Biblioteca Digital
F C E N - U B A

BIBLIOTECA CENTRAL LUIS F LELOIR
BIBLIOTECA CENTRAL LELOIR
FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS Y NATURALES UBA

Tesis Doctoral

Control cuántico coherente mediante transiciones de Landau-Zener

Murgida, Gustavo Ezequiel

2010

Este documento forma parte de la colección de tesis doctorales y de maestría de la Biblioteca Central Dr. Luis Federico Leloir, disponible en digital.bl.fcen.uba.ar. Su utilización debe ser acompañada por la cita bibliográfica con reconocimiento de la fuente.

This document is part of the doctoral theses collection of the Central Library Dr. Luis Federico Leloir, available in digital.bl.fcen.uba.ar. It should be used accompanied by the corresponding citation acknowledging the source.

Cita tipo APA:
Murgida, Gustavo Ezequiel. (2010). Control cuántico coherente mediante transiciones de Landau-Zener. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires.

Cita tipo Chicago:
Murgida, Gustavo Ezequiel. "Control cuántico coherente mediante transiciones de Landau-Zener". Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 2010.

EXACTAS UBA
Facultad de Ciencias Exactas y Naturales

UBA
Universidad de Buenos Aires

Dirección: Biblioteca Central Dr. Luis F. Leloir, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad de Buenos Aires. Intendente Güiraldes 2160 - C1428EGA - Tel. (++54 +11) 4789-9293

Contacto: digital@bl.fcen.uba.ar

UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES
Facultad de Ciencias Exactas y Naturales
Departamento de Física

Control cuántico coherente mediante transiciones de Landau-Zener

Trabajo de Tesis para optar por el título de
Doctor de la Universidad de Buenos Aires en el área Ciencias Físicas

por Gustavo Ezequiel Murgida

Directores de Tesis: Dr. Pablo I. Tamborenea
Dr. Diego A. Wisniacki

Lugar de Trabajo: Departamento de Física, FCEyN

Abril de 2010

Resumen

En este trabajo proponemos un método para controlar de una manera extremadamente simple el estado de un sistema cuántico. La estrategia de control está basada en el modelo de Landau-Zener y consiste esencialmente en emplear los cruces evitados para alcanzar diferentes niveles de energía, y en recorrer lentamente las curvas adiabáticas del espectro, hasta arribar al estado deseado. La simpleza del método proviene de suponer que el sistema se comporta localmente, cerca de cada anticruce, como un sistema de dos niveles de Landau-Zener. Sin embargo, mediante simulaciones numéricas en diferentes sistemas realistas comprobamos que nuestra estrategia de control posee una eficiencia sorprendente.

Las primeras aplicaciones numéricas fueron realizadas en un sistema de dos puntos cuánticos acoplados con dos electrones intearactuantes en su interior. Empleando un campo eléctrico externo como parámetro de control y partiendo del estado fundamental a campo E=0, logramos localizar ambos electrones en un mismo punto cuántico, construir estados entrelazados, recorrer en forma eficiente caminos complejos en el espectro para conectar niveles de energía lejanos y construir superposiciones coherentes de varios autoestados.

El método también fue aplicado en otro sistema muy diferente al anterior, la molécula de LiCN. Nuevamente pudimos controlar exitosamente el estado del sistema y además encontramos una solución al problema de isomerizar la molécula. Para ello también empleamos como parámetro de control un campo eléctrico externo. De esta manera mostramos que nuestro método puede ser aplicado eficientemente en diferentes sistemas complejos y creemos que posee un importante potencial en el campo del control coherente.

Palabras clave: control coherente, puntos cuánticos, Landau-Zener, isomerización

Coherent quantum control via Landau-Zener transitions

Abstract

In this work we propose a method to control the state of a quantum system in a extremely simple way. The control strategy is based on the Landau-Zener model and consist essentially in using the avoided crossings to reach different energy levels and walking slowly the adiabatic curves of the spectrum, in order to reach the target state. The simplicity of the method came from the hypothesis that the system evolves locally, near each avoided crossing, as a two levels Landau-Zener system. However, through numerical simulations in different systems we prove that our control strategy has a surprising efficiency.

The first numerical applications were realized on a double quantum with two interacting electrons inside. Using an external electric field as control parameter and starting from the ground state at field $E = 0$, we were able to localize both electrons in the same dot, to construct entangled states, to connect distant energy levels by following complex paths on the spectrum in a efficient way, and to construct coherent superposition of several eigenstates.

The method was also applied to a very different system, the LiCN molecule. Again we were able to control successfully the state of the system, and moreover we found a solution for the problem of isomerizing the molecule. Also in this case we used an electric field as control parameter. In this way we have shown that our method can be successfully applied to different complex systems, and we believe that it has a great potential in the field of coherent control

Keywords: coherent control, quantum dots, Landau-Zener, isomerization

Agradecimientos

Quisiera agradecer a todas las personas que de una forma u otra dejaron su huella en esta tesis.

A mis directores Pablo Tamborenea y Diego Wisniacki, por toda la energía y la dedicación que tuvieron conmigo. Como directores formaron una dupla casi ideal y les estaré siempre agradecido por el apoyo que me dieron y también por sus sabios consejos, que no siempre seguí.

A mis padres. Sin su apoyo a todos los niveles esta tesis no habría sido posible.

A Tino, que me dirigió en Madrid durante 2 meses que fueron de los más productivos. A Javier Arranz, que me facilitó muchísimo el trabajo con la aplicación química de la tesis.

A mis compañeros de doctorado Lorena, Carla, los dos Federicos, Guido, Pablo, Mauro, Gabriel y Guadalupe, con los que compartí sobremesas, excursiones, cumpleaños e interesantes discusiones científicas y no tan científicas.

A Ezequiel, con quien fuimos compañeros de oficina durante mi primer año de doctorado y me desasnó en cuestiones de LaTex, Linux, publicaciones y turismo entre otras.

A los chicos de computación, que me sacaron de múltiples apuros informáticos.

A mis hermanos, a mi sobrina Guadalupe y a mis amigos Romina, Gabriel, Gabriela, Eduardo, Pablo, Santiago, Juan Pablo, Gustavo, Dora, Adrián y Flavia que estuvieron siempre dándome aliento.

Índice general

1. Introducción **1**

2. El método de control **7**

2.1. Esquema del método de control 7

2.2. Transiciones de Landau-Zener 11

2.3. El teorema adiabático 14

2.4. Trayectorias en la esfera de Bloch 17

3. Control coherente de dos electrones interactuantes en dos puntos cuánticos acoplados **21**

3.1. El sistema 22

3.2. Transiciones de Landau-Zener en dos puntos cuánticos acoplados 29

3.3. Base diabática vs. base adiabática 33

3.4. Optimización de las transiciones diabáticas 36

3.5. Navegando por el espectro 38

4. Localización, entrelazamiento y superposiciones coherentes **47**

4.1. Localización 48

4.2. Una generalización del método: Superposiciones coherentes 53

4.3. Entrelazamiento y qbits en dos puntos cuánticos acoplados 58

4.3.1. Construcción de los estados de Bell 59

4.3.2. Definición formal de entrelazamiento en el espacio de localización . 64

5. Una aplicación química: Isomerización del LiCN **69**

5.1. El sistema molecular LiCN 70
5.2. Espectro vibracional en presencia de un campo eléctrico externo 75
5.3. Navegando por el espectro del LiCN 78
5.3.1. Estrategia para isomerizar el LiCN 78
5.3.2. Discusión detallada del camino de control 81

6. Conclusiones **87**

Bibliografía **91**

Publicaciones **99**

Capítulo 1

Introducción

Durante la mayor parte del último siglo, el estudio de sistemas de control clásicos ha jugado un rol central en las diferentes ramas de la ingeniería, dando lugar a una nueva área de investigación interdisciplinaria que reunió a ingenieros y matemáticos: la teoría de control [1]. En el marco de esta disciplina, por un lado se desarrollaron herramientas matemáticas para comprender, describir y optimizar diferentes procesos dinámicos, y por otro se estudiaron métodos robustos que permitieran controlar sistemas en entornos ruidosos, usualmente realizando mediciones sobre el objeto que se quiere manipular para ajustar la acción del control. Algunos ejemplos donde la teoría de control ha sido exitosamente aplicada son los pilotos automáticos en aviones, los reactores químicos y los circuitos electrónicos de precisión.

En las últimas décadas, la rápida evolución de la electrónica y la mecánica hacia la escala nanométrica hicieron atractivos y necesarios el estudio y el desarrollo de métodos de control que puedan ser aplicados a estos sistemas. Como las leyes que gobiernan los sistemas nanoscópicos o mesoscópicos son las de la mecánica cuántica, fue necesario adaptar las viejas técnicas de control, dando lugar a las teorías y técnicas de control cuántico.

Desde los inicios del siglo XX, se llevaron a cabo muchos experimentos donde un campo electromagnético interactúa con átomos, núcleos o electrones. Posteriormente, la aparición del láser en 1960 y las tecnologías más recientes que permiten manipular la

forma de pulsos de femtosegundos dieron lugar a *experimentos de control*, donde el campo electromagnético actúa como *parámetro de control* y los átomos, nucleos, u otros sistemas cuánticos son los *objetos de control*. Entre los muchos desarrollos y aplicaciones de sistemas cuánticos que surgieron en los últimos años y que requieren ser manipulados en forma precisa, se incluyen el control de reacciones químicas, el transporte de cargas en nanoestructuras, la computación cuántica y la metrología cuántica, que es la ciencia que estudia cómo medir cantidades físicas empleando sistemas cuánticos. De esta forma, el control cuántico, lejos de considerar a la mecánica cuántica como una ciencia meramente contemplativa que explica fenómenos naturales, nos propone emplearla como un medio para construir y manejar dispositivos que prometen realizar tareas inaccesibles para las tecnologías convencionales.

Los sistemas de control cuánticos pueden clasificarse en dos grandes grupos, los sistemas de lazo abierto y los de lazo cerrado.

Sistemas de control de lazo abierto: En este caso la evolución del parámetro de control es diseñada a partir del conocimiento a priori del estado del sistema y de su Hamiltoniano, y se caracteriza por no incluir mediciones que retroalimenten a la estrategia de control. Las estrategias de lazo abierto [2] permitieron desarrollar y aplicar exitosamente técnicas de control óptimo en el área de la físico-química [3, 4], en la manipulación de sistemas de espines electrónicos [5, 6] y en experimentos de resonancia magnética nuclear [7]. Otras herramientas empleadas en los sitemas de lazo abierto son los métodos de Lyapunov [8], el control adiabático [2] y el pasaje adiabático Raman estimulado (STIRAP) [2]. Asimismo, las técnicas de control de lazo abierto pueden ser coherentes o incoherentes. En el primer caso la evolución del sistema es unitaria y se conserva la coherencia del estado, pero en algunos casos no es posible transformar el estado inicial en el estado deseado empleando sólo este tipo de evoluciones, y por eso se utilizan también técnicas que destruyen la coherencia, incrementando la controlabilidad del sistema [9, 10].

Sistemas de control de lazo cerrado: Aunque las estrategias de lazo abierto demostraron ser muy eficientes, sus aplicaciones poseen algunas limitaciones. En los sistemas abiertos la interacción con el entorno introduce ruido e incertezas que no son controlables. Una solución natural a este problema, que permite mejorar la robustez del procedimiento, son las estrategias de lazo cerrado, en las que se realizan mediciones periódicas en

el sistema que se quiere controlar y los resultados obtenidos se emplean para modificar el parámetro de control. Existen dos paradigmas de control de lazo cerrado, el control de aprendizaje y el control retroalimentado [11]. El control de aprendizaje no involucra a un sistema sino a un ensamble de sistemas preparados en forma idéntica. Aquí una de las copias del ensamble es afectada con, por ejemplo un pulso, y luego es medida. A continuación se prepara otro sistema idéntico, se lo afecta con otro pulso, se vuelve a medir y así el proceso continúa repitiéndose. La forma de los sucesivos pulsos empleados es modificada en cada ciclo en función de los resultados de la mediciones previas, en base a un algoritmo, posiblemente genético, que permite optimizar el pulso [11]. Procedimientos como éste fueron aplicados muy exitosamente para controlar fenómenos cuánticos en reacciones químicas [11, 12]. Por otro lado, las estrategias de control retroalimentado suponen la realización de las mediciones, aunque indirectas, sobre un único sistema. En este caso, el sistema a controlar interactúa con un sistema auxiliar que es medido en forma directa y la información obtenida se emplea para modificar los parámetros de control dentro del tiempo de coherencia [13]. Estrategias de control retroalimentado fueron empleadas para mejorar la eficiencia en diferentes tareas incluyendo el control de estados entrelazados y la corrección de errores en computación cuántica [14, 15].

Entre las áreas de aplicación del control cuántico, comenzaremos mencionando a uno de los grandes sueños de la química: crear sustancias estables o metaestables, fijando y quitando uniones químicas para llevar el sistema hacia el estado cuántico deseado. La idea central consiste en manipular las moléculas en forma coherente, usualmente mediante pulsos láser de femtosegundos, para producir materiales o estados moleculares que no son accesibles a través de procedimientos químicos o fotoquímicos convencionales (algunos ejemplos son ilustrados por Rabitz *et al.* en [11]). Otra aplicación química importante es la presentada por Hereck *et al.* [16], quienes emplearon técnicas de control coherente de aprendizaje en una bacteria fotosintética. Este experimento no sólo mostró que la complejidad del sistema no impide la aplicación del control coherente, sino que abrió las puertas a una nueva aplicación en el área del control cuántico de sistemas biológicos.

Uno de los principales desafíos para el control cuántico radica en el procesamiento de la información cuántica. Por ese motivo, en los últimos años fueron propuestos cientos de esquemas para obtener dispositivos de computación cuántica y se hicieron grandes

esfuerzos para construir una computadora cuántica. Actualmente los candidatos más prometedores para la futura computadora cuántica son [17] las cavidades electrodinámicas (QED), las trampas de iones, las trampas de átomos neutros, los puntos cuánticos, los sistemas ópticos, los dispositivos superconductores de interferencia (SQUID) y las técnicas de resonancia magnética nuclear (RMN).

Los puntos cuánticos semiconductores son nanoestructuras que mantienen confinados a un número reducido (entre 1 y algunos cientos) de electrones, huecos o excitones. Las dimensiones típicas de estas estructuras van desde unos pocos nanómetros hasta algunos micrones, siendo el tamaño, la forma y el número de cargas que contienen, parámetros que pueden ser controlados en forma precisa [18, 19]. Debido a las dimensiones de estas estructuras, los niveles de energía de las cargas se encuentran cuantizados como en un átomo y por este motivo también se los llama átomos artificiales. Sin embargo, a diferencia de los átomos, los puntos cuánticos pueden ser fácilmente conectados a electrodos, abriendo las puertas a nuevas aplicaciones tecnológicas y representando una oportunidad única para el estudio de propiedades atómicas y de los fundamentos de la mecánica cuántica.

Entre los logros experimentales con puntos cuánticos que fueron alcanzados en los últimos años se encuentran la generación de pares de fotones entrelazados en polarización [20], el acoplamiento fuerte entre un punto cuántico y una cavidad fotónica [21], la manipulación coherente del espín de un electrón confinado en un punto cuántico [22] y el control del acoplamiento entre distintos puntos cuánticos para formar moléculas artificiales [23]. También existen propuestas para emplear los puntos cuánticos como qbits [24] y como compuertas lógicas [25, 26] en una computadora cuántica, sin embargo aún no fueron llevadas a la práctica. Por otro lado, los puntos cuánticos diluidos en otras substancias poseen diversas aplicaciones prácticas como la construcción de diodos láser, el empleo en biología [27, 28] y en biomedicina [29] como marcadores más brillantes y duraderos que los colorantes orgánicos, y la construcción de celdas fotovoltaicas.

Los sistemas de dos puntos cuánticos acoplados conteniendo uno o dos electrones atrapados, poseen un especial interés debido a sus posibles aplicaciones en el área de la información cuántica y han sido intensamente estudiados en los últimos 20 años. En este período fueron realizados numerosos esfuerzos teóricos para proponer técnicas de control del espín colectivo [30, 31], la localización [32–35] y el entrelazamiento de los

electrones [34, 35], usualmente mediante el uso de láseres y empleando el formalismo de floquet. Un enfoque diferente para controlar el espín total de dos electrones confinados, que está muy relacionado con el método que presentamos en esta tesis, es el propuesto por Unanyan *et al.* [36]. Estos autores sugieren emplear un campo eléctrico que varía con velocidad constante para recorrer en forma adiabática el espectro de energía, y una secuencia de pulsos de campo eléctrico alterno que cumplen la función de abrir o cerrar las cruces evitados para permitir transiciones adiabáticas o diabáticas respectivamente.

Como alternativa a los métodos de control cuántico citados, en este trabajo proponemos una estrategia de control coherente de lazo abierto extremadamente simple, que es aplicable a diversos sistemas cuánticos. Nuestro método de control está basado en el conocimiento del espectro de energía del sistema en función del parámetro de control y requiere que el sistema se comporte, en el entorno de los cruces evitados, como un sistema de dos niveles de Landau-Zener [37, 38].

En el capítulo 2 describimos brevemente la idea central de nuestro método de control y mostramos en detalle las dos herramientas básicas de la estrategia: el modelo de dos niveles de Landau-Zener y el teorema adiabático. Luego, en el contexto de la esfera de Bloch, discutimos la evolución de un sistema de Landau-Zener y la interpretación del teorema adiabático.

En el capítulo 3 mostramos que nuestro sistema de control es aplicable a un sistema realista de dos puntos cuánticos acoplados, con dos electrones interactuantes confinados. En este sistema analizamos el espectro de energía y los autoestados del sistema en función de un campo eléctrico uniforme externo. En particular, vemos que, en el rango de campos y energías considerados, el espectro presenta rectas diabáticas y cruces evitados bien definidos. Luego, empleando un campo eléctrico dependiente del tiempo como parámetro de control, simulamos numéricamente la estrategia de control, navegando por las curvas del espectro desde el estado fundamental hasta alcanzar el estado deseado.

En el capítulo 4 abordamos los problemas de localización y entrelazamiento de los electrones en el sistema de dos puntos cuánticos acoplados. Empleando nuestro método de control, mostramos una forma extremadamente simple de localizar y mantener atrapados ambos electrones en uno de los pozos. Luego, mediante una generalización de la estrategia de control, extendemos el alcance de nuestro método permitiendo, además de navegar por

el espectro, la construcción de superposiciones coherentes de diferentes autoestados. En particular, simularemos numéricamente la construcción de los estados de Bell simétricos.

En el capítulo 5 aplicamos y adaptamos el método de control a un sistema completamente diferente: la molécula de cianuro de litio. Utilizando nuevamente un campo eléctrico externo como parámetro de control, logramos manipular la configuración geométrica del sistema molecular, y resolvemos de una forma muy simple el problema de isomerización LiNC $\rightarrow$ LiCN. Finalmente en el capítulo 6 presentamos nuestras conclusiones.

Capítulo 2

El método de control

En este capítulo presentamos brevemente la idea central de nuestro método de control cuántico y describimos en mayor detalle el modelo de Landau-Zener y el teorema adiabático, que son las piedras angulares de la estrategia de control. El método de control está basado en el conocimiento del espectro de energía en función del valor de un parámetro de control externo. Si el espectro posee cruces evitados (avoided crossings) bien definidos y si el sistema se comporta cerca de cada anticruce como el modelo de Landau-Zener de dos niveles, podemos recorrer las curvas del espectro mediante una secuencia de variaciones rápidas (diabáticas) y lentas (adiabáticas) del parámetro de control. Para estimar la velocidad de variación del parámetro en cada transición empleamos el modelo de Landau-Zener. Definiremos entonces este modelo, mostraremos las probabilidades de transiciones diabática y adiabática y describiremos la dinámica de un sistema de Landau-Zener con ayuda de la esfera de Bloch.

2.1. Esquema del método de control

En general, dado un sistema cuántico en un estado inicial $|\psi_0\rangle$ y dado un estado $|\psi_t\rangle$ que queremos alcanzar, lo que esperamos de un método de control es que nos diga qué interacción debemos introducir en el sistema para que éste evolucione desde el estado $|\psi_0\rangle$ hasta el estado deseado $|\psi_t\rangle$, o hasta un estado final muy parecido al estado buscado. En este caso supondremos que la perturbación introducida está dada por un escalar λ,

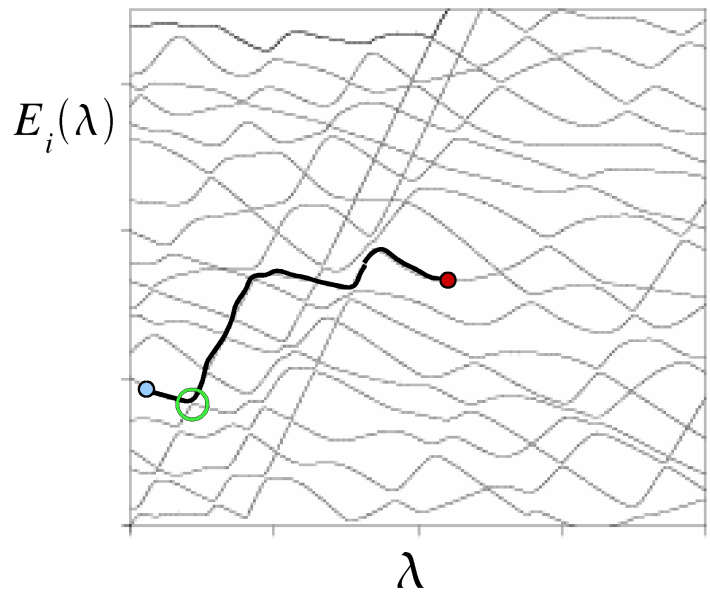

Figura 2.1: Espectro de energía en función del parámetro de control λ y esquema del método propuesto. El objetivo de la estrategia de control consiste en recorrer la curvas adiabáticas del espectro desde el estado inicial (indicado en color azul), hasta el estado deseado (color rojo), empleando los cruces evitados como bifurcaciones que nos permiten elegir el camino a seguir.

que es nuestro parámetro de control, y puede corresponder por ejemplo a una longitud, a la magnitud de un campo eléctrico, a un campo magnético o también a una frecuencia si trabajamos en el formalismo de Floquet. Luego, el Hamiltoniano, los autoestados y las energías serán todos funciones de λ. En particular, el espectro de energía está dado por un conjunto de curvas llamadas curvas adiabáticas (ver Fig. 2.1).

En el capítulo 4 veremos que es posible obtener superposiciones coherentes de diferentes autoestados, sin embargo, en la versión más simple del método de control supondremos que tanto el estado inicial $|\psi_0\rangle$ como el estado objetivo $|\psi_t\rangle$ son autoestados del Hamiltoniano, aunque eventualmente pueden corresponder a diferentes valores de λ. La idea central consiste en obtener una dependencia temporal del parámetro, $\lambda(t)$, que permita recorrer las curvas adiabáticas conectando el estado inicial con el estado deseado como se muestra en la Fig. 2.1, de modo que durante toda la evolución temporal el estado del sistema sea un autoestado del Hamiltoniano. Veamos entonces de qué manera podemos

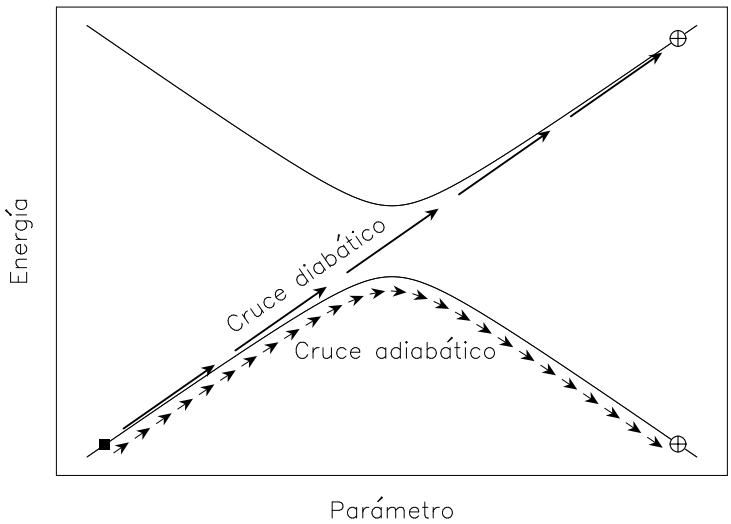

Figura 2.2: Esquema de una transición diabática (rápida) y de una adiabática (lenta) en un cruce evitado. Las flechas largas y cortas corresponden, respectivamente, a variaciones rápidas y lentas del parámetro de control. En el caso diabático el sistema es promovido al nivel superior de energía, mientras que en la evolución lenta la curva inferior del espectro es recorrida en forma adiabática.

variar λ para obtener el camino de la Fig. 2.1. Inicialmente el sistema se encuentra en el estado $|\psi_i\rangle$ y el valor de λ es el correspondiente a este autoestado. Luego, si el parámetro λ es incrementado muy lentamente, el teorema adiabático nos asegura que el sistema evolucionará siguiendo la misma curva adiabática hasta llegar al primer cruce evitado, indicado por un círculo en la figura. Si continuamos aumentando el valor de λ lo suficientemente despacio, pasaremos adiabáticamente el anticruce permaneciendo en el nivel inferior de energía, pero si λ es incrementado rápidamente obtendremos un salto al nivel superior, es decir una transición diabática como se muestra en la Fig. 2.2. Luego de atravesar este cruce evitado, continuamos incrementando lentamente el valor de λ para recorrer adiabáticamente el espectro hasta alcanzar un nuevo anticruce. De esta forma, podemos conectar puntos distantes del espectro recorriendo lentamente las curvas adiabáticas y empleando los cruces evitados como bifurcaciones que nos permiten alcanzar el autoestado buscado.

Para que este método de control sea aplicable, es necesario que el espectro posea cruces evitados bien definidos y que el sistema evolucione en la proximidad de cada anticruce como un sistema de dos niveles de Landau-Zener. Bajo estas condiciones podemos

estimar mediante el modelo Landau-Zener las velocidades de variación del parámetro λ necesarias para obtener transiciones diabáticas o adiabáticas en cada anticruce: Si $\dot{\lambda} << \pi\Delta^2/(2\hbar|\alpha_1 - \alpha_2|)$ tendremos una transición adiabática mientras que si $\dot{\lambda} >> \pi\Delta^2/(2\hbar|\alpha_1 - \alpha_2|)$ resultará una transición diabática, donde Δ es el gap del cruce evitado y α_1 y α_2 son las pendientes de las rectas diabáticas $\epsilon_1(\lambda)$ y $\epsilon_2(\lambda)$, que son las asíntotas de las curvas adiabáticas $E_1(\lambda)$ y $E_2(\lambda)$ indicadas en la Fig. 2.3.

Pese a que las condiciones de aplicabilidad del modelo de Landau-Zener en un sistema de muchos niveles parecen ser muy restrictivas, es de hecho una característica muy general en sistemas complejos y, como veremos en los siguientes capítulos, permite conectar estados muy lejanos en el espectro de una forma sumamente eficiente. En los sistemas de muchos niveles generalmente existen interacciones entre varios niveles de energía y no sólo entre dos de ellos como ocurre en un sistema de Landau-Zener, y por este motivo, en las transiciones no adiabáticas tendremos inevitablemente mezclas no deseadas de los diferentes niveles. Sin embargo, como veremos luego, frecuentemente estas transiciones pueden ser optimizadas reduciendo las mezclas extrañas a niveles sumamente bajos.

La idea de navegar por el espectro de energía, tiene un antecedente reciente en un método propuesto por Unanyam *et al.* para entrelazar el estado de espín de dos electrones atrapados en dos puntos cuánticos acoplados [36]. En este método, el parámetro de control, que es un campo eléctrico, es variado siempre en forma adiabática con una velocidad constante. Una característica clave del sistema estudiado en este trabajo es que la interacción entre niveles, que define el ancho de los cruces evitados, puede ser controlada mediante un pulso de campo magnético alterno. Así, empleando el campo magnético alterno para permitir transiciones adiabáticas en algunos anticruces, el estado recorre el espectro de energía hasta alcanzar el estado entrelazado buscado. Sin embargo, la disponibilidad de un segundo parámetro de control que permita manipular el gap en los anticruce no siempre está presente en un sistema complejo de muchos niveles. El método de control que proponemos en esta tesis está basado en una idea similar a la de Unanyam, pero es más general debido a que no requiere el control de la interacción entre niveles.

A continuación describimos las dos piezas fundamentales de la estrategia de control: el modelo de Landau-Zener y el teorema adiabático.

2.2. Transiciones de Landau-Zener

El modelo de Landau-Zener, propuesto por C. Zener [37] y L. Landau [38] en forma independiente en 1932, provee una descripción simple de las transiciones no adiabáticas en un cruce evitado. Pese a que este modelo corresponde a un sistema de dos niveles, también puede ser empleado en sistemas realistas más complejos debido a que frecuentemente estos presentan cruces evitados bien definidos y los niveles involucrados en los anticruces interactúan en la zona de transición muy débilmente con los demás niveles. Esto sucede en numerosas áreas de la física como la óptica cuántica [39], las colisiones atómicas [40] y moleculares [41], la física nuclear [42], la interacción de átomos con campo eléctricos [43,44] y magnéticos [45] dependientes del tiempo y la física del estado sólido [46].

Un sistema de dos niveles es de Landau-Zener si su Hamiltoniano depende de un parámetro λ que varía en el tiempo y si existe una base en cuya representación el Hamiltoniano es de la siguiente forma

$$H = \begin{bmatrix} \epsilon_1(\lambda) & \Delta/2 \\ \Delta/2 & \epsilon_2(\lambda) \end{bmatrix}, \tag{2.1}$$

donde Δ es una constante mientras que ϵ_1 y ϵ_2 son funciones lineales de λ: $\epsilon_1 = \overline{\epsilon} + \alpha_1(\lambda - \overline{\lambda})$, $\epsilon_2 = \overline{\epsilon} + \alpha_2(\lambda - \overline{\lambda})$. Los elementos de la base usada son los estados diabáticos $|1\rangle$ y $|2\rangle$, y corresponden a los autoestados del Hamiltoniano (2.1) en los casos límite en que $\Delta = 0$ o $\lambda \to \pm\infty$.

Los autovalores del Hamiltoniano están dados por

$$E_{1,2} = \frac{1}{2}\left(\epsilon_1 + \epsilon_2 \pm \sqrt{(\alpha_1 - \alpha_2)^2\lambda^2 + \Delta^2}\right), \tag{2.2}$$

y son dos hipérbolas (curvas adiabáticas) como se muestra en la Fig. 2.3. Las asíntotas de estas hipérbolas son las rectas diabáticas $\epsilon_1(\lambda)$ y $\epsilon_2(\lambda)$, las coordenadas del centro del anticruce evitado son $\overline{\lambda}$ y $\overline{\epsilon}$, y el gap entre las curvas es igual a Δ.

Los autoestados asociados a las energías E_1 y E_2 son los estados adiabáticos, que llamaremos $|\phi_1(\lambda)\rangle$ y $|\phi_2(\lambda)\rangle$. Estos estados coinciden con los estados diabáticos en los límites de $\lambda \to \pm\infty$, y conforme varía el valor de λ intercambian sus características en el

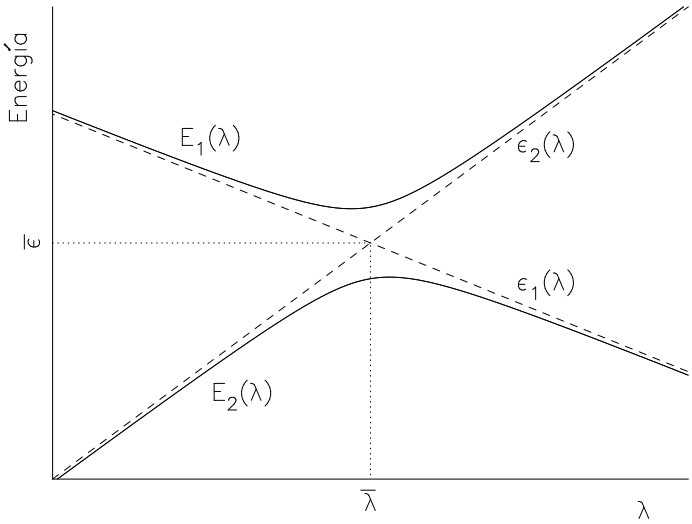

Figura 2.3: Cruce evitado en un sistema de Landau-Zener. Las curvas adiabáticas $E_1(\lambda)$ y $E_1(\lambda)$, indicadas con líneas sólidas en el gráfico, son dos hipérbolas cuyas asíntotas están dadas por las rectas diabáticas $\epsilon_1(\lambda)$ y ϵ_2. $\overline{\lambda}$ y $\overline{\epsilon}$ son las coordenadas del centro del cruce evitado.

cruce evitado. Notemos que cuando $\lambda \to -\infty$ las bases diabática y adiabática coinciden, resultando

$$|\phi_1(-\infty)\rangle = |1\rangle \quad \text{y} \quad |\phi_2(\infty)\rangle = |2\rangle. \tag{2.3}$$

En medio del cruce evitado, cuando $\lambda = \overline{\lambda}$, los estados adiabáticos son mezclas equiprobables de los estados diabáticos:

$$|\phi_1(\overline{\lambda})\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|1\rangle + |2\rangle\right) \quad \text{y} \quad |\phi_2(\overline{\lambda})\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|1\rangle - |2\rangle\right). \tag{2.4}$$

Y finalmente, cuando $\lambda \to \infty$, los estados diabáticos y adiabáticos se intercambian:

$$|\phi_1(\infty)\rangle = |2\rangle \quad \text{y} \quad |\phi_2(\infty)\rangle = |1\rangle. \tag{2.5}$$

En sus trabajos pioneros, Zener [37] y Landau [38] consideraron al parámetro λ como una función lineal del tiempo y calcularon la probabilidad asintótica de transición entre los estados diabáticos en este problema dependiente del tiempo. Asumiendo que el estado inicial es $|\psi(t \to -\infty)\rangle = |1\rangle$, que $\lambda(t) = vt$, y llamando $|\psi(t)\rangle$ al estado a tiempo t, la probabilidad asintótica de finalizar en el estado $|2\rangle$ está dada por la expresión

$$
\begin{aligned}
P_2(t \to \infty) &= |\langle 2|\psi(t \to \infty)\rangle|^2 = 1 - \exp\left[\frac{-\pi\Delta^2}{2\hbar|\dot{\epsilon}_1 - \dot{\epsilon}_2|}\right] \\
&= 1 - \exp\left[\frac{-\pi\Delta^2}{2\hbar v|\alpha_1 - \alpha_2|}\right], \qquad (2.6)
\end{aligned}
$$

que es conocida como la fórmula de Landau-Zener. Luego, de acuerdo a la velocidad de variación del parámetro λ, tenemos dos casos límites:

I. Transición adiabática: $v \ll \frac{\pi\Delta^2}{2\hbar|\alpha_1-\alpha_2|}$. En este caso el estado evoluciona siguiendo la curva adiabática desde el estado diabático inicial hasta el otro estado diabático.

II. Transición diabática: $v \gg \frac{\pi\Delta^2}{2\hbar|\alpha_1-\alpha_2|}$. En una evolución muy rápida el anticruce es atravesado en muy poco tiempo impidiendo la evolución del estado, que permanece en el estado diabático inicial.

Estos casos límites juegan un rol central en nuestro método de control debido a que ofrecen un criterio cuantitativo para estimar la velocidad v necesaria para cruzar diabática o adiabáticamente un cruce evitado.

La evolución para todo tiempo del estado $|\psi(t)\rangle$ y de las probabilidades de ocupación ($|\langle 1|\psi(t)\rangle|^2$ y $|\langle 2|\psi(t)\rangle|^2$) también fueron calculadas por Landau y Zener. Para eso transformaron la ecuación de Shrodinger dependiente del tiempo en la ecuación de Webber [47,48], que tiene soluciones conocidas y se pueden expresar en términos de las funciones parabólicas cilíndricas $D_\nu(z)$. Más recientemente Witting propuso una solución más simple del problema de Landau-Zener usando integrales de contorno [49]. Para calcular el estado del sistema en la proximidad de un cruce evitado es necesario conocer la evolución completa del estado $|\psi(t)\rangle$, sin embargo si los anticruces son relativamente estrechos, las transiciones pueden ser consideradas instantáneas y la fórmula asintótica de Landau-Zener será suficiente para estimar las probabilidades de obtener los diferentes estados diabáticos.

Desde la publicación de los trabajos originales de 1932, un gran número de autores contribuyeron a la generalización del modelo de Landau Zener, considerando por un lado sistemas sistemas de más de dos niveles [50–55], y por otro lado Hamiltonianos que dependen en forma no lineal del parámetro de control [56–59]. Los esfuerzos que aún hoy son dedicados a generalizar este modelo son un reflejo de la importancia de la transiciones no adiabáticas y del éxito del modelo de Landau-Zener para describirlas en muchos casos.

2.3. El teorema adiabático

El teorema adiabático es una de las herramientas más antiguas y más ampliamente usadas de la mecánica cuántica, y fue una pieza fundamental en el desarrollo de nuevas herramientas como las transiciones de Landau-Zener, las fases de Barry [60] y el teorema de Gell-Man-Low en la teoría de campos [61]. Más recientemente el teorema adiabático volvió a ganar una atención renovada en el área de la información cuántica debido al rol central que tiene en la computación adiabática [62, 63]. El teorema afirma que si un sistema cuántico con un Hamiltniano $H(t)$ dependiente del tiempo está inicialmente en el enésimo autoestado de $H(0)$, y si $H(t)$ evoluciona lo suficientemente despacio, el estado del sistema a tiempo t permanecerá en el enésimo autoestado de $H(t)$ a menos de un factor multiplicativo de fase.

La primera formulación y la primera demostración rigurosas del teorema fueron dadas por Born y Fock en 1928 [64], y fueron motivadas por el trabajo de Ehrenfest de 1916 [65], donde se relacionan invariantes adiabáticos clásicos con los correspondientes observables cuánticos. La demostración de Born y Fock cubre los casos en que el Hamiltoniano tiene un espectro discreto no degenerado, como por ejemplo el oscilador armónico, pero no es válida para Hamiltonianos cuyos espectros tienen una componente continua, como por ejemplo el átomo de hidrógeno, que además de poseer un espectro continuo para los autovalores positivos, posee degeneraciones en la componente negativa. Más tarde, en 1953 Kato [66] consiguió relajar la hipótesis del espectro discreto y demostró que el teorema también vale cuando existe un autovalor aislado $\lambda(t)$ y cuando su proyector asociado $P(t)$ tiene dimensión finita. De esta forma, se sigue exigiendo que haya un gap entre el autovalor $\lambda(t)$ y el resto del espectro, pero se incluyen sistemas como por ejemplo el átomo de hidrógeno. Tanto el teorema de Kato como su posteriores generalizaciones [67, 68] hacen uso de la hipótesis de un gap de energía en el espectro, sin embargo en 1999 Avron y Elgart [69] mostraron una versión del teorema sin la condición del gap, que es aplicable por ejemplo al estado fundamental de un átomo en un campo de radiación cuantizada.

En la versión más usual del teorema, el estado del sistema evoluciona siguiendo una curva adiabática aislada del resto del espectro, bajo la condición de que el Hamiltonianto $H(t)$ varíe lo suficientemente despacio, donde ”suficientemente despacio”significa que

$$\left|\frac{\langle E_m(t)|\dot{E}_n(t)\rangle}{E_m(t)-E_n(t)}\right| \ll 1, \qquad m \neq n, \qquad t \in [0,T], \tag{2.7}$$

siendo $E_m(t)$ y $|E_m(t)\rangle$ los autovalores y autovectores de H(t) respectivamente, n es el índice del estado inicial $|E_n(0)\rangle$ y T es el tiempo total de la evolución. La condición (2.7) es válida si la $H(t)$ es una función lineal del tiempo [70, 71], y utilizando algunas aproximaciones a primer orden también fue probada para el caso más general en que H(t) es una función continua [66, 72]. Naturalmente, las aproximaciones empleadas en estas demostraciones son válidas sólo si las correcciones a ordenes mayores son mucho menores, pero esta última condición no siempre es válida. Sin embargo, en la literatura se empleó frecuentemente el criterio (2.7) sin verificar su aplicabilidad. Al parecer esta condición fué derivada para algunos casos particulares y luego se la utilizó más allá de su rango de validez. Recientemente Marzlin y Sanders [73] generaron una controversia cuando en 2004 mostraron mediante un contraejemplo la inconsistencia del abuso del criterio (2.7), que hasta entonces era aceptado normalmente. Se hizo entonces evidente la necesidad de un criterio de aplicabilidad más general para el teorema adiabático, y fue Tong *et al.* [74] quién mostró en forma general y sin aproximaciones que, para el caso de un Hamiltoniano con espectro discreto que varía en forma continua, las siguientes condiciones son suficientes para la validez del teorema adiabático:

$$(A) \qquad \left|\frac{\langle E_m(t)|\dot{E}_n(t)\rangle}{E_m(t)-E_n(t)}\right| \ll 1, \qquad t \in [0,T], \tag{2.8}$$

$$(B) \qquad \int_0^T \left|\left(\frac{\langle E_m(t)|\dot{E}_n(t)\rangle}{E_m(t)-E_n(t)}\right)'\right| dt \ll 1, \qquad t \in [0,T], \tag{2.9}$$

$$(C) \qquad \int_0^T \left|\frac{\langle E_m(t)|\dot{E}_n(t)\rangle}{E_m(t)-E_n(t)}\right| \left|\langle E_n(t)|\dot{E}_l(t)\right| dt \ll 1, \qquad t \in [0,T], \tag{2.10}$$

donde $m \neq n$ y $n \neq l$. La condición (A) es justamente la bien conocida expresión (2.7), mientras que (B) y (C) son condiciones adicionales, que junto con (A) fijan una cota para la duración total T de la evolución adiabática. En algunos casos las expresiones (B) y (C) pueden integrarse en forma exacta, pero siempre es posible simplificar estas expresiones reemplazándolas por la condiciones más fuertes

$$(b) \qquad \left| \left(\frac{\langle E_m(t)|\dot{E}_n(t)\rangle}{E_m(t) - E_n(t)} \right)' \right|_M T \ll 1, \tag{2.11}$$

$$(c) \qquad \left| \frac{\langle E_m(t)|\dot{E}_n(t)\rangle}{E_m(t) - E_n(t)} \right|_M \left| \langle E_n(t)|\dot{E}_l(t) \right|_M T \ll 1, \tag{2.12}$$

donde $|f(t)|_M$ es el máximo del módulo de $f(x)$ en el intervalo $t \in [0, T]$.

Notemos que si el Hamiltoniano depende de un parámetro λ que varía con velocidad constante en un lapso de tiempo T entre dos valores fijos $\lambda(0) = 0$ y $\lambda(T) = 1$, se recupera el resultado del teorema adiabático de las referencias [66,72]. En este caso el Hamiltoniano se parametriza como $H(\lambda)$ con $\lambda = t/T, t \in [0, T]$ y sustituyendo $t = T\lambda$ en las expresiones (A), (b) y (c) del criterio obtenemos

$$(A') \qquad \frac{1}{T} \left| \frac{\langle E_m(\lambda)|\dot{E}_n(\lambda)\rangle}{E_m(\lambda) - E_n(\lambda)} \right| \ll 1, \tag{2.13}$$

$$(b') \qquad \frac{1}{T} \left| \left(\frac{\langle E_m(\lambda)|\dot{E}_n(\lambda)\rangle}{E_m(\lambda) - E_n(\lambda)} \right)' \right|_M \ll 1, \tag{2.14}$$

$$(c') \qquad \frac{1}{T} \left| \frac{\langle E_m(\lambda)|\dot{E}_n(\lambda)\rangle}{E_m(\lambda) - E_n(\lambda)} \right|_M \left| \langle E_n(\lambda)|\dot{E}_l(\lambda) \right|_M \ll 1. \tag{2.15}$$

Como todos los términos del lado izquierdo tienden a cero cuando T tiende a infinito, las desigualdades se satisfacen cuando T es suficientemente grande y el teorema adiabático queda demostrado para el caso considerado en [66] y [72].

Para estimar proximidad entre el estado a tiempo t $|\psi(t)\rangle$ y el estado adiabático $|E_n(t)\rangle$, Tong mostró que el overlap entre ambos estados se puede acotar de la siguiente forma:

$$\begin{aligned} \sqrt{|\langle \psi(t)|E_n(t)\rangle|} \;\geq\; & 1 - \sum_{m \neq n} \left| \frac{\langle E_m(t)|\dot{E}_n(t)\rangle}{\omega_{mn}} \right| - \sum_{m \neq n} \int_0^t \left| \left(\frac{\langle \psi(t)|E_n(t)\rangle}{\omega_{mn}} \right)' \right| dt' - \\ & \sum_{m \neq n} \sum_{l \neq m} \int_0^t \left| \frac{\langle E_m|\dot{E}_n\rangle}{\omega_{mn}} \right| \left| \langle E_m|\dot{E}_n\rangle \right| dt', \end{aligned} \tag{2.16}$$

donde $\omega_{mn} = E_m(t) - E_n(t)$.

Pese a que la idea central del teorema consiste en que la aproximación adiabática es válida cuando el Hamiltoniano $H(t)$ evoluciona lo suficientemente despacio, para garantizar su aplicabilidad es necesario considerar también a las derivadas del Hamiltoniano de orden superior. Un ejemplo de no validez del criterio tradicional (2.7) puede verse al final de la siguiente sección.

2.4. Trayectorias en la esfera de Bloch

Todo estado puro de un sistema de dos niveles puede ser representado como una superposición de dos autoestados del Hamiltoniano:

$$|\psi\rangle = C_1|1\rangle + C_2|2\rangle, \tag{2.17}$$

donde C_1 y C_2 son las coordenadas de un vector complejo de norma igual a 1, mientras que $\{|1\rangle, |2\rangle\}$ es una base ortonormal de autoestados del Hamiltoniano.

Alternativamente, podemos escribir la ecuación (2.17) como

$$|\psi\rangle = \cos\frac{\theta}{2}|1\rangle + e^{i\phi}\operatorname{sen}\frac{\theta}{2}|2\rangle, \tag{2.18}$$

donde omitimos la fase global y se cumple que $0 \leq \theta \leq \pi$ y $0 \leq \phi \leq 2\pi$. Así, los ángulos θ y ϕ definen el estado normalizado $|\psi\rangle$ a menos de una fase. En la medida que nuestro sistema de dos niveles no interactúe con otros sistemas, esta fase global no afectará a ningún observable y podrá ser omitida.

Podemos entonces representar cada estado puro con un punto de la superficie de una esfera de radio igual a 1, la "esfera de Bloch". En esta esfera, parametrizada por las coordenadas polares (θ, ϕ), el polo norte corresponde al estado $|1\rangle$, el polo sur al estado $|2\rangle$ y todos los demás puntos representan superposiciones de ambos estados, definidas por la ecuación (2.18). Luego de haber establecido la correspondencia entre los estados y la esfera de Bloch, usaremos esta última para visualizar el sistema de Landau-Zener y su evolución (θ y ϕ pueden variar en el tiempo).

El Hamiltoniano (2.1) puede expresarse como la suma de un múltiplo de la identidad de $\mathbb{C}^{2\times 2}$ y de un Hamiltoniano más sencillo:

$$H = \left[\bar{\epsilon} + \frac{\alpha_1 + \alpha_2}{2}(\lambda - \bar{\lambda})\right] \times \mathbb{I} + \begin{bmatrix} \frac{\alpha_1-\alpha_2}{2}(\lambda - \bar{\lambda}) & \Delta/2 \\ \Delta/2 & -\frac{\alpha_1-\alpha_2}{2}(\lambda - \bar{\lambda}) \end{bmatrix}. \tag{2.19}$$

Cómo el único efecto del múltiplo de la identidad sobre la evolución del sistema es la introducción de una fase global, no afectará a la trayectoria en la esfera de Bloch y podemos omitirlo redefiniendo el Hamiltoniano como

$$H = \begin{bmatrix} \epsilon(\lambda) & \Delta/2 \\ \Delta/2 & -\epsilon(\lambda) \end{bmatrix}, \tag{2.20}$$

donde $\epsilon(\lambda) = \frac{\alpha_1-\alpha_2}{2}(\lambda - \lambda_0)$. Ahora, notemos que el Hamiltoniano (2.20) puede expresarse de la siguiente forma

$$H = \frac{\Delta}{2\,\mathrm{sen}\,\theta_0} \begin{bmatrix} \cos\theta_0 & \mathrm{sen}\,\theta_0 \\ \mathrm{sen}\,\theta_0 & -\cos\theta_0 \end{bmatrix}, \tag{2.21}$$

donde el ángulo θ_0 está definido como

$$\mathrm{tg}(\theta_0) = \frac{\Delta}{2\epsilon(\lambda)}, \qquad 0 \leq \theta_0 \leq \pi \tag{2.22}$$

Los autovalores de este Hamiltoniano son $\frac{\Delta}{2\,\mathrm{sen}\,\theta_0}$ y $-\frac{\Delta}{2\,\mathrm{sen}\,\theta_0}$, y sus respectivos autoestados están dados por

$$\begin{aligned} |\phi_1\rangle &= \cos\frac{\theta_0}{2}|1\rangle + \mathrm{sen}\,\frac{\theta_0}{2}|2\rangle \\ |\phi_2\rangle &= \mathrm{sen}\,\frac{\theta_0}{2}|1\rangle - \cos\frac{\theta_0}{2}|2\rangle. \end{aligned} \tag{2.23}$$

De esta forma podemos ver que los autoestados $|\phi_1\rangle$ y $|\phi_2\rangle$ corresponden en la esfera de Bloch a los puntos $\vec{r}_1$ y $\vec{r}_2$ de coordenadas polares ($\theta = \theta_0$, $\phi = 0$) y ($\theta = \pi - \theta_0$, $\phi = \pi$) respectivamente. Observemos que estos puntos de la esfera son antipodales y por lo tanto $\vec{r}_1 = -\vec{r}_2$.

Naturalmente, la evolución de un estado $|\psi(t)\rangle$ en este sistema está definida por la ecuación de Shcrödinger,

$$i\hbar\,|\dot{\psi}(t)\rangle = \frac{\Delta}{2\,\mathrm{sen}\,\theta_0} \begin{bmatrix} \cos\theta_0 & \mathrm{sen}\,\theta_0 \\ \mathrm{sen}\,\theta_0 & -\cos\theta_0 \end{bmatrix} |\psi(t)\rangle. \tag{2.24}$$

Considerando que $\vec{r}(t)$ es el vector unitario que representa a $|\psi(t)\rangle$ en la esfera de Bloch, se puede demostrar [75] que la ecuación anterior es equivalente a la ecuación de Bloch:

$$\dot{\vec{r}}(t) = \vec{\Omega} \times \vec{r}(t), \tag{2.25}$$

donde $\vec{\Omega} = \frac{\Delta}{2\hbar \operatorname{sen} \theta_o} \vec{r}_1$. Es decir que $\vec{r}(t)$ gira alrededor del eje definido por la dirección $\vec{r}_1$, con velocidad angular Ω. En particular, si el parámetro λ no varía ($\dot{\lambda} = 0$) y $\vec{r}(t = 0)$ coincide con $\vec{r}_1$ o con $\vec{r}_2$, entonces el estado permanecerá invariante, como era esperable debido a que estos puntos corresponden a los autoestados del Hamiltoniano.

La imagen del punto en la esfera de Bloch girando en torno a un eje, ofrece una interpretación geométrica de las transiciones de Landau-Zener diabáticas y adiabáticas. En una transición de este tipo, el parámetro de control λ varía linealmente con el tiempo desde $-\infty$ hasta $+\infty$ y lo mismo ocurre con el elemento de matriz $\epsilon(\lambda)$. Luego, de acuerdo a la ecuación (2.22), el valor inicial del ángulo θ_0 es igual a π y decrece hasta su valor final 0, de modo que el eje de rotación, dado por el vector $\vec{r}_1$, se desplaza desde el polo sur ($|2\rangle$) hasta el polo norte ($|1\rangle$) recorriendo el meridiano $\phi = 0$ de la esfera.

Como en una transición de Landau Zener el estado inicial del sistema es un autoestado del Hamiltoniano, el eje de rotación contiene inicialmente al punto de la esfera que lo representa. Luego, si la velocidad angular Ω es mucho mayor que la velocidad con que se desplaza el propio eje (transición adiabática), el punto $\vec{r}(t)$ se desplazará siguiendo la trayectoria del eje de rotación sobre la superficie de las esfera, viajando lentamente desde un estado diabático hasta el otro. Por otro lado, en una transición diabática la velocidad angular del eje de rotación es mucho mayor que Ω. Esta condición impide que el estado $|\psi(t)\rangle$ tenga tiempo suficiente para desplazarse sobre la esfera en forma apreciable, de modo que en este caso el sistema permanece en el estado diabático inicial.

La dinámica sobre la esfera de Bloch también nos permite encontrar un contraejemplo sencillo al uso abusivo del criterio usual (2.7) del teorema de Landau Zener. Concretamente, podemos mostrar que si el estado inicial del sistema, $|\psi(t = 0)\rangle$, es un autoestado de $H(\lambda_i)$ de autovalor α, entonces dado un valor del parámetro de control λ_f y dada una velocidad $\delta > 0$ arbitrariamente chica, existen una dependencia funcional del parámetro $\lambda(t)$ y un tiempo T tales que:

i) $\lambda(0) = \lambda_i$

ii) $\lambda(T) = \lambda_f$

iii) $|\dot{\lambda}(t)| < \delta \quad \forall t \in (0, T)$

iv) $\|\vec{r}(T) - \vec{r}_f\| > \|\vec{r}(0) - \vec{r}_f\|$,

donde $\vec{r}(t)$ y $\vec{r}_f$ son, respectivamente, los puntos de la esfera de Bloch asociados a $|\psi(t)\rangle$ y al autoestado de $H(\lambda_f)$ de autovalor α.

Para construir el contraejemplo, elegimos una función $\lambda(t)$ lineal a trozos con el valor inicial $\lambda(0) = \lambda_i$ y cuya derivada sea una función periódica con periodo $\tau = \frac{2\pi}{\Omega}$ definida de la siguiente forma en el intervalo $(0, \tau)$

$$\dot{\lambda}(t) = \begin{cases} \frac{\delta}{2}\,\mathrm{sgn}(\lambda_f - \lambda_i) & \text{si} \quad t \in (0,\, \xi) \\ 0 & \text{si} \quad t \in (\xi,\, T - \xi) \\ \frac{\delta}{2}\,\mathrm{sgn}(\lambda_f - \lambda_i) & \text{si} \quad t \in (\tau - \xi,\, \tau) \end{cases} \tag{2.26}$$

donde $\mathrm{sgn}(x)$ es la función signo. Con esta variación del parámetro, si $\xi < \tau/4$, en cada período τ el eje de rotación se alejará del punto $\vec{r}(t)$. Además, en el caso límite en que $\xi \to 0$, tendremos que el estado final $|\psi(T)\rangle$ es igual al estado inicial $|\psi(0)\rangle$. Así, para construir el contraejemplo buscado, basta elegir un valor de ξ lo suficientemente pequeño y un tiempo T tal que $\lambda(T) = \lambda_f$.

Capítulo 3

Control coherente de dos electrones interactuantes en dos puntos cuánticos acoplados

El control coherente de puntos cuánticos en semiconductores ha sido un campo de investigación muy activo en los últimos 15 años. Los primeros trabajos sobre localización de un electrón en un pozo doble fueron el detonador de una intensa actividad teórica. En 1991 Grossman *et al.* [32] mostraron que aplicando un campo eléctrico alterno adecuado, el tuneleo del electrón entre los pozos puede ser eliminado, manteniéndose entonces la localización preexistente en uno de los pozos. Poco tiempo después Bavli y Metiu [33] encontraron una forma de, partiendo de un estado fundamental deslocalizado, concentrar la función de onda del electrón en uno de los pozos y luego preservar la localización empleando un campo eléctrico con una dependencia temporal apropiada. Estos trabajos pioneros fueron seguidos por una muy extensa literatura. Una década después, se dieron los primeros pasos en la exploración teórica de la localización y el control de dos electrones interactuantes en puntos cuánticos [35, 76, 77]. Mientras Zhang y Zhao estudiaron un modelo de dos niveles, Tamborenea y Metiu estudiaron un sistema de muchos niveles más realista inspirado en nanorods semiconductores cuasi-unidimensionales. El estudio de la localización de dos electrones en puntos cuánticos ha permanecido activo desde entonces [78, 80–83].

Recientemente propusimos nuestro método de control para manipular dos electrones confinados en dos puntos cuánticos acoplados [84–87] y simulamos numéricamente su implementación en un sistema realista de AlGaAs. Utilizando como parámetro de control un campo eléctrico externo, encontramos una solución simple y robusta al problema de localización y mostramos que es posible navegar por el espectro de energía y conectar estados lejanos de una forma sumamente eficiente. En este capítulo presentamos el sistema empleado, analizamos la aplicabilidad del modelo de Landau-Zener para describir la evolución del sistema en las proximidades de los cruces evitados, describimos la implementación de la estrategia de control y mostramos los resultados de simulaciones numéricas que nos permitieron navegar exitosamente por el espectro de energía.

3.1. El sistema

Nuestro sistema consiste en dos electrones interactuantes confinados en dos puntos cuánticos acoplados, en presencia de un campo eléctrico externo dependiente del tiempo. Los puntos cuánticos están formados por una estructura semiconductora de GaAs-AlGaAs con una sección $L = 5$ nm de lado y una longitud de 50 nm. El potencial de confinamiento considerado en la dirección longitudinal $V(z)$ es un pozo doble de 28 nm de ancho con una barrera de 4 nm y una profundidad de 220 meV, que es una profundidad típica para este material (ver Fig. 3.1).

Debido a la estrechez de la estructura, los modos transversales requieren energías mucho más altas que los modos longitudinales y por lo tanto el problema puede ser considerado como unidimensional. El Hamiltoniano de los dos electrones es entonces

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m}\left(\frac{\partial^2}{\partial z_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_2^2}\right) + V(z_1) + V(z_2) + V_C(|z_1 - z_2|) - e(z_1 + z_2)E(t), \tag{3.1}$$

donde m es la masa efectiva del GaAs, V es el potencial de confinamiento, $E(t)$ es el campo eléctrico externo en la dirección longitudinal, e es la carga del electrón y V_C es el potencial efectivo de interacción coulombiana unidimensional entre los electrones:

$$V_c(|z_1 - z_2|) = \int_0^L dx_1 dy_1 dx_2 dy_2 \frac{e^2\phi^2(x_1)\phi^2(y_1)\phi^2(x_2)\phi^2(y_2)}{\epsilon|z_1 - z_2|}, \tag{3.2}$$

siendo $\phi(x) = \sqrt{2/L}\,\mathrm{sen}(\pi x/L)$ el modo transversal fundamental y ϵ la constante dieléctrica del GaAs. Supondremos además que el estado inicial del sistema es el fundamental, el

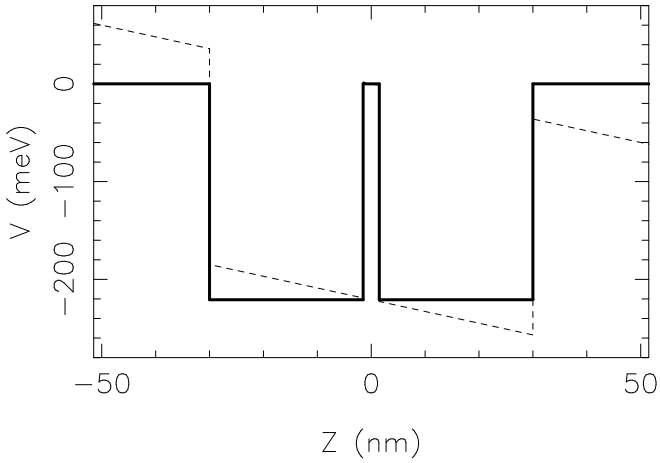

Figura 3.1: Potencial de confinamiento en la dirección longitudinal de la estructura del sistema de dos puntos cuánticos acoplados. Con líneas sólidas indicamos el caso en que el campo eléctrico es E=0, mientras que las líneas punteadas corresponden al campo E=12 kV/cm.

cual es singlete. Luego, como el Hamiltoniano no depende del espín, el espín total se conservará y la función de onda permanecerá siendo simétrica por intercambio de partículas a todo tiempo.

En primer lugar consideramos el caso en que el campo eléctrico es constante. Diagonalizando numéricamente el Hamiltoniano (3.1) obtuvimos las energías y la parte espacial de las funciones de onda para distintos valores del campo, y graficamos el espectro en función del parámetro E (Fig. 3.2). Para eso utilizamos como base del espacio de Hilbert de dos partículas, las combinaciones simétricas de las primeras 12 autofunciones de una sola partícula, de modo que la base utilizada tiene dimensión igual a $12 * (12 + 1)/2 = 78$.

Los autoestados del Hamiltoniano de una partícula, dado por

$$H_1 = -\frac{\hbar^2}{2m}\frac{\partial^2}{\partial z_1^2} + V(z) - ezE(t), \tag{3.3}$$

fueron calculados numéricamente utilizando una base 200 funciones senoidales. En ausencia de campo eléctrico, el potencial total es igual a $V(z)$, que es un potencial simétrico, por lo tanto las autofunciones son simétricas o antisimétricas y las probabilidades de hallar el electrón en cada uno de los pozo son iguales (ver Fig. 3.3). Pero cuando el campo eléctrico es distinto de cero, la interacción $-ezE(t)$ rompe la simetría espacial del potencial y

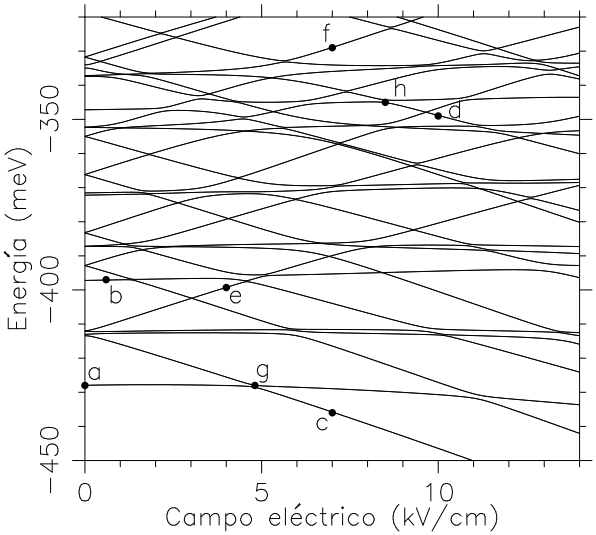

Figura 3.2: Espectro de energía de dos electrones interactuantes en dos puntos cuánticos acoplados, en función de un campo eléctrico uniforme externo. Las curvas con pendientes positivas y negativas corresponden a autoestados con ambos electrones localizados en los pozos derecho e izquierdo respectivamente, mientras que las rectas horizontales están asociados a estados con un electrón en cada punto cuántico.

conforme aumenta E los autoestados se vuelven cada vez más localizados. En la Fig. 3.3 podemos ver que cuando $E = 0$ los primeros autoestados son deslocalizados, mientras que en los correspondientes a un campo de 1 kV/cm el electrón está confinado en uno de los pozos.

Debido a que los autoestados de una partícula son localizados o completamente deslocalizados dependiendo de la existencia de un campo eléctrico externo, sus combinaciones simétricas,

$$\Phi_{i,j}(z_1, z_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\phi_i(z_1)\phi_j(z_2) + \phi_j(z_1)\phi_i(z_2))\right], \tag{3.4}$$

también tienen diferentes tipos de localización bien definidos. Para discutir la localización de los dos electrones, definimos las probabilidades conjuntas de tener ubicados ambos electrones en el pozo izquierdo, P_{LL}, o en el pozo derecho, P_{RR}, y la probabilidad de que se halle un electrón en cada pozo, P_{RL}. Naturalmente, debido a la simetría por intercambio, tendremos que la probabilidad de tener el electrón 1 en el pozo izquierdo y el electrón 2 en el derecho, es igual a la probabilidad de tener el primer electrón en el pozo derecho

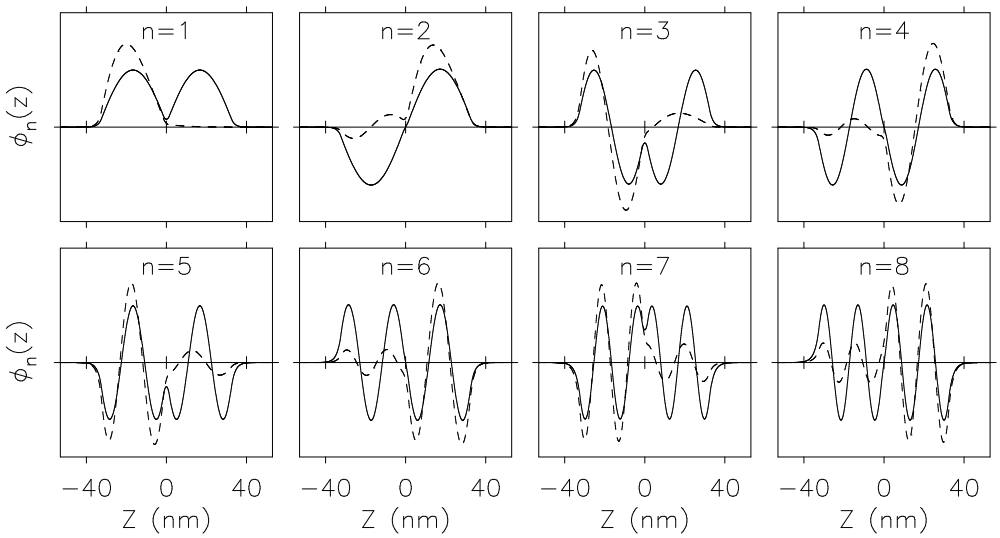

Figura 3.3: Funciones de onda de una sola partícula correspondientes a los autoestados del Hamiltoniano 3.3. Con líneas sólidas (de segmentos) se indican los primeros ocho autoestados para un de campo eléctrico E=0 (E=1 kV/cm). En ausencia del campo E, las probabilidades de que el electrón se halle en el pozo izquierdo o en el derecho son iguales, pero la presencia del campo eléctrico induce la localización en uno u otro pozo.

y el segundo electrón en el izquierdo. En el caso en que $E = 0$, las autofunciones de una partícula son deslocalizadas (las probabilidades de que el electrón se halle en el pozo derecho o en el izquierdo son iguales) y por lo tanto en sus productos simétricos tenemos que $P_{LL} = P_{RR} = \frac{1}{2}P_{RL} = \frac{1}{4}$.

Por otro lado, en presencia de un campo eléctrico lo suficientemente grande, las autofunciones de un electrón tienen una localización definida L (izquierda) o R (derecha), y en consecuencia las combinaciones simétricas $\Phi_{i,j}(z_1, z_2)$ tiene, con una probabilidad cercana a 1, ambos electrones ubicados en uno de los pozos, o presentan un electrón en cada pozo, es decir que una de las probabilidades P_{LL}, P_{RR} o P_{RL} es aproximadamente igual a 1 y las otras son casi nulas. Claramente las funciones de onda $\Phi_{i,j}$ son los autoestados del Hamiltoniano sin interacción entre los electrones,

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m}\left(\frac{\partial^2}{\partial z_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_2^2}\right) + V(z_1) + V(z_2) - e(z_1 + z_2)E(t), \tag{3.5}$$

pero debido al potencial $V_C(|z_1 - z_2|)$ los autoestados del Hamiltoniano total H serán, en general, superposiciones de distintas combinaciones simétricas. Sin embargo, veremos

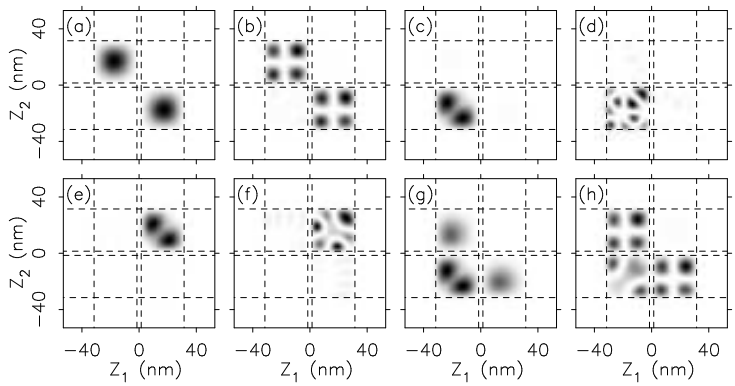

Figura 3.4: Funciones de onda correspondientes a los autoestados (a)-(h) indicados en la Fig. 3.2. En los estados (a) y (b) hay un electrón ubicado en cada pozo, en los estados (c) y (d) ambos electrones están localizados en el punto cuántico izquierdo y en las funciones de onda (e) y (f) los electrones están confinados en el pozo derecho. Como los estado (a)-(f) están alejados de los anticruces, poseen características de localización bien definidas. Por el contrario, los estados (g) y (h) se encuentran en el centro de dos cruces evitados y por lo tanto son superposiciones de estados diabáticos con diferentes tipos de localización

luego que las autofunciones de H coinciden cualitativamente con los estados $\Phi_{i,j}$ y tienen los mismos tipos de localización.

En la Fig. 3.2 podemos ver que el espectro de energía en función del campo eléctrico parece estar compuesto por líneas rectas que se cruzan en distintos puntos. Sin embargo, una mirada más cuidadosa revela que todos los cruces son evitados dando lugar a un conjunto de curvas adiabáticas que nunca se cruzan. El hecho de que todos los cruces sean evitados es consecuencia de la interacción electrón-electrón que desacolpla los niveles de energía del sistema no interactuante. Las líneas rectas del espectro están distribuidas en tres grupos claramente distinguibles: las que tienen pendientes positivas, las decrecientes y las horizontales.

En cada grupo las pendientes son muy similares y, lejos de los cruces evitados, las funciones de onda tienen un tipo diferente de localización (ver Figs. 3.2 y 3.4(a)-(f)):

(i) En las funciones de onda correspondientes a las rectas horizontales los electrones están deslocalizados, es decir que cada electrón está en un pozo diferente (Figs. 3.4(c) y 3.4(d)).

(ii) En las rectas con pendiente negativa, ambos electrones están confinados en el pozo

izquierdo (Figs. 3.4(e) y 3.4(f)).

(iii) Las rectas con pendiente positiva corresponden a estados con ambos electrones localizados en el pozo derecho (Figs. 3.4(e) y 3.4(f)).

Debido a la localización de los electrones en cada grupo, las pendientes de las rectas tienen una interpretación clásica muy simple ya que son aproximadamente iguales al valor medio de $e(z_1 + z_2)$, es decir al momento dipolar de la función de onda.

A lo largo de una recta dada del espectro, los autoestados cambian muy poco, y por lo tanto cada recta tiene asociada una forma característica de la función de onda. Por otro lado, cerca de los cruces evitados los estados con diferente tipo de localización se mezclan dando lugar a estados sin una localización LL, RR o RL bien definida. Como ejemplo, en las Figs. 3.4(g) y 3.4(h)) mostramos los autoestados en el cruce evitado de los dos primeros niveles en $E = 4{,}77$ kV/cm y entre los niveles 21 y 22 en $E = 8{,}48$ kV/cm respectivamente.

La existencia de cruces evitados bien definidos es una condición necesaria para navegar por el espectro mediante variaciones rápidas y lentas del campo eléctrico, y su presencia se la debemos a la interacción electrón-electrón que introdujo estos ingredientes críticos en el espectro. Sin embargo, las formas de las funciones de onda asociadas a cada una de las rectas depende muy poco de la intensidad de la interacción entre los electrones y cualitativamente son similares a las que tendríamos en ausencia del potencial de interacción $V_C(|z_1 - z_2|)$.

Para estudiar la influencia de la interacción electrón-electrón, podemos describir el Hamiltoniano de la siguiente forma:

$$H = H_0 + \lambda V_C(|z_1 - z_2|), \tag{3.6}$$

donde H_0 es el Hamiltoniano de la ecuación (3.5) y λ es un parámetro que es igual a 1 en nuestro sistema, pero que podemos cambiar para emular distintos valores de la constante dieléctrica. En la Fig. 3.5 comparamos los espectros de energía correspondientes a diferentes valores de λ ($\lambda = 0$, 1 y 10).

Cuanto mayor es la constante de interacción λ, mayor es la energía de cualquier estado, pero las funciones de onda que más ven aumentada su energía son aquellas tienen ambos electrones localizados en el mismo pozo, es decir, los estados de los tipos RR o

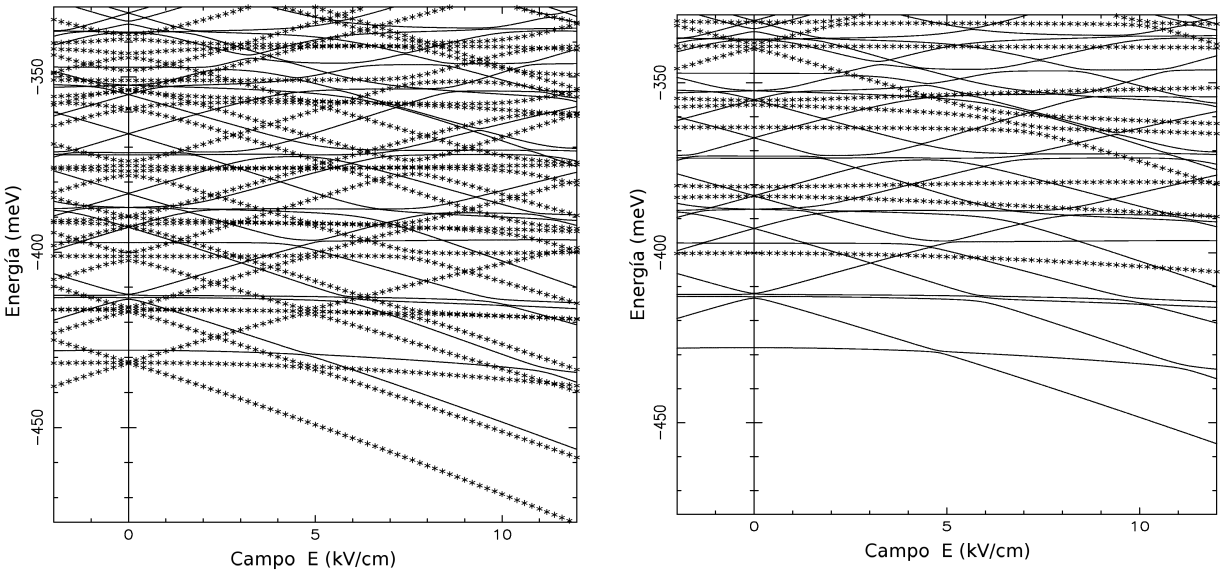

Figura 3.5: Espectros de energía en función del campo eléctrico, para distintos valores de la constante λ de interacción entre electrones [ver ecuación (3.6)]. En el gráfico izquierdo comparamos los espectros correspondientes a λ=0 (línea sólida) y a λ=1 (línea de asteriscos). En la figura derecha contrastamos los casos de λ=10 (asteriscos) y λ=1 (línea sólida).

LL. Comparando los autoestados para los distintos niveles de interacción, observamos la invariancia cualitativa de las funciones de onda diabáticas. En los espectros de la Fig. 3.5 notamos que en todos aparecen los mismos tres conjuntos de rectas asociadas a las mismas funciones de onda pero, como era esperable, las rectas con pendientes no nulas fueron desplazadas hacia arriba en el espectro con respecto a las otras en el caso de $\lambda = 10$, y hacia abajo cuando consideramos $\lambda = 0$. Además, observando el espectro sin interacción ($\lambda = 0$), notamos que en $E = 0$ interactúan los estados diabáticos con los tres tipos de localización, formándose así los estados $\Phi_{i,j}(E = 0)$ que son superposiciones equiprobables de estados de los tipos *RR*, *LL* y *RL*.

3.2. Transiciones de Landau-Zener en dos puntos cuánticos acoplados

Nuestra intención es aplicar el método de control introducido en el capítulo anterior, recorriendo el espectro de energía del sistema de dos puntos cuánticos acoplados. Las dos piezas básicas de este método son, por un lado, las evoluciones adiabáticas lejos de los cruces evitados, y por el otro, las evoluciones rápidas y lentas empleadas en los cruces evitados para pasar en forma controlada de una curva adiabática a otra. Para que nuestro método de control sea aplicable, es necesario que el espectro presente cruces evitados bien definidos, y que el sistema evolucione localmente, cerca de cada cruce evitado, como un sistema de Landau-Zener. Por eso, en esta sección estudiamos la validez del modelo de Landau-Zener para describir las transiciones en los cruces evitados de nuestro sistema.

Comenzaremos estudiando el anticruce indicado con la letra "A" en la Fig. 3.6, entre las dos primeras curvas adiabáticas y en el valor de campo eléctrico $E = 4{,}772$ kV/cm. Inicialmente el sistema se encuentra en el estado fundamental sin campo eléctrico $\phi_1(E = 0)$, indicado con la letra "a" en la Fig. 3.6, y estudiamos la probabilidad de permanecer en el primer nivel de energía $\phi_1(E)$ cuando el campo eléctrico es incrementado linealmente con el tiempo a diferentes velocidades. Esto corresponde a las probabilidades adiabáticas $|\langle\phi_1(E)|\psi(t)\rangle|^2$. Para calcular la evolución del estado $\psi(t)$, utilizamos la base de 12*(12+1)/2=78 productos simétricos de autoestados del Hamiltoniano de una sola partícula [ecuación (3.3)] sin campo eléctrico, y resolvimos numéricamente la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo, para el Hamiltoniano del sistema completo (3.1), empleando el método usual de Runge-Kutta de cuarto orden con un paso fijo de 0,05 fs. Las probabilidades así obtenidas se pueden ver en la Fig. 3.7, donde, para facilitar la comparación entre los resultados correspondientes a diferentes velocidades, graficamos las probabilidades en función del campo eléctrico, en lugar de su evolución temporal. Las velocidades empleadas en estas simulaciones son $\dot{E}$ =0,07, 0,27, 0,53, 1,07 y 4,27 (kV/cm)/ps.

Calculemos ahora las probabilidades adiabáticas predichas por el modelo de Landau-Zener. El primer paso consiste en hallar el Hamiltoniano de Landau-Zener que correponde

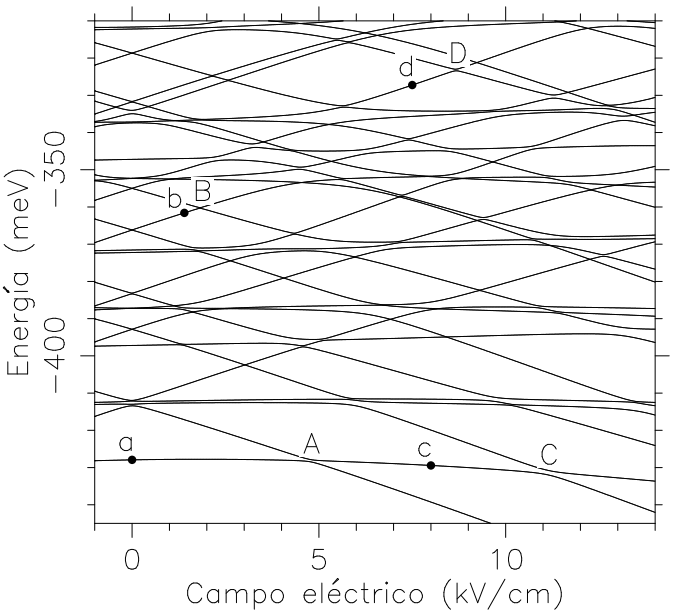

Figura 3.6: Cruces evitados que fueron contrastados con el modelo de Landau-Zener. Con letras mayúsculas indicamos el centro de los anticruces y con minúsculas señalamos los autoestados que fueron empleados como estados iniciales en las simulaciones numéricas (para más detalles ver el texto).

al cruce evitado que estamos considerando [ecuación (2.1)]:

$$H_{LZ} = \begin{bmatrix} \overline{\epsilon} + \alpha_1(E - \overline{E}) & \Delta/2 \\ \Delta/2 & \overline{\epsilon} + \alpha_2(E - \overline{E}) \end{bmatrix}.$$

La magnitud del gap Δ, la ubicación del cruce evitado $(\bar{E}, \bar{\epsilon})$ y las pendientes α_1 y α_2 pueden obtenerse directamente del espectro de la Fig. 3.6, y de esta forma el Hamiltoniano de dos niveles resulta:

$$H_{LZ} = \begin{bmatrix} 432\,\text{meV} - 0{,}2\,\frac{\text{meV}}{\text{kV/cm}}(E - 4{,}772\,\frac{\text{kV}}{\text{cm}}) & 0{,}305\,\text{meV} \\ 0{,}305\,\text{meV} & 432\,\text{meV} - 3{,}295\,\frac{\text{meV}}{\text{kV/cm}}(E - 4{,}772\,\frac{\text{kV}}{\text{cm}}) \end{bmatrix}. \tag{3.7}$$

Notemos que la diferencia $\alpha_1 - \alpha_2$ y el gap Δ son suficientes para determinar los autoestados de H_{LZ} y la evolución de las probabilidades adiabáticas. Asimismo, la ubicación del cruce evitado es irrelevante para la evolución del sistema, pero es necesaria para comparar los resultados obtenidos con el Hamiltoniano completo y con el Hamiltoniano de Landau-Zener.

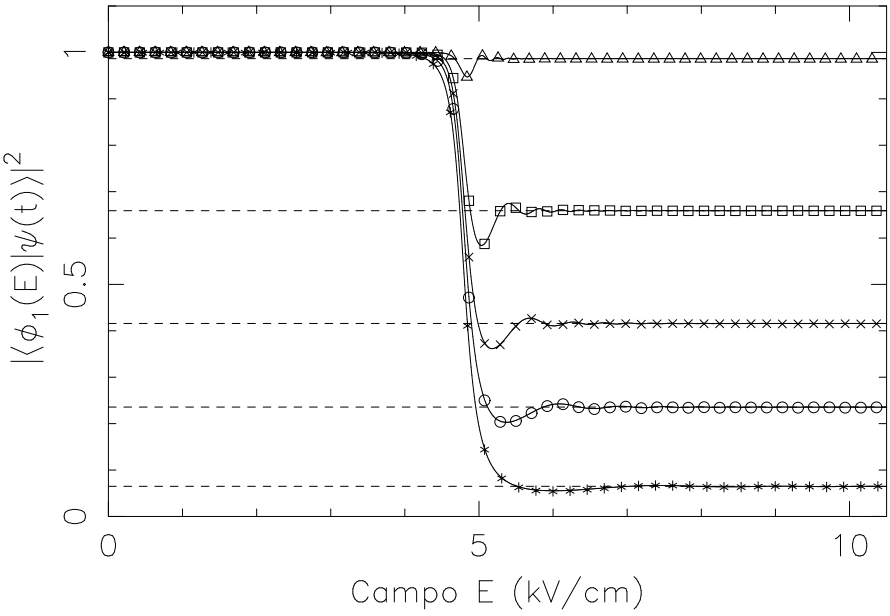

Figura 3.7: Evolución de las probabilidades adiabáticas $|\langle\phi_1(E)|\psi(t)\rangle|^2$ en el anticruce "A" de la Fig. 3.6 para diferentes velocidades de variación del campo eléctrico. Las velocidades consideradas son $\dot{E} = 0{,}07$ ($\triangle$), 0,27 ($\square$), 0,53 ($\times$), 1,07 ($\circ$), 4,27 (*) (kV/cm)/ps. El estado inicial en la evolución del sistema es el correspondiente al punto "a" en la Fig. 3.6. Las lineas sólidas indican las probabilidades adiabáticas correspondientes al modelo de Landau-Zener y las lineas de segmentos señalan las probabilidades asintóticas dadas por la fórmula de Landau-Zener [ecuación (2.6)].

Del mismo modo que hicimos con el Hamiltoniano del sistema completo, resolvimos la ecuación de Schrödinger para el Hamiltoniano de dos niveles y calculamos la evolución de las probabilidades adiabáticas. Como estado inicial, consideramos al primer autoestado del Hamiltoniano H_{LZ} para el campo $E = 0$, que corresponde al estado "a" de la Fig. 3.6, y empleamos las mismas velocidades de variación del campo eléctrico que en el caso anterior. La similitud entre las probabilidades obtenidas con ambos Hamiltonianos, muestran que nuestro sistema es bien descripto por el modelo de Landau-Zener en el rango de campos considerado. Sin embargo, aún es posible mejorar la aproximación mediante una corrección en la diferencia de pendientes $\alpha_1 - \alpha_2$. En el espectro del Hamiltoniano exacto es fácil calcular la distancia Δ entre los niveles involucrados en el cruce evitado, pero debido a que las curvas adiabáticas interactúan también con otros niveles, la medición directa de las pendientes α_1 y α_2 tiene una precisión más limitada. Por este motivo, corregimos el

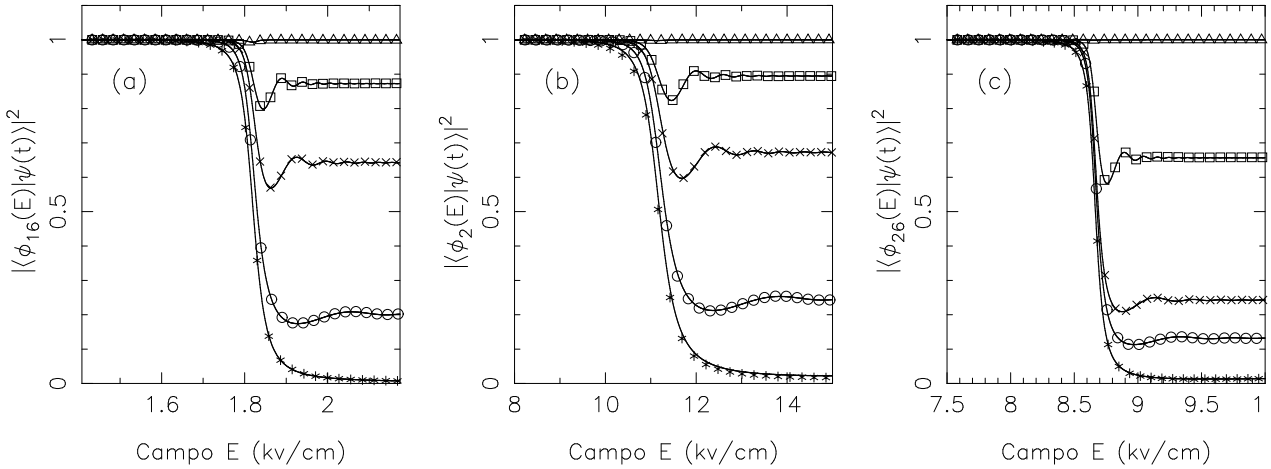

Figura 3.8: Evolución de las probabilidades adiabáticas en los anticruces "B", "C" y "D" de la Fig. 3.6. Los estados iniciales de estas evoluciones son los correspondientes a los puntos "b", "c" y "d" de la misma figura. Las velocidades empleadas son (a) $\dot{E}$ = 0,0015 (△), 0,0077 (□), 0,015 (×), 0,07 (∘), 4,27 (*) (kV/cm)/ps; (b) $\dot{E}$ = 0,07 (△), 0,53 (□), 1,27 (×), 4,27 (∘), 40,0 (*) (kV/cm)/ps; y (c) $\dot{E}$ = 0,003 (△), 0,07 (□), 0,27 (×), 0.53 (∘), 4.27 (*) (kV/cm)/ps. Con líneas sólidas mostramos las probabilidades obtenidas mediante el modelo de Landau-Zener.

valor medido de la diferencia de pendientes para encontrar el valor efectivo que minimiza la distancia entre las probabilidades adiabáticas obtenidas por ambos métodos. El valor corregido de $\alpha_1 - \alpha_2$ es 3.072 meV/(kV/cm), y en la Fig. 3.7 comparamos las curvas de probabilidad obtenidas con el Hamiltoniano completo y con el Hamiltoniano de Landau-Zener. Notemos que el modelo de Landau-Zener describe la evolución de las probabilidades adibáticas de una forma extremadamente precisa. En la Fig. 3.7 indicamos también, con líneas de segmentos, la probabilidad asintótica de obtener una transición adiabática, dada por la fórmula de Landau-Zener:

$$P = 1 - \exp\left[\frac{-\pi\Delta^2}{2\hbar v|\alpha_1 - \alpha_2|}\right].$$

Allí podemos ver que este valor límite es una excelente aproximación para las probabilidades finales obtenidas. Esta coincidencia se debe a que los valores inicial ($E = 0$) y final del campo eléctrico (10,5 kV/cm), están lo suficientemente alejados del cruce evitado como para que los estados diabáticos y adiabáticos sean esencialmente iguales.

El análisis anterior fue repetido en otros cruces evitados del espectro. Considerando como estados iniciales a los indicados como “b”, “c” y “d” en la Fig. 3.6, estudiamos las probabilidades de transición en los anticruces “B”, “C” y “D”, respectivamente. En la Fig. 3.8 mostramos los resultados obtenidos, que confirman la conclusión anterior de que, en la base adiabática, el modelo de dos niveles de Landau-Zener permite aproximar con mucha precisión a los resultados exactos. Es importante resaltar que el método de control consiste en viajar por el espectro del sistema, es decir, en tratar de ir de un autoestado a otro pasando por los estados adiabáticos $\phi_n(E)$. Por esta razón la base adiabática estudiada en los ejemplos anteriores, es la más indicada para juzgar la aplicabilidad de nuestro método de control.

3.3. Base diabática vs. base adiabática

Debido a que el Hamiltoniano de Landau-Zener está definido en la base diabática, puede parecer natural realizar el análisis previo de las transiciones en dicha base. Sin embargo, surge el problema de definir los estados diabáticos en nuestro sistema original. En realidad, en un sistema de muchos niveles como el nuestro, los dos estados involucrados en un cruce evitado se mezclan con otros niveles y adquieren una dependencia del parámetro de control que no está contemplada en el modelo usual de Landau-Zener. Es entonces interesante preguntarse si es posible encontrar una base “fija” que pueda ser considerada como la base diabática del modelo de dos niveles.

Por ejemplo, en los anticruces recién estudiados, podemos considerar que el estado inicial $\phi_n(E_0)$ es uno de los estado diabáticos. De esta forma, en el cruce evitado “A” de la Fig. 3.6 tomamos $n = 1$ y $E_0 = 0$, y calculamos la probabilidad de medir el primer estado diabático: $|\langle\phi_1(E = 0)|\psi(t)\rangle|^2$. En la Fig. 3.9 comparamos la evolución de la probabilidad diabática calculada de este modo, con la obtenida mediante el modelo de Landau-Zener. Si bien las curvas de probabilidad presentan ciertas semejanzas, podemos ver claramente que la concordancia entre los dos métodos de cálculo no es muy buena. El motivo de esta discrepancia puede ser entendido con ayuda del inset de la Fig. 3.9, donde mostramos los overlaps cuadrados $|\langle\phi_1(E = 0)|\phi_1(E)\rangle|^2$ y $|\langle\phi_1(E = 0)|\phi_2(E)\rangle|^2$ en función del campo eléctrico E. Las Figs. del inset, en especial el gráfico de $|\langle\phi_1(E = 0)|\phi_1(E)\rangle|^2$,

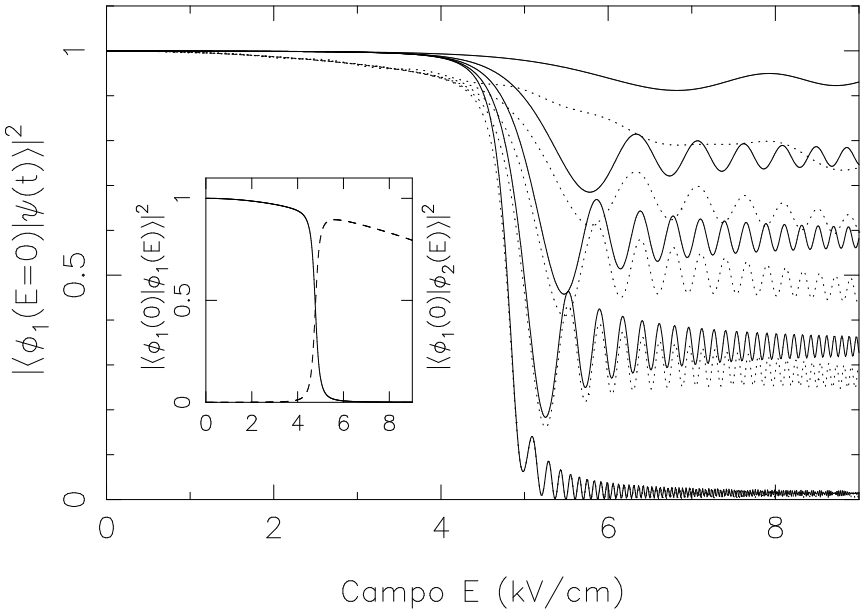

Figura 3.9: Evolución de las probabilidades diabáticas, $|\langle\phi_1(E=0)|\psi(t)\rangle|^2$, en el cruce "A" de la Fig. 3.6 (líneas de puntos). Las velocidades de variación del campo eléctrico son las mismas que en la Fig. 3.7. Las lineas sólidas indican las probabilidades correspondientes al modelo de Landau-Zener. Inset: overlaps cuadrados $|\langle\phi_1(E=0)|\phi_1(E)\rangle|^2$ (línea sólida) y $|\langle\phi_1(E=0)|\phi_2(E)\rangle|^2$ (línea de segmentos).

dejan en claro que la hipótesis de existencia de estados diabáticos a los cuales convergen los autoestados lejos del cruce evitado no se satisface. La curva de probabilidad $|\langle\phi_1(E=0)|\phi_1(E)\rangle|^2$ debería aproximarse asintóticamente a 1 al final del gráfico si el sistema se comportara de acuerdo al modelo de Landau-Zener pero, por el contrario, podemos ver que la probabilidad decae rápidamente a 0,8 luego de alcanzar un máximo de 0,9 muy cercano al anticruce. Esto se debe a que los dos niveles del cruce evitado interactúan en forma significativa con los demás autoestados, socavando la aplicabilidad del modelo de Landau-Zener.

Sin embargo, hemos observado que en otros cruces evitados es posible hallar una base diabática satisfactoria. En general, esto sucede en los anticruces más estrechos, ya que requieren un menor rango de variación del campo eléctrico para completar una transición de Landau-Zener. Por ejemplo, repetimos el análisis anterior para el cruce evitado "B" de la Fig. 3.6, eligiendo al estado inicial $\phi_{16}(E = 1{,}4$ kV/cm) como

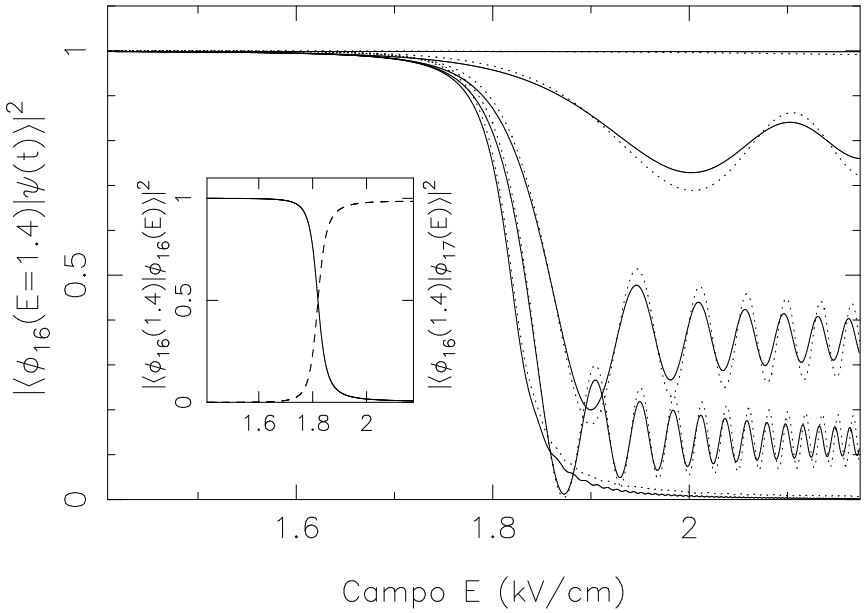

Figura 3.10: Evolución de las probabilidades diabáticas, $|\langle\phi_{16}(E = 1,4\text{kV/cm})|\psi(t)\rangle|^2$, en el cruce "B" de la Fig. 3.6 (líneas de puntos). Las velocidades de variación del campo eléctrico son las mismas que en la Fig. 3.8. Las lineas sólidas indican las probabilidades correspondientes al modelo de Landau-Zener. Inset: overlaps cuadrados $|\langle\phi_{16}(1,4\text{kV/cm})|\phi_{16}(E)\rangle|^2$ (línea sólida) y $|\langle\phi_{16}(E = 1,4\text{kV/cm})|\phi_{17}(E)\rangle|^2$ (línea de segmentos).

uno de los estados diabáticos. En la Fig. 3.10 podemos ver la probabilidad diabática $|\langle\phi_{16}(E = 1{,}4\,\text{kV/cm})|\psi(E)\rangle|^2$, que muestra un acuerdo con el modelo de Landau-Zener mejor que el de la Fig. 3.9. Es importante notar que, como se puede ver en el inset de la Fig. 3.10, el estado $\phi_{16}(E = 1{,}4$ kV/cm) es una buena elección del estado diabático, ya que el overlap $|\langle\phi_{16}(E = 1{,}4$ kV/cm)$|\phi_{17}(E)\rangle|^2$ tiene precisamente el comportamiento esperado para el overlap entre un estado diabático y los autoestados del Hamiltoniano: se mantiene cercano a cero a la izquierda del anticruce, se incrementa rápidamente en el cruce evitado y luego crece lentamente después de la transición, alcanzando un valor muy cercano a 1 (ver líneas de segmentos).

En resumen, pese a que el modelo de Landau-Zener permite describir la evolución de nuestro sistema cerca de los cruces evitados de una forma muy precisa, la descripción diabática en general no es tan robusta como la que provee la base adiabática. Esto se debe a que en un sistema de muchos niveles, el par de niveles que interactúan en un

cruce evitado, también lo hacen con otros autoestados, y de esta forma impiden que los autoestados más lejanos al anticruce puedan ser considerados como estados diabáticos. Esta limitación en la aplicabilidad del modelo de Landau-Zener, impone una dificultad en la transiciones diabáticas de nuestro método de control, que discutiremos en la siguiente sección.

3.4. Optimización de las transiciones diabáticas

El método de control propuesto consiste en aplicar una secuencia de variaciones lentas y rápidas del parámetro de control, que en este caso es un campo eléctrico, para obtener una serie de transiciones diabáticas y adiabáticas respectivamente. Para maximizar la eficiencia de las transiciones adiabáticas, de acuerdo al teorema adiabático, las variaciones lentas del campo eléctrico deben hacerse tan despacio como sea posible. El nivel de éxito en las evoluciones adiabáticas se puede cuantificar mediante la fidelidad, que definiremos como el módulo del overlap entre el autoestado $\phi_n(E)$ que deseamos seguir, y el estado evolucionado a tiempo t:

$$\mathcal{F}(t) = |\langle \phi_n(E)|\psi(t)\rangle|, \tag{3.8}$$

donde E es el campo eléctrico en el instante t ($E = E(t)$). Naturalmente, a lo largo de cada transición adiabática es esperable una cierta reducción en la fidelidad, que se verá menos degradada cuanto mayor sea el tiempo empleado en la transición. De esta forma el único límite en el grado de eficiencia de la evoluciones adiabáticas estaría dado por el tiempo disponible. Por otro lado, para maximizar la eficiencia de una transición diabática, de acuerdo a la fórmula de Landau-Zener es necesario variar el parámetro de control lo más rápido posible. Idealmente, podemos suponer entonces que las transiciones diabáticas son instantáneas. Sin embargo, aún considerando saltos diabáticos instantáneos, como las transiciones se realizan en intervalos de campo eléctrico finitos, en cada transición diabática tendremos una pérdida de fidelidad en la evolución del sistema. Por eso, para maximizar la fidelidad final, es necesario optimizar los valores iniciales E_i y finales E_f del campo eléctrico en cada uno de los saltos diabáticos.

En una transición diabática instantánea, el sistema no tiene tiempo para evolucionar,

es decir que los estados previo y posterior al salto en el instante t_0 son iguales:

$$\psi(t_0^-) = \psi(t_0^+). \tag{3.9}$$

En nuestro caso, el estado inicial $\psi(t = t_0^-)$ es un estado adiabático, o bien uno muy parecido:

$$\psi(t_0^-) \simeq \phi_n(E_i). \tag{3.10}$$

Luego, para minimizar la degradación de la fidelidad en un cruce diabático desde el nivel n hacia el nivel m, debemos elegir los campos inicial y final que minimizan la función

$$G(E_i, E_f) = |\langle \phi_n(E_i) | \phi_m(E_f) \rangle|. \tag{3.11}$$

En un sistema de Landau-Zener de dos niveles, como vimos en la sección 2.2, los autoestados del Hamiltoniano convergen a las estados diabáticos cuando el parámetro de control tiende a $\pm\infty$:

$$\lim_{\lambda \to -\infty} |\phi_1(\lambda)\rangle = |1\rangle = \lim_{\lambda \to +\infty} |\phi_2(\lambda)\rangle, \tag{3.12}$$

y por lo tanto cuanto más lejanos al cruce evitado sean los campos E_i y E_f, mayor será el valor de G. Pero por otro lado, en un sistema de muchos niveles como el nuestro, lejos de los cruces evitados los autoestados adquieren mezclas de otros niveles de energía, causando un decrecimiento en la función G y la pérdida de validez de la aproximación de Landau-Zener. Como consecuencia de estos dos factores antagónicos, surge un par (E_i, E_f) que maximiza a G, y que tiene lugar en una región lo suficientemente cercana al cruce evitado para que valga la aproximación de Landau-Zener, y lo suficientemente alejada para que los autoestados se aproximen a los estados diabáticos. Como ejemplo, en la Fig. 3.11 mostramos los gráficos de la funciones G para cada uno de los cuatro cruces diabáticos indicados en la Fig. 3.12(a), y señalamos los correspondientes máximos. Notemos que en el tercer cruce diabático [figura 3.12(a)], no es aplicable el modelo de Landau-Zener debido a que esta transición involucra tres niveles de energía, sin embargo el criterio de la función G también puede ser aplicado en este caso.

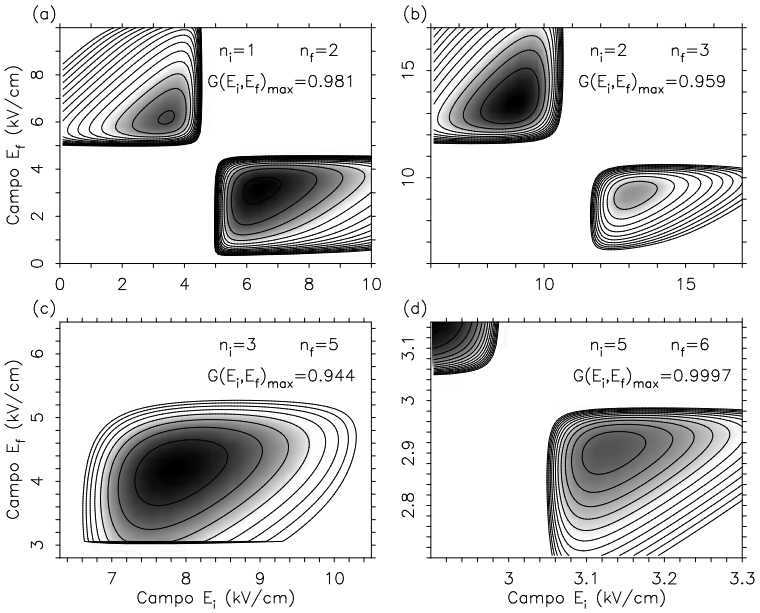

Figura 3.11: Función de overlap $G(E_i, E_f)$. Para optimizar los cuatro cruces diabáticos del camino indicado en la Fig. 3.12(a), se halló el máximo de la función G en cada una de estas transiciones entre los niveles de energía inicial, n_i, y final, n_f, (gráficos (a)-(d)). Los pares óptimos de campos eléctricos $(E_i; E_f)$ obtenidos en cada caso son, en unidades de kV/cm, (3,422; 6,163)(a), (13,091; 9,276)(b), (7,843; 4,202)(c) y (3,128; 2,907)(d). En los gráficos (a), (b) y (c), se muestran las curvas de nivel entre 0,9 y 1,0 equiespaciadas a distancias de 0,005. En el gráfico (d) las curvas de nivel van desde 0,999 en adelante con una distancia entre curvas de 0,00005.

3.5. Navegando por el espectro

En esta sección mostramos que es posible recorrer caminos complejos en el espectro para conectar estados lejanos con una eficiencia muy alta. De esta forma podemos controlar no sólo la localización de los electrones en los pozos cuánticos, sino que también podemos manipular detalles de la forma de la función de onda, como por ejemplo su estructura nodal. A continuación describimos dos ejemplos de caminos por el espectro y mostramos los resultados de sus simulaciones numéricas. En ambos casos, asumimos que el estado inicial es el estado fundamental $\phi_1(E = 0)$. Para viajar desde el estado inicial hasta el estado buscado, elegimos en cada caso un camino en el espectro que los una, y que pueda ser recorrido mediante una secuencia de transiciones diabáticas y adiabáticas. En

función del camino elegido, se determinó una dependencia temporal adecuada del campo eléctrico, y se calculó la evolución del estado $\psi(t)$ en presencia del campo utilizando el mismo método numérico que en la sección 3.2.

Primer camino complejo

En el primer ejemplo, nos propusimos llevar el sistema desde el estado fundamental sin campo (estado ϕ_1^0), hasta el estado (b) de la Fig. 3.4 (estado ϕ_6^1). De aquí en más emplearemos la notación abreviada ϕ_n^X para referirnos al enésimo autoestado a campo $E = X$ kV/cm. En este caso el estado inicial y el estado buscado tienen el mismo tipo de localización (RL), pero sus estructuras nodales son diferentes. Mientras el estado fundamental posee una única región conexa no nula en cada uno de los cuadrantes ocupados, el estado buscado ϕ_6^1 corresponde al cuarto estado diabático del tipo RL, y posee cuatro regiones conexas no nulas (ver Fig. 3.4). El proceso completo de control es descripto en la Fig. 3.12.

En la Fig. 3.12(a) indicamos con flechas el camino que queremos realizar para alcanzar el estado buscado. Las flechas cortas indican variaciones lentas del campo eléctrico cuyo objetivo es seguir la curva adiabática, mientras que las flechas largas denotan transiciones diabáticas en los cruces evitados. En los cruces diabáticos, empleamos saltos instantaneos del campo eléctrico, pero hemos verificado que tiempos de crecimiento del orden de 0,1 ps no cambian en forma significativa nuestros resultados. La dependencia temporal del campo eléctrico es mostrada en la Fig. 3.12(b). Para conocer en detalle la evolución del sistema, en las Figs. 3.12(c) y 3.12(d) mostramos diferentes aspectos de la función de onda dependiente del tiempo $\psi(t)$. En la Fig. 3.12(c) podemos ver en función del tiempo la probabilidad P_{LL}, de que los dos electrones estén en el pozo izquierdo, y la probabilidad P_{RL}, de que estén en pozos distintos. La Fig. 3.12(d) muestra el módulo del overlap entre el estado $\psi(t)$ y los estados adiabáticos $\phi_i^{E(t)}$, y en la Fig. 3.12(e) tenemos las funciones de onda $\psi(t)$ en los diferentes tiempos indicados en la Fig. 3.12(d).

En todo el camino de la Fig. 3.12(a) hay cinco tramos adiabáticos, intercalados con cuatro transiciones diabáticas. Para optimizar los saltos diabáticos, elegimos los valores de campos electricos inicial y final en cada salto maximizando la función de overlap $G(E_i, E_f)$ (ver Fig. 3.11) que discutimos en la sección 3.4. Por otro lado, en los tramos adibáticos

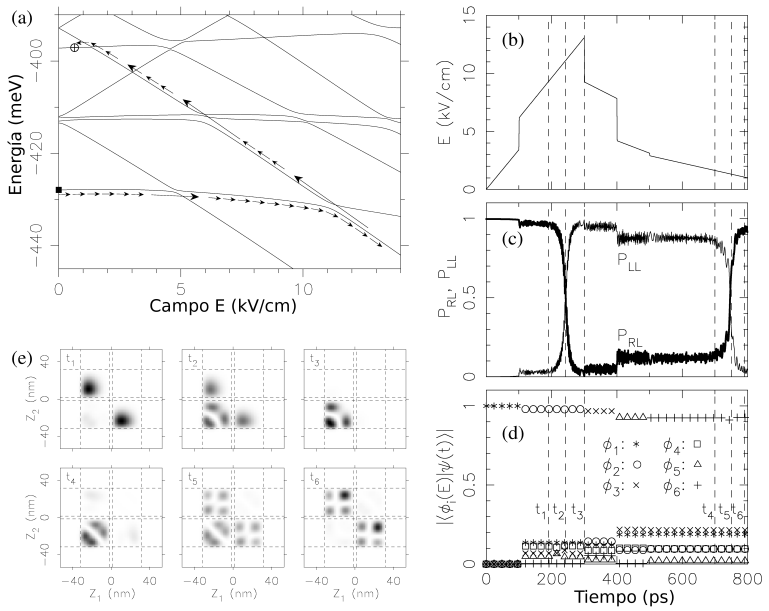

Figura 3.12: (a) Esquema del camino seguido por el estado en el espectro. Las flechas cortas (largas) indican variaciones lentas (rápidas) del campo eléctrico. El estado inicial es indicado con el símbolo ■ y el estado buscado con un $\oplus$. (b) Dependencia temporal del campo eléctrico empleado. (c) Probabilidades de que estén ambos electrones en el pozo izquierdo (P_{LL}) y en distintos pozos (P_{RL}). (d) Valor absoluto del overlap entre el estado $|\psi(t)\rangle$ y los estados adiabáticos $|\phi_i[E(t)]\rangle$. (e) Función de onda en los diferentes tiempos indicados en (d).

variamos el campo eléctrico con velocidades constantes lo suficientemente lentas para que la pérdida de fidelidad en estos tramos sea mucho menor que la introducida en los cruces diabáticos. En la tabla (3.1) mostramos los valores iniciales y finales del campo eléctrico en cada una de las evoluciones adiabáticas, y los tiempo empleados. Notemos que a lo largo de las transiciones adiabáticas, el módulo del overlap del estado $\psi(t)$ con el estado adiabático buscado $\phi_n^{E(t)}$ (la fidelidad $\mathcal{F}(t)$ del estado), es aproximadamente igual a 1 y permanece prácticamente constante, como es de esperar en un proceso adiabático. Por el contrario, en los cruces diabáticos, la fidelidad decae súbitamente como se puede ver en la Fig. 3.12(c), formando una función del tiempo de tipo escalera.

Discutamos ahora en detalle la evolución de la función de onda. En el primer tramo adiabático, partimos del estado ϕ_1^0 sin campo eléctrico y aumentamos el campo lentamente

N	E_i (kV/cm)	E_f (kV/cm)	ΔT (ps)	$\lvert\langle\phi_n^{E_i}\lvert\psi(t)\rangle\rvert$	$\lvert\langle\phi_n^{E_f}\lvert\psi(t)\rangle\rvert$
1	0	3,422	100	1	0,9996
2	6,163	13,091	200	0,9801	0,9799
3	9,276	7,843	100	0,9676	0,9675
5	4,202	3,128	100	0,9280	0,9278
6	2,907	1,000	300	0,9252	0,9267

Tabla 3.1: Tramos adiabáticos en la evolución de la Fig. 3.12. Para cada tramo indicamos los campos eléctricos inicial E_i y final E_f, el tiempo empleado ΔT y las fidelidades inicial $|\langle\phi_n^{E_i}|\psi(t)\rangle|$ y final $|\langle\phi_n^{E_f}|\psi(t)\rangle|$.

tratando de seguir la primer curva adiabática hasta el estado $\phi_1^{3,422}$, próximo al primer cruce evitado. Este proceso toma 100 ps [ver Fig. 3.12(b) y tabla 3.1]. Luego, el campo es aumentado rápidamente [el primer salto del campo eléctrico de la Fig. 3.12(b), en $t = 100$ps], para cruzar diabáticamente hacia el segundo nivel de energía. En este primer cruce diabático, el módulo del overlap entre el estado ψ y los autoestados adiabáticos ϕ_1 y ϕ_2 decae desde casi 1 hasta 0,98. Ya en el segundo tramo adiabático, en $t_1 = 190$ ps, la función de onda aún se asemeja al estado fundamental [ver Fig. 3.12(e)] pero presenta una cierta mezcla con estados localizados del tipo LL, como queda evidenciado por la nube de probabilidad que podemos ver en el cuadrante inferior izquierdo. Luego, nos movemos lentamente pasando adiabáticamente el segundo cruce evitado en $E = 11{,}2$ kV/cm. La mezcla de estados diabáticos en el cruce evitado (en $t_2 = 243$ ps) se puede apreciar en la Fig. 3.12(e). Al final del cruce, en $t_3 = 300$ ps, la función de onda está localizada en el pozo izquierdo [ver Fig. 3.12(e)].

En este punto, aún tenemos por delante un largo camino hasta el estado buscado, cuya mayor parte está a lo largo de la segunda "recta espectral" de pendiente negativa. Aunque podríamos estar tentados a incrementar súbitamente el campo eléctrico hasta su valor final, esa estrategia no es satisfactoria. Como veremos luego, es más eficiente proceder lentamente lejos de los cruces evitados y rápidamente alrededor de ellos. Este procedimiento tiene la ventaja de permitir que nuestro estado se ajuste a los cambios graduales de los estados adiabáticos en las regiones entre cruces evitados. Estos cambios

graduales no involucran el tipo de localización, sino desplazamientos de la nube de probabilidad dentro de los cuadrantes ya poblados. En lo que queda del recorrido, atravezamos tres cruces evitados diabáticamente y el último lentamente. Como el gap del último cruce evitado es muy estrecho, requiere una velocidad menor que los otros cruces para ser transitado en forma adiabática. Este pasaje tomó 300 ps, como podemos ver en la Fig. 3.12(b). En este cruce evitado, la función de onda comienza con una fuerte localización en el pozo izquierdo [función de onda correspondiente a t_4 en la Fig. 3.12(e)] y termina con una clara deslocalización en el estado final. De esta forma alcanzamos, en un lapso de 800 ps, un estado final cuyo overlap con el estado buscado tiene un módulo igual a 0,93 [ver Fig. 3.12(d) y tabla 3.1].

Un camino más complejo

La presencia en el espectro de cruces evitados bien definidos es una condición necesaria para nuestro método de control. Sin embargo, para los niveles de energía más altos del espectro de la Fig. 3.2, la densidad de estados es mucho mayor y no es muy fácil ver en qué zonas el sistema puede ser modelado como un sistema de dos niveles. Este hecho requiere una elección más cuidadosa de la dependencia temporal del campo eléctrico, pero aún así, como veremos en el siguiente ejemplo, es posible alcanzar estados de energías elevadas recorriendo largos caminos en el espectro en forma exitosa.

Ahora describiremos un ejemplo de control más ambicioso que complementa al anterior. Asumiremos nuevamente que el estado inicial es el ϕ_1^0, pero en este caso nuestro objetivo será el 17º autoestado para un campo eléctrico $E = 13$ kV/cm (ver Figs. 3.13 y 3.14). El estado buscado está ubicado sobre la octava recta de pendiente negativa, y por lo tanto tiene una localización del tipo RR [ver Fig. 3.14(b)]. En la Fig. 3.13 mostramos el camino que intentamos seguir en el espectro, indicando con flechas cortas los tramos adiabáticos y con flechas largas las transiciones diabáticas. De igual manera que en el ejemplo anterior, en los tramos lentos variamos el campo eléctrico con velocidad constante y en los rápidos consideramos saltos instantáneos.

En la Fig. 3.14(a), donde mostramos el campo eléctrico en función del tiempo, podemos distinguir las transiciones diabáticas como saltos verticales en los tiempo $t = 150$, 350, 450, 550 y 650 ps, mientras que las líneas rectas con pendientes menores corresponden

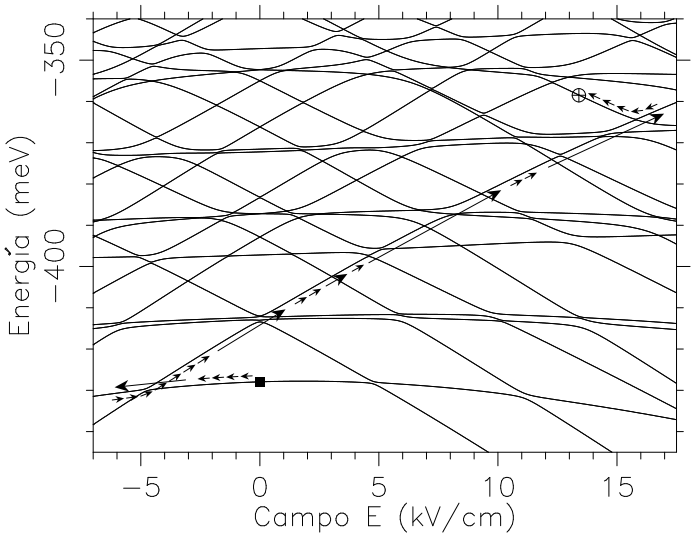

Figura 3.13: Esquema del camino seguido por el estado en el espectro, desde el estado inicial (■) hasta el estado deseado (⊕). Las flechas cortas (largas) indican variaciones lentas (rápidas) del campo eléctrico, empleado como parámetro de control.

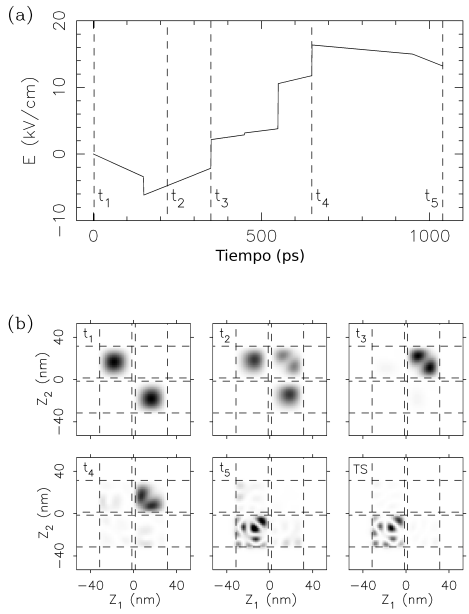

Figura 3.14: (a) Dependencia temporal del campo eléctrico empleado para llevar a cabo la estrategia de control esquematizada en la Fig. 3.13. (b) Función de onda $\psi(t)$ en algunos instantes relevantes de la evolución: $t_1 = 0$, $t_2 = 276$ ps, $t_3 = 350$ ps, $t_4 = 650$ ps y $t_5 = 1040$ ps. También mostramos la función de onda del autoestado buscado (TS).

n	E_i (kV/cm)	E_f (kV/cm)	ΔT (ps)	$\lvert\langle\phi_n^{E_i}\lvert\psi(t)\rangle\rvert$	$\lvert\langle\phi_n^{E_f}\lvert\psi(t)\rangle\rvert$
1	0	-3,44	150	1	0,9990
2	-6,165	-2,136	200	0,9795	0,9778
5	2,164	2,877	100	0,9420	0,9418
6	3,157	3,795	100	0,9396	0,9394
12	10,56	11,75	100	0,8740	0,8740
17	16,37	15,00	300	0,8932	0,8888
17	15,00	13,00	100	0,8887	0,8888

Tabla 3.2: Tramos lineales de la función $E(t)$ empleados para obtener la evolucón de las Figs. 3.13 y 3.14. En cada tramo el estado inicial es el $\phi_n^{E_i}$, el valor final del campo eléctrico es E_f, el tiempo empleado es ΔT y las fidelidades inicial y final son $|\langle\phi_n^{E_i}|\psi(t)\rangle|$ y $|\langle\phi_n^{E_f}|\psi(t)\rangle|$.

a los cambios adiabáticos del campo eléctrico. Debido a la mayor densidad de niveles, en este caso, en tres de los cuatro cruces diabáticos fue necesario saltar simultaneamente varios niveles de energía. Ver por ejemplo en la Fig. 3.13 el salto desde $E = 3{,}795$ kV/cm hasta $E = 10{,}56$ kV/cm, que sucede en $t = 550$ ps. Los valores iniciales y finales de cada uno de los tramos adiabáticos fueron elegidos maximizando la fidelidad en la evolución, y son indicados en la tabla 3.2 junto a la duración de cada transición.

En la Fig. 3.14(b) mostramos la función de onda $\psi(t)$ en diferentes tiempos. En las funciones de onda correspondientes a $t_1 = 0$, $t_2 = 276$ ps y $t_3 = 350$ ps podemos ver la evolución a través del primer cruce adiabático, en el segundo nivel de energía. Luego, entre los tiempos t_3 y $t_4 = 650$ ps fue reccorrido un largo camino en el espectro, desde el quinto autoestado a campo $E = 2{,}16$ kV/cm hasta al 12º nivel con un campo $E = 11{,}75$ kV/cm; sin embargo, todo este camino se hizo sobre la misma recta diabática (la primera del tipo RR), y es por eso que, como podemos ver en la Fig. 3.14(b), los cambios graduales que sufrió la función de onda durante su evolución mantuvieron inalterada la localización y la estructura nodal. Notemos que la mayor pérdida de fidelidad en todo el recorrido se dio (ver tabla 3.2) en el largo salto diabático que realizamos entre los campos $E = 3{,}795$ kV/cm y $E = 10{,}56$ kV/cm para avanzar a lo largo de la primer recta del tipo *RR*.

Finalmente arribamos al estado final $\psi(t_5 = 1050$ ps), cuyo overlap con el estado buscado $|\phi_{17}^{13}\rangle$ tiene un módulo igual 0,89. Como podemos ver en la los gráficos de las funciones de onda, la estructura de ambos estados es similar, y la principal diferencia cualitativa consiste en que el estado final incluye una cierta probabilidad de localización RL, mientras que el autoestado $|\phi_{17}^{13}\rangle$ tiene una clara localización RR.

Las simulaciones numéricas recién descriptas y el estudio de la aplicabilidad del modelo de Landau-Zener en nuestro sistema, nos permiten concluir que el método de control cuántico propuesto, puede ser aplicado en forma exitosa en un sistema realista de dos electrones interactuantes en dos puntos cuánticos acoplados. El éxito del método radica en que las interacciones entre niveles de energía vecinos puede ser bien descriptas por el modelo de Landau-Zener, permitiendo un control efectivo de la función de onda, aún cuando los objetivos son estados lejanos que requieren caminos largos e intrincados en el espectro.

Capítulo 4

Localización, entrelazamiento y superposiciones coherentes

En el capítulo anterior mostramos que, mediante una secuencia de variaciones lentas y rápidas de un campo eléctrico externo, es posible recorrer el espectro de un sistema cuasilineal de dos puntos cuánticos conectando estados distantes con una alta probabilidad. En este capítulo continuamos estudiando el mismo sistema y generalizamos el método de control permitiendo no sólo transiciones diabáticas y adiabáticos sino también velocidades intermedias, logrando de este modo alcanzar combinaciones lineales de autoestados de la energía [87]. Esta generalización del método amplía en forma significativa el conjunto de estados accesibles y supone un primer paso hacia una estrategia de control que permita alcanzar cualquier estado dado partiendo desde el estado fundamental.

Por otro lado, el problema de localización y entrelazamiento de electrones en dos puntos cuánticos acoplados, ha sido intensamente estudiado en los últimos 20 años [33, 76–78, 82, 83, 96], y buena parte de su interés proviene de sus potenciales aplicaciones en el área de la información cuántica. Del mismo modo que el espín total de uno o varios electrones es un candidato natural para ser manipulado como uno o varios qbits [24, 31, 96], la localización de dos electrones confinados en dos puntos cuánticos acoplados también puede, en principio, ser considerada como un par de qbits [87]. Con esta motivación, en esta sección proponemos y discutimos en detalle una solución simple y robusta al problema de localización en nuestro sistema cuasilineal de puntos cuánticos [84, 87], simulamos

numéricamente la construcción de estados máximamente entrelazados y analizamos el significado preciso del entrelazamiento en términos de la localización de la parte espacial de la función de onda.

4.1. Localización

Un ingrediente básico del control cuántico que ha sido extensamente explorada en la literatura reciente, es la localización de uno o dos electrones en un pozo cuántico doble. La idea general del problema es introducir una perturbación en el sistema para que evolucione en forma coherente desde el estado fundamental, que en el caso de dos electrones es deslocalizado debido a las repulsiones de Pauli y de Colulomb, y termine en un estado en el cual ambas partículas estén en el mismo pozo. En esta sección simulamos numéricamente la localización de ambos electrones mediante una transición adiabática, y comparamos este procedimiento con el método *sudden switch* [35].

Una manera simple de localizar ambos electrones en el pozo izquierdo, partiendo del estado fundamental sin campo eléctrico [estado (a) de la Fig. 3.4], consiste en incrementar lentamente el campo desde $E = 0$ para transitar en forma adiabática el primer cruce evitado, ubicado en $E = 4{,}77$ KV/cm, y finalizar en un estado localizado similar al estado (c) de la Fig. 3.4. En el inset de la Fig. 4.1 mostramos un esquema de este proceso. En una evolución coherente, si la velocidad de cambio del campo eléctrico es lo suficientemente pequeña, el estado final se aproximará al estado adiabático buscado tanto como queramos. Sin embargo la localización LL de estos estados no es perfecta, y el valor exacto de la probabilidad P_{LL} se puede calcular integrando el módulo al cuadrado de la función de onda en la región LL:

$$P_{LL} = \int_{\infty}^{0}\int_{\infty}^{0} dz_1 dz_2 |\phi_1^E(z_1, z_2)|^2, \tag{4.1}$$

donde ϕ_i^E es el i-ésimo autoestado correspondiente al campo eléctrico E. En la Fig. 4.1 indicamos con círculos vacíos la probabilidad P_{LL} para la primer curva adiabática en función del campo eléctrico. Esta función es casi igual a cero antes del cruce evitado, crece rápidamente en la región del anticruce alcanzando un valor próximo a 1, y luego continua creciendo muy lentamente acercándose asintóticamente a 1. En particular, para

$E = 9$ kV/cm resulta $P_{LL} = 0{,}998$. De esta forma encontramos una cota superior para la localización que es posible obtener mediante el método adiabático.

La solución numérica de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo fue obtenida mediante el método usual de Runge-Kutta de cuarto orden con un paso de 0.05 fs. El campo eléctrico se varió linealmente con el tiempo desde $E = 0$ hasta $E = 9$ kV/cm y en la Fig. 4.1 mostramos la evolución de la probabilidad P_{LL} obtenida para distintas velocidades, y la comparamos con la cota impuesta por los estados adiabáticos

Con velocidades altas, deberíamos pasar diabáticamente el cruce evitado y las propiedades de localización no cambiarían en forma considerable, permaneciendo la cantidad P_{LL} próxima a cero. Este es el caso de la curva (i) en la Fig. 4.1. Por otro lado, cuando empleamos velocidades menores, [curvas (ii)-(iv)], obtenemos estados finales que son cada vez más localizados en el pozo izquierdo. Para la velocidad de la curva (v), [$v = 0,04$ (kV/cm)/ps], podemos ver que el gráfico de la función $P_{LL}(E)$ aproxima en forma muy precisa a la cota superior indicada con círculos, y cerca de $E = 9$ kV/cm oscila entre los valores de 0,995 y 0,9975. Es decir que la cota máxima de 0,998 es aproximada con un error inferior al 0,03 %.

Otra forma sencilla de obtener localización en este sistema es el método *sudden-switch*. Partiendo del estado fundamental para $E = 0$, este método consiste en aplicar dos pulsos sucesivos de campo eléctrico constante. En el primer pulso el campo eléctrico tiene el valor correspondiente al cruce evitado, que en nuestro caso es $E = 4{,}77$ kV/cm. Mientras el campo eléctrico permanece fijo en este valor, la probabilidad P_{LL} oscila con la frecuencia correspondiente a la diferencia de energías en el cruce evitado, entre el valor inicial de P_{LL} y la probabilidad máxima, que es igual a 0,93 (ver Fig. 4.2). Cuando la probabilidad P_{LL} alcanza el máximo, rápidamente es encendido un segundo pulso que lleva el campo eléctrico lejos de la zona del anticruce, y mantiene congelada la probabilidad en su valor máximo (ver Fig. 4.2). En la Fig. 4.3 comparamos las evoluciones de las probabilidades P_{LL} obtenidas con ambos métodos, empleando una velocidad de 0,067 (kV/cm)/ps en el caso adiabático.

El método sudden-switch significó un aporte importante debido a que proponía un método de localización sumamente simple. Sin embargo, su formulación original [35] era de carácter numérico y no incluía una explicación teórica satisfactoria para la evolución

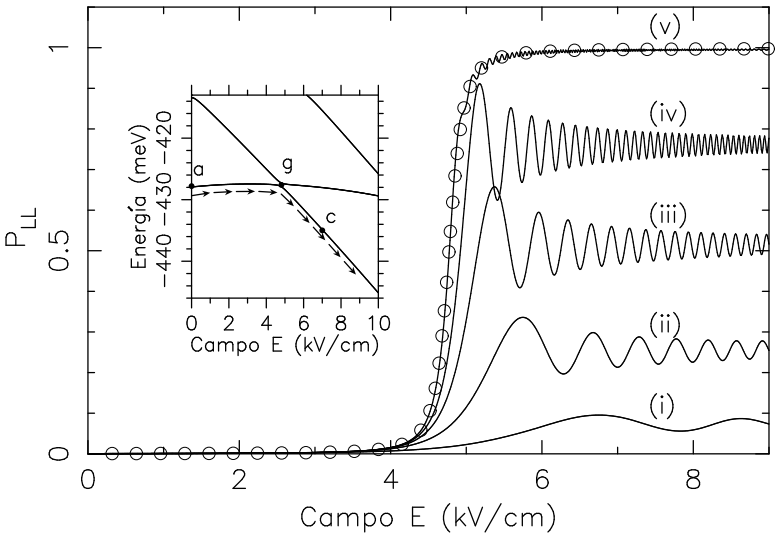

Figura 4.1: Probabilidad P_{LL} en función del campo eléctrico variable $E(t)$. Las velocidades $\dot{E}$ correspondientes a las distintas curvas son: (i) 4, (ii) 1, (iii) 0,4 (iv), 0,2 (v) y 0,04 (kV/cm)/ps. La curva formada por círculos indica la probabilidad P_{LL} del primer estado adiabático en función del campo eléctrico y constituye una cota superior para las demás curvas. Inset: Detalle del anticruce involucrado en este proceso, donde indicamos con flechas el camino adiabático.

observada en la probabilidad de localización. No obstante, este comportamiento se puede entender fácilmente suponiendo que el sistema evoluciona de la misma forma que el modelo de Landau-Zener de dos niveles.

Lejos del cruce evitado, los estados diabáticos son muy parecidos a los autoestados del Hamiltoniano, y por lo tanto el estado inicial, $|\psi(t=0)\rangle$, es aproximadamente igual a uno de estados diabáticos. Por el contrario, en el centro del cruce evitado, los estados diabáticos son mezclas equiprobables de los autoestados, y de acuerdo a la ecuación (2.4) resulta:

$$|\psi(t=0)\rangle \simeq |1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|\phi_1\rangle + |\phi_2\rangle\right), \tag{4.2}$$

donde $|1\rangle$ es el estado diabático asociado al estado inicial, y $|\phi_1\rangle$ y $|\phi_2\rangle$ son los autoestados correspondientes a $E = 4{,}77$ kV/cm. Luego, mientras dura el primer pulso de campo eléctrico, cada componente adiabática evoluciona con su propia frecuencia,

$$|\psi(t)\rangle \simeq \frac{1}{\sqrt{2}}\left(e^{-\frac{E_1}{\hbar}t}|\phi_1\rangle + e^{-\frac{E_2}{\hbar}t}|\phi_2\rangle\right), \tag{4.3}$$

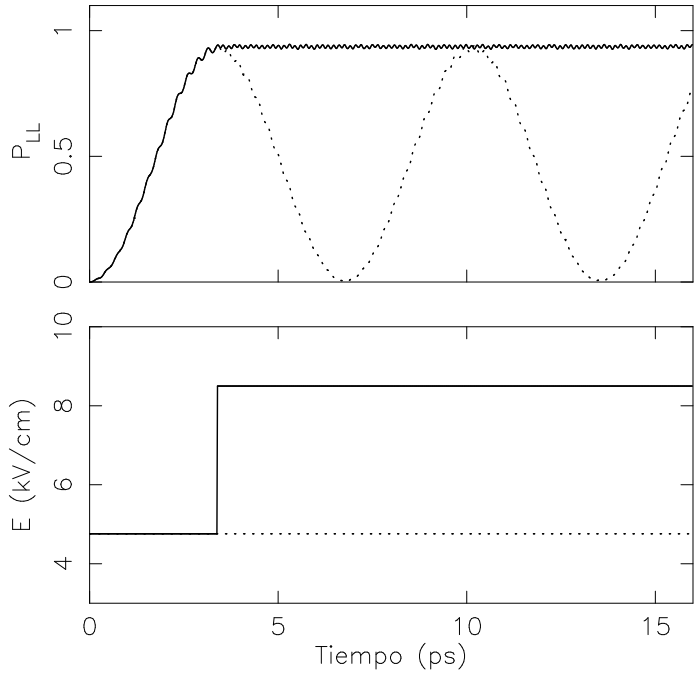

Figura 4.2: Método de localización *sudden switch*. Mientras el campo eléctrico permanece en el valor del cruce evitado ($E = 4{,}77$ kV/cm) la probabilidad P_{LL} oscila con la frecuencia correspondiente al gap de energía (líneas de puntos). Luego, incrementando súbitamente el campo cuando P_{LL} es máxima, se consigue congelar la probabilidad de localización en su valor máximo (líneas sólidas). Panel superior: Probabilidad de hallar ambos electrones en el pozo izquierdo. Panel inferior: Campo eléctrico en función del tiempo

donde E_1 y E_2 son los dos primeros autovalores del Hamiltoniano para el campo $E = 4{,}77$ kV/cm. Entonces, desarrollando los autoestados $|\phi_1\rangle$ y $|\phi_2\rangle$ de acuerdo a la ecuación (2.4) obtenemos que

$$|\psi(t)\rangle \simeq \frac{1}{2}\left[e^{-\frac{E_1}{\hbar}t}(|1\rangle + |2\rangle) + e^{-\frac{E_2}{\hbar}t}(|1\rangle - |2\rangle)\right], \tag{4.4}$$

donde $|2\rangle$ es el estado diabático con localización LL. Es decir que

$$|\psi(t)\rangle \simeq e^{-\frac{E_1+E_2}{2\hbar}t}\left[\cos\left(\frac{\Delta}{2}t\right)|1\rangle + \operatorname{sen}\left(\frac{\Delta}{2}t\right)|2\rangle\right], \tag{4.5}$$

siendo $\Delta = E_2 - E_1$. Finalmente, como los estados $|1\rangle$ y $|2\rangle$ tienen localizaciones RL y LL respectivamente, recuperamos el comportamiento oscilatorio de la localización:

$$P_{LL}(t) \simeq \operatorname{sen}^2\left(\frac{\Delta}{2}t\right) = \frac{1-\cos(\Delta t)}{2}, \tag{4.6}$$

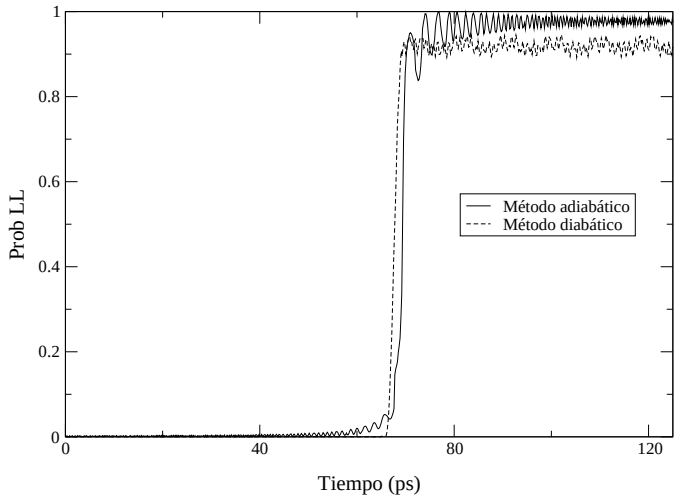

Figura 4.3: Comparación de las probabilidades de localización P_{LL} obtenidas con el método adiabático y con el *sudden switch* . Para el método adiabático se empleó una velocidad de variación del campo eléctrico $\dot{E} = 0{,}067$ (kV/cm)/ps.

y podemos ver que la probabilidad $P_{LL}(t)$ alcanza su máximo cuando el estado del sistema es $|\psi(t)\rangle = |2\rangle$. Como lejos del cruce evitado los estados diabáticos son muy parecidos a los autoestados del Hamiltoniano, son aproximadamente estacionarios. Por esta razón, cuando el segundo pulso de campo eléctrico es activado, la probabilidad P_{LL} permanece congelada en su valor máximo.

Notemos que la ecuación (4.2) es una aproximación que sólo se realiza en forma exacta en un sistema de dos niveles de Landau Zener, y cuando el autoestado inicial es igual a uno de los estados diabáticos, es decir que no corresponde a $E = 0$ sino a $E = -\infty$. Como estas hipotesis se satisfacen sólo en forma aproximada, la localización real máxima de P_{LL} es igual 0,93 y no a 1 como indica la ecuación (4.6), sin embargo, este análisis explica cualitativamnte en forma satisfactoria la evolución de la probablidad P_{LL}.

En ambos métodos, las escalas de tiempo involucradas en el proceso de localización son similares, pero el método adiabático posee algunas ventajas:

i) Permite obtener un mayor grado de localización. Con una velocidad de $0,04$ (kV/cm)/ps obtuvimos una $P_{LL} > 0{,}995$, mientras que con el *sudden switch* no es posible superar una probabilidad de 0,93.

ii) Es más robusto, ya que no requiere un control tan preciso en los tiempos del campo eléctrico.

iii) Es más general, debido a que además, como veremos en la siguiente sección, permite navegar por el espectro alcanzando estados distantes.

4.2. Una generalización del método: Superposiciones coherentes

En el capítulo 2 presentamos nuestro método de control, luego en el capítulo 3 mostramos que puede ser aplicado exitosamente en una estructura semiconductora de puntos cuánticos y en la sección anterior nos concentramos en el problema de la localización de electrones en los puntos cuánticos. Hasta aquí, la estrategia de control consistía en recorrer lentamente las curvas adiabáticas y en cruzar en forma rápida o lenta los anticruces para emplearlos como bifurcaciones que nos permitan navegar por el espectro hasta alcanzar el estado buscado, el cual necesariamente debía ser un autoestado del Hamiltoniano. Ahora intentaremos llevar más lejos el método de control, permitiendo no sólo transiciones diabáticas o adiabáticas en los cruces evitados, sino también transiciones con velocidades intermedias. Este tipo de transiciones dan como resultado combinaciones lineales de ambos estados adiabáticos (ver Fig. 4.4) y entonces, mediante una secuencia de varios cruces con velocidades intermedias, podemos construir superposiciones de varios niveles de energía. De esta forma, obtenemos una generalización del método de control que nos permite ampliar en forma considerable el conjunto de estados accesibles.

Para ilustrar la flexibilidad de nuestra técnica de control, mostraremos un ejemplo en el que obtenemos una superposición coherente de varios estados adiabáticos. Como vimos en el capítulo anterior, en nuestro sistema tenemos tres conjuntos de rectas diabáticas con diferentes pendientes y cada una de ellas está asociada un tipo de localización de los electrones (RR, LL o RL), de modo que, lejos de los cruces evitados, los autoestados del Hamiltoniano tienen una clase de localización bien definida. En este ejemplo nos proponemos construir una superposición de tres autoestados con los tres tipos diferentes de localización, teniendo cada uno de ellos la misma probabilidad de ser medido. Es decir

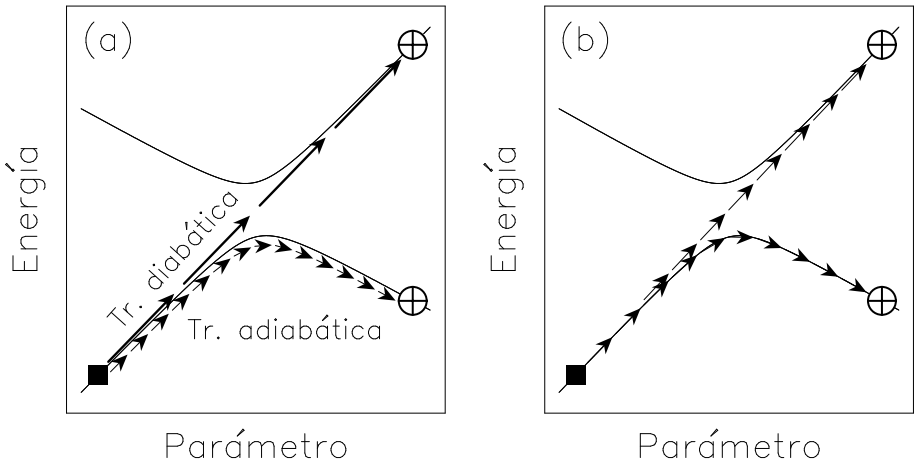

Figura 4.4: Esquema de transiciones a través de un cruce evitado con diferentes velocidades. (a) Transiciones diabáticas (rápidas) y adiabáticas (lentas). (b) Transición con una velocidad intermedia. Las flechas largas, cortas e intermedias representan, respectivamente, variaciones del parámetro de control rápidas, lentas e intermedias.

que buscamos un estado de la forma

$$|\psi_T\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(a|RR\rangle + b|LL\rangle + c|RL\rangle), \tag{4.7}$$

donde $|a| = |b| = |c| = 1$ y $|RR\rangle$, $|LL\rangle$ y $|RL\rangle$ denotan respectivamente a estados con ambos electrones en el pozo derecho, con los dos electrones localizados en el pozo izquierdo, y con un electrón en cada pozo.

En la Fig. 4.5 mostramos el camino propuesto para alcanzar dicho estado, partiendo del estado fundamental sin campo eléctrico (estado ϕ_1^0) y finalizando en una superposición de los estados adiabáticos $\phi_1^{3,04}$, $\phi_5^{3,04}$ y $\phi_6^{3,04}$. Para simular numéricamente este camino, empleamos la dependencia temporal del campo eléctrico indicada en el panel superior de la Fig. 4.6. En el panel inferior de la misma figura podemos ver la evolución del módulo del overlap al cuadrado de la función de onda con los seis primeros estados adiabáticos. Para apreciar la evolución del estado en mayor detalle, mostramos una secuencia de gráficos de la función de onda para diferentes tiempos en la Fig. 4.7.

Nuevamente, para las transiciones diabáticas consideramos saltos instantáneos del campo eléctrico, y los valores inicial y final del campo en cada caso fueron optimizados del mismo modo que en los ejemplos del capítulo 3. Describamos ahora en detalle

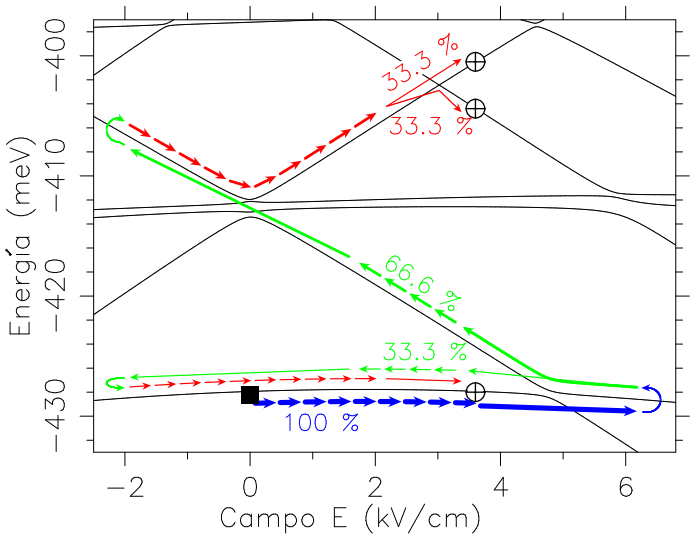

Figura 4.5: Esquema del camino propuesto para alcanzar el estado buscado, que es una una superposición de tres autoestados con diferentes tipos de localización [ecuación (4.7)]. Para facilitar su interpretación, empleamos diferentes colores cuando el campo aumenta (azul y rojo) o disminuye (verde). Nuestro estado inicial, el estado ϕ_1^0, es indicado con un cuadrado lleno, mientras que el estado buscado es una superposición de los tres estados adiabáticos señalados con el símbolo $\oplus$.

la evolución del sistema. En el primer tramo adiabático, intentamos conectar el estado inicial ϕ_1^0 con el $\phi_1^{3,422}$, para luego cruzar diabáticamente el anticruce de $E = 4{,}77$ kV/cm en el instante $t_2 = 50$ ps (ver Figs. 4.5 y 4.7). Luego, entre t_2 y $t_3 = 70{,}4$ ps, reducimos el campo eléctrico volviendo a atravesar el mismo cruce evitado, pero esta vez con una velocidad intermedia que nos permite obtener una superposición de los dos primeros estados adiabáticos, y luego avanzar simultáneamente por ambas curvas adiabáticas. Como mostramos en la Fig. 4.6, al final de este tramo las probabilidades de ocupación de los estados ϕ_1 y ϕ_2 son aproximadamente 33.3% y 66.6% respectivamente. A continuación, en el instante t_3, realizamos el segundo cruce diabático, en torno al complejo anticruce correspondiente al campo $E = 0$, que nos permite alcanzar la 5º curva del espectro, para luego retornar incrementando muy lentamente el campo eléctrico y cruzar en forma adiabática el mismo anticruce en $t_4 = 246{,}1$ ps. Al final de esta transición, en el instante $t_5 = 416$ ps, podemos ver en la Fig. 4.7 que el estado es una combinación de un estado del tipo RR y de otro con localización RL. Luego nos aproximamos en forma adiabática al anticruce

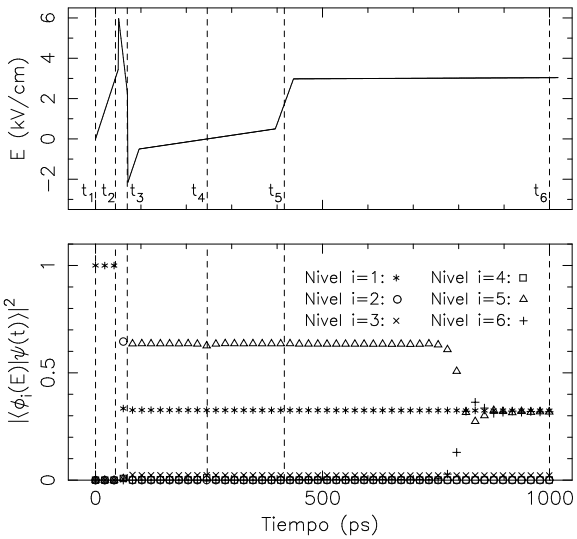

Figura 4.6: Panel superior: Campo eléctrico empleado para obtener la superposición de estados adiabáticos esquematizada en la Fig. 4.5. Panel inferior: Módulo del overlap al cuadrado del estado en evolución, con los primeros 6 estados adiabáticos. Aquí podemos ver que el estado final es una buena aproximación al estado buscado, que es una superposición equiprobable de los estados $\phi_1^{3,04}$, $\phi_5^{3,04}$ y $\phi_6^{3,04}$.

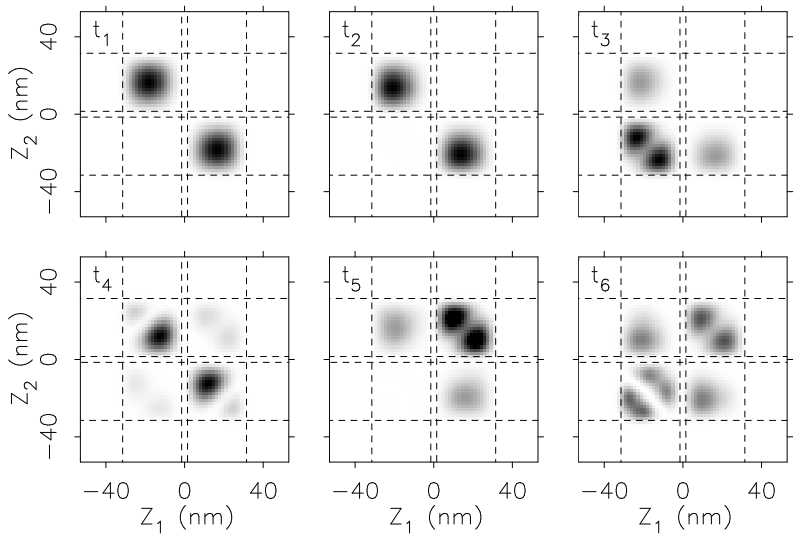

Figura 4.7: Módulo de la función de onda del estado $|\psi(t)\rangle$ en algunos de los instantes más relevantes de la evolución. Los tiempos $t_1, ..., t_6$ son los mismos que se indican en las Fig. 4.6.

entre los niveles 5º y 6º para el campo $E = 3{,}02$ kv/cm. Este cruce evitado es transitado con una velocidad intermedia que nos permite distribuir en partes iguales la probabilidad de ocupación entre las dos ramas del espectro. Notemos que debido a que este anticruce es muy estrecho, debió ser atravesado con una velocidad sumamente lenta, como se puede ver en la Fig. 4.6. En esta última transición avanzamos incrementando el campo desde $E = 2{,}98$ kV/cm hasta $E = 3{,}04$ kv/cm en un lapso de 564 ps. El resultado final, al cabo de una evolución de 1000 ps, es una superposición de los tres estados mencionados al principio, como se puede verificar en las Figs. 4.6 y 4.7. En esta simulación, los módulos de los overlaps cuadrados finales con los estados adiabáticos ϕ_1, ϕ_5 y ϕ_6 son respectivamente $P_1 = 0{,}324$, $P_5 = 0{,}325$ y $P_6 = 0{,}320$. Luego, podemos calcular la probabilidad final de medir el estado buscado,

$$|\psi_T\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(a|\phi_6^{3,04}\rangle + b|\phi_5^{3,04}\rangle + c|\phi_1^{3,04}\rangle), \tag{4.8}$$

en función de la probabilidades P_1, P_5 y P_6:

$$P(P_1, P_5, P_6) = \operatorname*{máx}_{|a|=|b|=|c|=1} |\langle\psi_T|\psi_f\rangle|^2, \tag{4.9}$$

donde nuestro estado estado final $|\psi_f\rangle$ se pueden desarrollar en la base adiabática de la siguiente forma:

$$|\psi_f\rangle = e^{i\alpha_1}\sqrt{P_1}|\phi_1^{3,04}\rangle + e^{i\alpha_5}\sqrt{P_5}|\phi_5^{3,04}\rangle + e^{i\phi_6}\sqrt{P_6}|\phi_6^{3,04}\rangle + \sum_{n\neq 1,5,6} e^{i\phi_n}\sqrt{P_n}|\phi_n^{3,04}\rangle, \tag{4.10}$$

resultando entonces

$$P = \frac{1}{\sqrt{3}}(\sqrt{P_1} + \sqrt{P_2} + \sqrt{P_3}) = 0{,}965. \tag{4.11}$$

De esta forma, extendemos nuestro método de control para construir no sólo autoestados del Hamiltoniano, sino también combinaciones lineales de ellos, y lo aplicamos en forma exitosa en una estructura cuasilineal de puntos cuánticos acoplados con dos electrones interactuantes. Esta extensión de método de control también abre un rico menú de posibilidades tales como la preparación de estados de Bell y otros tipos de entrelazamientos, que estudiaremos en las siguientes secciones.

4.3. Entrelazamiento y qbits en dos puntos cuánticos acoplados

El entrelazamiento es un pieza fundamental en todo esquema de procesamiento de información cuántica, como por ejemplo la criptografía o la computación cuántica [2, 89], y por lo tanto el diseño de sistemas donde el entrelazamiento pueda ser manipulado es un problema de gran interés. En los últimos 20 años fueron exploradas intensamente diversas técnicas y dispositivos cuánticos que permitieron controlar el entrelazamiento de hasta 7 qbits [90] y llevar a cabo experimentos de comunicación, teleportación y el procesamiento de algunos algoritmos cuánticos. Entre los sistemas propuestos más prometedores, (además de los sistemas ópticos que permiten manipular fotones [91], las técnicas de RMN para utilizar la información contenida en espines nucleares [92], las trampas de iones [93, 94], las cavidades electromagnéticas [95] y los diseños híbridos [88]) se encuentran las estructuras semiconductoras, y en particular los puntos cuánticos.

En el caso de los sistemas de electrones atrapados en puntos cuánticos, usualmente son considerados como qbits los espines individuales de los electrones [24, 96], o el espín colectivo del sistema [31], y el estado de los mismos es controlado mediante láseres pulsados. Sin embargo, en nuestro sistema los espines no puede ser manipulados como qbits, debido a que su estado singlete es invariante frente a la variación del parámetro de control, que es un campo eléctrico uniforme. Proponemos entonces usar como qbit al tipo de localización de cada electrón R o L (pozo izquierdo o pozo derecho). En nuestro caso, como el estado de espín es singlete, la parte espacial de la función de onda es simétrica, y los estados accesibles para nuestros dos qbits serán los simétricos. No obstante, dentro del espacio de estados simétricos, podemos construir estados separables, estados entrelazados y en particular construiremos los estados de Bell.

La idea de entrelazar la localización de dos electrones en dos puntos cuánticos acoplados, fue explorada en 2001 por Tamborenea y Metiu [35], quienes mostraron que es posible crear un estado entrelazado de este modo, partiendo del estado fundamental y aplicando luego un campo eléctrico alterno durante un lapso de tiempo, seguido por un campo eléctrico constante. Posteriomente Zhao *et al.* [78, 79] estudiaron, en el mismo sistema, los

estados de máximo entrelazamiento en localización y mostraron una forma alternativa de construirlos en forma aproximada, basada en el método *sudden switch*. En estos trabajos se mostró cómo construir estados entrelazados del tipo $\frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle + e^{i\phi}|LL\rangle)$, aunque no se especifica una forma de controlar la fase ϕ, lo cual permitiría obtener los estados de Bell $|\beta_{00}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle + |LL\rangle)$ y $|\beta_{10}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle - |LL\rangle)$. En esta sección emplearemos nuestro método de control para obtener los estados de Bell, compararemos nuestro resultados con los trabajos previos, y finalmente definiremos con mayor detalle los espacios de Hilbert de localización en el sistema de dos puntos cuánticos, que dan sentido a las nociones de separabilidad y entrelazamiento.

4.3.1. Construcción de los estados de Bell

Teniendo en cuenta sólo la localización de los electrones en los pozos de potencial de nuestro sistema, independientemente de la forma y la estructura nodal de su función de onda, podemos decir que $\{|L\rangle, |R\rangle\}$ es una base del espacio de estados de un electrón. De esta forma, los estados con ambos electrons localizados en el pozo izquierdo, $|LL\rangle$, o en el pozo derecho, $|RR\rangle$, son estados separables debido a que pueden ser factorizados como productos de estados de un sólo electrón. Por otro lado, los estados diabáticos con un electrón en cada pozo son estados entrelazados: $|RL\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|R\rangle|L\rangle + |L\rangle|R\rangle)$. Luego, las rectas del espectro con pendientes nulas corresponden al estado entrelazado $|RL\rangle$, mientras que las rectas con pendientes positivas y negativas están asociadas a los estados separables $|RR\rangle$ y $|LL\rangle$ respectivamente. Claramente el estado fundamental ϕ_1^0 es un estado $|RL\rangle$, en la sección 4.1 hemos mostrado cómo preparar un estado $|LL\rangle$ partiendo del estado ϕ_1^0, y en forma análoga, invirtiendo el sentido del campo eléctrico, podemos obtener un estado $|RR\rangle$.

Los estados de Bell conforman una base de máximo entrelazamiento para un sistema de dos qbits, y por eso constituyen una herramienta fundamental en el procesamiento de la información cuántica. Empleando la base de localización, los tres estados simétricos de

Bell resultan

$$
\begin{aligned}
|\beta_{00}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle + |LL\rangle) \\
|\beta_{01}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|R\rangle|L\rangle + |L\rangle|R\rangle) \qquad (4.12) \\
|\beta_{10}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle - |LL\rangle), \qquad (4.13)
\end{aligned}
$$

mientras que el estado de Bell antisimétrico es el

$$|\beta_{11}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|R\rangle|L\rangle - |L\rangle|R\rangle). \qquad (4.14)$$

Debido a que las partes espaciales de las funciones de onda son simétricas por intercambio, los estados de localización accesibles también son simétricos, y por esta razón no podemos construir el estado antisimétrico $|\beta_{11}\rangle$, pero veremos que sí es posible preparar los otros estados de Bell, $|\beta_{00}\rangle$, $|\beta_{01}\rangle$ y $|\beta_{10}\rangle$. Lo mismo ocurre con los estado separables: pese a que recientemente mostramos cómo preparar los estados factorizables $|RR\rangle$ y $|LL\rangle$, no es posible construir los estados $|R\rangle|L\rangle$ y $|L\rangle|R\rangle$ ya que no son simétricos.

Notemos que el estado $|\beta_{01}\rangle$ es precisamente el estado de localización $|RL\rangle$, que corresponde a las rectas horizontales del espectro y en particular al estado fundamental ϕ_1^0. Por otro lado, los estados de Bell $|\beta_{00}\rangle$ y $|\beta_{10}\rangle$ no están asociados a ninguna de las rectas diabáticas del espectro y son superposiciones equiprobables de los estados $|LL\rangle$ y $|RR\rangle$, es decir que son de la forma

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle + e^{i\phi}|LL\rangle), \qquad (4.15)$$

de modo que en estos estados ambos electrones están confinados en el mismo punto cuántico, siendo las probabilidades P_{LL} y P_{RR} iguales a 0,5, mientras que $P_{RL} = 0$.

De acuerdo a la ec. (2.4), los autoestados de menor y mayor energía en al centro de un cruce evitado se obtienen normalizando la suma y la diferencia respectivamente de los estados diabáticos. Luego, una forma simple de construir los estados $|\beta_{00}\rangle$ y $|\beta_{10}\rangle$ partiendo del estado fundamental, consiste en navegar por el espectro utilizando sólo transiciones diabáticas y adiabáticas hasta alcanzar los autoestados en el medio del cruce evitado entre dos rectas diabáticas de estados $|LL\rangle$ y $|RR\rangle$, como se muestra en las Figs. 4.8(a) y

4.8(b). Notemos que como los estados buscados son autoestados del Hamiltoniano, estos permanecerán congelados (evolucionando sólo una fase global) mientras el campo eléctrico permanezca fijo en el valor del anticruce. Alternativamente, si relajamos la condición de usar sólo transiciones diabáticas y adiabáticas, podemos atravesar el cruce evitado entre los dos tipos de estados con una velocidad intermedia [Fig. 4.8(c)] obteniendo al final del cruce una combinación lineal de los estados diabáticos

$$|\psi(t)\rangle = ae^{-i\frac{E_{RR}t}{\hbar}}|RR\rangle + be^{-i\frac{E_{LL}t}{\hbar}}|LL\rangle, \tag{4.16}$$

donde los valores de $|a|$ y $|b|$ pueden ser ajustados eligiendo una velocidad apropiada, y en el caso particular en que $|a| = |b| = \frac{1}{\sqrt{2}}$ tendremos un estado de entrelazamiento máximo, como el de la ec. (4.15), donde la fase relativa ϕ oscila con la frecuencia de la diferencia de energías.

Para construir el estado $|\beta_{00}\rangle$ siguiendo el esquema de la Fig. 4.8(a), simulamos numéricamente la evolución del sistema partiendo del estado fundamental, en presencia del campo eléctrico variable $E(t)$ indicado en la Fig. 4.9(a), y calculamos las probabilidades de localización P_{LL}, P_{RR} y P_{RL} en función del tiempo (Fig. 4.9(b)). Para arribar al estado buscado, debemos transitar adiabáticamente dos cruces evitados, uno en E=4,77 kV/cm y con una energía de -437 meV, y el otro en E = 3,02 kV/cm con una energía de -402 meV. El primer cruce involucra un estado $|RL\rangle$ y un estado $|RR\rangle$, mientras que el segundo tiene lugar entre un $|RR\rangle$ y un $|LL\rangle$. Como los gaps de energía de estos anticruces son muy diferentes, los tiempos requeridos para cruzarlos en forma adiabática también son muy distintos. Como podemos notar en la Fig. 4.9(a), el segundo cruce adiabático insumió casi la totalidad del tiempo de evolución, y es por eso que en esta figura optamos por una escala semilogarítmica. En la tabla 4.1 mostramos en detalle el campo eléctrico empleado, indicando cada uno de los tramos lineales de la función $E(t)$. Notemos que para el segundo cruce adiabático, no se empleó un solo tramos lineal sino varios y con diferentes pendientes para reducir el tiempo total del proceso. Al final de la evolución, cuando el campo E permanece constante en medio del último cruce evitado, observamos que las probabilidades P_{LL} y P_{RR} oscilan entre 0,465 y 0,495 (ver Fig. 4.9(b)), mientras que la probabilidad P_{RL} queda acotada entre 0,024 y 0,054 y la fidelidad final es igual a 0,98.

El camino de la Fig. 4.9(b) para alcanzar el estado $|\beta_{10}\rangle$ también fue simulado numéri-

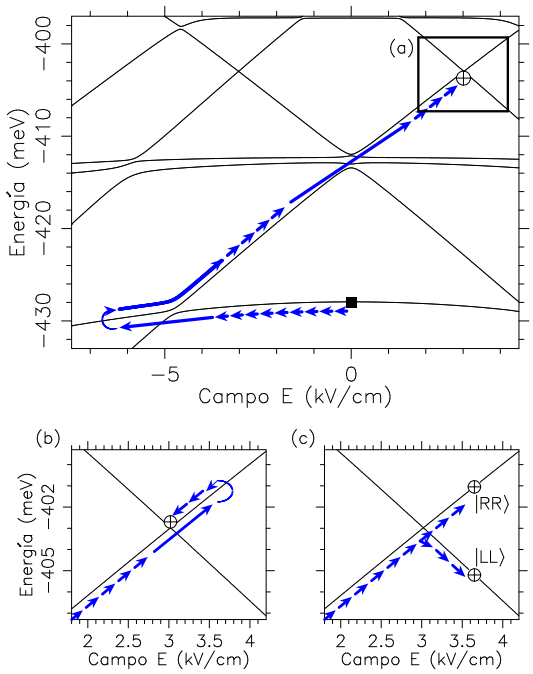

Figura 4.8: Esquema de los caminos de control propuestos para obtener estados entrelazados en localización, partiendo del estado fundamental sin campo eléctrico. Las flechas cortas y largas corresponden, respectivamente, a variaciones lentas rápidas del campo eléctrico. Nuestros objetivos son alcanzar y mantener en el tiempo los estados $\frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle + |LL\rangle)$ (a), $\frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle - |LL\rangle)$ (b) y $\frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle + e^{i\phi}|LL\rangle)$ (c), donde la fase ϕ varía linealmente con el tiempo.

camente (ver tabla 4.2), y obtuvimos el mismo comportamiento final de las probabilidades de localización y la misma precisión en la aproximación al autoestado buscado que en la simulación anterior.

Previamente a esta tesis, Tamborenea *et al.* [35] y Zhao *et al.* [78, 79] propusieron en trabajos independientes un método diferente para aproximar estados entrelazados de la forma (4.15). Trabajando en un sistema similar al nuestro, mostraron que partiendo del estado fundamental ϕ_1^0 y aplicando un pulso de campo eléctrico alterno (con un frecuencia, amplitud y duración adecuadas) seguido de un campo constante (del valor correspondiente al primer cruce evitado) es posible alcanzar un estado en el que $P_{LL} \simeq P_{RR}$ y $P_{RL} \simeq 0$, y mantenerlo congelado mientras dure el campo constante. Contrastando los resultados de estos trabajos con nuestro método, observamos dos diferencias importantes. Por un

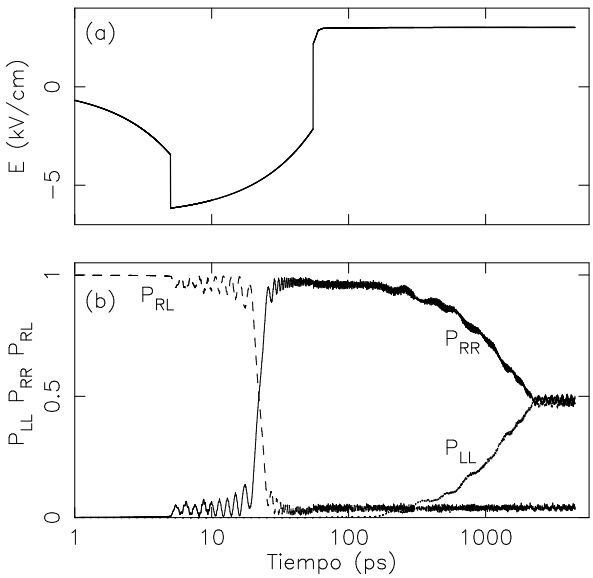

Figura 4.9: Simulación numérica del esquema de control indicado en la la Fig. 4.8(a), para construir el estado de Bell $\frac{1}{\sqrt{2}}(|RR\rangle + |LL\rangle)$. El campo eléctrico empleado (a) y las probabilidades de localización obtenidas (b) son graficados como funciones del tiempo empleando una escala semilogarítmica.

lado, el método de estos autores permite crear estados similares al de la ecuación (4.15), pero no da cuenta de cómo controlar el valor de la fase ϕ, lo que permitiría preparar los estado de Bell $|\beta_{00}\rangle$ y $|\beta_{10}\rangle$. Y por otro lado, empleando un campo alterno seguido de otro campo constante, en el mejor de los casos es posible reducir la probabilidad P_{RL} hasta 0,1 [35], mientras que en nuestras simulaciones numéricas obtuvimos valores inferiores a 0,054, alcanzando de este modo estados con una mejor localización y un mayor grado de entrelazamiento.

Tramo	n	E_i (kV/cm)	E_f (kV/cm)	ΔT (ps)	$\lvert\langle\phi_n^{E_f}\lvert\psi(t)\rangle\rvert$
1	1	0	-3.444	5	0.9951
2	2	-6.164	-2.140	50	0.9770
3	5	2.161	2.877	5	0.9816
4	5	2.877	2.97	5	0.9815
5	5	2.97	2.985	20	0.9815
6	5	2.985	3.01	100	0.9810
7	5	3.01	3.014	150	0.9814
8	5	3.014	3.0159	410	0.9814
9	5	3.0159	3.0170	604	0.9808
10	5	3.0170	3.0177	886	0.9805
11	5	3.0177	3.0177	1000	0.9811

Tabla 4.1: Campo eléctrico empleado para simular numéricamente la evolución esquematizada en la Fig. 4.8(a). Para cada uno de los tramos lineales de la función $E(t)$ indicamos la curva adiabática recorrida (n), el campo inicial (E_i), el campo final (E_f), el tiempo empleado (ΔT) y la fidelidad obtenida al final de dicho tramo $|\langle\phi_n^{E_f}|\psi(t)\rangle|$.

4.3.2. Definición formal de entrelazamiento en el espacio de localización

Debido a la interacción coulombiana entre los electrones de nuestro sistema, como vimos en la sección 3, los estados diabáticos no son simples permanentes (productos simetrizados) de dos orbitales de una sola partícula, sino superposiciones de varias permanentes.

Por esta razón, no podemos afirmar que los estados de los tipos RR y LL son separables en el producto tensorial de espacios de Hilbert de una partícula, $\mathcal{H} = \mathcal{H}_1 \otimes \mathcal{H}_2$, ni que los estados construidos en la sección anterior tienen máximo entrelazamiento o pueden ser considerados estados de Bell en este producto de espacios[1]. Es cierto que los primeros estados diabáticos pueden ser relativamente bien aproximados por produc-

[1]Si bien es posible expresar estados separables y estados de Bell como superposiciones de varias permanentes, hemos verificado que este tampoco es el caso de los autoestados de nuestro sistema

Tramo	n	E_i (kV/cm)	E_f (kV/cm)	ΔT (ps)	$\lvert\langle\phi_n^{E_f}\lvert\psi(t)\rangle\rvert$
1	1	0	-3.444	5	0.9951
2	2	-6.164	-2.140	50	0.9770
3	5	2.161	2.877	5	0.9812
4	5	3.157	3.065	5	0.9810
5	5	3.065	3.055	20	0.9811
6	5	3.055	3.0254	100	0.9810
7	5	3.0254	3.0214	150	0.9807
8	5	3.0214	3.0195	400	0.9808
9	5	3.0195	3.0184	600	0.9807
10	5	3.0184	3.0177	880	0.9806
11	5	3.0177	3.0177	1000	0.9806

Tabla 4.2: Campo eléctrico $E(t)$ empleado para simular numéricamente el camino de control de la Fig. 4.8(b).

tos simetrizados de estados de una partícula, sin embargo queremos subrayar que, aún empleando esta aproximación, los tres estados de Bell construidos en la sección anterior ($|\beta_{01}\rangle = |\phi_1^0\rangle$, $|\beta_{00}\rangle = |\phi_5^{3,02}\rangle$, y $|\beta_{10}\rangle = |\phi_6^{3,02}\rangle$) involucran más de dos orbitales diferentes para cada electrón, y por lo tanto no existen subespacios bidimensionales de $\mathcal{H}_1$ y $\mathcal{H}_2$ en cuyo producto tensorial estos estados puedan ser incluidos simultáneamente como estados de Bell. Por todos estos motivos, a continuación introduciremos un espacio de localización, que nos permita factorizar el espacio de las funciones de onda y definir apropiadamente la separabilidad, el entrelazamiento y los estados de Bell en dicho espacio.

La presencia de tres conjuntos de rectas diabáticas bien definidas en la región del espectro considerada, implica que cada uno de los estados diabáticos puede ser identificado con dos números cuánticos, (l, n), donde l indica el tipo de localización (R, L o RL) y n es el número que corresponde a la ubicación de la n-ésima recta del tipo l en el espectro. Así, por ejemplo, el estado fundamental sin campo eléctrico está asociado al estado diabático $|RL1\rangle$, ya que se encuentra sobre la primer recta del tipo RL, mientras que los estados $|\beta_{00}\rangle$ y $|\beta_{10}\rangle$ construidos en la sección anterior son combinaciones lineales de los estados $|RR1\rangle$

y $|LL2\rangle$. Además, la existencia de dos números cuánticos independientes nos dice que sus observables asociados forman un conjunto completo de observables que conmutan [97, 98] y que el espacio de funciones de onda se puede representar como el producto de los espacios de Hilbert asociados a estos observables,

$$\mathcal{H} \simeq \mathcal{H}_L \otimes \mathcal{H}_E, \tag{4.17}$$

donde el espacio $\mathcal{H}$ corresponde a la parte espacial del estado, $\mathcal{H}_L$ a su localización, y $\mathcal{H}_E$ a la estructura de la función de onda dentro de cada cuadrante.

El espacio de localización $\mathcal{H}_L$ es precisamente el espacio donde los estados RR y LL son separables y los estados antes construidos son los de Bell. Naturalmente, este es el espacio bipartito generado por los espacios de localización de cada electrón,

$$\mathcal{H}_L = \mathcal{H}_{L1} \otimes \mathcal{H}_{L2}. \tag{4.18}$$

Los espacios de localización de cada partícula poseen la base $\{|R\rangle, |L\rangle\}$, que está asociada a la ubicación en cada pozo de potencial, y entonces una base para el espacio $\mathcal{H}_L$ es la siguiente

$$\{|R\rangle|R\rangle, |L\rangle|L\rangle, |R\rangle|L\rangle, |L\rangle|R\rangle\}. \tag{4.19}$$

Para construir los estados de Bell en la sección anterior, empleamos un estado diabático con cada uno de los tres tipos de localización (estados $|RL1\rangle$, $|RR1\rangle$ y $|LL2\rangle$). Consideraremos entonces las combinaciones lineales de estos tres estados, y dentro del subespacio $\mathcal{S} \subset \mathcal{H}$ generado por estos estados, daremos una representación en el espacio de coordenadas para los espacios de estructura y de localización.

Comencemos con el espacio de localización. En la representación de coordenadas podemos asociar los estados de una partícula $|R\rangle$ y $|L\rangle$ a las funciones características de los intervalos $(0, +\infty)$ y $(-\infty, 0)$,

$$R(z) = \begin{cases} 0 & \text{si} \quad z < 0 \\ \\ 1 & \text{si} \quad z > 0 \end{cases} \qquad L(z) = \begin{cases} 1 & \text{si} \quad z < 0 \\ \\ 0 & \text{si} \quad z > 0 \end{cases}, \tag{4.20}$$

de modo que, en coordenadas, los espacios de localización de un electrón están generados

por las funciones $R(z)$ y $L(z)$: [2]

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{L1} &= \langle\, R(z_1), L(z_1)\,\rangle \\ \mathcal{H}_{L2} &= \langle\, R(z_2), L(z_2)\,\rangle. \end{aligned} \tag{4.21}$$

Luego, la base del espacio $\mathcal{H}_L$ en la representación de coordenadas resulta

$$\{R(z_1)R(z_2), L(z_1)L(z_2), R(z_1)L(z_2), L(z_1)R(z_2)\}.$$

Notemos además que el espacio $\mathcal{H}_L$ puede expresarse como la suma directa de sus subespacios simétrico y antisimétrico,

$$\mathcal{H}_L = \mathcal{H}_{Lsim} \oplus \mathcal{H}_{Lant} \tag{4.22}$$

donde $\mathcal{H}_{Lsim}$ y H_{Lant} tienen por bases a $\{R(z_1)R(z_2), L(z_1)L(z_2), \frac{1}{\sqrt{2}}[R(z_1)L(z_2)+L(z_1)R(z_2)]\}$ y $\{\frac{1}{\sqrt{2}}[R(z_1)L(z_2) - L(z_1)R(z_2)]\}$ respectivamente. Como en nuestro sistema las funciones de onda son simétricas, en particular el subespacio S sólo contiene estados con la misma simetría, y entonces en su factorización sólo emplearemos la componente simétrica de $\mathcal{H}_L$

$$\mathcal{S} = \mathcal{H}'_E \otimes \mathcal{H}_{Lsim} \tag{4.23}$$

donde $\mathcal{H}'_E$ es el espacio de estructura correspondiente a $\mathcal{S}$.

Por simplicidad, llamaremos $\psi_{RR}(z_1, z_2)$, $\psi_{LL}(z_1, z_2)$ y $\psi_{RL}(z_1, z_2)$ a las representaciones en coordenadas de los estados $|RR1\rangle$, $|LL2\rangle$ y $|RL1\rangle$ respectivamente. Veamos ahora la representación de coordenadas para el espacio $\mathcal{H}'_E$. Como en el espacio $\mathcal{S}$ tenemos una única estructura de la función de onda en cada uno de los cuadrantes, $\mathcal{H}'_E$ es un espacio trivial de dimensión uno y, como veremos a continuación, está generado por el estado $\psi_E(z_1, z_2)$ definido del siguiente modo

$$\psi_E(z_1, z_2) = \psi_{RR}(z_1, z_2) + \psi_{LL}(z_1, z_2) + \sqrt{2}\psi_{RL}(z_1, z_2). \tag{4.24}$$

Para verificar que ψ_E está definido adecuadamente, veamos que todo estado ψ del espacio $\mathcal{S}$ se puede factorizar como

$$\psi(z_1, z_2) = \psi_E(z_1, z_2)\psi_L(z_1, z_2), \tag{4.25}$$

[2]Excepcionalmente, en la ecuación (4.21) empleamos la notación de *bra-kets* para indicar la generación de un espacio vectorial y no un producto interno.

donde $\psi_L \epsilon \mathcal{H}_{Lsim}$. Para eso, desarrollemos ψ en la base diabática:

$$\psi(z_1, z_2) = c_1\psi_{RR}(z_1, z_2) + c_2\psi_{LL}(z_1, z_2) + c_3\psi_{RL}(z_1, z_2). \tag{4.26}$$

Por otro lado, es fácil ver que

$$\begin{aligned} \psi_{RR}(z_1, z_2) &= R(z_1)R(z_2)\psi_E(z_1, z_2) \\ \psi_{LL}(z_1, z_2) &= L(z_1)L(z_2)\psi_E(z_1, z_2) \\ \psi_{RL}(z_1, z_2) &= \frac{1}{\sqrt{2}}[R(z_1)L(z_2) + L(z_1)R(z_2)]\psi_E(z_1, z_2), \end{aligned} \tag{4.27}$$

y entonces obtenemos la factorización buscada entre estados de $\mathcal{H}_E$ y $\mathcal{H}_{Lsim}$:

$$\psi = \psi_E \left[c_1 RR + c_2 LL + c_3 \frac{1}{\sqrt{2}}(RL + LR) \right], \tag{4.28}$$

donde simplificamos la notación eliminando variables z_1 y z_2.

Como en el espacio $\mathcal{S}$ todos los estados tienen la misma componente de estructura (ψ_E), podemos omitirla y considerar sólo el estado de localización. De esta forma, podemos ver explícitamente en las ecs. (4.27) que los estados ψ_{RR} y ψ_{LL} son separables en el espacio $\mathcal{H}_L$ y que ψ_{RL} es efectivamente el estado de Bell β_{01}. Del mismo modo, observamos que los estados $\phi_5^{3,02}$ y $\phi_6^{3,02}$ corresponden realmente a los estados β_{00} y β_{10}:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi_{RR} + \psi_{LL}) &= \psi_E \frac{1}{\sqrt{2}}(RR + LL) \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi_{RR} - \psi_{LL}) &= \psi_E \frac{1}{\sqrt{2}}(RR - LL) \end{aligned} \tag{4.29}$$

De esta forma, obtuvimos una buena definición del espacio de localización que nos permite afirmar que una de las aplicaciones posibles de nuestro método de control consiste en la preparación de los estados de Bell y de estados separables. Esta aplicación, junto a la simple y robusta técnica de localización discutida en la sección 4.1, y a la posibilidad de obtener superposiciones coherentes de autoestados discutida en 4.2, indica que la estrategia de control que proponemos posee un gran potencial entre los sistemas de puntos cuánticos acoplados.

Capítulo 5

Una aplicación química: Isomerización del LiCN

Luego de implementar numéricamente nuestro método de control en forma exitosa en un sistema de dos puntos cuánticos acoplados, comenzamos a estudiar su posible aplicación para manipular el estado y la configuración geométrica de moléculas. En este capítulo simulamos la aplicación del método de control para modificar la posición relativa de los átomos en una molécula de cianuro de litio, empleando nuevamente un campo eléctrico uniforme como parámetro de control [99].

La superficie de potencial del sistema molecular LiCN posee un mínimo absoluto y un mínimo local inestable. Ambos extremos corresponden a configuraciones lineales, siendo el LiNC el mínimo estable y el LiCN el inestable. La acción de llevar la molécula desde la configuración más estable a la menos estable es conocida como isomerización y es el objetivo de esta nueva aplicación del método de control. Conociendo el espectro de energía vibracional de la molécula como función del campo eléctrico externo, determinamos una dependencia temporal adecuada para el campo eléctrico que nos permitió alcanzar el estado isómero buscado.

5.1. El sistema molecular LiCN

Comenzaremos describiendo en esta sección el modelo teórico que empleamos para describir la dinámica vibracional de la molécula que nos proponemos controlar. Nuestro sistema, la molécula de cianuro litio, ha sido extensamente estudiado en el pasado, especialmente en conexión con el caos cuántico [100]. Este sistema molecular es representativo de un amplio conjunto de moléculas poliatómicas que exhiben un comportamiento similar esencialmente debido a la existencia de una gran amplitud de movimiento (*floppy*) en sus modos vibracionales. Este conjunto incluye diferentes cianuros como por ejemplo el HCN [101], los cianuros alcalinos [102] o el cianuro de metilo (CH_3CN) [103] y también otras especies similares como el HCP [104, 105], el radical HO_2 [106] y los complejos de van der Waals [107].

En el LiCN, el carbono y el nitrógeno se encuentran fuertemente ligados por una unión covalente triple, mientras que, debido a la gran separación de cargas, el Li está unido al par cianuro CN mediante una unión mayormente iónica, que es mucho más débil. Por esta razón el modo de vibración interna del par CN se desacopla en forma efectiva de los otros grados de libertad de la molécula, y se puede considerar que la distancia entre el carbono y el nitrógeno está congelada en su valor de equilibrio, $r_e = 2{,}186$ u.a. Por otro lado, la posición relativa del litio con respecto al centro de masa del CN es mucho más flexible. En particular la ligadura de la coordenada angular es muy débil, dando lugar a vibraciones de una gran amplitud aún para valores moderados en la energía de excitación.

En este trabajo no tendremos en cuenta la interacción interna C-N y consideraremos sólo el caso irrotacional ($J = 0$). Bajo estas hipótesis, el Hamiltoniano vibracional de la molécula posee sólo dos grados de libertad y, de acuerdo a Tennyson y Suctliffe [108], está dado por

$$H_{\mathrm{LiCN}} = -\frac{\hbar^2}{2\mu_1 R^2}\frac{\partial}{\partial R}\left(R^2\frac{\partial}{\partial R}\right)+\frac{\hbar^2}{2}\left(\frac{1}{\mu_1 R^2}+\frac{1}{\mu_2 r_e^2}\right)\frac{1}{\operatorname{sen}\theta}\frac{\partial}{\partial\theta}\left(\operatorname{sen}\theta\frac{\partial}{\partial\theta}\right)+V(R,\theta), \quad (5.1)$$

donde R y θ son las coordenadas de Jacobi, que indican la posición del Li con respecto al centro de masa ,O, del par CN como se muestra en la Fig. 5.1, mientras que μ_1 y μ_2 son las masas reducidas de la molécula y del par CN respectivamente:

$$\mu_1 = \frac{m_{Li}(m_C + m_N)}{m_{Li} + m_C + m_N}, \qquad \mu_2 = \frac{(m_C m_N)}{m_C + m_N}, \quad (5.2)$$

siendo $m_{Li} = 7$ u.a., $m_C = 12$ u.a. y $m_N = 14$ u.a. las masas de los núcleos de litio, carbono y nitrógeno respectivamente. La superficie de potencial $V(R,\theta)$ empleada fue calculada por Essers *et al.* mediante cálculos ab-initio [109], quienes fijando la distancia C-N en su valor de equilibrio, r_e, calcularon la energía electrónica correspondiente a cada punto (R,θ) y obtuvieron el siguiente desarrollo en polinomios de Legendre

$$V(R,\theta) = \sum_{\lambda=0}^{9} v_\lambda(R) P_\lambda(\cos\theta), \tag{5.3}$$

donde los coeficientes $v_\lambda(R)$ contienen términos de corta y de larga distancia. Este potencial, cuyas curvas de nivel se pueden ver en la Fig. 5.2, posee un mínimo global en $(R,\theta) = (4{,}349\,\text{u.a.}, \pi)$, un mínimo relativo en $(R,\theta) = (4{,}795\,\text{u.a.}, 0)$ y un punto de ensilladura en $(R,\theta) = (4{,}221\,\text{u.a.}, 0{,}292\,\pi)$. Luego, ambos mínimos corresponden a las configuraciones lineales de la molécula, siendo el LiNC ($\theta = \pi$) el isómero más estable y el LiCN ($\theta = 0$) el menos estable. En la tabla 5.1 indicamos los valores numéricos de los puntos críticos. En la Fig. 5.2 mostramos también, con líneas punteadas, el camino de mínima energía, es decir la curva $R(\theta)$ que se obtiene minimizando el valor de $V(R,\theta)$ para cada ángulo θ.

(R,θ) (u.a., π rad)	$V(R,\theta)$ (meV)	Configuración
(4,349, 1,000)	0	LiNC
(4,795, 0,000)	282,8	LiCN
(4,221, 0,292)	428,4	Li CN

Tabla 5.1: Puntos críticos de la superficie de potencial.

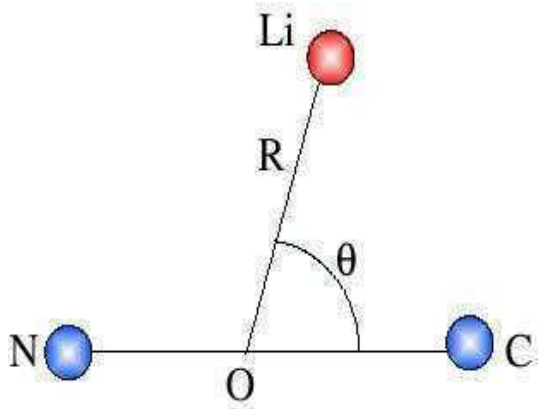

Figura 5.1: Coordenadas internas del sistema molecular LiCN. La distancia carbono-nitrógeno es considerada constante en su valor de equilibrio, y el punto O corresponde al centro de masa C-N.

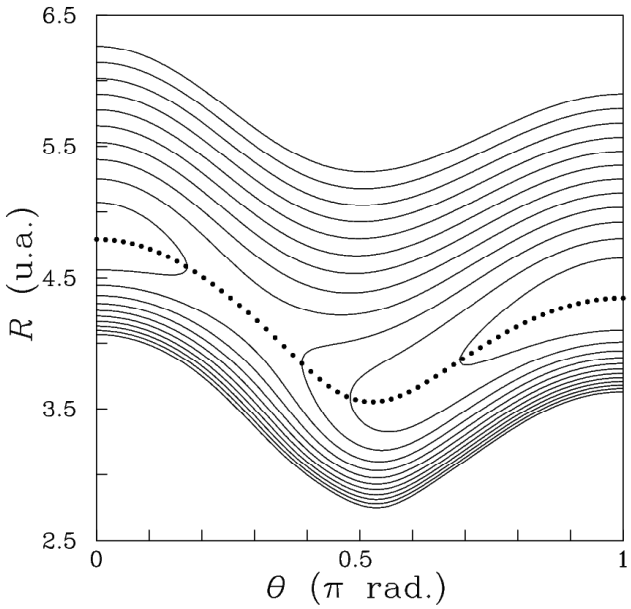

Figura 5.2: Curvas de nivel de la superficie de potencial. Sus dos mínimos se encuentran en $\theta = 0$ y $\theta = \pi$ y por lo tanto corresponden a los isómeros LiCN y LiNC respectivamente. En líneas punteadas indicamos también el camino de mínima energía, que conecta ambos mínimos.

Es importante notar que si bien el Hamiltoniano de la ecuación (5.1) depende de sólo dos variables, estamos en presencia de un problema tridimensional y por lo tanto el elemento de volumen resulta

$$dv = 2\pi R^2 \operatorname{sen}\theta dR d\theta. \tag{5.4}$$

Por otro lado, si en dicho Hamiltoniano identificamos los momentos conjugados respecto a las variables R y θ, obtenemos una expresión más sencilla, que además puede ser interpretada clásicamente,

$$H_{\mathrm{LiCN}} = \frac{P_R^2}{2\mu_1} + \frac{1}{2}\left(\frac{1}{\mu_1 R^2} + \frac{1}{\mu_2 r_e^2}\right) P_\theta^2 + V(R,\theta). \tag{5.5}$$

Mediante el algoritmo de Representación de Variable Discreta de Băcić y Light [110], calculamos los primeros 100 autoestados del Hamiltoniano y sus energías. Como podemos ver en la Fig. 5.3, las primeras funciones de onda están localizadas en $\theta \simeq \pi$, es decir que corresponden al isómero más estable LiNC. Conforme aumenta el nivel de energía, los estados se dispersan en la proximidad de $\theta = \pi$, a lo largo del camino de mínima energía, pero los primeros 30 niveles aún corresponden a la estructura LiNC, mientras que el primer autoestado del tipo LiCN (localizado en $\theta \simeq 0$) es el trigésimo primero. Luego se suceden en el espectro más estados LiNC excitados hasta llegar al segundo LiCN en el nivel 40. Los siguientes LiCN son los niveles 47, 52, 58, 64, 76, 80, 88 y 96.

Para llevar la molécula desde el estado fundamental hasta un estado isómero LiCN, naturalmente es posible utilizar lasers con frecuencias resonantes, pero la dispersión de los primeros estados LiCN entre los estados LiNC en la parte superior del espectro supone una dificultad que debe ser tenida en cuenta. En lugar de ello, proponemos emplear un campo eléctrico externo como parámetro de control para navegar por el espectro y lograr la isomerización deseada.

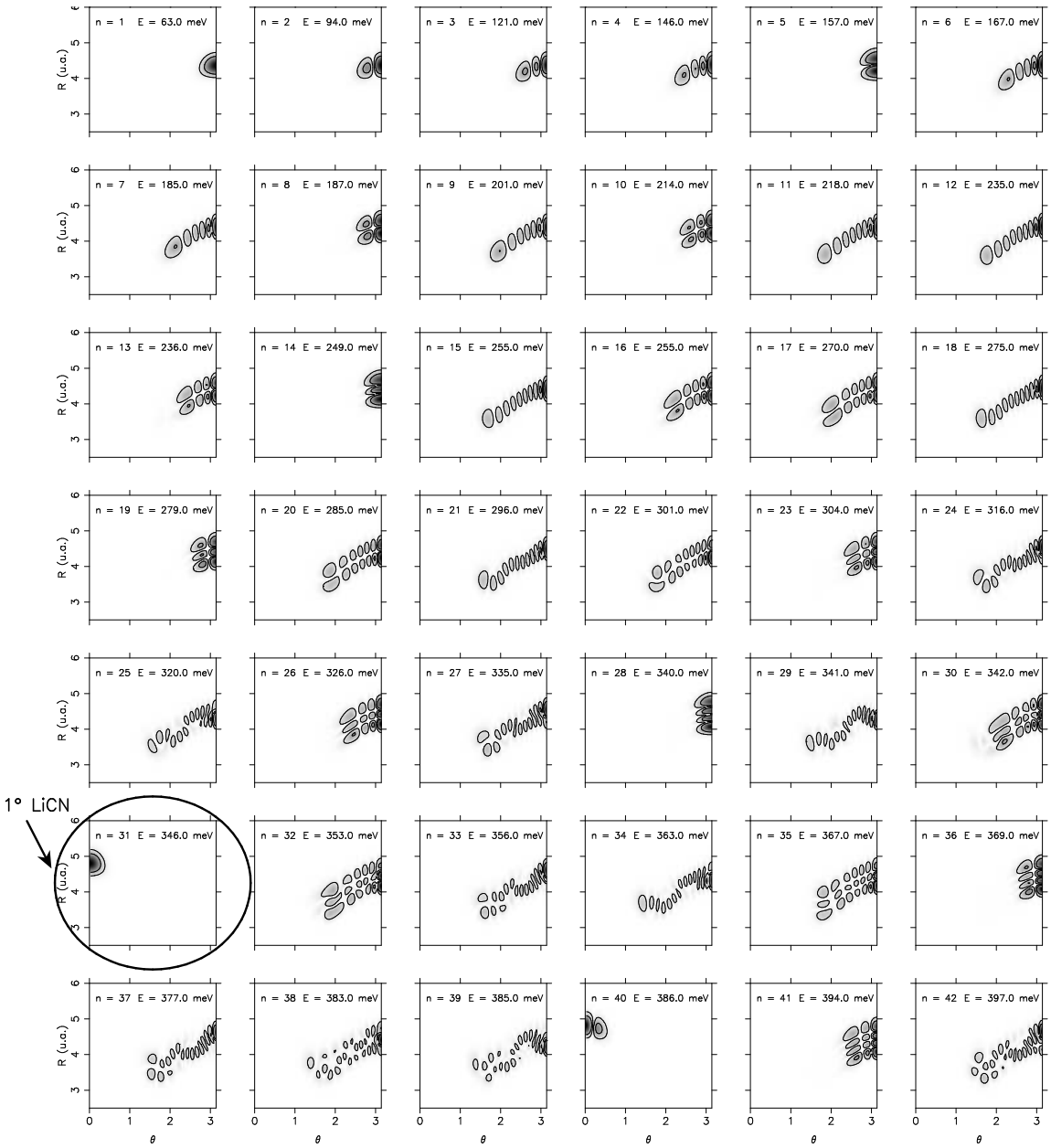

Figura 5.3: Autoestados del sistema molecular LiCN y sus correspondientes energías. Las primeras funciones de onda corresponden al isómero LiNC, y cuanto mayor es el nivel de energía más complejas son sus estructuras nodales. Con un círculo indicamos en el gráfico el primer isómero LiCN del espectro, que corresponde al 31º nivel de energía.

5.2. Espectro vibracional en presencia de un campo eléctrico externo

Nuestra intención es manipular el estado de la molécula empleando, como parámetro de control, un campo eléctrico externo dependiente del tiempo. En forma análoga a lo hecho en el sistema de dos puntos cuánticos acoplados, nos proponemos variar la intensidad del campo eléctrico para navegar por las curvas del espectro de energía vibracional, desde el estado inicial hasta el estado deseado. Por lo tanto, el punto de partida de la estrategia de control es el conocimiento del espectro de energía en función del campo externo, que es presentado y analizado en esta sección.

El modelo empleado para describir la interacción con el campo eléctrico es muy simple. Utilizando la aproximación dipolar, el Hamiltoniano del sistema molecular LiCN en presencia de un campo eléctrico externo uniforme, $\vec{E}$, está dado por

$$H = H_{\mathrm{LiCN}} + \vec{d}_{\mathrm{LiCN}}(R,\theta) \cdot \vec{E}, \tag{5.6}$$

donde H_{LiCN} es el Hamiltoniano de la molécula sin campo eléctrico [ecuación (5.1)] y $\vec{d}_{\mathrm{LiCN}}(R,\theta)$ es la función dipolo. Para simplificar nuestro modelo, en adelante supondremos que:

i) La molécula puede ser considerada como un dipolo eléctrico con la carga negativa localizada en el centro de masa del par CN y la carga positiva en el Li. Además, el fuerte carácter iónico de la ligadura nos permite suponer una completa separación de cargas, de modo que el dipolo consiste en la carga de un electrón, e, en el Li y una carga -e en el CN [111, 112].

ii) El campo eléctrico esta alineado con la dirección C-N. Esta hipótesis simplifica la evaluación del producto escalar de la ecuación (5.6).

iii) El proceso de isomerización es mucho más rápido que el periodo de rotación de la molécula.

Finalmente, introduciendo estas aproximaciones en la ecuación (5.6) obtenemos que

$$H = H_{\mathrm{LiCN}}(R,\theta,P_R,P_\theta) + EeR\cos\theta. \tag{5.7}$$

Empleando como base los primeros 100 autoestados del Hamiltoniano sin campo

eléctrico, H_{LiCN}, diagonalizamos la matriz de H para diferentes valores de campo, obteniendo de este modo el espectro de energía en función del parámetro de control (Fig. 5.4), y calculamos los correspondientes autoestados $\{\phi_i(E)\}$. Observando cuidadosamente las curvas adiabáticas notamos que, en la región del espectro considerada, los niveles de energía no se cruzan, dando lugar a anticruces bien definidos. La estrechez de los gaps en estos cruces evitados permite distinguir claramente las rectas diabáticas en la proximidad de los anticruces y nos indica que la aplicación de nuestro método de control es factible. Sin embargo, la extrema delgadez de algunos anticruces, requiere tiempos demasiado prolongados para ser cruzados en forma adiabática, imponiéndonos obstáculos para navegar por el espectro que luego veremos cómo eludir.

En la Fig. 5.4, observamos que el espectro de energía en función del campo eléctrico está compuesto mayormente por rectas diabáticas con pendientes positivas o negativas bien marcadas, y en menor medida por algunas otras curvas con pendientes claramente menores. Análogamente a lo ocurrido en el espectro de dos puntos cuánticos acoplados, este comportamiento tiene una explicación clásica muy simple. Cada recta corresponde a un autoestado que cambia muy poco en el rango de intensidades de campos eléctricos que estamos considerando y, en particular, sus momentos dipolares y sus estructuras nodales no cambian significativamente. Luego, de acuerdo a la ecuación (5.7), tenemos que las pendientes coinciden con el valor medio del momento dipolar dado por

$$d_i = \langle \phi_i | R \cos\theta | \phi_i \rangle. \tag{5.8}$$

Así, las curvas de energía correspondientes a estados del tipo LiNC, que tienen momento dipolar positivo, serán prácticamente rectas con pendientes positivas, mientras que los isómeros del tipo LiCN corresponderán a rectas decrecientes. Por otro lado, existen también estados con características completamente diferentes, que son híbridos entre ambas estructuras, están localizados a lo largo del camino de mínima energía [115] y presentan valores intermedios en las pendientes de sus curvas de energía. Para ilustrar las características de las diferentes clases de estados, en el espectro de la Fig. 5.4 indicamos algunos puntos relevantes, (a)-(f), y en el panel inferior de la misma figura mostramos los gráficos de sus correspondientes funciones de onda. Como podemos ver, los autoestados de los puntos (a) y (e) están localizados en el pozo de potencial LiNC y poseen las estructuras

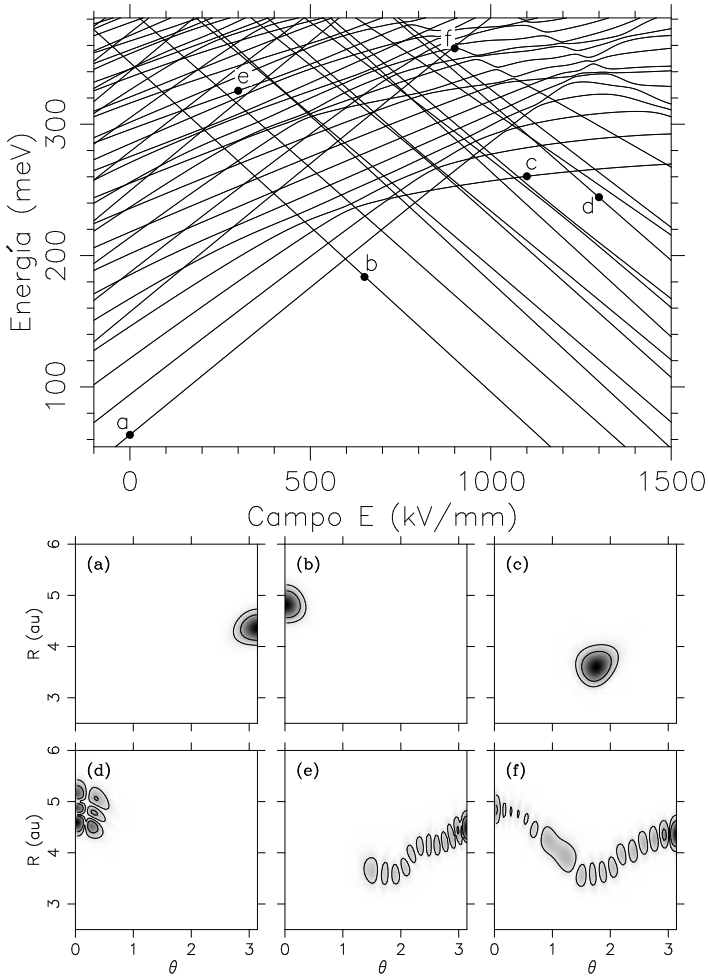

Figura 5.4: Panel superior: Espectro de energía vibracional del cianuro de Litio en función del campo eléctrico externo en la dirección C-N. Las curvas con pendientes más pronunciadas corresponden a configuraciones lineales de la molécula. Las pendientes positivas están asociadas al LiNC y las negativas al LiCN. Las pendientes intermedias corresponden a estructuras híbridas no lineales.

Panel inferior: Funciones de onda de los autoestados en diferentes puntos del espectro. Sus estructuras nodales corresponden a (a) el primer estado del tipo LiNC, (b) el estado fundamental del pozo LiCN (31º estado en ausencia de campo eléctrico), (c) estado localizado en una región intermedia del camino de mínima energía ,(d) 10º estado LiCN, (e) 21º estado LiNC y (f) estado correspondiente al centro de un cruce evitado entre un LiCN y un LiNC.

nodales del estado fundamental y del 21º nivel ligado de ese pozo respectivamente. Por otro lado, los puntos (b) y (d) corresponden a isómeros del tipo LiCN (el fundamental y el décimo respectivamente); el punto (f), que está en el centro de un cruce evitado, es una mezcla coherente de un LiCN y un LiNC; y finalmente, el punto (c) corresponde a una estructura inusual, que sólo es posible en presencia del campo eléctrico externo, para la cual la densidad de probabilidad se concentra en un punto intermedio del camino de mínima energía.

5.3. Navegando por el espectro del LiCN

En la sección anterior analizamos el espectro vibracional del LiCN en función de un campo eléctrico externo y mostramos que las curvas diabáticas con pendientes más pronunciadas corresponden a las configuraciones lineales LiNC y LiCN. En esta sección veremos que es posible lograr la isomerización LiNC-LiCN variando el campo eléctrico de forma tal que el sistema evolucione desde el estado fundamental sin campo eléctrico (LiNC) recorriendo las curvas adiabáticas del espectro hasta alcanzar un estado del tipo LiCN. Nuevamente variaremos lentamente el campo eléctrico para recorrer en forma adiabática las curvas del espectro y emplearemos los cruces evitados como bifurcaciones que nos permitan arribar al isómero buscado. Supondremos que en la proximidad de cada anticruce el sistema se comporta como un sistema de dos niveles, y emplearemos la fórmula de Landau-Zener para estimar la velocidad $\dot{E}$ necesaria para obtener transiciones diabáticas ($\dot{E} << \pi\Delta^2/(2|d_i - d_j|)$) o adiabáticas ($\dot{E} >> \pi\Delta^2/(2|d_i - d_j|)$) en los cruces evitados, siendo Δ el gap del anticruce y d_i y d_j las pendientes de las rectas diabáticas, que son muy bien aproximadas por el momento dipolar eléctrico de la molécula.

5.3.1. Estrategia para isomerizar el LiCN

Observando el espectro de energía vibracional del LiCN y teniendo en cuenta las características de las distintas rectas diabáticas, podemos proponer distintas estrategias para isomerizar la molécula. Por ejemplo, la forma más simple de inducir la reacción deseada, aparentemente consiste en incrementar lentamente el campo eléctrico para ir en

forma adiabática desde el punto (a) hasta el punto (b) de la Fig. 5.4 (ver las funciones de onda del panel inferior de la figura). Sin embargo, el gap del cruce evitado es demasiado pequeño y por lo tanto el tiempo necesario necesario para cruzarlo en forma adiabática es demasiado largo para los fines prácticos. Considerando que el gap es de $\Delta \simeq 0.00002$ meV y que $|d_i - d_j| \simeq 0{,}5$ meV/(kV/mm), en este caso resulta que para obtener un cruce adiabático debe ser $\dot{E} << 2000$ (kV/mm)/s, lo que se traduce en un tiempo de cruce $t >> 0{,}1$ s. Notemos que esto se debe a que los estados diabáticos involucrados en el cruce evitado están localizados en regiones disjuntas del plano (R, θ). La misma situación se repite en todos los anticruces entre estados LiNC y LiCN, y por lo tanto no es posible lograr la isomerización de la molécula a través de un solo cruce adiabático.

Una posible solución a este problema consiste en realizar dos cruces adiabáticos, pasando primero del estado inicial LiNC a un híbrido, como los descriptos en la sección anterior, y luego del híbrido a un LiCN. Siguiendo esta idea, elegimos una dependencia temporal del campo eléctrico que nos permitió simular numéricamente el camino indicado con flechas en el espectro de la Fig. 5.5, que lleva la molécula desde el estado fundamental LiNC, hasta un estado LiCN excitado, pasando por un estado híbrido intermedio. En la figura podemos ver las funciones de onda de los estados adiabáticos correspondientes al punto de partida, al punto final y a un punto intermedio del camino por el espectro. Como veremos a continuación, de este modo podemos isomerizar la molécula en un lapso de 450 ps. Para facilitar la discusión de este proceso, en la Fig. 5.5 incluimos seis lineas verticales de segmentos los valores del campo eléctrico en algunos puntos relevantes del camino que queremos realizar ($E = E_1, ..., E_6$).

Ahora veamos de qué manera podemos implementar este camino para inducir la isomerización LiNC-LiCN buscada. Como podemos ver en la Fig. 5.5, los puntos críticos del proceso son los siguientes: primero, debemos incrementar la intensidad del campo eléctrico de forma tal que el sistema permanezca con la estructura del estado inicial (primer LiNC) cruzando diabáticamente los anticruces con los primeros estados del tipo LiCN (rectas con pendientes negativas en el espectro de energía). En segundo lugar, debemos cruzar adiabáticamente el cruce evitado en $E_3 = 1043$ kV/mm para alcanzar el estado híbrido ϕ_{12} (ver Fig. 5.5). Y finalmente, debemos realizar un segundo cruce adiabático en $E_5 = 1250$ kV/mm para alcanzar el estado ϕ_{15}, que como podemos ver en la Fig.

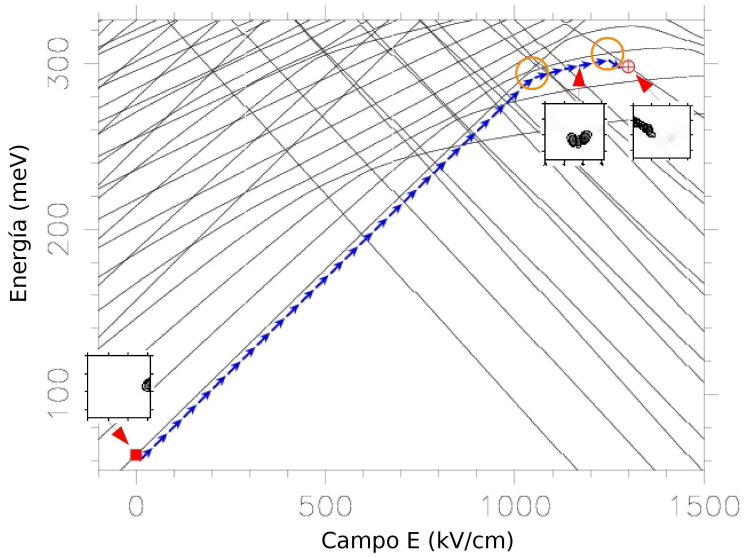

Figura 5.5: Esquema del camino por el espectro propuesto para alcanzar un estado isómero del tipo LiCN. Este camino incluye dos transiciones adiabáticas, indicadas con círculos, que nos permiten alcanzar el estado buscado empleando un estado intermedio con características híbridas (ver el texto para más detalles).

5.5, en $E_6 = 1300$ kV/mm tiene la estructura LiCN buscada. Para inducir este proceso, elegimos un campo eléctrico que es una función del tiempo lineal a trozos y simulamos numéricamente la evolución del sistema resolviendo la ecuación de Schrödinger mediante el método de Runge-Kutta de orden 4. Como el estado buscado corresponde al 15º nivel de energía, para alcanzarlo es necesario cruzar en forma diabática 14 cruces evitados. La mayoría de estos anticruces son extremadamente estrechos y por lo tanto pueden ser atravesados diabáticamente aún empleando velocidades $\dot{E}$ muy bajas. Sin embargo, los gaps entre rectas de pendiente de igual signo, como los que tienen lugar en $E = 832{,}3$ kV/mm y $E = 936$ kV/mm, no son despreciables. Para cruzar en forma diabática estos últimos, emplearemos saltos instantáneos del campo eléctrico, optimizando los valores inicial y final del campo como mostramos en la sección 3.4 con el objeto de minimizar la pérdida de fidelidad. Luego, las velocidades de variación del campo eléctrico en los diferentes tramos de la función $E(t)$, serán elegidas de forma tal que la pérdida de fidelidad en cada uno de ellos sea un orden menor que la producida en los saltos diabáticos.

En la tabla 5.2 indicamos cada uno de los tramos lineales del campo eléctrico obtenido

de este modo y en la Fig. 5.6 podemos ver el gráfico del campo en función del tiempo. En la misma figura también señalamos con lineas de segmentos los tiempos $t_1, ..., t_6$ correspondientes a los campos $E_1, ..., E_6$ del camino esquematizado en la Fig. 5.5.

Tramo	n_i	n_f	E_i (kV/mm)	E_f (kV/mm)	ΔT (ps)	$\lvert\langle\phi_n^{E_f}\lvert\psi(t)\rangle\rvert$
1	1	5	0	813,3	20	1,0000
2	6	8	849,7	901,1	50	0,9996
3	11	12	972,3	1069,0	150	0,9942
4	13	14	1073,0	1121,0	20	0,9959
5	15	15	1124,1	1227,8	10	0,9954
6	15	15	1227,8	1292,4	200	0,9951

Tabla 5.2: Campo eléctrico empleado para obtener el camino indicada en el espectro de la Fig. 5.5. Para cada uno de los tramos lineales de la función $E(t)$ mostramos los niveles de energía inicial (n_1) y final (n_f), los campos eléctricos inicial (E_i) y final (E_f), el tiempo empleado (ΔT) y la fidelidad obtenida al final de dicho tramo $|\langle\phi_n^{E_f}|\psi(t)\rangle|$.

Para evaluar el nivel de éxito de la estrategia de control y para monitorear la evolución del estado del sistema, $\psi(t)$, en el panel central de la Fig. 5.6 mostramos los módulos cuadrados de sus principales coeficientes adiabáticos ($|\langle\phi_i(E)|\psi(t)\rangle|^2$). Aquí podemos ver que durante toda la evolución, la fidelidad del estado $\psi(t)$ es casi perfecta. En el panel inferior mostramos en detalle las probabilidades más próximas a 1, que corresponden a la fidelidad del estado y que siempre se mantienen por encima de 0,9. En esta figura también podemos apreciar las caídas abruptas de la fidelidad debidas a los dos saltos diabáticos, y las dos transiciones adiabáticas.

5.3.2. Discusión detallada del camino de control

Discutamos ahora en detalle el camino propuesto y el campo $E(t)$ elegido. Antes de realizar el primer cruce adiabático en el 12º nivel de energía, debemos cruzar diabáticamente 11 cruces evitados. Todos ellos podrían ser cruzados fácilmente mediante un rápido incremento del campo eléctrico, pero para recorrer en forma adiabática la curva del primer LiNC, la velocidad de variación del campo debe ser lo suficientemente baja. Como

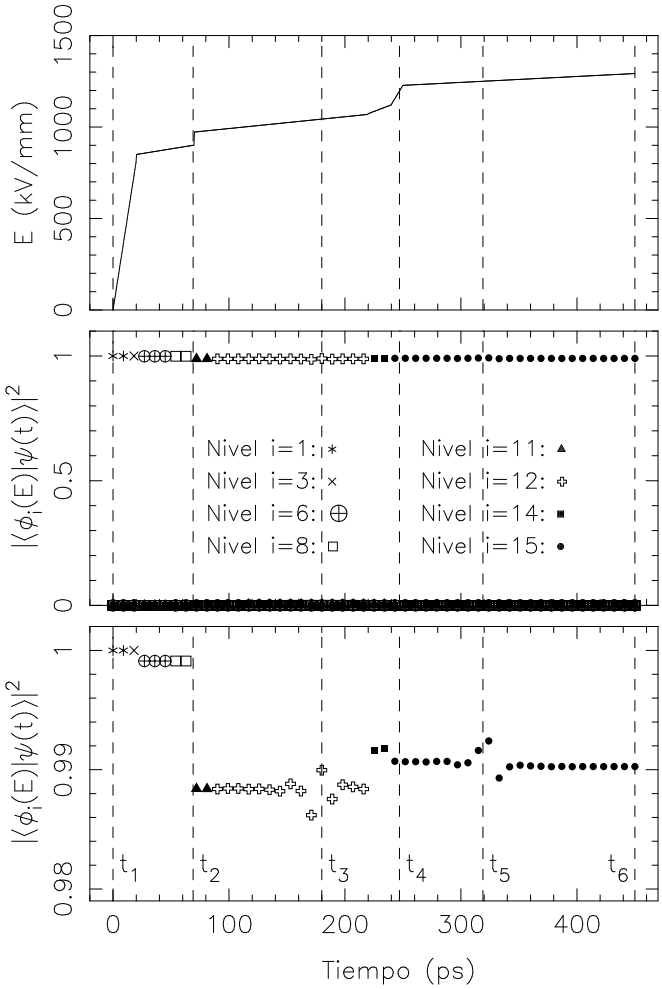

Figura 5.6: Panel superior: Campo eléctrico en función del tiempo empleado para inducir el proceso de isomerización LiNC-LiCN siguiendo el camino de la Fig.5.5.

Panel central: Evolución temporal de los módulos cuadrados de los principales coeficientes adiabáticos.

Panel inferior: Ampliación de la parte superior del gráfico anterior, mostrando en detalle la la evolución temporal del estado adiabático más poblado. Como podemos ver, el overlap cuadrado entre el estado final y el estado buscado es superior 0,99.

podemos ver en la Fig. 5.5, los primeros cuatro cruces evitados corresponden a transiciones LiNC→LiCN, y entonces pueden ser fácilmente cruzadas diabáticamente, aún con velocidades muy bajas, y en este caso lo hicimos incrementando el campo desde $E = 0$ hasta $E = 813,3$ kV/mm en un lapso de 20 ps. Luego nos encontramos con el quinto cruce, en $E = 832{,}3$ kV/mm. Aquí ambos niveles tienen pendientes de igual signo y están separados por un gap mayor, que requiere un mayor valor de $\dot{E}$ para ser cruzado en forma diabática. Para optimizar la transición en este anticruce, introducimos un salto en el campo eléctrico desde $E = 813{,}3$ kV/mm hasta $E = 849{,}7$ kV/mm (estos son los campos eléctricos que maximizan el overlap entre los autoestados inicial y final). Este salto es apenas apreciable en el gráfico de $E(t)$, pero en el panel inferior de la Fig. 5.6 podemos verlo reflejado en un pequeño pero repentino descenso de la fidelidad. A continuación incrementamos lentamente el campo eléctrico hasta alcanzar $E_2 = 901{,}1$ kV/mm, 50 ps más tarde, y de esta forma cruzamos otros dos niveles alcanzando la octava curva adiabática. Ahora nos enfrentamos con el octavo cruce evitado, que nuevamente involucra dos estados con momentos dipolares de igual signo, requiriendo entonces otro salto optimizado en el campo eléctrico, que en este caso consiste en pasar súbitamente de $E = E_2$ a $E = 972.3$ kV/mm. Así, cruzamos simultáneamente tres niveles, alcanzando la 11º curva del espectro. Notemos en la Fig. 5.6 que en esta transición se produce una pérdida de fidelidad mucho mayor que en el salto anterior, y por eso la magnitud de este descenso fue tomada como referencia para calcular la velocidad $\dot{E}$ en cada uno de los tramos lineales de $E(t)$ como señalamos más arriba.

Luego llevamos a cabo la primera transición adiabática para alcanzar el estado híbrido intermedio en el nivel 12º, incrementando el campo desde 972,3 kV/mm hasta 1069,0 kV/mm en un lapso de 150 ps. Los últimos tres cruces diabáticos, que nos depositan en el 15º nivel, se obtuvieron, respectivamente, realizando un salto instantáneo entre los 1069,0 kV/mm y los 1073,0 kV/mm, una evolución con velocidad constante hasta los 1121 kV/mm en lapso de 20 ps, y otro salto instantáneo hasta los 1124.1 kV/mm. Finalmente tenemos la segunda y última transición adiabática, que nos permite arribar al estado LiCN buscado y que llevamos a cabo en dos etapas: desde $E = 1124{,}1$ kV/mm hasta $E = 1227{,}8$ kV/mm en 10 ps y desde $E = 1124{,}1$ kV/mm hasta $E = 1292{,}4$ kV/mm en 200 ps.

El valor absoluto de la función onda calculada $\psi(t)$ es mostrado en la Fig. 5.7 en los

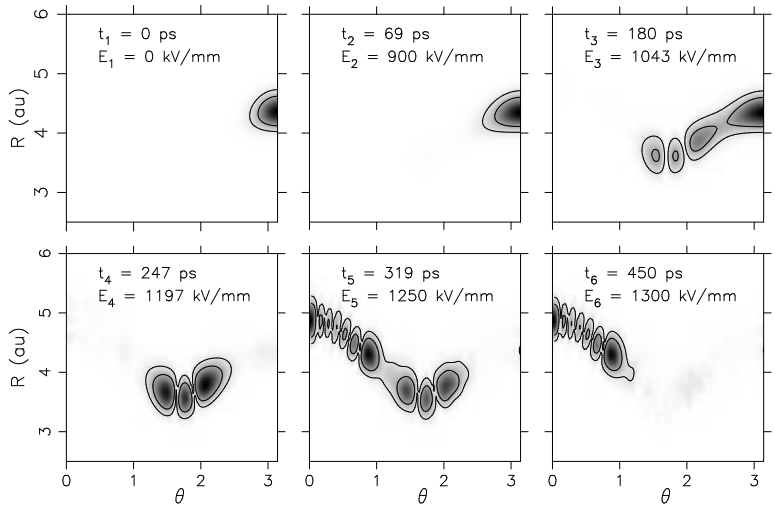

Figura 5.7: Evolución temporal del valor absoluto de la función de onda, $|\psi(t)|$, durante el proceso de isomerización. Los tiempos $t_1, ..., t_6$ y los $E_1, ...E_6$ indicados se corresponden con los de las figs. 5.5 y 5.6.

instantes más relevantes de la evolución. Como podemos ver, el proceso comienza con el estado fundamental del LiCN sin campo eléctrico en $t_1 = 0$. Poco después, en $t_2 = 69$ ps, la función de onda ha cambiado apreciablemente pero aún conserva su estructura nodal y el tipo de localización. La primer transición adiabática ocurre en torno a $t_3 = 180$ ps, donde el estado comienza a transformarse en el híbrido con una estructura centrada en un valor intermedio de θ. Esta estructura híbrida ya esta completamente desarrollada en $t_4 = 247$ ps. Luego en $t_5 = 319$ ps, tenemos la función de onda atravesando el centro del segundo anticruce adiabático, y finalmente, en $t_6 = 450$ ps alcanzamos el isómero LiCN que buscamos.

De esta forma hemos aplicado en forma exitosa nuestro método de control, previamente implementado en una estructura semiconductora, proponiendo una solución simple al problema de isomerización del sistema molecular LiCN. Aunque el LiCN satisface las condiciones necesarias para la aplicación del método de control (la presencia de cruces evitados bien definidos en el espectro de energía como función del parámetro), mostramos que la estrategia de control no puede ser aplicada en la forma más directa, y algunos cuidados deben ser tenidos en cuenta para lograr un camino de control factible y efectivo.

Luego de calcular y analizar el espectro de energía vibracional en función del campo eléctrico, obtuvimos una dependencia temporal adecuada del campo eléctrico que nos permitió llevar la molécula desde su estado fundamental, LiNC, hasta el isómero LiCN en un lapso de 450 ps, alcanzando un estado final cuyo overlap cuadrado con el estado buscado es igual a 0.99. Naturalmente, también es posible acceder, además del LiCN de nuestro ejemplo, a un amplio conjunto de estados. En particular, por ejemplo, podemos continuar el camino empleado redirigiendo el estado hacia el primer estado ligado del pozo de potencial correspondiente al LiCN.

Capítulo 6

Conclusiones

En esta tesis hemos propuesto un método de control cuántico muy simple que es aplicable a diversos sistemas, y que permite recorrer el espacio de estados mediante una secuencia de variaciones diabáticas y adiabáticas de un parámetro externo. La estrategia para manipular sistemas cuánticos está basada en el conocimiento del espectro de energía en función del parámetro de control y requiere que el espectro posea cruces evitados bien definidos y que el sistema se comporte localmente, cerca de cada anticruce, como un sistema de Landau-Zener.

Si bien el modelo de Landau-Zener, que es una de las piezas fundamentales de nuestro método de control, es conocido desde 1932 y desde entonces ha sido intensamente empleado en sistemas de pocos niveles, en este trabajo mostramos que también es aplicable a sistemas realistas más complejos, permitiéndonos manipularlos de una forma sumamente versátil y eficiente.

La estrategia de control fue aplicada exitosamente en dos sistemas cuánticos diferentes: dos puntos cuánticos acoplados con dos electrones interactuantes, y una molécula de cianuro de litio. En ambos casos mostramos que, empleando un campo eléctrico externo como parámetro de control, es posible navegar por el espectro de energía en función del campo y conectar estados lejanos con una muy elevada fidelidad.

Las primeras simulaciones numéricas del método de control fueron hechas en un sis-

tema realista de dos puntos cuánticos acoplados en una estructura semiconductora de AlGaAs con dos electrones interactuantes atrapados. Se observó que, en la región considerada del espectro de energía en función del campo eléctrico, se pueden distinguir claramente tres conjuntos de rectas diabáticas, correspondiendo cada uno de ellos a un tipo de localización diferente de los electrones: las rectas con pendientes positivas corresponden a autoestados con ambos electrones localizados en el pozo derecho, las pendientes negativas están asociadas a estados con ambos electrones en el pozo izquierdo y las rectas horizontales a estados con un electrón en cada punto cuántico. La nitidez de estas rectas diabáticas permitió distinguir claramente los diferentes cruces evitados y se verificó que en la proximidad de cada uno de ellos la evolución del sistema es notablemente bien descripta por el modelo de dos niveles de Landau-Zener.

La existencia de cruces evitados bien definidos y la aplicabilidad del modelo de Landau-Zener nos permitieron recorrer con facilidad las curvas del espectro de energía y de este modo logramos controlar diferentes aspectos de la función de onda, como el tipo de localización y la estructura nodal. En sendos ejemplos mostramos que, partiendo del estado fundamental sin campo eléctrico, es posible alcanzar el cuarto estado excitado con un electrón en cada pozo y el 17º estado adiabático, con una probabilidad final del orden de 0,9 y en un lapso de menos de 1 ns.

Una aplicación interesante y muy sencilla de nuestro método de control, consiste en localizar ambos electrones en el mismo punto cuántico y luego mantenerlos confinados en ese pozo. Este problema ya había sido abordado por otro autores, quienes sugirieron el *sudden switch* como método de localización. En este trabajo contrastamos nuestra técnica de control (el método adiabático), con el *sudden switch* mostrando que ambas estrategias requieren tiempos de localización similares, aunque el método adiabático posee dos ventajas: permite alcanzar una mayor probabilidad de localización y es más robusto. Además, analizando el espectro de energía, hallamos una explicación satisfactoria para el método *sudden switch* que no estaba presente en la literatura.

Permitiendo en los cruces evitados no sólo transiciones diabáticas y adiabáticas, sino también variaciones del campo eléctrico con velocidades intermedias, se obtuvo una generalización del método de control que permitió obtener superposiciones de diferentes estados adiabáticos. De esta forma se extendió el conjunto de estados accesibles de una

forma significativa.

Tomando como base la localización de los electrones en los distintos pozos, se construyeron estados entrelazados y en particular se obtuvieron los estados de Bell simétricos. La idea del entrelazamiento en localización para electrones atrapados en dos puntos cuánticos acoplados ya había sido explorada por otros autores. Sin embargo, en este trabajo dimos un nuevo paso indicando cómo construir los estados de Bell y mostrando en forma explícita el espacio de localización que nos permitió definir esta clase de entrelazamiento.

Luego de implementar nuestro método de control en una estructura semiconductora con dos puntos cuánticos, aplicamos numéricamente una estrategia similar para manipular la posición relativa de los átomos en un sistema molecular. Empleando un modelo simplificado de la molécula de cianuro de litio, mostramos que es posible navegar en forma eficiente por el espectro de energía vibracional de la molécula, pese a que este espectro posee una complejidad mayor que el del sistema anterior. En particular, hallamos una dependencia temporal del campo eléctrico que nos permitió resolver el problema de isomerización LiNC→LiCN, partiendo del estado fundamental sin campo eléctrico y alcanzando, en un lapso de 450 ps, un overlap con el estado buscado superior a 0,99.

Una limitación de los modelos utilizados en este trabajo consiste en que no fueron consideradas las interacciones con el entorno, que pueden reducir el tiempo de coherencia. Esta restricción podría dificultar la realización práctica de, por ejemplo, los caminos más complejos que fueron simulados en el sistema de dos puntos cuánticos. Sin embargo, los resultados obtenidos muestran que nuestro método de control puede ser empleado en sistemas con características muy diferentes y sugieren que posee un importante potencial en el campo del control cuántico coherente.

Bibliografía

[1] S. Engelberg, *A Mathematical Introduction to Control Theory* (Imperial College Press, Singapure, 2005).

[2] D. D'Alesandro, *Introduction to Quantum Control y Dynamics* (Chapman & Hall/CRC, Boca Raton, 2008).

[3] M. Shapiro y P. Brumer, *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes* (John Wiley & Sons, 2003).

[4] A. P. Peirce, M. Dahleh y H. Rabitz, Phys. Rev. A **37**, 4950 (1988).

[5] N. Khaneja, R. Brockett y S. J. Glaser, Phys. Rev. A **63**, 032308 (2001).

[6] U. Boscain, G. Charlot, J. P. Gauthier, S. Guérin y H. R. Jauslin, J. Math. Phys. **43**, 2107 (2002).

[7] N. Khaneja, T. Reiss, B. Luy y S. J. Glaser, J. Magn. Reson. **162**, 311 (2003).

[8] S. Kuang y S. Cong, Automatica **44**, 98 (2008).

[9] F. Shuang, A. Pechen, T. S. Ho y H. Rabitz, J. Chem. Phys. **126**, 134303 (2007).

[10] R. Romano y D. D'Alesandro, Phys. Rev. Lett. **97**, 080402 (2006).

[11] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus y K. Kompa, Science **288**, 824 (2000).

[12] R. S. Judson y H. Rabitz, Phys. Rev. Lett. **68**, 1500 (1992).

[13] H. M. Wiseman y A. C. Doherty, Phys. Rev. Lett. **94**, 070405 (2005).

[14] C. Ahn, A. C. Doherty y A. J. Landahl, Phys. Rev. A **65**, 042301 (2002).

[15] S. Mancini y H. M. Wiseman, Phys. Rev. A 2007, **75**, 012330 (2007).

[16] J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeidler y M. Motzkus, Nature **417**, 533 (2002).

[17] G. Chen, D. A. Church, B. G. Englert, C. Henkel, B. Rohwedder, M. O. Scully y M. S. Zubairy, *Quantum Computing Devices: Principles, Designs, and Analysis* (Chapman & Hall/CRC, Boca Raton, 2007).

[18] P. Michler, *Single Semiconductor Quantum Dots* (Springer, Berlin, 2009).

[19] R. W. Knoss, *Quantum Dots. Research, Technology and Applications* (Nova Science Publishers, New York, 2009).

[20] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie y A. J. Shields, Nature **439**, 179 (2005).

[21] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard y J. Bloch, Phys. Rev. Lett. **95**, 067401 (2005).

[22] J. Berezovsky, M. H. Mikkelsen, N. G. Stoltz, L. A. Coldren y D. D. Awschalom, Science **320**, 349 (2008).

[23] H. J. Krenner, M. Sabathil, E. C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter y J. J. Finley, Phys. Rev. Lett. **94**, 057402 (2005).

[24] D. Loss y D. P. DiVincenzo, Phys. Rev. A **57**, 120 (1998).

[25] G. Burkard, D. Loss, D. P. DiVincenzo, Phys. Rev. B **59**, 2070 (1999).

[26] K. J. Xu, Y. P. Huang, M. G. Moore y C. Piermarocchi, Phys. Rev. Lett. **103**, 037401 (2009).

[27] D. Evanko, Nature Methods **3**, 240 (2006).

[28] M. A. Walling, J. A. Novak y J. R. E. Shepard, Int. J. Mol. Sci. **10**, 441 (2009).

[29] A. M. Smith, G. Ruan, M. N. Rhyner y S. M. Nie, Annals of Biomedical Engineering **34**, 3 (2006).

[30] J. R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson y A. C. Gossard, Science **309**, 2180 (2005).

[31] J. Särkkä y A. Harju, Phys. Rev. B **80**, 045323 (2009).

[32] F. Grossmann, T. Dittrich, P. Jung y P. Hänggi, Phys. Rev. Lett. **67**, 516 (1991).

[33] R. Bavli y H. Metiu, Phys. Rev. Lett. **69**, 1986 (1992).

[34] C. E. Creffield y G. Platero, Phys. Rev. B **65**, 113304 (2002).

[35] P. I. Tamborenea y H. Metiu, Europhys. Lett. **53**, 776 (2001).

[36] R. G. Unanyan, N. V. Vitanov y K. Bergmann, Phys. Rev. Lett. **87**, 137902 (2001).

[37] C. Zener, Proc. R. Soc. London, Ser. A **137**, 696 (1932).

[38] L. Landau, Phys. Sov. Union **2**, 46 (1932).

[39] R. Khomeriki y S. Ruffo, Phys. Rev. Lett. **94**, 113904 (2005).

[40] F. H. Mies, E. Tiesinga y P. S. Julienne, Phys. Rev. A **61**, 022721 (2000).

[41] R. Suzuki, S. N. Rai, H. P. Liebermann, Robert J. Buenker, L. Pichl y M. Kimura, Phys. Rev. A **72**, 052710 (2005).

[42] Y. Abe y J. Y. Park, Phys. Rev. C **28**, 2316 (1983).

[43] E. Vliegen, H. J. Wörner, T. P. Softley y F. Merkt Phys. Rev. Lett. **92**, 033005 (2004).

[44] N. Saquet, A. Cournol, J. Beugnon, J. Robert, P. Pillet y N. Vanhaecke, Phys. Rev. Lett. **104**, 133003 (2010).

[45] J. Liu, B. Liu y L. B. Fu Phys. Rev. A **78**, 013618 (2008).

[46] A. Zazunov, A. Schulz y R. Egger, Phys. Rev. Lett. **102**, 047002 (2009).

[47] A. Erdélyi, W. Magnus, F. Oberhettinger y F. G. Tricomi, *Higer Trascendental Functions. Vol. II* (McGraw-Hill, New York, 1953).

[48] *Handbook of Mathematical Functions*, editado por M. Abramowitz y I. A. Stegun (Dover, New York, 1964).

[49] C. Witting, Journal of Physical Chemistry B **109**, 8428 (2005).

[50] Y. N. Demkov y V. I. Osherov, Sov. Phys. JETP **24**, 916 (1968).

[51] Y. N. Demkov y V. N. Ostrovsky, J. Phys. B **34**, 2419 (2001).

[52] Y. Kayanuma y S. Fukichi, J. Phys. B **18**, 4089 (1985).

[53] N. A. Sinitsyn, Phys. Rev. B **66**, 205303 (2002).

[54] G. S. Vasilev, S. S. Ivanov y N. V. Vitanov, Phys. Rev. A **75**, 013417 (2007).

[55] A. Altland y V. Gurarie, Phys. Rev. Lett. **100**, 063602 (2008).

[56] N. Rosen y C. Zener, Phys. Rev. 40, **502**, (1932).

[57] E. E. Nikitin y S. Y. Umanskii, *Theory of Slow Atomic Collisions* (Springer, Berlin, 1984).

[58] N. V. Vitanov y B. M. Garraway, Phys. Rev. A **53**, 4288 (1996).

[59] Vladimir I. Osherov y H. Nakamura, Phys. Rev. A **59**, 2486 (1999).

[60] M. V. Barry, Proc. R. Soc. London A **392**, 45 (1984).

[61] M. Gell-Man y G. Low, Phys. Rev. **84**, 350 (1951).

[62] E. Farhi, J. Goldstone, S. Gutmann, J. Lapan, A. Lundgren y D. Preda, Science **292**, 472 (2001).

[63] D. Aharonov, W. van Dam, J. Kempe, Z. Landau, S. Loid y O. Regev, SIAM J. Comp. **37**, 166 (2007).

[64] M. Born y V. Fock , Z. Phys. **51**, 165 (1928).

[65] P. Ehrenfest, Ann. Phys. **51**, 327 (1916).

[66] T. Kato, J. Phys. Soc. Jpn. **5**, 435 (1950).

[67] G. Nenciu, J. Phys. A **13**, L15 (1980).

[68] J. E. Avron, R. Seiler y L. G. Yaffe, Commun. Math. Phys. **110**, 33 (1987).

[69] J. E. Avron, Commun. in Math. Phys. **203**, 445 (1999).

[70] L. I. Schiff, *Quantum Mechanics* (Mc. Graw-Hill, New York, 1949).

[71] D. Bohm, *Quantum Theory* (Prentice-Hall, New York, 1951).

[72] A. Messiah, *Quantum mechanics* (North-Holland, 1962).

[73] K. P. Marzlin y B. C. Sanders, Phys. Rev. Lett. **93**, 160408 (2004).

[74] D. M. Tong, K. Singh, L. C. Kwek y C. O. Oh, Phys. Rev. Lett. **98**, 150402 (2007).

[75] F. Bloch, Physics Review **70**, 460 (1946).

[76] P. I. Tamborenea y H. Metiu, Phys. Rev. Lett. **83**, 3912 (1999).

[77] P. Zhang y X. G. Zhao, Phys. Lett. A **271**, 419 (2000).

[78] P. Zhang y X. G. Zhao, J. Phys. Condens. Matter **13**, 8389 (2001).

[79] P. Zhang, Q. Xue, X. Zhao y X. C. Xie, Phys. Rev. A, **66**, 022117 (2002).

[80] E. Paspalakis, Phys. Rev. B **67**, 233306 (2003).

[81] L. M. Wang, S. Q. Duan, X. G. Zhao y C. S. Liu, Chin. Phys. Lett. **21**, 370 (2004).

[82] E. Paspalakis y A. Terzis, J. App. Phys. **95**, 1603 (2004).

[83] C. E. Creffield y G. Platero, Phys. Rev. B **69**, 165312 (2004).

[84] G. E. Murgida, D. A. Wisniacki y P. I. Tamborenea, Phys. Rev. Lett. **99**, 036806 (2007).

[85] D. A. Wisniacki, G. E. Murgida y P. I. Tamborenea, AIP Proc. **963**, 840 (2007).

[86] G. E. Murgida, D. A. Wisniacki y P. I. Tamborenea, J. Mod. Opt. **56**, 799 (2009).

[87] G. E. Murgida, D. A. Wisniacki y P. I. Tamborenea, Phys. Rev. B. **79**, 035326 (2009).

[88] B. E. Kane, Nature **393**, 133 (1998).

[89] M. A. Nielsen y I. L. Chuang, *Quantum Computation y Quantum Information* (Cambriedge University Press, Cambriedge, 2000).

[90] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood y I. L. Chuang, Nature **414**, 883 (2001).

[91] M. O. Scully y M. Zubairy, *Quantum Optics* (Cambriedge University Press, Cambridge, 1997).

[92] L. M. K. Vandersypen y I. L. Chuang, Rev. Mod. Phys. **76**, 1037 (2004).

[93] D. Stick, W. K. Hensinger, S. Olmschenk, M. J. Madsen, K. Schwab y C. Monroe, Nature Physics **2**, 36 (2006).

[94] H. Häffner, W. Hänsel, C. F. Roos, J. Benhelm, D. Chek-al-kar, M. Chwalla, T. Körber, U. D. Rapol, M. Riebe, P. O. Schmidt, C. Becher, O. Gühne, W. Dür y R. Blatt, Nature **438**, 643 (2005).

[95] H. Walther, B. T. H. Varcoe, B. Englert y T. Becker, Rep. Prog. Phys. **69**, 1325 (2006).

[96] T. Obata, M Pioro-Ladrière, Y. Tokura, Y. Shin, T. Kubo, Katsuharu Yoshida, T. Taniyama y S. Tarucha, Phys. Rev. B **81**, 085317 (2010).

[97] C. Cohen-Tannoudji, *Quantum mechanics. Vol I* (Wiley, 1977).

[98] L. E. Ballentine, *Quantum Mechanics: A Modern Development* (World Scientific Publishing, Singapure ,1998).

[99] G. E. Murgida, D. A. Wisniacki, P. I. Tamborenea, F. Borondo, enviado a J. of Chem. Phys.

[100] F. Borondo y R. M. Benito en *Non–Linear Dynamics and Fundamental Interactions*, editado por F. Khanna y D. Matrasulov, NATO Science Series II, vol. **213** (North–Holland, Dordrecht, 2006). pp. 115–128.

[101] J. N. Murrell, S. Carter y L. O. Halonen, J. Mol. Spectros. **93**, 307 (1982); Waalkens H. Burbanks A. y Wiggins S. Phys. Rev. Lett. **95** 084301 (2005).

[102] D. K. Lee, I. S. Lim, Y. S. Lee, D. Hagenbaum–Reignier y G. H. Jeung, J. Chem. Phys. **126**, 244313 (2007).

[103] P. Venkateswarlu, J. of Chem. Phys. **19**, 293 (1951).

[104] H. Ishikawa, R. W. Field, S. C. Farantos, M. Joyeux, J. Koput, C. Beck y R. Schinke, Annu. Rev. Phys. Chem. **50**, 443 (1999).

[105] Z. S. Safi, J. C. Losada, R. M. Benito y F. Borondo, J. Chem. Phys. **129**, 164316 (2008).

[106] A. J. C. Varandas, J. Brandão y L. A. M. Quintales, J. Phys. Chem. **92**, 3732 (1988).

[107] A. Gamboa, H. Hernández, J. A. Ramilowski, J. C. Losada, R. M. Benito, F. Borondo y D. Farrelly, J. Chem. Phys. **11**, 8203 (2009).

[108] J. Tennyson y B. T. Sutcliffe, J. Chem. Phys. **77**, 4061 (1982).

[109] R. Essers, J. Tennyson y P. E. S. Wormer, Chem. Phys. Lett. **89**, 223 (1982).

[110] Z. Băcić y J. C. Light, J. Chem. Phys. **85**, 4594 (1986).

[111] B. Bak, E. Clementi y R. N. Kortzeborn, J. Chem. Phys. **52**, 764 (1970).

[112] A. A. Efimov, F. Borondo y R. M. Benito, Physics y Control 2005, Proceedings, St. Petesburg (2005).

[113] B. H. Bransden y C. J. Joachain, *Quantum Mechanics* (Pearson Prentice Hall, Harlow, 2000).

[114] F. T. Smith Phys. Rev. **179**, 111 (1969).

[115] F. J. Arranz, R. M. Benito y F. Borondo, J. Chem. Phys. **107**, 2395 (1997).

Publicaciones

I. G. E. Murgida, D. A. Wisniacki y P. I. Tamborenea, Phys. Rev. Lett. **99**, 036806 (2007).

II. D. A. Wisniacki, G. E. Murgida y P. I. Tamborenea, AIP Proc. **963**, 840 (2007).

III. G. E. Murgida, D. A. Wisniacki y P. I. Tamborenea, J. Mod. Opt. **56**, 799 (2009).

IV. G. E. Murgida, D. A. Wisniacki y P. I. Tamborenea, Phys. Rev. B. **79**, 035326 (2009).

V. G. E. Murgida, D. A. Wisniacki, P. I. Tamborenea y F. Borondo, enviado a J. of Chem. Phys.