mathbf{C}) = \sqrt{\frac{p}{\pi}} \int_0^{\sqrt{p}} \frac{\exp(-R_{PC}^2 u^2)}{\sqrt{p-u^2}} dt. \quad (\text{A.29})$$

La integral anterior por medio de la dilatación $u \rightarrow u\sqrt{p}$ resulta

$$V_p(\mathbf{C}) = \sqrt{\frac{p}{\pi}} \int_0^1 \frac{\exp(-p R_{PC}^2 u^2)}{\sqrt{1-u^2}} dt. \quad (\text{A.30})$$

INTEGRALES DE COULOMB HERMITE

En la sección anterior discutimos la evaluación de las integrales de Coulomb sobre gaussianas esféricas. Ahora iremos un paso adelante y consideraremos distribuciones electrónicas no esféricas como las descritas por las gaussianas de Hermite. La integral de la interacción de Coulomb de dos electrones es

$$V_{tu;\tau\nu} = \int \int \frac{\Lambda_{tw} \Lambda_{\tau\nu\phi}}{r_{12}} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \quad (\text{A.31})$$

donde Λ_{tw} es una gaussiana de Hermite de exponente p centrada en \mathbf{P} y $\Lambda_{\tau\nu\phi}$ una gaussiana de Hermite de exponente q centrada en \mathbf{Q} . Insertando la definición de las gaussianas de Hermite y tomando los operadores diferenciales fuera de la integral obtenemos

$$V_{tu;\tau\nu} = \left(\frac{\partial}{\partial P_x} \right)^t \left(\frac{\partial}{\partial P_y} \right)^u \left(\frac{\partial}{\partial Q_x} \right)^\tau \left(\frac{\partial}{\partial Q_y} \right)^\mu \quad (\text{A.32})$$

$$\times \int \int \frac{\exp(-p \mathbf{r}_{1P}^2) \exp(-q \mathbf{r}_{2Q}^2)}{r_{12}} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2, \quad (\text{A.33})$$

$$= \frac{\pi^2}{pq} \left(\frac{\partial}{\partial P_x} \right)^t \left(\frac{\partial}{\partial P_y} \right)^u \left(\frac{\partial}{\partial Q_x} \right)^\tau \left(\frac{\partial}{\partial Q_y} \right)^\mu V_{pq} \quad (\text{A.34})$$

Con la ecuación (A.26) la ecuación anterior se escribe

$$V_{tu;\tau\nu} = (-1)^{\tau+\nu} \frac{2\pi^{3/2}}{\sqrt{pq(p+q)}} \left(\frac{\partial}{\partial P_x} \right)^{t+\tau} \left(\frac{\partial}{\partial P_y} \right)^{u+\nu} \underbrace{\int_0^1 \frac{e^{-\alpha R_{PQ}^2 u^2}}{\sqrt{1-u^2}} du}_{F_0(\alpha R_{PQ}^2)} \quad (\text{A.35})$$

donde se definió la función módulo de orden cero, F_0 . Ahora definimos las integrales de Coulomb Hermite

$$R_{tu}(\rho, \mathbf{R}_{PQ}) = \left(\frac{\partial}{\partial P_x} \right)^t \left(\frac{\partial}{\partial P_y} \right)^u F_0(\alpha R_{PQ}^2), \quad (\text{A.36})$$

en término de las que (A.35) se reescribe

$$V_{tu;\tau\nu} = (-1)^{\tau+\nu} \frac{2\pi^{3/2}}{\sqrt{pq(p+q)}} R_{t+\tau, u+\nu}(\rho, \mathbf{R}_{PQ}). \quad (\text{A.37})$$

EVALUACIÓN DE LAS INTEGRALES DE COULOMB HERMITE

Para desarrollar un esquema para evaluar las integrales de Coulomb Hermite (A.36), notemos que la primer derivada satisface la relación

$$R_{10} = -2\alpha X_{PQ} \int_0^1 \frac{e^{-\alpha R_{PQ}^2 u^2} u^2}{\sqrt{1-u^2}} du = -2\alpha X_{PQ} F_1(\alpha R_{PQ}^2) \quad (\text{A.38})$$

donde si definimos las funciones módulo de orden n como

$$F_n(\alpha R_{PQ}^2) = \int_0^1 \frac{e^{-\alpha R_{PQ}^2 u^2} u^{2n}}{\sqrt{1-u^2}} du = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{\Gamma(n+1/2)}{\Gamma(n+1)} M(n+1/2, n+1, -\alpha R_{PQ}^2) \quad (\text{A.39})$$

que se definen en término de la función hipergeométrica confluyente de Kummer M , la integral R_{10} resulta proporcional a la función módulo de primer orden.

Las derivadas de orden superior a la (A.38) se expresan también como combinaciones lineales de la funciones módulo de diferentes ordenes y nuestra tarea es desarrollar un esquema recursivo por el cual las integrales de Coulomb Hermite R_{tu} con $t+u \leq N$ puedan ser calculadas de las funciones módulo F_n de orden $n \leq N$. Para esta finalidad definimos las integrales auxiliares de Hermite

$$R_{tu}^n(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}) = \left(\frac{\partial}{\partial P_x} \right)^t \left(\frac{\partial}{\partial P_y} \right)^u R_{00}^n(\alpha, R_{PQ}), \quad (\text{A.40})$$

donde

$$R_{00}^n(\alpha R_{PQ}^2) = (-2\alpha)^n F_n(\alpha R_{PQ}^2). \quad (\text{A.41})$$

Ahora debemos relacionar las integrales R_{tu}^n por recursión, para eso incrementamos t en uno y obtenemos

$$R_{t+1u}^n(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}) = \left(\frac{\partial}{\partial P_x} \right)^t X_{PQ} R_{0u}^{n+1}(\alpha, R_{PQ}). \quad (\text{A.42})$$

Usando las definiciones con la ecuación anterior y haciendo uso del conmutador podemos escribir la relación de recurrencia entre las integrales de auxiliares de Hermite

$$R_{t+1u}^n(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}) = X_{PQ} R_{tu}^{n+1}(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}) + t R_{t-1u}^{n+1}(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}), \quad (\text{A.43})$$

$$R_{tu+1}^n(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}) = Y_{PQ} R_{tu}^{n+1}(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}) + u R_{tu-1}^{n+1}(\alpha, \mathbf{R}_{PQ}). \quad (\text{A.44})$$

De esta modo, todas integrales de Coulomb Hermite (A.36) de orden $t+u \leq N$ puede ser calculadas de la función F_n de orden $n \leq N$ por recursión.

BIBLIOGRAFÍA

- [1] A. Michels, J. de Boer and A. Bijl, *Physica* **4**, 981 (1937).
- [2] A. Sommefeld and H. Welker, *Ann. Phys. (Leipzig)* **32**, 56 (1938).
- [3] J. P. Connerade, V. K. Dolmatov and P. A. Lakshmi, *J. Phys. B* **33**, 251 (2000).
- [4] A. L. Buchachenko, *J. Phys. Chem. B* **105**, 5839 (2001).
- [5] W. Jaskolski, *Phys. Rep.* **271**, 1-66 (1996).
- [6] N. L. Rosi, J. Eckert, M. Eddaoudi, D. T. Vodak, J. Kim, M.O’Keeffe and O. M. Yaghi, *Science* **300**, 1127 (2003).
- [7] J. L. C. Rowsell, E. C. Spencer, J. Eckert, J. A. K. Howard and O. M. Yaghi, *Science* **309**, 1350 (2005).
- [8] S. Guha and K. Nakamoto, *Coord. Chem. Rev.* **249**, 1111 (2005).
- [9] D. J. Norris, A. L. Efros and S. C. Erwin, *Science* **319**, 1776 (2008).
- [10] V. I. Pupyshev and A. V. Scherbinin, *Phys. Lett. A* **299**, 371 (2002).
- [11] V. K. Dolmatov, A. S. Baltenkov and J.-P. Connerade, S. T. Manson, *Rad. Phys. Chem.* **70**, 417 (2004).

- [12] J. Sabin, E. Brandas and S. A. Cruz (Eds.), *Adv. Quantum Chem.* **57**, 1-334 (2009); **58**, 1-297 (2009)
- [13] R. Feynman, *Int. J. of Theo. Phys.* **21**, 467 (1982).
- [14] T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe and J. L. O'Brien, *Nature* **464**, 45 (2010).
- [15] M. A. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum computation and quantum information*, Cambridge University Press, Cambridge (2000).
- [16] John Preskill, Caltech Lecture Notes, available at the URL:<http://www.theory.caltech.edu/people/preskill/ph229>.
- [17] D. Loss and D. P. DiVincenzo, *Phys. Rev. A* **57**, 120 (1998).
- [18] K.D. Petersson, J.R. Petta, H. Lu, and A.C. Gossard, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 246804 (2010).
- [19] D. Press, T. D. Ladd, B. Zhang and Y. Yamamoto, *Nature* **456**, 218 (2008).
- [20] J. R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, *Science* **309**, 2180 (2005).
- [21] F. H. L. Koppens, C. Buizert, K. J. Tielrooij, I. T. Vink, K. C. Nowack, T. Meunier, L. P. Kouwenhoven, and M. K. Vandersypen, *Nature* **442**, 766 (2006).
- [22] S. M. Reimann and M. Manninen, *Rev. Mod. Phys.* **74**, 1283 (2002).
- [23] El metodo CI involucra el calculo de un gran numero de integrales y la inversion de grandes matrices que resulta rápidamente prohibitivo en término de recursos computacionales. Por ejemplo, P. Pietiläinen y T. Chakraborty en "*Energy levels and magneto-optical transitions in parabolic quantum dots with spin-orbit coupling*", *Phys. Rev. B* **73**, 155315 (2006), mencionan que para obtener resultados convergidos en la energía para de cuatro electrones confinados el tamaño de la base debe ser del orden del millón. Debido a que no mueden diagonalizarse matrices de este tamaño deben recurrirse a técnicas especiales para extraer los autovalores de lo que estos autores denominan *matrices monstruos*.

-
- [24] G. E. Murgida, D. A. Wisniacki, and P. I. Tamborenea, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 036806 (2007).
- [25] E. Räsänen, T. Blasi, M. F. Borunda, and E. J. Heller, *Phys. Rev. B* **86**, 205308 (2012).
- [26] Nga T. T. Nguyen and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **83**, 235322 (2011).
- [27] M. Schlosshauer, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 1267 (2005).
- [28] C. H. Bennett, *Phys. Today*. **48**, 24 (1995).
- [29] J. Xu, X. Xu, C. Li, C. Zhang, X. Zou and G. Guo, *Nat. Commun.* **1**, 1 (2010).
- [30] T. Yu, and J. H. Eberly, *Phys. Rev. B* **66**, 193306 (2002).
- [31] A. Ferrón, D. Domínguez, and M. J. Sánchez, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 237005 (2012).
- [32] G. A. Álvarez, and D. Suter, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 230403 (2010).
- [33] A. P. Majtey, and A. R. Plastino, *Int. J. Quantum Inform.* **10**, 1250063 (2012).
- [34] K. D. Petersson, J. R. Petta, H. Lu, and A. C. Gossard. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 246804 (2010).
- [35] D. Press, T. D. Ladd, B Zhang and Y. Yamamoto, *Nature* **456**, 218 (2008).
- [36] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus and K. Kompa, *Science* **288**, 824 (2000).
- [37] J. Werschnik and E.K.U. Gross, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40**, R175 (2007).
- [38] G. Bastard, *Phys. Rev. B* **24**, 4714 (1981).
- [39] P. A. Sundqvist, V. Narayan, S. Stafström, and M. Willander, *Phys. Rev. B* **67**, 165330 (2003).
- [40] S. V. Nistor, M. Stefan, L. C. Nistor, E. Goovaerts, and G. Van Tendeloo, *Phys. Rev. B* **81**, 035336 (2010).

- [41] V. Narayan and M. Willander, *Phys. Rev. B* **65**, 125330 (2002).
- [42] W. Pötz and W. A. Schroeder, eds., *Coherent control in atoms, molecules, and semiconductors* Ed. Kluwer, Dordrecht (1999).
- [43] M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum optics* Cambridge University Press, Cambridge (1997).
- [44] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus, and K. Kompka, *Science* **288**, 824 (2000).
- [45] T. Hayashi, T. Fujisawa, H. D. Cheong, Y. H. Jeong, and Y. Hirayama, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 226804 (2003).
- [46] J. R. Petta, A. C. Johnson, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 186802 (2004).
- [47] Jing-qiao Zhang, S. Vitkalov, Z. D. Kvon, J. C. Portal, and A. Wieck, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 226807 (2006).
- [48] W. S. Warren, H. Rabitz, and M. Dahleh, *Science* **259**, 1581 (1993).
- [49] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel, and J. R. Wullert *IEEE J. Quantum Electron.* **28**, 908 (1992).
- [50] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, *Science* **282**, 919 (1998).
- [51] D. A. Lidar, T. A. Brun, *Quantum Error Correction*, Cambridge University Press, Cambridge (2013).
- [52] P. Pfeifer, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3365 (1993).
- [53] L. B. Levitin and T. Toffoli, arXiv:0905.3417.
- [54] L. Polachek, D. Oron, and Y. Silberberg, *Opt. Lett.* **31**, 5 (2006).
- [55] M. Plewicky, S. M. Weber, F. Weise, and A. Lindinger, *Appl. Phys. B* **86**, 259 (2006).

-
- [56] M. Plewicky, F. Weise, S. M. Weber, and A. Lindinger, *Appl. Opt.* **45**, 8354 (2006).
- [57] J. Werschnik, and E. K. U. Gross, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40**, R175 (2007).
- [58] R. Kosloff, S. Rice, P. Gaspard, S. Tersigni, and D. Tannor, *Chem. Phys.* **139**, 201 (1989).
- [59] W. Zhu and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **109**, 385 (1998).
- [60] D. Sugny, C. Kontz, M. Ndong, Y. Justum, G. Dive, and M. Desouter-Lecomte, *Phys. Rev. A* **74**, 043419 (2006).
- [61] D. Sugny, M. Ndong, D. Lauvergnat, Y. Justum, and M. Desouter-Lecomte, *J. Photochem. Photobiol. A*, **190**, 359 (2007).
- [62] J. R. Petta, J. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, *Science* **309**, 2180 (2005).
- [63] D. Loss, and D. P. DiVincenzo, *Phys. Rev. A* **57**, 120 (1998).
- [64] L. Saelen, R. Nepstad, I. Degani, and J. P. Hansen, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 046805 (2008).
- [65] E. Räsänen, and E. J. Heller, *The European Physical Journal B* **86**, 1 (2013).
- [66] T. Helgaker, P. Jorgensen, and J. Olsen, *Molecular Electronic-Structure Theory* (Wiley, Chichester, 2000).
- [67] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Thomson Learning, 1976.
- [68] D. C. Mattis, *The Theory of Magnetism Made Simple: An Introduction to Physical Concepts and to Some Useful Mathematical Methods*, World Scientific, Singapore (2006).
- [69] A. T. Kruppa and K. Arai, *Phys. Rev. A* **59**, 3556 1999.
- [70] E. R. Davidson, *Computers in Phys.* **7**, 519. (1993).

- [71] E. Hairer, S. P. Nørsett, and G. Wanner, *Solving Ordinary Differential Equations I (2Nd Revised. Ed.): Nonstiff Problems*. Springer-Verlag New York, Inc. New York, NY, USA 1993.
- [72] A. Putaja and E. Räsänen, Phys. Rev. B **82**, 165336 (2010).
- [73] J. Werschnik and E. K. U. Gross, J. Opt. B.: Quantum Semiclass. Opt. **7**, S300 (2005).
- [74] Y. P. Varshni, J. Phys. B **30**, L589 (1997).
- [75] A. Corella-Madueno, R. Rosas, J. L. Marín and R. Riera, J. Appl.Phys. **90**, 2333 (2001).
- [76] C. Laughlin. B. L. Burrows and M. Cohen, J. Phys. B **35**,701 (2002).
- [77] C. Laughlin, J. Phys. B **37**, 4085 (2004).
- [78] S. Ting-yun, Q. Hao-xue and L. Bai-wen, J. Phys. B **33**, L349 (2000).
- [79] S. Kang, Y.-M. Liu and T.-Y. Shi, Eur. Phys. J. B **63**, 37 (2008).
- [80] J. L. Movilla, A. Ballester and J. Planelles, Phys. Rev. B **79**, 195319 (2009).
- [81] A. S. Baltenkov, U. Becker, S. T. Manson and A. Z. Msezane, J. Phys. B **43**, 115102 (2010).
- [82] D. Bielińska-Waż, J. Karwowski and G. H. F. Diercksen, J. Phys. B **34**, 1987 (2001).
- [83] T. Sako and G. H. F. Diercksen, J. Phys. B **36**, 1433 (2003).
- [84] T. Sako and G. H. F. Diercksen, J. Phys. B **36**, 3743 (2003).
- [85] J. Adamowski, M. Sobkowicz, B. Szafran, and S. Bednarek Phys. Rev. B **62**, 4234 (2000).
- [86] R. Rivelino and J. D. M. Vianna, J. Phys. B **34**, L645 (2001).
- [87] D. C. Thompson and A. Alavi, J. Chem. Phys. **122**, 124107 (2005).

- [88] A. Banerjee, C. Kamal, A. Chowdhury, Phys. Lett. A **350**, 121 (2006).
- [89] B. Boyacioglu, M. Saglam and A. Chatterjee, J. Phys. Cond. Mat. **19**, 456217 (2007).
- [90] Y. Sajeev and N. Moiseyev, Phys. Rev. B **78**, 075316 (2008).
- [91] A. Flores-Riveros, A. Rodríguez-Contreras, Phys. Lett. A **372**, 6175 (2008).
- [92] S. S. Gomez and R. H. Romero, Physica E **42**, 1563 (2010).
- [93] C. Laughlin and Shih-I Chu, J. Phys. A **42**, 265004 (2009).
- [94] R. LeSar and D. R. Herschbac, J. Phys. Chem. **85**, 2798 (1981).
- [95] D. Bielińska-Waz, G. H. F. Diercksen, M. Klobukowski, Chem. Phys. Lett. **349**, 215 (2001).
- [96] S. A. Cruz and J. Soullard, Chem. Phys. Lett. **391**, 138 (2004).
- [97] J. M. H. Lo, M. Klobukowski, D. Bielinska-Waz, E. W. S. Schreiner, and G. H. F. Diercksen, J. Phys. B **39**, 2385 (2006).
- [98] S. S. Gomez and R. H. Romero, Central Eur. J. Phys. **7**, 12 (2009).
- [99] D. P. Clougherty and X. Zhu, Phys. Rev. A **56**, 632 (1997).
- [100] K. D. Sen, J. Garza, R. Vargas and N. Aquino, Phys. Lett. A **295**, 299 (2002).
- [101] M. Neek-Amal, G. Tayebirad and R. Asgari, J. Phys. B **40**, 1509 (2007).
- [102] J. Linderberg and Y. Öhrn, *Propagators in quantum chemistry*, Wiley, New York (2004).
- [103] R. H. Romero and S. S Gomez, Phys. Lett. A **353**, 190 (2006).
- [104] M. Tichy, F. Mintert, and A. Buchleitner, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **44**, 192001 (2011).
- [105] L. Amico, L. Fazio, A. Osterloh, and V. Vedral, Rev. Mod. Phys. **80**, 517 (2008).

- [106] S. Abdullah, J. P. Coe and I. D'Amico, Phys. Rev. B **80**, 235302 (2009).
- [107] L. He, and A. Zunger, Phys. Rev. B **75**, 075330 (2007).
- [108] L. He, G. Bester, and A. Zunger, Phys. Rev. B **72**, 195307 (2005).
- [109] J. P. Coe, and I. D'Amico, J. Phys.: Conf. Ser. **254**, 012010 (2010).
- [110] J. P. Coe, A. Sudbery, and I. D'Amico, Phys. Rev. B **77**, 205122 (2008).
- [111] O. Osenda, and P. Serra, Phys. Rev. A **75**, 042331 (2007).
- [112] O. Osenda, and P. Serra, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **41**, 065502 (2008).
- [113] A. Ferrón, O. Osenda and P. Serra, Phys. Rev. A **79**, 032509 (2009).
- [114] F. M. Pont, O. Osenda, and P. Serra, Phys. Scr. **82**, 038104 (2010).
- [115] A. P. Majtey, A. R. Plastino, and J. S. Dehesa, J. Phys A: Math. Theor. **45**, 115309 (2012).
- [116] J. L. Gondar and F. Comas, Physica B **322**, 413 (2003).
- [117] S. Yilmaz and H. Safak, Physica E **36**, 40 (2007).
- [118] A. Özmen, Y. Yakar, B. Cakir and Ü. Atav, Opt. Commun, **282**, 3999 (2009).
- [119] I. Karabulut and S. Baskoutas, J. Appl. Phys **103**, 073512 (2008).
- [120] M. Sahin, Phys. Rev. B **77**, 045317 (2008).
- [121] J. S. deSousa, J. P. Leburton, V. N. Freire, and E. F. daSilva, Phys. Rev. B **72**, 155438 (2005).
- [122] V. Nistor, L.C. Nistor, M. Stefan, C.D. Mateescua, R. Birjega, N. Solovieva, and M. Nikl, Superlattices Microstruct., **46**, 306 (2009).
- [123] R. C. Ashoori, H. L. Stormer, J. S. Weiner, L. N. Pfeiffer, S. J. Pearton, K. W. Baldwin, K. W. West, Phys. Rev. Lett. **68**, 3088 (1992).
- [124] Y. Wan, G. Ortiz, and P. Phillips, Phys. Rev. B **55**, 5313 (1997).

-
- [125] E. Lee, A. Puzder, M. Y. Chou, T. Uzer, and D. Farrelly, *Phys. Rev. B* **57**, 12281 (1998).
- [126] E. Räsänen, J. Könemann, R. J. Haug, M. J. Puska, and R. M. Nieminen, *Phys. Rev. B* **70**, 115308 (2004).
- [127] F. M. Pont, O. Osenda, J. H. Toloza and P. Serra *Phys. Rev. A* **81**, 042518 (2010).
- [128] A. P. Majtey, and A. R. Plastino, *Int. J. Quantum Inform.* **10**, 1250063 (2012)
- [129] B. Bellomo, R. Lo Franco, and G. Compagno, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 160502 (2007).
- [130] T. Yu, and J. H. Eberly, *Science* **323**, 598 (2009).
- [131] F. Lastra, S. A. Reyes, and S. Wallentowitz, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 015504 (2011).
- [132] P. M. Poggi, F. C. Lombardo and D. A. Wisniacki, *Phys. Rev. A* **87**, 022315 (2013).
- [133] N. Malossi, M. G. Bason, M. Viteau, E. Arimondo, R. Mannella, O. Morsch, and D. Ciampini, *Phys. Rev. A* **87**, 012116 (2013).
- [134] R. Hanson, L. P. Kouwenhoven, J. R. Petta, S. Tarucha, and L. M. K. Vandersypen, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 1217 (2007).
- [135] T. Hayashi, T. Fujisawa, H. D. Cheong, Y. H. Jeong, and Y. Hirayama, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 226804 (2003).
- [136] F. Grossmann, T. Dittrich, P. Jung, and P. Hanggi, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 516 (1991).
- [137] J. R. Petta, A. C. Johnson, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 186802 (2004).

- [138] J. Gorman, D. G. Hasko, and D. A. Williams, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 090502 (2005).
- [139] C. Zener, *Proc. R. Soc. A* **137**, 696 (1932).
- [140] G. E. Murgida, D. A. Wisniacki, and P. I. Tamborenea, *Phys. Rev. B* **79**, 035326 (2009).
- [141] S. G. Kosionis, A. F. Terzis, and E. Paspalakis, *Phys. Rev. B* **75**, 193305 (2007).
- [142] G. Cao, H.-O. Li, T. Tu, L. Wang, Ch. Zhou, M. Xiao, G.-C. Guo, H.-W. Jiang and G.P. Guo, *Nat. Commun.* **4**, 1401 (2013).
- [143] J. Stehlik, Y. Dovzhenko, J. R. Petta, J. R. Johansson, F. Nori, H. Lu, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. B* **86**, 121303(R) (2012).
- [144] Y. Dovzhenko, J. Stehlik, K. D. Petersson, J. R. Petta, H. Lu, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. B (RC)* **84**, 161302 (2011).
- [145] E. Räsänen, A. Castro, J. Werschnik, A. Rubio, and E. K. U. Gross, *Phys. Rev. B* **77**, 085324 (2008).
- [146] R. Nepstad, L. Sælen, I. Degani, and J. P. Hansen, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 215501 (2009).
- [147] E. Räsänen, T. Blasi, M. F. Borunda, and E. J. Heller, *Phys. Rev. B* **86**, 205308 (2012).
- [148] U. Hohenester, *Phys. Rev. B* **74**, 161307(R).
- [149] M. G. Bason, M. Viteau, N. Malossi, P. Huillery, E. Arimondo, D. Ciampini, R. Fazio, V. Giovannetti, R. Mannella, and O. Morsch, *Nat. Phys.* **8**, 147 (2012).
- [150] G. C. Hegerfeldt, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 260501 (2013).
- [151] J. A. Nelder and R. Mead, *Computer Journal* **7**, 308 (1965).
- [152] L.-X. Zhang, D. V. Melnikov, and J.-P. Leburton, *Phys. Rev. B* **74**, 205306 (2006).

-
- [153] X. Wang, S. Yang, and S. Das Sarma **84**, 115301 (2011).
- [154] Quantum Computation in Solid State Systems, B. Ruggiero, P. Delsing, C. Granata, Y. Pashkin and P. Silvestrini (eds.), ISBN: 0387263322, Springer Verlag (Berlin, 2005).
- [155] D. S. Acosta Coden, R. H. Romero, A. Ferrón, and S. S. Gomez, J. Phys. B **46**, 065501 (2013).
- [156] T. Caneva, M. Murphy, T. Calarco, R. Fazio, S. Montangero, V. Giovannetti, and G. E. Santoro, Phys. Rev. Lett. **103**, 240501 (2009).
- [157] T. Blasi, M. F. Borunda, E. Räsänen, and E. J. Heller, Phys. Rev. B **87**, 241303(R).
- [158] Durante una breve porción de tiempo comparado con la duración total del pulso, la trayectoria de mayor fluencia ingresa en la región sin electrones del CSD. Sin embargo, este tiempo es suficientemente corto para mantener la localización del electrón principalmente en la región en el DQD con lo que el electrón es recapturado cuando la trayectoria retorna a la región con un electrón.
- [159] A. M. Steane, Phys. Rev. A **68**, 042322 (2003).
- [160] E. Knill, Phys. Rev. A **71**, 042322 (2005).

AGRADECIMIENTOS

Quisiera agradecer a todas las personas que, de una manera u otra, contribuyeron a mi formación científica durante los años de mi Doctorado.

Primeramente, le agradezco a mi director, el Dr. Rodolfo H. Romero, por su apoyo permanente y paciencia incansable; al Dr. Sergio S. Gomez, le agradezco fundamentalmente por sus aportes en la primera etapa del Doctorado y al Dr. Alejandro Ferrón por su colaboración en la etapa final del Doctorado.

A mis compañeros de oficina Alejandro, Carlos, Agustín y Chaco por su grata compañía y disponibilidad para atender cualquier consulta.

Al Instituto de Modelado e Innovación Tecnológica y, especialmente, al Dr. Gustavo Aucar por atender siempre con prontitud nuestras necesidades. Además, quiero agradecer a María Eugenia por el empeño y eficiencia con que realiza su tarea.

Al Dr. Daniel A. Lovey, le agradezco por su amistad y profesionalismo.

Al CONICET y a la Universidad Nacional del Nordeste, por administrar los fondos de todos los argentinos y financiar mi Doctorado.

Finalmente, quiero dar las gracias a mi familia, especialmente a mi Mamá y a mi Nona, por el apoyo incondicional. A mi amada Maria Emilia, le agradezco el acompañarme durante todos estos años; a mis dos hijos, Ignacio y Santiago, el haber cambiado la forma en la que veo el mundo.

LISTA DE TRABAJOS PUBLICADOS

La presente Tesis está basada en la siguiente lista de trabajos.

- D. S. Acosta Coden, S. S. Gomez, and R. H. Romero, *Atoms confined in a penetrable potential: effect of the atom position on the electric and magnetic responses*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **44**, 035003 (2011).
- D. S. Acosta Coden, R. H. Romero, A. Ferrón, and Sergio S Gomez, *Impurity effects in two-electron coupled quantum dots: entanglement modulation*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **46**, 065501 (2013).
- D. S. Acosta Coden, R. H. Romero and E. Räsänen, *Controlled high-fidelity navigation in the charge stability diagram of a double quantum dot*, enviado a J. Phys.: Condens. Matt.