

Universidade Federal de Minas Gerais
Escola de Engenharia
Programa de Pós-Graduação em Engenharia Elétrica

Tiago Abreu Freitas

**Tomografia de estados de pares de fótons Stokes e
anti-Stokes oriundos do espalhamento inelástico de luz
no diamante e violação de desigualdade de Bell**

Belo Horizonte

2023

Tiago Abreu Freitas

Tomografia de estados de pares de fótons Stokes e anti-Stokes oriundos do espalhamento inelástico de luz no diamante e violação de desigualdade de Bell

Tese de Doutorado submetida à Banca Examinadora designada pelo Colegiado do Programa de Pós-Graduação em Engenharia Elétrica da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito para obtenção do Título de Doutor em Engenharia Elétrica.

Orientador: Ado Jorio de Vasconcelos
Coorientador: Carlos Henrique Monken

Belo Horizonte
2023

F866t

Freitas, Tiago Abreu.

Tomografia de estados de pares de fótons Stokes e anti-Stokes oriundos do espalhamento inelástico de luz no diamante e violação de desigualdade de Bell [recurso eletrônico] / Tiago Abreu Freitas. - 2023. 1 recurso online (110 f. : il., color.) : pdf.

Orientador: Ado Jorio de Vasconcelos.
Coorientador: Carlos Henrique Monken.

Tese (doutorado) - Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.

Apêndices: f. 109-110.

Bibliografia: f. 102-108.
Exigências do sistema: Adobe Acrobat Reader.

1. Engenharia elétrica - Teses. 2. Informação quântica - Teses.
3. Raman, Efeito de - Teses. 4. Emaranhamento - Teses.
I. Vasconcelos, Ado Jório de. II. Monken, Carlos Henrique, \d1959 - .
III. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia.
IV. Título.

CDU: 621.3(043)



UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS
ESCOLA DE ENGENHARIA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA ELÉTRICA

FOLHA DE APROVAÇÃO

"TOMOGRAFIA DE ESTADOS DE PARES DE FÓTONS STOKES E ANTI-STOKES ORIUNDOS DO ESPALHAMENTO INELÁSTICO DE LUZ NO DIAMANTE E VIOLAÇÃO DE DESIGUALDADE DE BELL"

TIAGO ABREU FREITAS

Tese de Doutorado submetida à Banca Examinadora designada pelo Colegiado do Programa de Pós-Graduação em Engenharia Elétrica da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito para obtenção do grau de Doutor em Engenharia Elétrica. Aprovada em 30 de novembro de 2023. Por:

Prof. Dr. Ado Jorio de Vasconcelos
(UFMG) - Orientador

Prof. Dr. Carlos Henrique Monken
DF (UFMG)

Prof. Dr^a. Luciana Pedrosa Salles
DEE (UFMG)

Prof. Dr. Gilberto Medeiros Ribeiro
(UFMG)

Prof. Dr. Eduardo Bede Barros
Física (UFC)

Prof. Dr. Paulo Henrique Souto Ribeiro
Física (UFSC)



Documento assinado eletronicamente por **Ado Jorio de Vasconcelos, Professor do Magistério Superior**, em 30/11/2023, às 17:36, conforme horário oficial de Brasília, com fundamento no art. 5º do [Decreto nº 10.543, de 13 de novembro de 2020](#).



Documento assinado eletronicamente por **Carlos Henrique Monken, Professor do Magistério Superior**, em 30/11/2023, às 17:37, conforme horário oficial de Brasília, com fundamento no art. 5º do [Decreto nº 10.543, de 13 de novembro de 2020](#).



Documento assinado eletronicamente por **Luciana Pedrosa Salles, Professora do Magistério Superior**, em 01/12/2023, às 15:14, conforme horário oficial de Brasília, com fundamento no art. 5º do [Decreto nº 10.543, de 13 de novembro de 2020](#).



Documento assinado eletronicamente por **Paulo Henrique Souto Ribeiro, Usuário Externo**, em 05/12/2023, às 07:30, conforme horário oficial de Brasília, com fundamento no art. 5º do [Decreto nº 10.543, de 13 de novembro de 2020](#).



Documento assinado eletronicamente por **Eduardo Bedê Barros, Usuário Externo**, em 05/12/2023, às 13:49, conforme horário oficial de Brasília, com fundamento no art. 5º do [Decreto nº 10.543, de 13 de novembro de 2020](#).



Documento assinado eletronicamente por **Gilberto Medeiros Ribeiro, Membro de comissão**, em 11/12/2023, às 10:31, conforme horário oficial de Brasília, com fundamento no art. 5º do [Decreto nº 10.543, de 13 de novembro de 2020](#).



A autenticidade deste documento pode ser conferida no site https://sei.ufmg.br/sei/controlador_externo.php?acao=documento_conferir&id_orgao_acesso_externo=0, informando o código verificador **2842645** e o código CRC **F907C39A**.

Dedico este trabalho a Deus, a minha esposa Karla e a minha filha Lara.

Agradecimentos

Agradeço primeiramente a Deus por ter me sustentado durante todos os dias da minha vida e ter me dado o discernimento para tomar as decisões corretas nos momentos mais importantes e delicados da minha vida até este momento.

Meu especial agradecimento à minha esposa Karla pelo amor, carinho e compreensão durante toda a caminhada. Por me incentivar e apoiar nos momentos mais difíceis, quando muitas vezes pensei em desistir sempre me motivou a continuar. A minha filha Lara por trazer calma, paz e conforto em momentos de tribulação. Aos meus pais pelos ensinamentos, em especial à minha mãe, que sempre me incentivou a seguir em frente, pelas palavras de afeto e ânimo nos momentos em que mais precisava.

Meus sinceros agradecimentos ao professor Ado Jório pelo acolhimento, ensinamentos, paciência, apoio e orientação desde minha chegada à UFMG. Por todo o suporte ao longo desses quase oito anos de convivência, sendo um exemplo de profissional.

Ao professor Carlos Monken, pela coorientação, pelos ensinamentos em ótica e ótica quântica no decorrer do experimentos realizados.

Aos professores e colegas do LabNS pelas orientações, conselhos e companheirismo durante toda a jornada.

Aos meus amigos e familiares que contribuíram, direta ou indiretamente, nessa minha jornada. Também a minha família de fé pela amizade e sustento em orações.

Às agências de fomento, CNPq e CAPES por financiarem minha bolsa de estudos e, juntamente com a FAPEMIG, pelo apoio financeiro aos projetos de pesquisas, auxiliando na compra de equipamentos e participações em congressos.

Porque sou eu que conheço os planos que tenho para vocês", diz o Senhor, "planos de fazê-los prosperar e não de lhes causar dano, planos de dar-lhes esperança e um futuro. Então vocês clamarão a mim, virão orar a mim, e eu os ouvirei. Vocês me procurarão e me acharão quando me procurarem de todo o coração.

Jeremias 29:11-13

Resumo

As últimas décadas foram marcadas por intensas pesquisas voltadas para a evolução dos sistemas computacionais e de comunicação. Dentro desse contexto, a computação quântica tem sido uma das áreas que mais despertam interesse e esforços por parte dos pesquisadores, devido ao imenso potencial oferecido. Pesquisas de informação quântica têm passado por inúmeros estágios de evolução, sendo que o transporte fotônico apresenta-se como um dos mais promissores para o processamento de informações. Dentro do contexto da utilização de fótons para o transporte de informação, a espectroscopia Raman, que consiste em uma técnica de espectroscopia ótica baseada no espalhamento inelástico da luz, onde os fótons espalhados carregam informação referente à energia de vibração do meio, apresenta-se como uma via interessante para a codificação e transporte quântico de informação. Neste trabalho exploramos o fenômeno do espalhamento Raman Stokes-anti-Stokes(SaS) correlacionado, analisando o caráter quântico do fenômeno. Foi realizada toda a implementação do aparato experimental para a medida do caráter de correlação dos fótons gerados neste fenômeno em diamante, confirmando seu caráter quântico e otimizando o fenômeno para uma análise mais completa do processo, afim de confirmar se além de correlacionado, o par de fótons do processo SaS seria também emaranhando. Inicialmente, estudamos a dependência da eficiência do fenômeno com diferentes lasers (contínuo, pulsado em ps e fs, e diferentes comprimentos de onda), e a dependência da função correlação com o deslocamento Raman. Estes estudos demonstraram que a melhor configuração para a realização do estudo referente ao possível emaranhamento do processo seria utilizando o laser de fs em 785nm. Como próximos passos, foram realizadas medidas de tomografia de estado para caracterização completa do estado de polarização do par de fótons SaS. Durante esse estudo foi possível observar a influência da orientação cristalográfica do diamante no estado de polarização, o que influencia diretamente na geração do par de fótons SaS emaranhados. Por fim medidas de desigualdade de Bell do tipo CHSH foram realizadas para confirmar o estado emaranhado em polarização do processo SaS.

Palavras-chave: informação quântica; espalhamento Raman; correlação Stokes e anti-Stokes; emaranhamento.

Abstract

The last decades have been marked by intense research on the evolution of computer and communication systems. Within this context, quantum computing has been one of the areas that generated large interest and effort from researchers due, to the immense potential offered. Quantum information research has been through numerous evolutionary stages, and photonic transport is one of the most promising methods for information processing. Within the context of the use of photons for information transportation, Raman spectroscopy, which consists of an optical spectroscopy technique based on the inelastic scatter of light, where the scattered photons carry information from the vibration structure of the medium, is presented as an exciting way for coding and transportation of quantum information. In this work, we explore the phenomenon of correlated Stokes-anti-Stokes (SaS) Raman scattering, analyzing the quantum character of the phenomenon. The implementation of the experimental apparatus was performed for the measurement of the correlation of the photons generated in this phenomenon in diamond, confirming its quantum character and optimizing the phenomenon for a complete analysis of the process in order to confirm that besides being correlated, the pair of SaS photons would also be entanglement. Initially, we studied the dependence on phenomenon efficiency with different lasers (continuous, ps, and fs pulsed, and different wavelengths) and the dependence on the correlation function with the Raman shift. These studies have shown that the best configuration for the study regarding the possible entanglement of the process would be using the fs laser in 785nm. In the following steps, state tomography measurements were performed to completely characterize the polarization state of the SaS pair. During this study, it was possible to observe the influence of the crystallographic orientation of the diamond on the SAS polarization state, which directly influences the generation of entanglement. Finally, Bell's inequality measurements of the CHSH type were performed to confirm the entanglement in polarization of the SaS state.

Keywords: quantum information; Raman scattering; Stokes and anti-Stokes correlation; entanglement.

Lista de Ilustrações

Figura 1 – Diagrama de estados do material para espalhamento Raman, resultado da diferença de energia entre os estados inicial e final. O mudança energética da luz no processo Raman anti-Stokes é positiva, o processo Raman Stokes é negativa, e no espalhamento de Rayleigh (elástico) é nula. Adaptada de (RABELO, 2019)	28
Figura 2 – Radiação eletromagnética linearmente polarizada propagando-se no eixo z. \vec{E} é o campo elétrico, \vec{B} é o campo magnético e λ é o comprimento de onda. Adaptada de (HECHT, 2017)	29
Figura 3 – (a)Diagrama de estado do material para Stokes não correlacionados (esquerda) e anti-Stokes (à direita) Raman espalhamento, resultado da diferença de energia entre os estados inicial e final do fóton. (b) Diagrama de estado do espalhamento correlacionado do SaS Raman. Em ambas as figuras "L"(vermelho) refere-se ao laser, a seta laranja é o fóton Stokes, a seta amarela é o fóton anti-Stokes e a linha verde representam a criação do fônon.	31
Figura 4 – Representação da esfera de Bloch de um qubit. Enquanto um bit clássico só representa dois valores possíveis, representados pelo vetor $ \psi\rangle$ em $ 0\rangle$ ou $ 1\rangle$, o qubit pode estar em qualquer ponto da superfície da esfera.	37
Figura 5 – Resumo dos módulos da montagem experimental. Diagrama adaptado de (JUNIOR, 2020).	46
Figura 6 – Fonte de excitação da amostra: montagem ótica. O laser com polarização H emitido pelo MIRA, é direcionado ao microscópio ótico por um espelho de prata (M), antes passando uma placa de meia onda($\lambda/2$) e um divisor de feixe polarizado (PBS), para controle da potência. Em seguida passa por dois filtros de interferência passa banda ($(BP_1(FF01-786/22),BP_2(785/40))$). Os espelhos indicados na figura por E são espelhos dielétricos apropriados pra uso com altas potência. Extraída de (JUNIOR, 2020).	47
Figura 7 – Estrutura interna laser Mira da Coherent.	47

Figura 8 – Fonte de excitação da amostra: montagem ótica. O laser com polarização H emitido pelo Pico Emerald é direcionado ao microscópio ótico por um conjunto de espelhos de prata (M), passando por dois filtro de interferência passa banda (BP_1 (FF01-786/22), BP_2 (785/40)).	49
Figura 9 – Espectro de transmissão do filtro passa-banda FF01-786/22. Dados extraídos do site da Semrock https://www.semrock.com/ em 30/06/2023.	50
Figura 10 – Espectro de transmissão do filtro passa-banda 785/40. Dados extraídos do site da Chroma https://www.chroma.com em 30/06/2023.	50
Figura 11 – Detalhamento do espalhamento Raman transmitido. (a) A objetiva na parte superior do microscópio ótico foca o laser na amostra, e uma objetiva inferior coleta o sinal que é espalhado pela amostra, dentro de um ângulo α . (b) determinado pela abertura numérica, $NA = n \sin(\alpha)$ (n refere-se ao índice de refração do meio) da objetiva de 90x. Diagrama adaptado de (JUNIOR, 2020).	51
Figura 12 – Esquema da montagem para análise do espalhamento Raman na direção da luz incidente. Notch (N_L) refere-se ao filtro de interferência que bloqueia o espalhamento Rayleigh. L_1, L_2 e L_3 são lentes esféricas acromáticas plano convexas, M é um espelho de prata, escamoteável que é utilizado para direcionar o sinal para o espectrômetro. Diagrama adaptado de (JUNIOR, 2020).	52
Figura 13 – Espectro de transmissão do filtro notch NF03-785E. Dados extraídos do site da Semrock https://www.semrock.com/ em 30/06/2023.	53
Figura 14 – Eficiência das grades de difração do espectrômetro SP2356, em função do comprimento de onda Em (a) a eficiência da grade de resolução 300g/mm e em (b) a eficiência da grade de resolução 1200g/mm. Dados extraídos do manual do fabricante (INSTRUMENTS, 2017).	53
Figura 15 – Eficiência da CCD PIXIS 256BR, em função do comprimento de onda. Dados extraídos do manual do fabricante (INSTRUMENTS, 2020).	54
Figura 16 – Montagem ótica para detecção em coincidência dos fótons S e aS com filtragem por monocromador. N_L é um filtro <i>notch</i> centrado no comprimento de onda do laser. <i>Dic.</i> é um divisor de feixe dicróico. $L_{S,aS}$ refere-se a lentes acromáticas plano convexa que focalizam o sinal Raman nos respectivos APD's. M são espelhos de prata que direcionam o sinal S para o monocromador e posteriormente para a APD.	55
Figura 17 – Eficiência das grade da grade do monocromador Cornestone 260, em função do comprimento de onda. Dados extraídos do manual do fabricante (CORPORATION,).	56

Figura 18 – Montagem ótica para detecção em coincidência dos fótons S e aS com filtragem por filtros óticos. N_L é um filtro <i>notch</i> centrado no comprimento de onda do laser. <i>Dic.</i> é um divisor de feixe dicróico. $BP_{S,aS}$ são filtros passa banda no comprimento de onda Stokes e anti-Stokes, respectivamente, e $L_{S,aS}$ refere-se a lentes acromáticas plano convexas que focalizam o sinal Raman nos respectivos APD's. Adaptado de (JUNIOR, 2020)	57
Figura 19 – APD SPCM-AQRH-14. Imagem retirada do manual do fornecedor (TECHOLOGIES, 2020)	57
Figura 20 – Eficiência do APD SPCM-AQRH-14, em função do comprimento de onda. Imagem retirada do manual do fornecedor (TECHOLOGIES, 2020)	58
Figura 21 – Correlacionador temporal PicoHarp300. Imagem retirada da página web do fornecedor: https://www.picoquant.com/ em 20/05/2021	58
Figura 22 – O módulo SIA 400 é um módulo passivo cuja funcionalidade é inverter e atenuar (20 dB) pulsos TTL produzidos, neste caso, pelos APD's utilizados, para pulsos negativos compatíveis com unidades PicoQuant . Imagem retirada da página web do fornecedor: https://www.picoquant.com/ em 20/05/2021	59
Figura 23 – Esquema do circuito digital do PicoHarp 300. Adaptada de (WAHL, 2007)	59
Figura 24 – Esquema de detecção de contagem em coincidência e construção do histograma de correlação.	60
Figura 25 – Esquemático da medida de contagem em coincidência. À esquerda, encontra-se descrito o processo de detecção dos fótons Stokes e anti-Stokes nos APD's. À direita, temos descrito o processo de leitura realizada e a correlação temporal entre os pulsos dos dois APD's. Durante um período de medição T , quando ocorre qualquer sobreposição temporal entre os pulsos emitidos pelos APD's, dentro de uma janela T_R , uma coincidência é computada. Fonte:(JUNIOR, 2020)	61
Figura 26 – Uma placa de meia onda gira o sinal do laser inicialmente linearmente polarizada em um ângulo θ através de um ângulo total de 2θ . A luz incide no primeiro e terceiro quadrantes, e surge oscilando no segundo e quarto quadrantes. Extraída de (HECHT, 2017)	62
Figura 27 – A placa de um quarto de onda transforma a luz inicialmente linearmente polarizada em um ângulo de 45° do seu eixo ótico, em luz circularmente polarizada a direita (girando no sentido horário olhando em direção à fonte). Extraída de (HECHT, 2017).	63
Figura 28 – Rotacionador de placas. Fonte: Victor Monken	64
Figura 29 – Suporte Rolamento. Fonte: Victor Monken	64

Figura 30 – Montagem Rotacionador de placas. Fonte: Victor Monken	65
Figura 31 – Esquema geral do sistema de automatização das placas de onda. Em (a) os motores de passo, modelo NEMA17 de 1.5A, utilizados para rotacionar as placas de onda. Os mesmos foram interligados a módulos de controle <i>Easydriver</i> (b) que recebem comandos de rotação a partir da placa arduino (c).	66
Figura 32 – Interface de controle para rotacionar as placas de ondas.	66
Figura 33 – Esquemático de conexões do sistema de controle de rotação das placas. Os motores são identificado pelo círculo com a letra "M" ao centros. Os módulos de controle são identificados pelos retângulos identificados por cada placa de onda responsável por controlar. Por exemplo, o módulo responsável por controlar a placa de $\lambda/2$ do caminho de medição do fóton Stokes está identificado como <i>L2 – S</i> . As conexões da placa arduino estão representadas na parte superior a esquerda do esquemático. . . .	67
Figura 34 – Espectro Raman do diamante obtido excitando a amostra com laser de fs.	70
Figura 35 – Espectro Raman do diamante obtido excitando a amostra com laser de ps.	70
Figura 36 – Montagem experimental completa, que foi discutida por partes no capítulo 3. A excitação da amostra correspondem à descrição apresentada nas figuras 6 e 8 e a iluminação corresponde à figura 11.	71
Figura 37 – Histograma mostrando o resultado das contagens em coincidências na região do espalhamento real, 1332 cm^{-1} , utilizando os filtros 875/25 nm para APD-S e 711/25 nm para a APD-aS. Em (a) a amostra foi excitada com 5,4 mW de potência do laser de fs, obtendo taxa de contagem na APD-S de 400 kHz e na APD-aS, 2 kHz. Em (b) a amostra foi excitada com 3,7 mW de potência do laser de ps, obtendo taxa de contagem na APD-S de 81,9 kHz e na APD-aS, 0,6 kHz.	73
Figura 38 – Histograma mostrando o resultado das contagens em coincidências na região do espalhamento virtual, 900 cm^{-1} , utilizando os filtros 850/10 nm para APD-S e 730/10 nm para a APD-aS. Em (a) a amostra foi excitada com 52 mW de potência do laser de fs, obtendo taxa de contagem na APD-S de 19 kHz e na APD-aS, 3,3 kHz. Em (b) a amostra foi excitada com 64 mW de potência do laser de ps, obtendo taxa de contagem na APD-S de 21,1 kHz e na APD-aS, 1,73 kHz.	74

Figura 39 – Histograma mostrando o resultado das contagens em coincidências na região do espalhamento virtual, 1700 cm^{-1} , utilizando os filtros 910/10 nm para APD-S e 690/8 nm para a APD-aS. Em (a) a amostra foi excitada com 52 mW de potência do laser de fs, obtendo taxa de contagem na APD-S de 27,4 kHz e na APD-aS 2,85 kHz. Em (b) a amostra foi excitada com 64 mW de potência do laser de ps, obtendo taxa de contagem na APD-S de 22,4 kHz e na APD-aS 0,54 kHz. . . .	75
Figura 40 – Apresentamos a montagem experimental com monocromador, que foi discutida por partes no Capítulo 3. A excitação da amostra corresponde à descrição apresentada nas Figuras 6e 8 e a iluminação corresponde à Figura 11.	77
Figura 41 – Combinações de ângulos placas de onda $\lambda/2$ e $\lambda/4$. Os fótons S e aS foram selecionados combinando as polarizações $V, H, +, -, R$ e L . Os valores dos ângulos atribuídos a cada placa de onda foram calculados em função da seleção da polarização dos fótons de forma a se construir a matriz de densidade na base HV. Fonte: Dra. Paula Machado.	80
Figura 42 – Setup experimental para realização das medida de tomografia de estados do fenômeno SaS. Não era possível prever o que ocorria com os mesmos na ótica de saída do microscópio invertido. Dessa forma optou-se por fazer montagem das objetivas de excitação e coleta na mesa ótica em três estágios de translação lineares micrométricos, o que permite movimentá-la em xyz de forma a coincidir os focos das objetivas utilizadas.	81
Figura 43 – Orientação cristalográfica do diamante.	82
Figura 44 – (a) Espectro Raman típico do diamante obtido com o espectrômetro Raman (Fig. 42). O lado anti-Stokes é amplificado para melhor visualização do pico aS Raman. (b) Dependência angular para a resposta espectral V^iV^s e V^iH^s (intensidade do pico Stokes $+1332\text{ cm}^{-1}$) ao girar o cristal de diamante em relação à polarização da luz incidente. V e H representam polarização de luz vertical e horizontal em relação à referência laboratorial. θ é o ângulo entre a orientação V e a orientação cristalográfica do diamante, para a propagação da luz ao longo da direção (001). Pontos são dados experimentais e linhas são respostas esperadas considerando o tensor Raman α_{xy}^R para o modo T_{2g} no diamante. Pontos pretos para V^iH^s e pontos brancos para V^iV^s . . .	83
Figura 45 – (a) Diamante orientado a $\theta = 0^\circ$ grau coincidindo com o eixo cristalográfico. (b) Diamante rotacionado a $\theta = 45^\circ$ graus em relação ao seu eixo cristalográfico.	84

Figura 46 – Histogramas típicos para correlação de tempo SaS para ressonante $\omega_{S,aS} = \pm 1332 \text{ cm}^{-1}$: (a) $(V_S V_{aS}) \theta = 0^\circ$; (b) $(H_S H_{aS}) \theta = 0^\circ$; (c) $(V_S V_{aS}) \theta = 45^\circ$; (d) $(H_S H_{aS}) \theta = 45^\circ$. Os valores observados de g^2 são exibidos na tabela 8.	85
Figura 47 – Intensidade do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($I_{SaS}(\tau = 0) - \bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do real (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) e $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base +-, e (c-f) referente as medidas na base RL.	86
Figura 48 – Intensidade média das contagens acidentais do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do real (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) and $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base +-, e (c-f) referente as medidas na base RL.	87
Figura 49 – Histogramas típicos para correlação de tempo SaS para ressonante $\omega_{S,aS} = \pm 900 \text{ cm}^{-1}$: (a) $(V_S V_{aS}) \theta = 0^\circ$; (b) $(H_S H_{aS}) \theta = 0^\circ$; (c) $(V_S V_{aS}) \theta = 45^\circ$; (d) $(H_S H_{aS}) \theta = 45^\circ$. Os valores observados de g^2 são exibidos na tabela 10.	89
Figura 50 – Intensidade do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($I_{SaS}(\tau = 0) - \bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do virtual (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) e $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base +-, e (c-f) referente as medidas na base RL.	90
Figura 51 – Intensidade média das contagens acidentais do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do virtual (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) and $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base +-, e (c-f) referente as medidas na base RL.	90

Figura 52 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons reais (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 0^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).	91
Figura 53 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons reais (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 45^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).	92
Figura 54 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons virtuais (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 0^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).	92
Figura 55 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons virtuais (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 45^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).	93
Figura 56 – Análise medidas desigualdade de Bell-CHSH.	95
Figura 57 – Modelo microscópico evidenciando os caminhos em que dois fótons de um laser (ω_L) geram um par SaS (ω_S e ω_{aS}): (a) mistura puramente eletrônica de quatro ondas; (b) processo mediado por fônon, que pode ser ressonante (ii) ou desviado por ressonância: (i) <i>detuning</i> negativo; (iii) <i>detuning</i> positivo. V, H são as polarizações de luz ortogonais. X, Y, Z são os eixos cristalográficos de diamante.	96

Lista de Tabelas

Tabela 1 – Estimativa de ângulos para máxima violação da desigualdade CHSH.	41
Tabela 2 – Correlação SaS obtida nos experimentos realizados com os lasers fs e ps, integradas em um tempo de aquisição de 1800 s, nas regiões do espalhamento real e virtual, conforme descrito no texto.	74
Tabela 3 – Intensidade SaS obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps, nas regiões do espalhamento real e virtual, conforme descrito no texto. fs e ps referem-se às médias das contagens divididas pelo tempo de aquisição para cada laser utilizado. fs_{norm} e ps_{norm} referem-se as medidas normalizadas em função do quadrado da maior potência utilizada para cada laser e posteriormente pelo maior valor de medida observada, que neste experimento foi com a medida realizada com o laser de fs.	76
Tabela 4 – Função de correlação de segunda ordem normalizada $g^{(2)}$ obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps nas regiões do real e virtual, conforme descrito no texto.	76
Tabela 5 – Intensidade SaS obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps utilizando o monocromador, conforme descrito no texto. fs e ps referem-se às médias das contagens divididas pelo tempo de aquisição para cada laser utilizado. fs_{norm} e ps_{norm} referem-se as medidas normalizadas em função do quadrado da maior potência utilizada para cada laser e posteriormente pelo maior valor de medida observada, que neste experimento foi com o laser de ps.	78
Tabela 6 – Função de correlação de segunda ordem normalizada $g^{(2)}$ obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps utilizando o monocromador, conforme descrito acima.	78
Tabela 7 – Valores experimentais medidos e corrigidos na base HV, em função da eficiência do sistema de detecção para a região do real (Raman shift $\sim 1332\text{ cm}^{-1}$). Os resultados demonstram que a detecção do processo pode ser melhorada.	84

Tabela 8	– Valores experimentais para os dados mostrados nas Figuras 47 e 48. As contagens em coincidência e as médias das contagens acidentais são representadas, $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são representadas por kHz , onde $I_{(S)}$ refere-se às contagens na APD Stokes e $I_{(aS)}$ refere-se às contagens na APD anti-Stokes.	87
Tabela 9	– Valores experimentais medidos e corrigidos na base HV, em função da eficiência do sistema de detecção para a região do virtual (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$). Os resultados demonstram que a detecção do processo pode ser melhorada.	88
Tabela 10	– Valores experimentais para os dados mostrados nas Figuras 50 e 51. As contagens em coincidência e as médias das contagens acidentais são representadas, $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são representadas por kHz , onde $I_{(S)}$ refere-se às contagens na APD Stokes e $I_{(aS)}$ refere-se às contagens na APD anti-Stokes.	89
Tabela 11	– Concorrência e pureza obtidos da tomografia de estado de densidade SaS em $\theta = 0^\circ$ e 45° , nas regiões do real e virtual.	93
Tabela 12	– Estimativa Bell-CHSH das medidas da correlação SaS.	94
Tabela 13	– Valores experimentais obtidos referente à primeira medição do experimento de desigualdade de Bell na região real. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz , onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento.	98
Tabela 14	– Valores experimentais obtidos referente à segunda medição do experimento de desigualdade de Bell na região real. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz , onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento.	98

Tabela 15 – Valores experimentais obtidos referente à primeira medição do experimento de desigualdade de Bell na região virtual. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz , onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento. 99

Tabela 16 – Valores experimentais obtidos referente à segunda medição do experimento de desigualdade de Bell na região virtual. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz , onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento. 99

Lista de Símbolos

ψ	estado
∂	derivada parcial
β	operador de estado
α	operado de estado
$ \rangle$	ket
$\langle $	bra
ω	frequência angular
\hbar	Constante reduzida de Planck
ν	Frequência do fônon
$G^{(2)}$	Função de correlação de segunda ordem
$g^2(0)$	Função de correlação de segunda ordem normalizada
$\Delta\tau$	variação temporal, $\tau_1 - \tau_2$
ϕ	fase
ρ	matriz de densidade de estado
SaS	Stokes-anti-Stokes
ω_ν	frequência do deslocamento Raman
ω_q	frequência de um modo normal de vibração do material

Sumário

1	Introdução	22
2	Fundamentação Teórica	27
2.1	Espalhamento Raman	27
2.1.1	O processo de espalhamento Raman	27
2.1.2	Discussão Quântica do Espalhamento Raman e Correlação temporal Stokes-anti-Stokes (SaS)	30
2.1.3	A função de correlação	33
2.2	Informação Quântica	34
2.2.1	Computação e informação quântica	34
2.2.2	Tomografia quântica	36
2.2.3	Teorema de Bell	38
2.2.4	CHSH	39
2.2.4.1	Estados emaranhados associados à violação da desigualdade de CHSH	40
2.2.5	Maximum Likelihood Estimation(MLE)	42
3	Instrumentação	45
3.1	Fonte de excitação	45
3.2	Sistema de espalhamento Raman	50
3.3	Sistema de contagem em coincidência dos fótons Stokes e anti-Stokes correlacionados temporalmente	54
3.4	Seleção de polarização	61
3.4.1	Placa de meia onda (<i>Half-wave plate</i>)	62
3.4.2	Placa de quarto de onda (<i>Quarter-wave plate</i>)	62
3.4.3	Rotacionador de placas	63
3.4.4	Sistema de controle de placas de onda para experimento de tomografia	65
3.5	Eficiências de detecção do processo SaS	68
4	Resultados e Discussões	69
4.1	Espectro Raman do Diamante	69
4.2	Medida SaS Real e Virtual no Diamante com laser de fs e ps	71
4.3	Tomografia de estados SaS	79
4.3.1	<i>Setup</i> experimental para tomografia	80
4.3.2	Caracterização espectral do diamante	81
4.3.3	Correlação SaS na região de espalhamento Raman real	84
4.3.4	Correlação SaS na região de espalhamento Raman virtual	88
4.3.5	<i>Maximum Likelihood Estimation</i> (MLE) da tomografia de estados	91
4.3.6	Experimento de desigualdade CHSH do fenômeno SaS	93

5 Conclusão	100
Referências	102
Apêndice A Publicações	109
A.1 Artigos publicados em revistas científicas	109
A.2 Artigos completos em anais de conferência	109
A.3 Resumos de trabalhos em conferência	110

Capítulo 1

Introdução

Atualmente, inovações tecnológicas para processamento de informação quântica têm despertado interesse de físicos, cientistas da computação, matemáticos e engenheiros eletricitas (ALBER et al., 2003). Desenvolvimentos recentes demonstram que fenômenos quânticos singulares, que são inexplicáveis do ponto de vista da física clássica, podem permitir execuções de tarefas específicas melhor do que qualquer outro método utilizado com as tecnologias atuais.

No início da década de 1990, Charles Bennett foi um dos primeiros pesquisadores a constatar e fomentar o conceito de informação quântica, estabelecendo suas diretrizes. A informação quântica como um conceito preciso é indefinida, na verdade, a própria ideia de ver os estados quânticos como portadores de algum tipo de informação leva naturalmente a perguntas interessantes que, de outra forma, nunca teriam sido feitas (JOZSA, 2004). A transferência de informações entre sistemas quânticos é essencial para a comunicação e computação quântica. A alta conectividade entre qubits (bits quânticos) pode melhorar a eficiência dos algoritmos em computadores quânticos e auxiliar na correção de erros permitindo assim alta fidelidade no processo de leitura da informação (QIAO et al., 2021).

Computação quântica e informação quântica abordam processamento e transmissão de informação que podem ser realizadas usando sistemas de mecânica quântica (NIELSEN; CHUANG, 2002). A mecânica quântica tem se tornado parte indispensável da ciência ao longo dos anos e tem sido aplicada com enorme sucesso fundamentadas em física de materiais, incluindo semicondutores e supercondutores.

O estudo da informação baseada na mecânica quântica é chamada de teoria ou tecnologia da informação quântica, e seu início se deu através de von Neumann, introduzindo a entropia informacional de um estado quântico (NEUMANN, 2018; OHYA; VOLOVICH, 2011). A viabilidade de conexão entre a informação e sistemas da teoria quântica não é nova, iniciou-se em debates, especialmente entre Einstein e Bohr, que resultaram na criação da teoria, no final da década de 1920 (BOHR, 1996).

A mecânica quântica permite implementar melhorias na eficiência computacional e na segurança da comunicação, fazendo uso dos princípios de superposição e das correlações não-clássicas (KNILL; LAFLAMME; MILBURN, 2001). Efeitos quânticos são particularmente fáceis de serem implementados e observados em sistemas óticos, sendo que uma das primeiras propostas para trabalhar com informação quântica foi o uso de fótons para implementar a lógica quântica (MILBURN, 1989).

Inúmeros métodos e desenvolvimentos atuais, aplicados no processamento de informação quântica, surgiram de um longo embate dos físicos com os fundamentos modernos da teoria quântica. Um dos primeiros exemplos a esse respeito são as famosas considerações de Einstein, Podolsky e Rosen, que ficaram conhecidas como paradoxo EPR (EINSTEIN; PODOLSKY; ROSEN, 1935), sobre a realidade, localidade e integralidade das teorias físicas. Esses renomados cientistas levantaram questões críticas que vieram a inspirar muitos pesquisadores a estudar quantitativamente a diferença essencial entre a física quântica e os conceitos clássicos de realidade e localidade. O grande avanço da área foi a descoberta de J.S. Bell (BELL, 1964), onde foi comprovado que as correlações estatísticas de estados quânticos emaranhados são incompatíveis com as previsões de qualquer teoria baseada nos conceitos de realidade e localidade, proposto pelo paradoxo EPR. As restrições impostas às correlações estatísticas no âmbito de uma teoria local e realista são expressas pela violação da desigualdade de Bell (BELL, 1964). O conceito de emaranhamento e suas propriedades de correlação únicas têm sido de importância fundamental para o desenvolvimento do processamento de informações quânticas, sendo uma das características mais fundamentais da mecânica quântica. Está na essência do paradoxo de Einstein-Podolsky-Rosen, das desigualdades de Bell e das discussões sobre a não localidade da mecânica quântica.

Pesquisas relacionadas à geração de estados quânticos em grande escala são motivadas devido ao seu potencial para revolucionar a computação e as comunicações por meio de tecnologias quânticas otimizadas. A fotônica quântica, em particular, fornece uma rota para processar informações quânticas codificadas em pulsos óticos (LEE et al., 2012). Os fótons são um forte candidato para aplicação em computação quântica, devido à potencialidade de informação e o fato de não interagirem entre si, o que concede robustez ao processo de codificação da informação (REIM et al., 2010). Os canais de comunicação ótica redefiniram o escopo e as aplicações da computação clássica; semelhantemente, a transferência fotônica de informações quânticas promete abrir novos cenários para a computação quântica (NORTHUP; BLATT, 2014), sendo uma das fronteiras mais promissoras para o processamento de informações.

Pares de fótons correlacionados têm atraído grande interesse em ótica quântica, representam um dos recursos mais explorados em ótica quântica experimental, bem como aplicações, com significativa divulgação em vários campos de pesquisa correlatos

(EISAMAN et al., 2011; SENELLART; SOLOMON; WHITE, 2017; CASPANI et al., 2017). As fontes são majoritariamente baseada nos processos de conversão paramétrica descendente (PDC) ou mistura de quatro ondas (FWM) realizada em guias de onda ótica, fibras fotônicas ou cristais não lineares (CHEN; LEI; ROMERO, 2014; NGAH et al., 2015; LI et al., 2019; VERGYRIS et al., 2020; LLEWELLYN et al., 2020).

A espectroscopia Raman é uma técnica de espectroscopia ótica baseada no espalhamento inelástico da luz (LEWIS; EDWARDS, 2001). Nesta técnica, uma frequência de radiação específica é utilizada para excitar uma amostra, e a radiação espalhada pelo material, formada por fótons, carrega informação de quanta de energia de vibração do meio, sendo o fóton espalhado diferente do fóton do feixe incidente em energia e momento, e esta diferença pode ser detectada (SMITH; DENT, 2005). Os fótons espalhados são definidos como Stokes (I_s) ou anti-Stokes (I_{as}) (RAMAN, 1928; CANTARERO, 2015; JORIO et al., 2011), dependendo se o fóton espalhado perde ou ganha um quantum de energia do meio.

De especial interesse para este trabalho é o fenômeno que foi proposto em 1977, por Klyshko (KLYSHKO, 1977), como sendo o resultado do espalhamento Raman Stokes e anti-Stokes correlacionado, sendo abordado neste trabalho como par de fótons *SaS*, que tem como característica a origem dos dois fótons do par em uma única unidade de vibração de energia do meio, ou seja, o mesmo quantum de vibração gerado por um processo (espalhamento Stokes) é subsequentemente absorvido para que outro processo (espalhamento anti-Stokes) ocorra. Este fenômeno foi observado em diamante por Lee et al. (LEE et al., 2012), Jorio et al. (JORIO et al., 2014) e Kasperczyk et al. (KASPERCZYK et al., 2015), e um tratamento teórico quântico foi proposto por Parra Murilo et al. (PARRA-MURILLO et al., 2016), que detalha as propriedades do fenômeno, bem como o tempo de vida para processos ressonantes (fônon real) e não ressonantes (fônons virtuais) (JÚNIOR et al., 2020) já foram explorados.

Um modelo quântico do processo Raman foi apresentado por (THAPLIYAL; JR, 2021) com as interações não lineares Stokes e anti-Stokes independentes desenvolvido para estudar correlações não clássicas entre os fótons no campo Stokes e anti-Stokes, demonstrando a formação de um estado quântico com possíveis aplicações em computação quântica.

A produção de pares de fótons *SaS* correlacionados tem atraído grande interesse em ótica quântica experimental, bem como aplicações, com significativa divulgação em vários campos de pesquisa correlatos (EISAMAN et al., 2011; SENELLART; SOLOMON; WHITE, 2017; CASPANI et al., 2017; THAPLIYAL; JR, 2021). Kuzmich et al. (KUZMICH et al., 2003) utilizaram na criação de protocolos de transmissão de informação quântica. Lee et al. (LEE et al., 2012) reportaram a criação de estados não clássicos nos modos vibracionais do diamante. England et al. (ENGLAND et al., 2013) relataram a implementação da

memória ótica quântica, utilizando o fóton Stokes do espalhamento SaS no processo de escrita, e o fóton anti-Stokes no processo de leitura da informação. Trabalhos similares foram feitos em amostra de rubídio por Bashkansky et al. (BASHKANSKY; FATEMI; VURGAFTMAN, 2012) e vapor de césio por Reim et al. (REIM et al., 2010; REIM et al., 2011). Bustard et al. (BUSTARD et al., 2015) observaram a presença do processo SaS em moléculas de hidrogênio. Esse fenômeno é geral, observado também em sistemas moleculares como líquidos transparentes (SARAIVA et al., 2017; VENTO et al., 2023), incluindo água (KASPERCZYK et al., 2016).

Embora a natureza não clássica dos fótons do SaS em diamante esteja bem estabelecida, o emaranhamento foi demonstrado apenas quando duas vias interferentes são projetadas, como duas amostras diferentes (LEE et al., 2011), ou dois estados de spin dentro da mesma amostra (DOLDE et al., 2013), ou pela codificação *time-bin* com dois pulsos diferentes (VELEZ et al., 2020). Não se encontra na literatura material sobre a presença de emaranhamento no processo fundamental de mistura de quatro ondas em diamante. Aqui, demonstramos um par de fótons emaranhados da superposição dos dois processos distintos de geração microscópica.

Este fenômeno foi a base do desenvolvimento deste trabalho, cujo objetivo consistiu em estudar o estado de dois fótons SaS correlacionados, resultantes do processo de espalhamento inelástico da luz, buscando uma melhor compreensão do caráter quântico do processo, dado o grande avanço nas pesquisas referente a utilização de fótons em computação quântica. Os estudos realizados aqui buscaram caracterizar o processo SaS, de forma a compreender melhor este fenômeno no que diz respeito a suas características físicas fundamentais.

Este trabalho está organizado da seguinte forma: O capítulo 2 traz uma fundamentação teórica que serve de base para o desenvolvimento deste trabalho. Abordamos os fundamentos de espalhamento Raman, introduzimos o conceito de correlação temporal Stokes-anti-Stokes, descrevendo a função de correlação que define o processo. Em seguida fazemos uma abordagem referente à informação quântica, definindo alguns conceitos fundamentais que nos direcionam aos fundamentos dos processos a serem estudados neste trabalho, neste caso a tomografia de estados quânticos.

No Capítulo 3, apresentamos a montagem experimental geral utilizada para o estudo do processo SaS, das fontes de excitação utilizadas ao sistema de obtenção do espectro Raman e detecção dos pares de fótons Stokes e anti-Stokes.

No Capítulo 4 apresentamos os resultados experimentais originais deste trabalho obtidos referentes ao estudo da correlação SaS no diamante, utilizando laser de fs e ps, cujo o objetivo foi identificar qual seria o mais indicado para realização do experimento de tomografia do estado quântico. Em uma segunda etapa, foram realizadas medidas de tomografia para caracterização completa do estado do par de fótons correlacionado

SaS, analisando os fótons espalhados em função da orientação do eixo cristalográfico do diamante. Após analisados os resultados obtidos com estado tomografado do par de fótons SaS, foram realizadas medidas de desigualdade de Bell com o objetivo de confirmar o emaranhamento em polarização do par de fótons SaS, em função dos resultados obtidos com as medidas de tomografia de estados.

Por fim, no Capítulo 5 apresentamos uma conclusão referente aos resultados obtidos nesta tese, bem como as perspectivas futuras para continuidade de pesquisas com aplicação do par de fótons SaS.

Capítulo 2

Fundamentação Teórica

Este capítulo aborda alguns conceitos fundamentais para o entendimento da proposta deste trabalho. A primeira seção apresenta o espalhamento Raman, para uma melhor compreensão do fenômeno a ser estudado. Apresenta também alguns conceitos e definições sobre correlação temporal Stokes-anti-Stokes.

Em seguida, são apresentados alguns conceitos teóricos de informação quântica, sendo abordada a tomografia quântica, o método experimental utilizado para determinar o estado quântico de um determinado processo, bem como um método utilizado para descrição do estado medido. O teorema de Bell e seus desdobramentos, bem como o método CHSH, um dos métodos mais utilizados para análise de emaranhamento de processos quânticos, também são discutidos.

2.1 Espalhamento Raman

Nesta seção encontra-se descrito o processo de espalhamento Raman, detalhando as condições de ocorrência e principais características. Em seguida, será feita uma breve descrição do efeito SaS, base de estudo para a compreensão do fenômeno de emaranhamento, que será investigado neste trabalho.

2.1.1 O processo de espalhamento Raman

Durante a interação entre luz e matéria, diversos fenômenos físicos ocorrem, dentre os quais o espalhamento inelástico da luz, que tem como característica fundamental o ganho ou perda de energia quando uma fonte de luz com frequência ω_L interage com o meio, tendo como resultado uma luz espalhada com frequência diferente da frequência incidente. Experimentalmente este fenômeno foi observado por C. V. Raman ([RAMAN, 1928](#)), fenômeno que posteriormente ficou conhecido como espalhamento Raman.

O espalhamento Raman é pouco eficiente, se comparado a outros processos óticos,

pois somente 1 a cada 10^6 fótons espalha-se inelasticamente (LOUDON, 1963). Mesmo assim, informações referentes a composição e estrutura dos materiais ficam codificados na luz espalhada por efeito da interação da luz com o material. Através da análise espectral da radiação Raman é possível decodificar tais informações, resultando em diversas técnicas de espectroscopia Raman que se tornaram fundamentais no processo de caracterização de materiais (DOWNES; ELFICK, 2010; YANG; YING, 2011).

As mudanças de energia luminosa que detectamos na espectroscopia Raman são relacionadas às vibrações atômicas. O movimento nuclear ocorre durante o processo de espalhamento da luz e a energia vibracional pode ser transferida do meio material para o fóton espalhado ou vice-versa. Neste cenário, o processo é inelástico e a energia do fóton espalhado é diferente daquela do fóton incidente, a diferença sendo dada pela frequência de vibração (energia) de um modo normal de vibração dos átomos do meio. Este é o espalhamento Raman (SMITH; DENT, 2005). O espalhamento Raman pode ser relacionado à troca de energia entre a luz incidente e o material através de fenômenos de outras naturezas, entretanto, o espalhamento devido aos fônons, nome dado aos *quanta* de vibração dos átomos que compõem o meio material, é o mais comum.

Durante o processo de espalhamento, quando o fóton interage com a matéria, e um quantum de energia é transferido para a estrutura molecular, sendo o fóton espalhado com uma energia menor do que a incidente, dá-se a esse processo o nome de espalhamento Stokes. Por outro lado, no processo de interação fóton/matéria, quando um quantum de energia vibracional do meio é transferido para o fóton, e um fóton é espalhado com uma energia maior do que a do fóton incidente, dá-se a esse processo o nome de espalhamento anti-Stokes. Na Figura 1 encontra-se representado o diagrama de bandas de energia dos espalhamentos descritos acima.

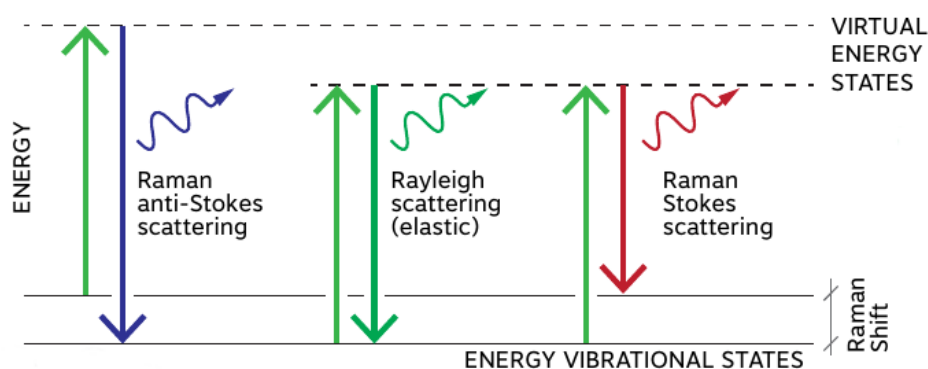


Figura 1 – Diagrama de estados do material para espalhamento Raman, resultado da diferença de energia entre os estados inicial e final. O mudança energética da luz no processo Raman anti-Stokes é positiva, o processo Raman Stokes é negativa, e no espalhamento de Rayleigh (elástico) é nula. Adaptada de (RABELO, 2019)

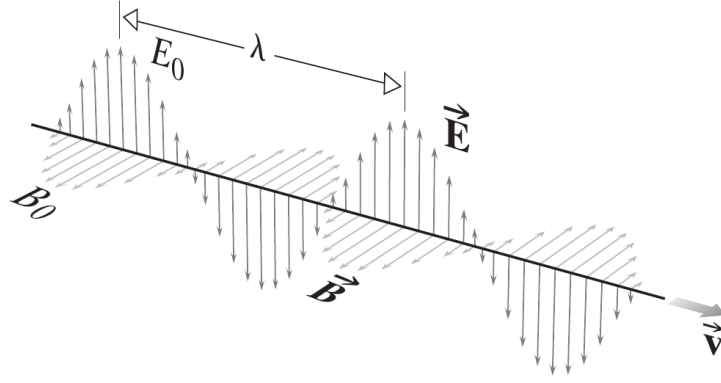


Figura 2 – Radiação eletromagnética linearmente polarizada propagando-se no eixo z . \vec{E} é o campo elétrico, \vec{B} é o campo magnético e λ é o comprimento de onda. Adaptada de (HECHT, 2017)

No processo de tratamento do espalhamento Raman, campos eletromagnéticos da luz incidente, como mostrado na Figura 2, induzem um deslocamento da nuvem de elétrons do material, criando assim um momento de dipolo. Este fenômeno é causado pela componente elétrica do campo incidente (\vec{E}), e o módulo do campo elétrico, em um dado tempo t , pode ser descrito por:

$$E = E_0 \cos(2\pi\nu_0 t), \quad (2.1)$$

sendo E_0 a amplitude, $2\pi\nu_0$ corresponde à frequência angular do laser (ω), sendo ν_0 a frequência temporal. Considerando a irradiação do meio por este campo elétrico, o momento de dipolo (\vec{P}) induzido no material pode ser descrito por:

$$\vec{P} = \overset{\leftrightarrow}{\alpha} \vec{E}, \quad (2.2)$$

onde $\overset{\leftrightarrow}{\alpha}$ é um tensor que descreve a susceptibilidades do meio. Considerando que os átomos do meio estão vibrando com uma frequência ν_m , o deslocamento de um modo normal de vibração q pode ser descrito por:

$$q = q_0 \cos(2\pi\nu_m t), \quad (2.3)$$

sendo q_0 a amplitude vibracional dos núcleos. Considerando pequenas amplitudes de vibração, α pode ser expandida em série de Taylor em torno do ponto de equilíbrio das posições atômicas

$$\alpha = \alpha_0 + \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_0 q_0 + \dots, \quad (2.4)$$

onde α_0 representa a parte da polarizabilidade que independe da vibração nuclear, sendo que a razão da mudança de α em relação à mudança em q é dada por $\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)$. Dessa forma, o momento dipolo P pode ser obtido pela combinação das equações (2.2), (2.3) e (2.4):

$$P = \underbrace{\alpha_0 E_0 \cos(2\pi\nu_0 t)}_A + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_0 q_0 E_0 \left[\underbrace{\cos(2\pi(\nu_0 + \nu_m)t)}_B + \underbrace{\cos(2\pi(\nu_0 - \nu_m)t)}_C \right]. \quad (2.5)$$

No modelo descrito acima, o termo (A) corresponde ao espalhamento elástico, também chamado espalhamento *Rayleigh*, o segundo termo (B) corresponde ao espalhamento Raman anti-Stokes, com frequência $\nu_0 + \nu_m$ e o termo (C) corresponde ao espalhamento Stokes, com frequência $\nu_0 - \nu_m$. Importante notar que para o fenômeno Raman ocorrer, $\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_0$ não pode ser nula em torno do ponto de equilíbrio, $\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_0 \neq 0$, caso contrário o modo de vibração específico q não será ativo em Raman.

2.1.2 Discussão Quântica do Espalhamento Raman e Correlação temporal Stokes-anti-Stokes (SaS)

A descrição do efeito Raman da seção 2.1.1 considera campos clássicos. Uma descrição quântica do fenômeno requer a consideração das trocas de energias mediadas por processos de interação onde existe a criação e destruição de fótons e fônons.

A análise pode ser generalizada propondo um Hamiltoniano que considera formalmente a correlação dos campos Stokes e Anti-Stokes, em um formalismo simples capaz de se ajustar aos resultados experimentais do diamante (PARRA-MURILLO et al., 2016). O Hamiltoniano é dado por (FOERSTER; GLAUBER, 1971)

$$\hat{H} = \hbar\omega_0 \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar\nu \hat{c}^\dagger \hat{c} + \hbar\omega_S \hat{b}_S^\dagger \hat{b}_S + \hbar\omega_{aS} \hat{b}_{aS}^\dagger \hat{b}_{aS} + \hbar\lambda_S (\hat{a} \hat{c}^\dagger \hat{b}_S^\dagger + H.c.) + \hbar\lambda_{aS} (\hat{a} \hat{c} \hat{b}_{aS}^\dagger + H.c.), \quad (2.6)$$

onde H.c é conjugado hermitiano, e os operadores de criação (termos com \dagger) e aniquilação do Stokes(S), anti-Stokes(aS), fônon(c) e fótons do laser incidente são representados por $\hat{b}_{S,aS}$ ($\hat{b}_{S,aS}^\dagger$), \hat{c} (\hat{c}^\dagger) e \hat{a} (\hat{a}^\dagger), respectivamente. As constantes de acoplamento, que levam em conta as eficiências dos processos Stokes e anti-Stokes para cada modo de vibração do material, são dadas por λ_S e λ_{aS} , sendo que λ_S descreve a criação de um fóton S e um fônon quando um fóton do laser é absorvido $\omega_S = \omega_0 - \nu_m$ e λ_{aS} descreve a criação de um fóton aS quando um fóton do laser e um fônon são absorvidos $\omega_{aS} = \omega_0 + \nu_m$.

O espalhamento Raman convencional (Stokes e anti-Stokes descorrelacionados) considera a existência de dois processos independentes, correspondentes à geração dos fótons Stokes (S) e anti-Stokes (aS), conforme descrito pelos dois diagramas de estados superiores na Figura 3. No processo S, um fóton oriundo da fonte de excitação de frequência ω_0 é aniquilado e um fônon ν_m é criado na rede, com o fóton Stokes espalhado com frequência $\omega_S = \omega_0 - \nu_m$ (termo em λ_S na eq. 2.6). No espalhamento anti-Stokes, um fônon e um

fóton são aniquilados para geração do fóton aS, com $\omega_{aS} = \omega_0 + \nu_m$ (termo em λ_{aS} na eq. 2.6). É possível constatar que a existência prévia de fônons na rede cristalina é necessária para que o processo aS ocorra. Os fônons envolvidos em cada um dos processos S e aS são independentes.

Nos trabalhos (JÚNIOR, 2016; JUNIOR, 2020) estudou-se o processo de espalhamento Raman correlacionado mostrado no último diagrama de estados da Figura 3, proposto inicialmente por Klyshko (KLYSHKO, 1977), e denominado aqui efeito SaS, onde os fótons Stokes e anti-Stokes produzidos simultaneamente podem ser correlacionados.

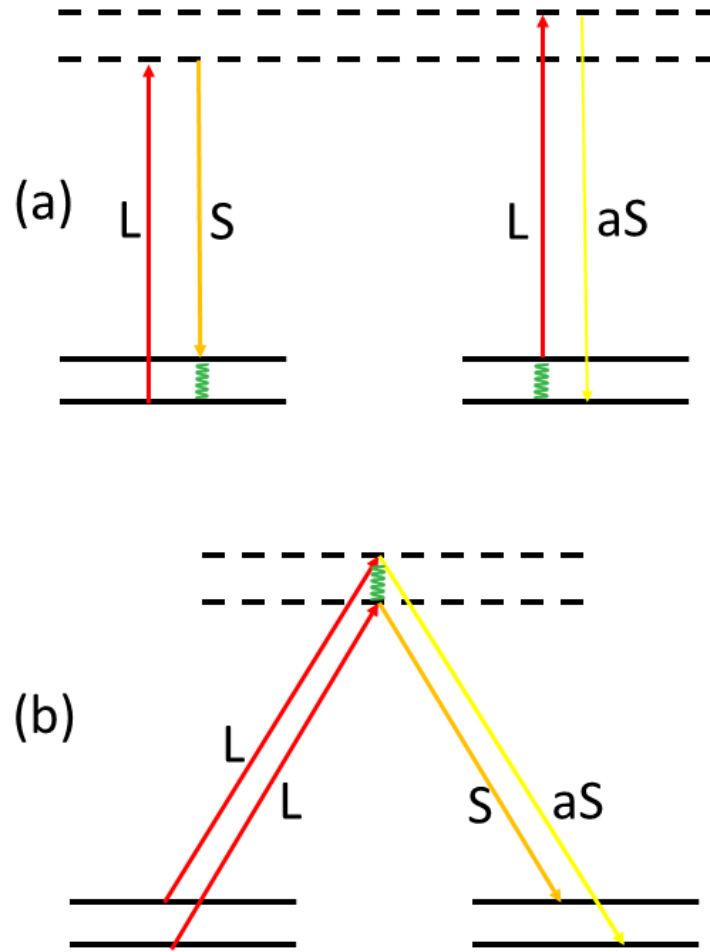


Figura 3 – (a) Diagrama de estado do material para Stokes não correlacionados (esquerda) e anti-Stokes (à direita) Raman espalhamento, resultado da diferença de energia entre os estados inicial e final do fóton. (b) Diagrama de estado do espalhamento correlacionado do SaS Raman. Em ambas as figuras "L" (vermelho) refere-se ao laser, a seta laranja é o fóton Stokes, a seta amarela é o fóton anti-Stokes e a linha verde representam a criação do fônon.

Devido à conservação de energia e momento no processo SaS, temos que:

$$SaS = \begin{cases} \omega_S + \omega_{aS} = 2\omega_L \\ k_s + k_{aS} = k'_L + k_L \end{cases} . \quad (2.7)$$

O SaS é um processo não linear (relacionado à absorção de dois fótons do laser, sendo assim proporcional ao quadrado da potência de laser incidente), e são necessárias altas potências de excitação da amostra para observar o fenômeno. Além disso, há uma competição entre o processo SaS e os processos Stokes e anti-Stokes não correlacionados, com o SaS tornando-se mais evidente quando é mediado por vibrações de alta frequência, onde efeitos térmicos sobre a intensidade I_{aS} são significativamente reduzidos, devido à menor população de fônons térmicos na amostra em comparação com população de fônons para vibrações de baixa frequência. O mesmo aconteceria com a redução da temperatura do material (SLODICKA; L, 2020). Isto acontece porque a intensidade do espalhamento Raman anti-Stokes (I_{aS}) está relacionada à quantidade de fônons da amostra, cuja população média é determinada pela distribuição Bose-Einstein $n(\omega_q, T)$

$$n(\omega_q, T) = \left[\exp\left(\frac{\hbar\omega_q}{k_B T}\right) - 1 \right]^{-1}, \quad (2.8)$$

sendo T a temperatura do material e k_B a constante de Boltzmann. Ainda que em condições favoráveis, em razão da não linearidade do fenômeno, podemos não observar os pares SaS em muitos experimentos devido à interferência de outros processos óticos não correlacionados, como a luminescência apresentada por algumas amostras.

Quando calculamos a razão I_{aS}/I_S , é possível descrever o caráter quântico da estrutura vibracional do material, considerando que a mesma é definida pela distribuição de Bose-Einstein 2.8, chegamos a relação

$$\frac{I_{aS}}{I_S} = C \frac{n_0}{1 + n_0}, \quad (2.9)$$

onde C é uma constante de proporcionalidade que depende das propriedades óticas da amostra e do aparato experimental, n_0 é a população de fônons no estado fundamental, e $1 + n_0$ é a população de fônons excitados. A partir da equação 2.9 é possível constatar que a razão I_{aS}/I_S é uma função da temperatura do material, sendo a mesma comumente utilizada para cálculos da temperatura local (FAUGERAS et al., 2010; BERCIAUD et al., 2010). Entretanto, a eq. 2.9 não considera o processo SaS, devendo ser generalizada, como feito por (PARRA-MURILLO et al., 2016).

Por fim, quando o deslocamento Raman dos fótons correlacionados S e aS ($\omega_{S,aS}$), coincide com um modo normal de vibração (ω_q) do material, $\omega_{S,aS} = \omega_q$, diz-se que estudamos o par SaS do processo Raman real. Se $\omega_{S,aS} \neq \omega_q$, temos o processo virtual, que ocorre com troca de energia que não coincide com a energia de vibração do meio. Quando sintonizado fora da ressonância, o par de fótons SaS ainda pode ser mediado por um fônon virtual, tendo, neste caso, um intrigante paralelo com a teoria BCS para supercondutividade (SARAIVA et al., 2017; ZHANG; ZHANG; ZHU, 2018; JÚNIOR et al., 2019; JÚNIOR et al., 2019).

2.1.3 A função de correlação

Devido à natureza quântica do processo SaS, podemos obtê-lo através de medidas de correlação de segunda ordem normalizada $g^2(0)$ dos campos Stokes e anti-Stokes. A partir das funções de correlação dos campos é possível realizar a caracterização dos estados da radiação (LOUDON; FOERSTER, 2000). Pode-se definir a função correlação de ordem n a partir dos termos das componentes de frequências positivas e negativas dos campos elétricos como na equação 2.10, (BALLENTINE, 2014). Ressaltando que $x_1 \cdots x_{n+1}$, correspondem às coordenadas espaço-temporais, $x_i = (\vec{x}_i, t_i)$.

$$G^{(n)}(x_1 \cdots x_n, x_{n+1} \cdots x_{2n}) = \langle E^{(-)}(x_1) \cdots E^{(-)}(x_n) E^{(+)}(x_{n+1}) \cdots E^{(+)}(x_{2n}) \rangle. \quad (2.10)$$

Temos da teoria da fotodeteccção que a taxa de deteccção de fótons em um tempo t_i para um dado detector, na posição \vec{x}_i , é diretamente proporcional à função correlação de primeira ordem, Equação 2.11, $G^{(1)}(x, x)$. Já a função de correlação de segunda ordem $G^{(2)}(x^1, x^2, x^2, x^1)$ da Equação 2.12 está diretamente relacionada à probabilidade de dois detectores, posicionados em \vec{x}_1 e \vec{x}_2 , detectarem um fóton, cada um, no tempo t_1 e t_2 .

$$G^1(x, x) = \langle E^{(-)}(\vec{x}, t) E^{(+)}(\vec{x}, t) \rangle. \quad (2.11)$$

$$G^2(x_1, x_2, x_2, x_1) = \langle E^{(-)}(\vec{x}_1, t_1) E^{(-)}(\vec{x}_2, t_2) E^{(+)}(\vec{x}_2, t_2) E^{(+)}(\vec{x}_1, t_1) \rangle. \quad (2.12)$$

Ainda que as funções de correlação de campos G^n sejam medidas diretamente nos experimentos de fotodeteccção, usualmente descreve-se as propriedades da luz em termos da função de correlação normalizadas, g^n , definidas como:

$$g^n(x_1 \cdots x_{n+1} \cdots x_{2n}) = \frac{G^n(x_1 \cdots x_{n+1} \cdots x_{2n})}{\prod_{k=1}^{2n} G^1(x_k, x_k)}. \quad (2.13)$$

Nesse estudo, o interesse encontra-se nas correlações temporais de segunda ordem dos fótons, pois uma particularidade do efeito SaS é a emissão praticamente simultânea dos fótons Stokes e anti-Stokes, dado o curto tempo de vida dos fônons na rede cristalina. A função de correlação temporal de segunda ordem em um mesmo ponto X, g^2 , é dada por

$$g^2(t, t + \tau, t + \tau, t) = g^2(\tau) = \frac{G^2(t, t + \tau, t + \tau, t)}{G^1(t, t) G^1(t + \tau, t + \tau)}. \quad (2.14)$$

Através dessa função, é possível obter uma medida da probabilidade de deteccção de um fóton, dado um tempo $t + \tau$, após deteccção de um primeiro fóton no tempo t , normalizado pelas taxas de contagens individuais nos tempos t e $t + \tau$.

2.2 Informação Quântica

Nesta seção encontram-se descritos conceitos e definições pertinentes à área da informação quântica que serviram de base para o desenvolvimento deste trabalho. Na seção 2.2.1, é apresentada uma breve introdução sobre o conceito de computação e informação quântica, destacando seus principais conceitos e bem como os dados são representados. Na seção 2.2.2, é apresentado o conceito de tomografia quântica, um dos métodos possíveis de caracterizar as componentes de um estado quântico de interesse, o que permite avaliar a possibilidade de utilização dessas componentes em computação quântica. Complementando esse processo de caracterização de componentes, na seção 2.2.3, é apresentado um breve conceito do Teorema de Bell, uma metodologia para se comprovar o caráter quântico de um processo, sendo que um dos métodos experimentais possíveis de se comprovar experimentalmente este teorema, é apresentado na seção 2.2.4.1. Por fim na seção 2.2.5 é apresentado um métodos estatísticos utilizados neste trabalho para correção dos dados experimentais obtidos nas medidas de tomografias realizadas.

2.2.1 Computação e informação quântica

Computação quântica e informação quântica são áreas do conhecimento que abordam processamento e transmissão de informação que podem ser realizadas usando sistemas descritos pela mecânica quântica (NIELSEN; CHUANG, 2002). A mecânica quântica tem se tornado parte indispensável da ciência ao longo dos anos e tem sido aplicada com enorme sucesso em diversos estudos científicos, desde o estudo da estrutura do átomo (JEANS, 1919), partículas elementares da natureza (WEISSKOPF, 1965), supercondutores (MACDONALD; AKERA; NORMAN, 1993), a estrutura do DNA (SLOCOMBE; SACCHI; AL-KHALILI, 2022).

A teoria da informação e computação passou por novo crescimento e um aperfeiçoamento de sua conexão histórica com a física básica, à medida que se expandiram para tratar a transmissão e processamento íntegros de estados quânticos e a interação de tais "informações quânticas".

A informação, até recentemente, era amplamente pensada em termos clássicos, com a mecânica quântica desempenhando um papel de apoio no projeto do equipamento para processá-la (a exemplo dos dispositivos semicondutores) e estabelecendo limites na taxa em que poderia ser enviada através de certos canais. Sabe-se agora, que uma teoria totalmente quântica de informação e processamento de informação oferece, entre outros benefícios, um tipo de criptografia cuja segurança repousa na física fundamental e uma esperança razoável de construir computadores quânticos que poderão acelerar drasticamente a solução de certos problemas matemáticos (BENNETT; DIVINCENZO; P, 2000).

Esses benefícios dependem de propriedades distintamente quânticas, como incer-

teza, interferência e emaranhamento das componentes (spin de elétrons, polarização, etc) de um estado quântico, como por exemplo as direções de polarização de dois fótons. Fundamentalmente, ficou comprovado que uma teoria da informação baseada em princípios quânticos estende e completa a teoria da informação clássica, assim como os números complexos estendem e completam os reais (sendo este apenas um paralelo, não uma relação unívoca). Além das generalizações quânticas de noções clássicas, como fontes, canais e códigos, a nova teoria inclui dois tipos de informações complementares e quantificáveis - a informação clássica e emaranhamento quântico.

As informações clássicas podem ser copiadas, em contrapartida, o estado do emaranhamento não pode ser copiado sem a destruição do estado original, mas pode conectar quaisquer dois pontos no espaço-tempo (IMAI et al., 2006). As operações convencionais de processamento de dados destroem o estado emaranhado, uma vez que ocasionam o desordenamento dos ângulos de fase entre as componentes de um sistema em estado de sobreposição quântica. Mas as operações quânticas podem criá-lo e usá-lo para vários fins, como acelerar certos cálculos clássicos e auxiliar na transmissão de informações clássicas ou estados quânticos intactos com base no estado emaranhado (BENNETT; DIVINCENZO; P, 2000). Parte da nova teoria da informação quântica é o estudo qualitativo e quantitativo do emaranhamento e suas interações com a informação clássica. Qualquer meio de entregar sistemas quânticos mais ou menos intactos de um lugar para outro, como uma fibra ótica, pode ser visto como um canal quântico.

Ao contrário dos canais clássicos, que são bem caracterizados por uma única capacidade, os canais quânticos têm várias capacidades singulares, dependendo para que se está tentando usá-los e quais recursos auxiliares são acionados. Novos efeitos envolvendo informações quânticas continuam a ser descobertos, não apenas nas áreas tradicionais de computação, capacidade de canal e criptografia, mas em áreas como complexidade de comunicação e teoria dos jogos (BENNETT; DIVINCENZO; P, 2000).

Um sistema físico interessante para representar um bit quântico é o fóton. Os fótons são partículas sem carga e sem interações diretas entre si. Eles podem ser orientados ao longo de longas distâncias com baixa ou nenhuma perda em fibras óticas ou ao ar livre, atrasados de forma eficiente por meio de deslocadores de fase e facilmente combinados por meio de divisores de feixe (NIELSEN; CHUANG, 2002). Exibem fenômenos quânticos característicos, como a interferência produzida em experimentos com duas fendas (KIM; HAM, 2023), sendo que, em princípio, os fótons podem ser produzidos para interagir uns com os outros usando meios óticos não lineares que intermedeiam as interações.

A identificação e estudo de sistemas adequados para implementações físicas de processamento de informação quântica e comunicação tem se tornado um dos principais subcampos da ótica quântica, assim como disciplinas relacionadas da física quântica. No universo da computação quântica, o subcampo conhecido como ciência da informação

quântica trata de aplicações de comunicação quântica, que abrangem as áreas de computação quântica distribuída, teletransporte quântico, codificação densa e distribuição quântica de chaves (LAMBROPOULOS; PETROSYAN, 2007).

2.2.2 Tomografia quântica

A tomografia clássica é um método experimental cujo objetivo é examinar o interior de um objeto físico por meio da varredura de um feixe de radiação penetrante, por exemplo, raios X, que atravessa seu interior (GARRISON; CHIAO, 2008). Na medicina, o perfil de densidade do interior do corpo é reconstruído usando o método de tomografia computadorizada. Este procedimento permite a formação de uma imagem em alta resolução de uma seção interna do corpo humano e, portanto, é muito útil para diagnósticos (GARRISON; CHIAO, 2008).

Na tomografia quântica, o assunto de interesse não é a distribuição de densidade dentro de um objeto físico, mas sim a determinação das grandezas que descrevem um estado quântico (GARRISON; CHIAO, 2008). Para exemplificar, vamos analisar um bit quântico.

O bit clássico é um conceito utilizado na computação clássica e consiste de um sistema que pode estar em dois estados bem definidos, que podem ter a si atribuídos os estados 0 e 1. Por outro lado, o bit quântico, ou qubit, pode ser encontrado em um estado de superposição,

$$|\psi\rangle = \alpha |0\rangle + \beta |1\rangle, \quad (2.15)$$

sendo α e β números complexos, com $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$. Ao contrário do bit clássico, onde α e β são reais, o qubit reside em um espaço vetorial e os parâmetros α e β podem assumir quaisquer valores do plano complexo. Dessa forma, um contínuo de estados são permitidos. O estado de superposição, dada a normalização, pode ser reescrito como (NIELSEN; CHUANG, 2002)

$$|\psi\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |0\rangle + e^{i\phi} \sin \frac{\theta}{2} |1\rangle. \quad (2.16)$$

A partir dessa representação é possível atribuir um significado geométrico ao estado, fazendo-se uso dos parâmetros θ e ϕ . É possível definir um ponto sobre a superfície de uma esfera de raio unitário, conhecida como esfera de Bloch, conforme a Figura 4. Originalmente, esta representação foi desenvolvida por Henri Poincaré por volta de 1892 para descrever estados de polarização da luz, e adaptada por Felix Bloch em 1946 (BLOCH, 1946) para estados de polarização de sistemas de 2 níveis. Os efeitos de rotação (placas de onda) e operações nos qubits são representados como caminhos do vetor de estado na superfície, tornando a esfera uma interessante ferramenta de visualização.

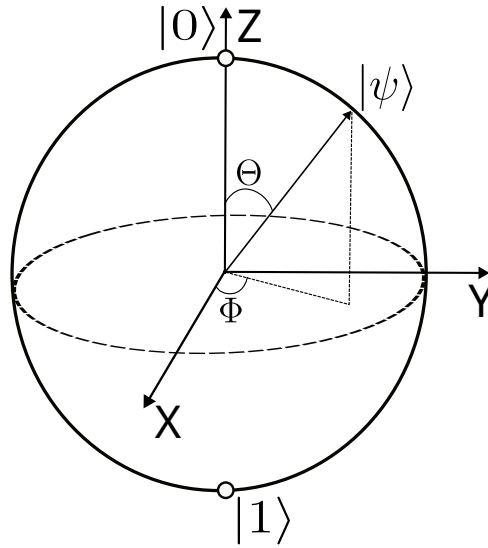


Figura 4 – Representação da esfera de Bloch de um qubit. Enquanto um bit clássico só representa dois valores possíveis, representados pelo vetor $|\psi\rangle$ em $|0\rangle$ ou $|1\rangle$, o qubit pode estar em qualquer ponto da superfície da esfera.

O vetor $|\psi\rangle$ na esfera de Bloch representa um qubit, que pode significar seu estado. Existem diversas formas de realizar um qubit fisicamente, sendo uma possibilidade, os spins de átomos. Uma segunda possibilidade seria os estados de polarização dos fótons, onde a esfera de Bloch representará os estados de polarização linear horizontal/vertical (ao invés de spin para cima/para baixo no eixo z) $+45^\circ / -45^\circ$ (no lugar dos autoestados no eixo x) e luz circularmente polarizada para a direita/esquerda (no lugar dos autoestados no eixo y).

O estado de superposição da equação (2.15) pode ser interpretado como um estado de um spin $1/2$, que da forma mais geral pode ser dado de forma matricial por

$$\rho = \frac{1}{2}(\hat{I} + \vec{a} \cdot \hat{\vec{\sigma}}), \quad (2.17)$$

sendo que os estados puros desejados são encontrados quando o vetor a tem comprimento unitário. $a = (a_x, a_y, a_z)$ é um vetor cujas as componentes desejamos descobrir para determinar a matriz densidade ρ . \hat{I} é a matriz identidade e $\hat{\vec{\sigma}}$ são as matrizes de Pauli.

Na tomografia quântica, deseja-se conhecer o estado físico em estudo, descrito por ρ , por meio de várias medidas sobre ρ . No tratamento de quaisquer estados ortogonais $|0\rangle$ e $|1\rangle$ para armazenar e transportar informação, pode-se dizer que lidamos com informação clássica. No que diz respeito à manipulação da informação, seja por bits ou por qubits, refere-se à **teoria da informação**.

2.2.3 Teorema de Bell

Com o advento do artigo de Einstein-Podolsky-Rosen (EINSTEIN; PODOLSKY; ROSEN, 1935) e sua conclusão final de que a Mecânica Quântica estaria incompleta, surgiram teorias que buscavam complementar a Mecânica Quântica com parâmetros adicionais. Estas teorias ficaram conhecidas como Teorias de Variáveis Ocultas. O confronto entre a Mecânica Quântica e as Teorias de Variáveis Ocultas permaneceu no âmbito epistemológico durante muitos anos, bem como a questão da completude da Mecânica Quântica.

O grande avanço da área foi a proposta de J.S. Bell, que forneceu uma metodologia para comprovar que as correlações estatísticas de estados quânticos emaranhados são incompatíveis com as previsões de qualquer teoria baseada nos conceitos de realidade e localidade, como os propostos no paradoxo EPR. As restrições impostas às correlações estatísticas no âmbito de uma teoria local e realista são expressas pela desigualdade de Bell (BELL, 1964). Para construir seu formalismo matemático, Bell considerou um sistema composto por duas partículas, considerando a correlação entre os operadores de spin em direções arbitrárias, que incidem em aparelhos de medições remotos distintos (BELL, 1964).

Pela conservação do momento angular, a soma dos spins em qualquer direção tem de ser nula. Isso significa que o sistema pode ser representado, pelo vetor

$$|\psi_{-}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+\rangle \otimes |-\rangle - |-\rangle \otimes |+\rangle). \quad (2.18)$$

Seja $|0\rangle$ o estado de duas partículas e spin $1/2$, com spin total zero,

$$|0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}_1 \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}_2 - \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}_1 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}_2 \quad (2.19)$$

O valor médio do produto das componentes de spins em direções α e β é dado por

$$\langle 0 | (\alpha \cdot \sigma_1) (\beta \cdot \sigma_2) | 0 \rangle. \quad (2.20)$$

Tomando os vetores α e β no plano x-z, os operadores $\alpha \cdot \sigma_1$ e $\beta \cdot \sigma_2$ são representados pelas matrizes

$$\alpha \cdot \sigma_1 = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & \sin(\alpha) \\ \sin(\alpha) & -\cos(\alpha) \end{pmatrix}_a, \quad (2.21)$$

$$\beta \cdot \sigma_2 = \begin{pmatrix} \cos(\beta) & \sin(\beta) \\ \sin(\beta) & -\cos(\beta) \end{pmatrix}_b, \quad (2.22)$$

onde $\alpha \cdot \sigma_1$ só age no estado de spin da partícula a e $\beta \cdot \sigma_2$ no estado de spin da b .

Aplicando o operador $\beta \cdot \sigma_2$ em $|0\rangle$ obtemos

$$\beta \cdot \sigma_2 |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}_1 \begin{pmatrix} \sin(\beta) \\ -\cos(\beta) \end{pmatrix}_2 - \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}_1 \begin{pmatrix} \cos(\beta) \\ \sin(\beta) \end{pmatrix}_2. \quad (2.23)$$

Aplicando, agora, o operador $\alpha \cdot \sigma_1$ em $\beta \cdot \sigma_2 |0\rangle$ obtemos

$$(\alpha \cdot \sigma_1)(\beta \cdot \sigma_2) |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \cos(\alpha) \\ \sin(\alpha) \end{pmatrix}_1 \begin{pmatrix} \sin(\beta) \\ -\cos(\beta) \end{pmatrix}_2 - \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \sin(\alpha) \\ -\cos(\alpha) \end{pmatrix}_1 \begin{pmatrix} \cos(\beta) \\ \sin(\beta) \end{pmatrix}_2. \quad (2.24)$$

Considerando $\langle 0| = \frac{1}{\sqrt{2}}[(1, 0)_1(0, 1)_2 - (0, 1)_1(1, 0)_2]$, (representação anti linear da equação 2.19, com base nas representações de ket e bras da mecânica quântica, onde kets representam vetores, e a correspondência entres kets e bras entre eles é anti linear), e as respectivas manipulações algébricas, temos que a probabilidade de uma medida encontrar os spins nas direções α e β é

$$P(\alpha, \beta) = |\langle \alpha\beta | 0\rangle|^2 = \frac{1}{2} \sin^2 \left(\frac{\alpha - \beta}{2} \right). \quad (2.25)$$

As componentes de spin em várias direções são os observáveis que podem ser medidos.

A desigualdade de Bell estipula que três medidas de um estado quântico de dois spins devem obedecer à seguinte desigualdade, considerando 3 direções distintas α, β, γ :

$$|P(\alpha, \beta) - P(\alpha, \gamma)| \leq 1 - P(\beta, \gamma). \quad (2.26)$$

Sua violação indica que uma medida realizada em uma das partículas de um estado de duas partículas interfere na propriedade da outra partícula. Isto indica que as partículas estão emaranhadas.

Com esses argumentos Bell tirou a discussão fomentada pelo paradoxo EPR da teoria do conhecimento e a levou para o ramo matemático, criando desigualdades que podem ser testadas experimentalmente e modificadas conforme a natureza do experimento. Experimentos que demonstraram a violação da desigualdade de Bell (HERBERT, 1975; ESPAGNAT, 1979; KUTTNER; ROSENBLUM, 2010) comprovaram o caráter não local da informação.

2.2.4 CHSH

A desigualdade CHSH, proposta por Clauser, Horne, Shimony e Holt em 1969, é a desigualdade de Bell mais utilizada na prática (CLAUSER, 1975). Esse reconhecimento

se deve ao fato de a mesma ter sido utilizada em trabalhos pioneiros para verificação experimental de desigualdades de Bell (FREEDMAN; F., 1972; CLAUSER, 1976; FRY; THOMPSON, 1976). A violação dessa desigualdade sugere que os modelos de variáveis ocultas determinísticas e locais não são suficientes para explicar as correlações quânticas. A violação da desigualdade CHSH é definida por

$$|S| \leq 2, \quad (2.27)$$

onde

$$S = E(\theta_a, \theta_b) - E(\theta_a, \theta'_b) + E(\theta'_a, \theta_b) + E(\theta'_a, \theta'_b) \quad (2.28)$$

e

$$E(\theta_a, \theta_b) = \frac{N(\theta_a, \theta_b) + N(\bar{\theta}_a, \bar{\theta}_b) - N(\bar{\theta}_a, \theta_b) - N(\theta_a, \bar{\theta}_b)}{N(\theta_a, \theta_b) + N(\bar{\theta}_a, \bar{\theta}_b) + N(\bar{\theta}_a, \theta_b) + N(\theta_a, \bar{\theta}_b)}, \quad (2.29)$$

sendo que $N(\theta_a, \theta_b)$ refere-se ao números de contagens de fótons em coincidência quando os polarizadores são posicionados em θ_a e θ_b , com $\bar{\theta} = \theta + \pi/2$.

2.2.4.1 Estados emaranhados associados à violação da desigualdade de CHSH

Para validar o emaranhamento de dois fótons em polarização através de medidas de contagem em coincidência selecionando determinada polarização θ dos fótons, é possível medir estados maximamente emaranhados (estados puros), conhecidos como os estados de Bell (PERES, 1997), que na base de polarização linear são

$$\begin{aligned} |\psi_{-}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle |V\rangle - |V\rangle |H\rangle), \\ |\psi_{+}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle |V\rangle + |V\rangle |H\rangle), \\ |\phi_{-}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle |H\rangle - |V\rangle |V\rangle), \\ |\phi_{+}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle |H\rangle + |V\rangle |V\rangle), \end{aligned} \quad (2.30)$$

Para cada estado de Bell, é possível calcular o valor esperado para o operador S , onde Θ refere-se ao ângulo polar de um vetor unitário na esfera de Bloch com $\Phi = 0$ (ver Figura 4).

$$\begin{aligned} \langle \psi_{-} | S | \psi_{-} \rangle &= -\cos(\Theta_a - \Theta_b) - \cos(\Theta'_a - \Theta_b) \\ &\quad + \cos(\Theta_a - \Theta'_b) - \cos(\Theta'_a - \Theta'_b) \end{aligned} \quad (2.31)$$

$$\begin{aligned} \langle \psi_+ | S | \psi_+ \rangle &= -\cos(\Theta_a + \Theta_b) - \cos(\Theta'_a + \Theta_b) \\ &\quad + \cos(\Theta_a + \Theta'_b) - \cos(\Theta'_a + \Theta'_b) \end{aligned} \quad (2.32)$$

$$\begin{aligned} \langle \phi_- | S | \phi_- \rangle &= \cos(\Theta_a + \Theta_b) + \cos(\Theta'_a + \Theta_b) \\ &\quad + \cos(\Theta_a - \Theta'_b) + \cos(\Theta'_a + \Theta'_b) \end{aligned} \quad (2.33)$$

$$\begin{aligned} \langle \phi_+ | S | \phi_+ \rangle &= \cos(\Theta_a - \Theta_b) + \cos(\Theta'_a - \Theta_b) \\ &\quad + \cos(\Theta_a - \Theta'_b) + \cos(\Theta'_a - \Theta'_b) \end{aligned} \quad (2.34)$$

Infinitas combinações de ângulos podem ser utilizados. Um procedimento comumente realizado consiste em fazer $\Theta_a = 0$ e encontrar numericamente os valores de $\Theta'_a, \Theta_b, \Theta'_b$ de forma que as expressões atinjam o valor máximo de $2\sqrt{2}$, que é um limite superior para correlações mecânicas quânticas entre eventos distantes (PERES, 1997). Partindo do pressuposto que a mecânica quântica viola as desigualdades de Bell, esse valor indica a violação máxima de $|S|$. Neste processo, vale ressaltar que os ângulos Θ_a e Θ_b na esfera de Bloch têm relação com os ângulos θ_a e θ_b dos polarizadores em relação à horizontal, sendo que $\theta_a = \Theta_a/2$ e $\theta_b = \Theta_b/2$, que são utilizados para seleção dos fótons a determinada polarização.

Na tabela 1 são apresentados conjuntos de possíveis ângulos para posicionamento dos polarizadores lineares, a e b , de forma a se obter a máxima violação da desigualdade CHSH para os estados de Bell, dada pela Eq. 2.27. Esses ângulos são comumente conhecidos como ângulos de teste de Bell (PERES, 1997).

Estado	θ_a	θ_b	θ'_a	θ'_b
$ \psi_-\rangle, \phi_+\rangle$	0	$\pi/8$	$\pi/4$	$3\pi/8$
$ \psi_+\rangle, \phi_-\rangle$	0	$3\pi/8$	$\pi/4$	$\pi/8$

Tabela 1 – Estimativa de ângulos para máxima violação da desigualdade CHSH.

Para cada valor selecionado θ_a e θ_b , o número de coincidências em cada caso $\{N_{(\theta_a, \theta_b)}, N_{(\theta'_a, \theta'_b)}, N_{(\theta_a, \theta'_b)}, N_{(\theta'_a, \theta_b)}\}$ são gravados. A estimativa experimental para $E(\theta_a, \theta_b)$ é então calculado pela Equação 2.29.

Importante citar que como o teste da desigualdade de Bell necessita de medidas em 4 combinações diferentes de θ_a e θ_b , são necessárias 16 combinações diferentes de $\theta_a, \theta_b, \bar{\theta}_a, \bar{\theta}_b, \theta'_a, \theta'_b, \bar{\theta}'_a, \bar{\theta}'_b$ para um estado emaranhado de 2 qubits.

2.2.5 Maximum Likelihood Estimation(MLE)

É possível que a medição de tomografia de densidade de estados produza resultados que violam propriedades fundamentais relevantes, como a positividade dos elementos da matriz de estado que indicam probabilidades. Durante o processo, a medida de uma matriz pode apresentar erros na base de medição, erros da contagem de estatísticas e erros referentes à estabilidade do experimento.

Para contornar esses erros, o método de máxima verossimilhança (*Maximum Likelihood Estimation*(MLE)) pode ser empregado para reconstrução das matrizes de densidade, sendo o mesmo utilizado por muitos autores (HRADIL, 1997; JAMES et al., 2001; ŘEHÁČEK; ENGLERT; KASZLIKOWSKI, 2004). É uma versátil ferramenta com variada gama de aplicações, sendo que no domínio quântico, estimativas de processos quânticos, medições e discriminação entre os estados podem ser obtidos (PARIS; REHACEK, 2004).

O MLE quantifica quão boa a matrix de densidade ρ é em relação aos dados experimentais obtidos. Basicamente, o método procura encontrar uma matriz de densidade que descreva o mais fielmente um sistema físico, com base nos dados obtidos experimentalmente bem como do processo de maximização numérica (ALTEPETER; JEFFREY; KWIAT, 2005). Para aplicar este método, precisa-se parametrizar a matriz densidade, definir uma função de verossimilhança para maximizá-la, bem como uma técnica numérica para efetuar a maximização desejada.

Para parametrizar a matriz densidade, constrói-se uma matriz de forma a satisfazer a hermiticidade, positividade e traço unitário esperados para uma matriz densidade (PIMENTA, 2014). Assumindo a matriz de densidade da forma $\hat{\rho} = \hat{T}^\dagger \hat{T}$, parametrizamos a matriz satisfazendo as condições de positividade e hermiticidade, pois

$$\langle \psi | \hat{\rho} | \psi \rangle = \langle \psi | \hat{T}^\dagger \hat{T} | \psi \rangle = \langle \psi' | \psi' \rangle \geq 0 \quad (2.35)$$

sendo que $\psi' = \hat{T} | \psi \rangle$ e $| \psi \rangle$ pode representar um estado quântico qualquer. Uma vez que $\hat{T}^\dagger (\hat{T}^\dagger)^\dagger = \hat{T}^\dagger \hat{T}$, garante-se que a hermiticidade seja atendida. Para garantir o traço unitário, divide-se a matriz de densidade pelo traço de $\hat{T}^\dagger \hat{T}$. Dessa forma

$$\hat{\rho}_n = \frac{\hat{T}^\dagger \hat{T}}{Tr\{\hat{T}^\dagger \hat{T}\}}, \quad (2.36)$$

Para determinar a matriz de densidade, a matriz \hat{T} precisa ser invertida, dessa forma escrevê-la de forma triangular inferior é relevante. Considerando um sistema de n qubits, \hat{T} é dada por

$$\hat{T}(t) = \begin{pmatrix} t_1 & 0 & \cdots & 0 \\ t_1 & t_2 & \cdots & 0 \\ \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\ t_{4^{n-1}} + it_{4^n} & t_{4^{n-3}} + it_{4^{n-2}} & t_{4^{n-5}} + it_{4^{n-4}} & t_{2^n} \end{pmatrix} \quad (2.37)$$

sendo que t representa um vetor onde cada componente t_i está contida. No caso de dois qubits, t é formado por dezesseis componentes. Por outro lado, para um qubit o vetor é constituído por apenas quatro elementos. Neste contexto, para um qubit a matriz \hat{T} pode ser reduzida a

$$\hat{T}(t) = \begin{pmatrix} t_1 & 0 \\ t_3 + it_4 & t_2 \end{pmatrix} \quad (2.38)$$

Dessa forma, a matriz densidade, para satisfazer o critério da parametrização, é dada por

$$\hat{\rho} = \frac{\hat{T}^\dagger(t)\hat{T}(t)}{\text{Tr}\{\hat{T}^\dagger(t)\hat{T}(t)\}} \quad (2.39)$$

Com o intuito de determinar a função de verossimilhança, assume-se que o processo de contagens dos detectores caracteriza-se por uma distribuição Gaussiana. Dessa forma

$$P(n_i) = A \exp \left[\frac{-(n_i - \bar{n}_i)^2}{2\hat{\sigma}_i^2} \right], \quad (2.40)$$

sendo A uma constante de normalização, σ_i o desvio padrão da distribuição gaussiana, n_i o i -ésimo valor de contagem em coincidência e $\bar{n}_i = \langle \psi_i | \rho | \psi_i \rangle$ refere-se ao valor esperado de n_i .

Para determinar a matriz densidade é necessário encontrar os valores ideais dos coeficientes da matriz $\hat{T}(t)$, através da maximização da função probabilidade definida acima. A maximização desta função equivale a maximizar seu logaritmo, sendo assim a função de verossimilhança é dada por:

$$L(t) = \max P(n_{i,j}) = \sum_{i,j} \frac{(\bar{n}_{i,j} - n_{i,j})^2}{2\hat{\sigma}_{i,j}^2}. \quad (2.41)$$

Maximizando a função acima, obtêm-se os valores dos parâmetros t_i , o que permite a reconstrução da matriz de densidade. Os valores de contagens obtidos experimentalmente são representados por $n_{i,j}$ na função a ser maximizada.

Por fim uma simulação computacional é utilizada para realizar a maximização da função descrita. Neste trabalho foi utilizada uma biblioteca *python* para maximização da função, sendo que foram adaptadas as funções disponibilizadas em (KWAIT, 2021), sendo a mesma base para alguns trabalhos de tomografia de estados fotônicos (JAMES et al., 2001; ALTEPETER; JEFFREY; KWIAT, 2005).

A utilização deste método foi de vital importância para análise das medidas de tomografia, apesar de alguns autores questionarem sua utilização (FERRIE; BLUMENKOHOUT, 2018), pelo fato do método superestimar o estado medido, para análise de tomografia de estados dois qubits, que foi estudado neste trabalho, o métodos mostra-se eficiente (HRADIL; ŘEHÁČEK, 2001).

Neste capítulo foram apresentados conceitos teóricos inerentes ao estudo proposto neste trabalho, de forma a possibilitar uma maior compreensão das etapas necessárias para desenvolvimento do mesmo, bem como da teoria que descreve o fenômeno a ser estudo bem como métodos de análise a serem aplicados.

Capítulo 3

Instrumentação

Neste trabalho, uma investigação do processo de geração de fótons Stokes e anti-Stokes emaranhados utilizando experimentos de tomografia e desigualdade CHSH aliando a técnica de espectroscopia Raman à técnica de contagem de fótons correlacionados temporalmente foi realizada. Por meio da espectroscopia Raman convencional caracteriza-se espectralmente o sistema, identificam-se as frequências (energias) dos modos de vibração mediante análise do espectro Raman. Os sinais Stokes(S) e anti-Stokes(aS) são então analisados temporalmente via detecção em coincidência entre os fótons S e aS, a fim de verificar a produção dos pares de fótons do processo SaS, sendo extraídos deste processo os valores da função de correlação $g_{S,aS}^2(0)$.

Neste capítulo, será apresentada detalhadamente toda instrumentação utilizada para o estudo do emaranhamento do processo SaS, tratando desde as fontes de excitação, passando pela produção e detecção dos pares de fótons Stokes e anti-Stokes correlacionados, sendo descrito o aparato desenvolvido para realização da tomografia de estados, até os detectores e análise dos dados. Alguns dos detalhes da instrumentação descrita nesta seção foram incluídas em um artigo completo publicado nos anais da conferência INSCIT 2023 (FREITAS et al., 2023).

Com esse objetivo, dividiu-se em três partes a explicação da montagem experimental utilizada para caracterizar o processo SaS, seguindo a Figura 5: (1) Fontes de excitação, (2) sistema para espalhamento Raman por transmissão, e (3) sistema para detecção dos fótons Stokes e anti-Stokes em coincidência. A apresentação destas três partes fundamentais permite o entendimento da montagem, cada uma com sua particularidade.

3.1 Fonte de excitação

Para verificar experimentalmente a correlação do processo SaS, bem como a realização da medida de tomografia de estados do mesmo, utilizou-se duas fontes para excitação da amostra de diamante, com o intuito de realizar uma caracterização do sistema.

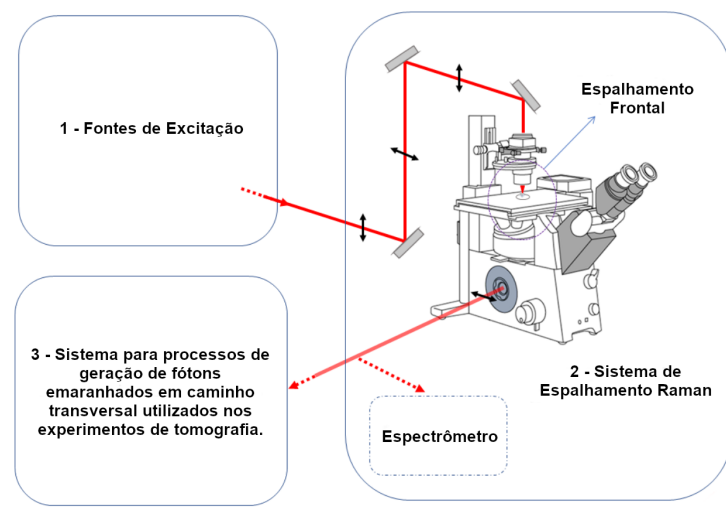


Figura 5 – Resumo dos módulos da montagem experimental. Diagrama adaptado de (JUNIOR, 2020).

Foram utilizados dois lasers pulsados com comprimento de onda na região do infravermelho do espectro, um com largura de pulso da ordem de 200 fs e outro com largura da ordem de 6 ps. O objetivo da utilização dois dois laser, foi que durante as discussões iniciais para realização do experimento surgiu o questionamento se caso utilizássemos um laser com largura de pulso da ordem do tempo de vida do fônon, não teríamos uma maior produção de pares de fótons SaS.

A utilização do laser pulsado se deve ao fato que altos valores de potência podem ser utilizados para excitar a amostra sem causar aquecimento elevado da mesma. Em um laser pulsado, toda a energia é comprimida em um único pulso do laser com uma duração temporal pequena, (~ 180 fs). Dessa forma aumentamos a probabilidade de ocorrência do evento SaS, uma vez que teremos uma grande quantidade de fótons atingindo a amostra ao mesmo tempo, considerando a largura temporal do pulso.

Em uma primeira etapa, foram realizados experimentos para definir qual seria o melhor laser a ser utilizado para excitar a amostra de forma a obter a melhor geração de pares SaS para que o experimento de tomografia seja realizado de forma eficiente. A Figura 6 mostra a parte da excitação da montagem ótica utilizando o laser fs e o laser Verdi G10 da Coherent, que gera um feixe contínuo de comprimento de onda em 532 nm e modo espacial gaussiano (TEM_{00}), sendo possível ajustar a potência do mesmo entre 0 W e 10 W.

O laser Verdi da Coherent excita um cristal de Safira dopado com íons de Titânio, (Ti:Safira) correspondente ao meio de ganho do laser Mira 900F, ou laser de Titânio:Safira, também da Coherent. O cristal de Ti:Safira emite fluorescência entre 680 e 1100 nm (BURTON et al., 2017), que atravessa a cavidade ótica do laser Mira 900F, indo e voltando entre um espelho refletor e outro semi-refletor, amplificando uma frequência específica neste

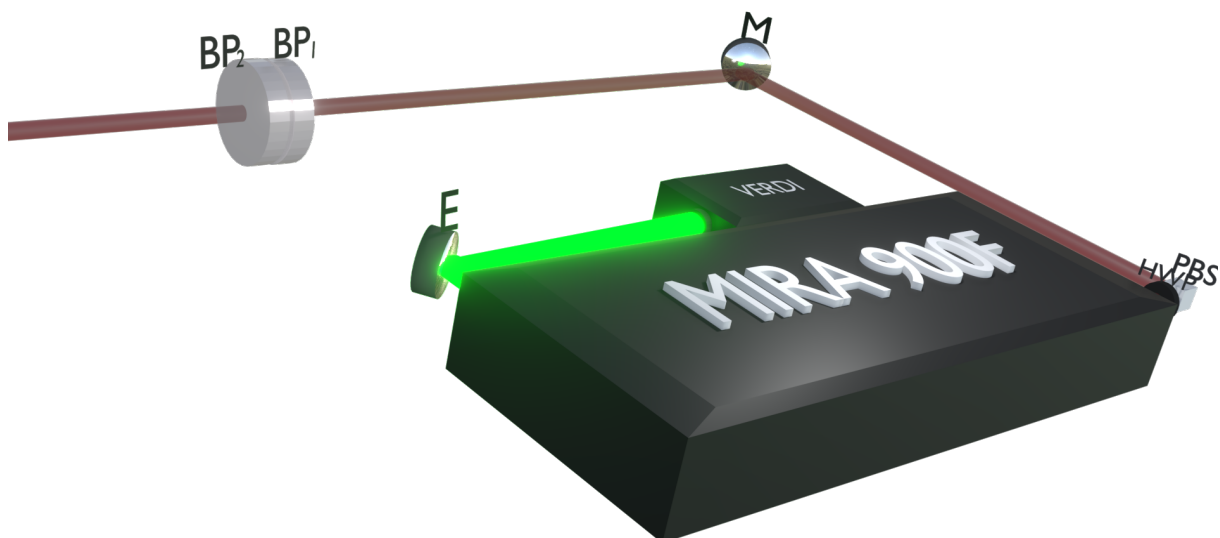


Figura 6 – Fonte de excitação da amostra: montagem ótica. O laser com polarização H emitido pelo MIRA, é direcionado ao microscópio ótico por um espelho de prata (M), antes passando uma placa de meia onda ($\lambda/2$) e um divisor de feixe polarizado (PBS), para controle da potência. Em seguida passa por dois filtros de interferência passa banda ($(BP_1(FF01-786/22), BP_2(785/40))$). Os espelhos indicados na figura por E são espelhos dielétricos apropriados pra uso com altas potência. Extraída de (JUNIOR, 2020).

processo. Parte da radiação emitida deixa a cavidade através de um espelho semi-refletor, produzindo um feixe de luz coerente com frequência determinada pela cavidade. Existem inúmeros modos óticos longitudinais dentro da cavidade do laser, que correspondem a diferentes frequências da fluorescência emitidas pelo meio de ganho, e a seleção do comprimento de operação do Mira é realizada com auxílio de um filtro birrefringente. A estrutura interna do Mira pode ser vista na Figura 7.



Figura 7 – Estrutura interna laser Mira da Coherent.

Inicialmente, o Mira gera um laser contínuo com a diferença de fase entre dois modos longitudinais dentro da cavidade aleatória. Entretanto, ao se introduzirem pequenas mudanças no comprimento da cavidade ótica, alteram-se as diferenças de fases entre os respectivos modos de frequências distintas, introduzindo batimentos dentro da cavidade. Com isso, cria-se um pulso de laser de alta intensidade (I) que viaja na cavidade ótica. Quando esse pulso atravessa o cristal de Ti:Safira, altera localmente o índice de refração do meio (n) em um fenômeno conhecido como efeito Kerr, onde n depende da intensidade do laser, isto é, $n = n(I)$.

O meio ativo age como uma lente para o feixe de laser pulsado que circula na cavidade, diminuindo o seu diâmetro em comparação com o laser contínuo. Gerado o pulso na cavidade, uma fenda é utilizada para bloquear parte do laser contínuo, deixando passar apenas o laser pulsado pelo centro. Parte da intensidade desse pulso criado é liberada quando atinge o espelho semi-refletor e, assim, sucessivamente toda vez que completar um ciclo dentro da cavidade, produzindo um feixe como um trem de pulsos, onde a distância entre os pulsos é determinada pelo comprimento da cavidade e pela velocidade da luz.

Particularmente no Mira 900F, onde um feixe de laser pulsado na faixa do infravermelho é gerado, a distância entre pulsos é da ordem de 13,2 ns, o que equivale a uma taxa de repetição de 76 MHz. O pulso gerado tem uma largura temporal de aproximadamente 200 fs, mas pode sofrer alargamento à medida que viaja através da montagem ótica devido ao fato de que diferentes comprimentos de onda do pulso viajam em velocidades ligeiramente diferentes quando atravessam determinados meios. O comprimento de onda do laser pulsado Ti:Safira pode ser ajustado dentro da faixa de fluorescência do cristal, entre 680 nm e 1000 nm, com máxima eficiência em torno de 800 nm, onde gera um feixe de laser pulsado de até 1,7 W de potência média.

A Figura 8 mostra a parte da excitação da montagem ótica utilizando o laser ps. Nela, o laser picoEmerald OPO, um oscilador ótico paramétrico, é bombeado de forma síncrona por um laser Nd:VAN de picosegundos com modo de frequência interna bloqueado. Ele gera um laser de saída, com pulsos da ordem de picosegundos, na faixa de comprimento de onda de 720 a 2030 nm, sendo possível obter três sinais distintos com sobreposição espacial e temporal de forma automatizada. Um sinal fixo de 1064.6 nm, que sai do oscilador do laser e os sinais *signal* e *idler*, oriundos do OPO, sendo que os mesmos possuem comprimentos de onda ajustáveis em uma determinada faixa espectral.

No picoEmerald, um feixe de laser pulsado na faixa do infravermelho é gerado, a distância entre pulsos é da ordem de 14 ns, o que equivale a uma taxa de repetição de 80 MHz. O pulso gerado tem uma largura temporal de aproximadamente 6ps.

Para realizar a caracterização do processo SaS, com o objetivo de realizarmos as medidas de tomografia de estados, optou-se por utilizar um laser pulsado na faixa do infravermelho, em específico o 785 nm. No caso do laser fs, o feixe que sai do MIRA



Figura 8 – Fonte de excitação da amostra: montagem ótica. O laser com polarização H emitido pelo Pico Emerald é direcionado ao microscópio ótico por um conjunto de espelhos de prata (M), passando por dois filtro de interferência passa banda (BP_1 (FF01-786/22), BP_2 (785/40)).

possui modo espacial gaussiano e uma polarização linear horizontal (H). Utiliza-se dessa propriedade para controlar a potência de excitação da amostra. Para isso, faz-se uso de uma placa de meia onda, que gira a polarização do laser, seguida de um divisor de feixe polarizador (PBS) que transmite a componente linear horizontal (dependendo do alinhamento) do feixe e reflete a componente vertical (V). Sendo θ o ângulo entre a polarização e o eixo de transmissão do PBS, a intensidade $I_T(\theta)$ da luz transmitida através do polarizador, considerando-se um elemento ótico ideal, será $I \cos^2(\theta)$, onde I é a intensidade do feixe antes do PBS (Lei de Malus (COSTA, 2002)).

Dessa forma, controla-se a intensidade da luz que chega na amostra girando a placa de meia onda. É importante ressaltar que a taxa de extinção do polarizador não é infinita, e assim, mesmo para $\theta = 0^\circ$, uma pequena parte da radiação (menos de 1% da intensidade) será refletida no PBS. Por último, espelhos de prata (M) foram utilizados, para direcionar o feixe de laser do MIRA à parte superior de um microscópio ótico invertido que compõe o aparato para estudo do espalhamento Raman (ver Figura 5). Para ambos os lasers foram utilizados dois filtros passa-banda, o BP_1 FF01-786/22, da *Semrock*, e o BP_2 785/40, da *Chroma*, de forma a garantir que o sinal do laser estaria na faixa específica de interesse. Os respectivos espectros de transmissão de ambos os filtros encontram-se representados nas Figuras 9 e 10.

Para o laser ps, foi utilizado o sinal OPO *signal* do picoEmerald, selecionado no comprimento de onda de 785 nm. Uma vez que o software do mesmo permite realizar essa seleção, bem como a potência de saída do mesmo, não foi necessária a utilização de elementos óticos para controle da potência.

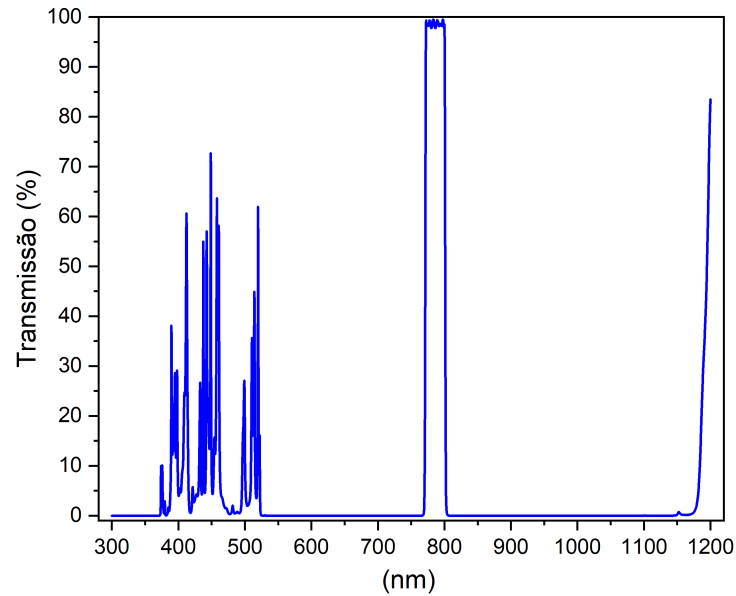


Figura 9 – Espectro de transmissão do filtro passa-banda FF01-786/22. Dados extraídos do site da Semrock <https://www.semrock.com/> em 30/06/2023.

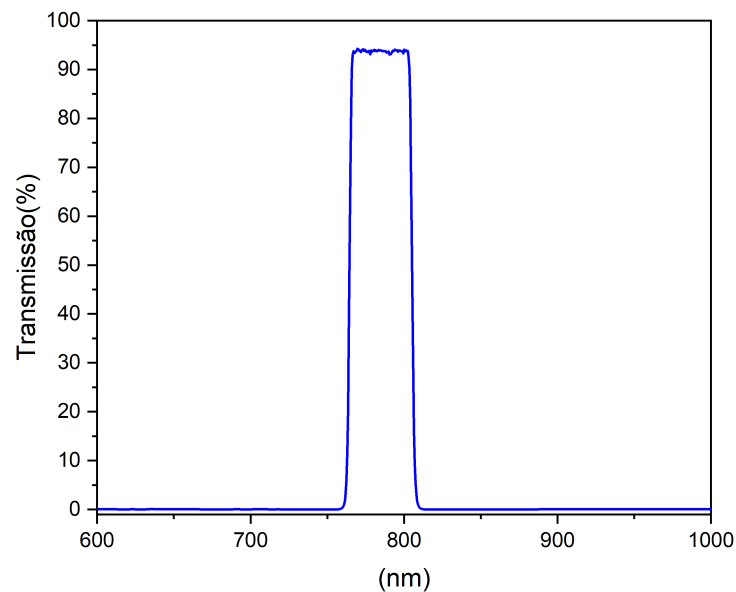


Figura 10 – Espectro de transmissão do filtro passa-banda 785/40. Dados extraídos do site da Chroma <https://www.chroma.com> em 30/06/2023.

3.2 Sistema de espalhamento Raman

Implementar a técnica de espectroscopia Raman requer configurações inerentes ao ângulo de coleta da luz espalhada em relação à excitação (FERRARO, 2003). A configuração utilizada frequentemente depende do material em estudo, bem como de qual fenômeno pretende-se investigar. Comumente, implementa-se a espectroscopia Raman analisando a luz retro espalhada. No entanto, o espalhamento Raman correlacionado ocorre no mesmo sentido de propagação do laser de excitação e, dessa forma, deve-se estudar o espalhamento transmitido da radiação.

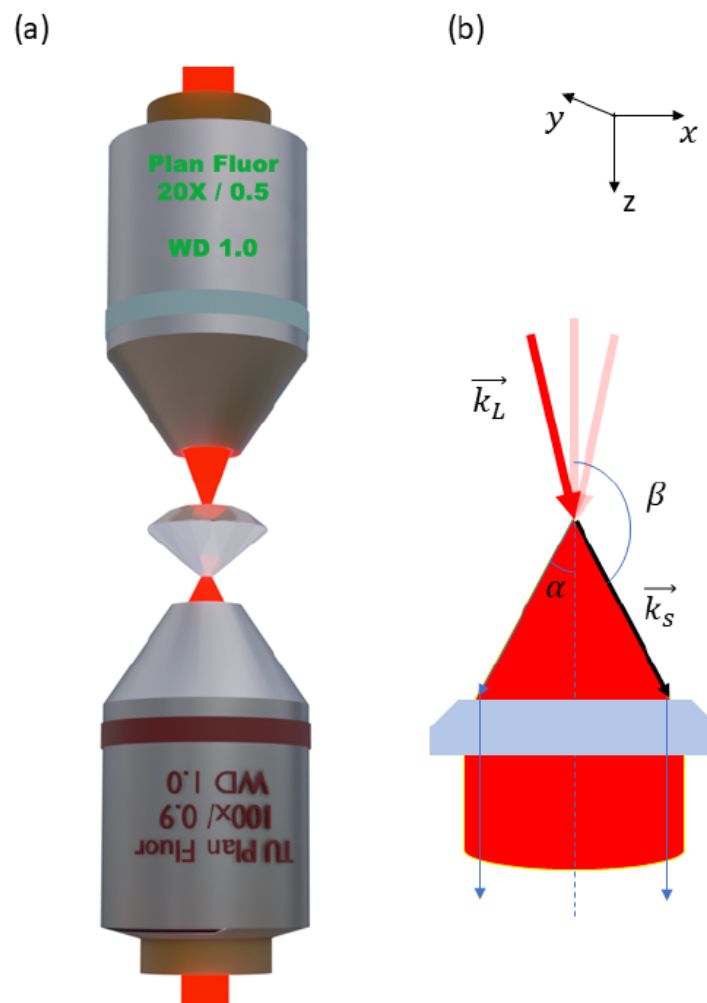


Figura 11 – Detalhamento do espalhamento Raman transmitido. (a) A objetiva na parte superior do microscópio óptico foca o laser na amostra, e uma objetiva inferior coleta o sinal que é espalhado pela amostra, dentro de um ângulo α . (b) determinado pela abertura numérica, $NA = n \sin(\alpha)$ (n refere-se ao índice de refração do meio) da objetiva de 90x. Diagrama adaptado de (JUNIOR, 2020).

Uma geometria do espalhamento Raman frontal foi montada fazendo-se uso da estrutura física e a parte ótica de um microscópio óptico invertido. Uma objetiva foi adaptada na parte superior do microscópio para focalizar o laser na amostra, ao mesmo tempo que uma objetiva no interior do microscópio coleta o sinal espalhado no sentido de propagação o laser (Figuras 5 e 11). A objetiva responsável por focalizar o laser de excitação é montada em três estágios de translação lineares micrométricos, o que permite movimentá-la em xyz de forma a coincidir os focos das objetivas utilizadas, dentro da amostra de interesse. A objetiva responsável por coletar o sinal espalhado encontra-se fixa em xy dentro do microscópio, deslocando-se apenas na direção z, de forma a ajustar o local de coleta de sinal no interior da amostra.

O sinal coletado pela objetiva inferior passa colimado por um filtro Notch (N_L),

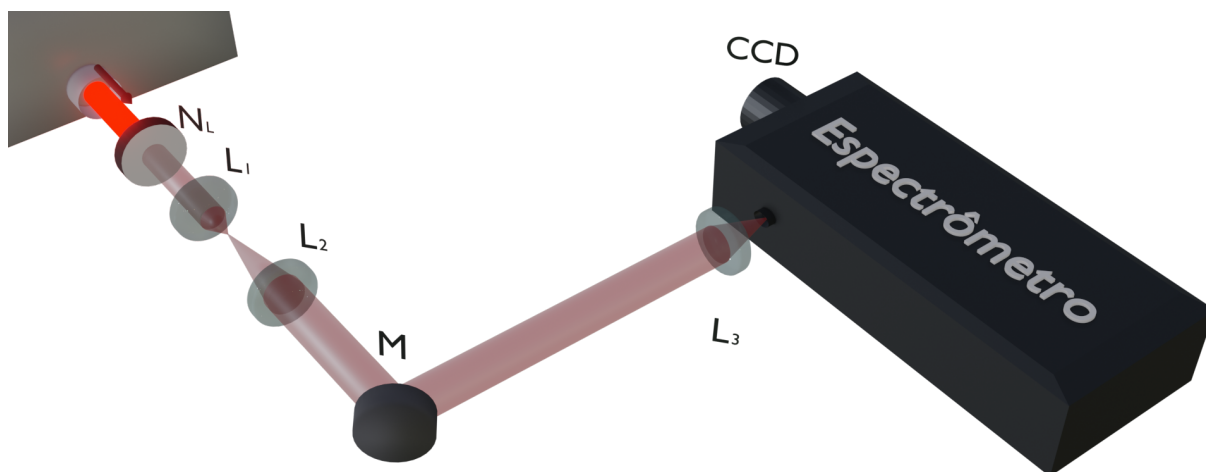


Figura 12 – Esquema da montagem para análise do espalhamento Raman na direção da luz incidente. Notch (N_L) refere-se ao filtro de interferência que bloqueia o espalhamento Rayleigh. L_1, L_2 e L_3 são lentes esféricas acromáticas plano convexas, M é um espelho de prata, escamoteável que é utilizado para direcionar o sinal para o espectrômetro. Diagrama adaptado de (JUNIOR, 2020).

cuja finalidade é bloquear o espalhamento Rayleigh através da amostra, veja Figura 12. O filtro Notch bloqueia uma certa região do espectro, transmitindo em outros comprimentos de onda. No nosso caso, como excitamos a amostra com o laser em 785 nm, utilizamos dois filtros para bloquear o intenso laser que é transmitido através da amostra. Os filtros, de densidade ótica 6 da Semrock, NF03-785E, bloqueiam comprimentos de onda entre, aproximadamente, 765 e 800 nm, transmitindo acima de 90% fora dessa faixa, veja Figura 13. Um outro filtro, do mesmo modelo, é posicionado dentro do microscópio, logo abaixo da objetiva, impedido que uma alta intensidade do laser de excitação da amostra seja transmitida para área de detecção. O principal objetivo de se colocar um filtro logo após a amostra, dentro do microscópio, deve-se ao fato de o laser pulsado de alta potência gerar fenômenos de luminescência nos próprios dispositivos óticos do microscópio. Esse sinal que não provém da amostra propaga-se junto com o sinal Raman de interesse para o sistema de detecção, o que contribuiria com o ruído na medida, se o laser fosse bloqueado somente fora do microscópio.

Em seguida, o sinal atravessa um conjunto de lentes convexas acromáticas L_1 (AC254-50-A-ML) e L_2 (AC254-250-A-ML) que amplia o diâmetro do feixe. Por último, o sinal é refletido, por meio do espelho de prata (M), para uma lente L_3 que focaliza o sinal Raman na fenda de um espectrômetro, Figura 12, equipado com um conjunto de grades de difração, e acoplado a uma CCD (*Charge-Coupled Device*) cuja análise espectral da luz gera um gráfico com a intensidade da luz espalhada em função de seu comprimento de onda $\lambda(nm)$. Para obter uma maior eficiência na detecção, idealmente a lente L_3 deve possuir a mesma distância focal do espectrômetro.

Foi utilizada na montagem um espectrômetro da Princeton, modelo ACTON

SP2356, cujas eficiências das grades de difração encontram-se representadas na Figura 14. O mesmo é equipado com uma CCD modelo PIXIS 256BR, cuja eficiência encontram-se representada na Figura 15.

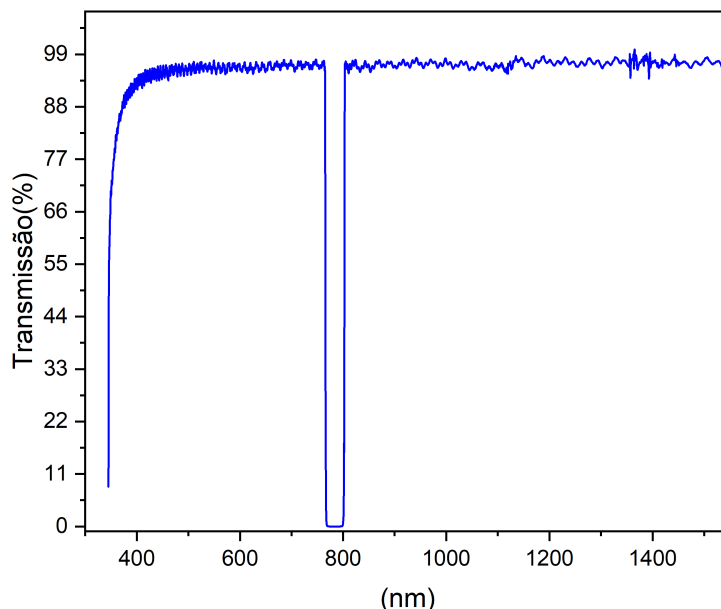


Figura 13 – Espectro de transmissão do filtro notch NF03-785E. Dados extraídos do site da Semrock <https://www.semrock.com/> em 30/06/2023.

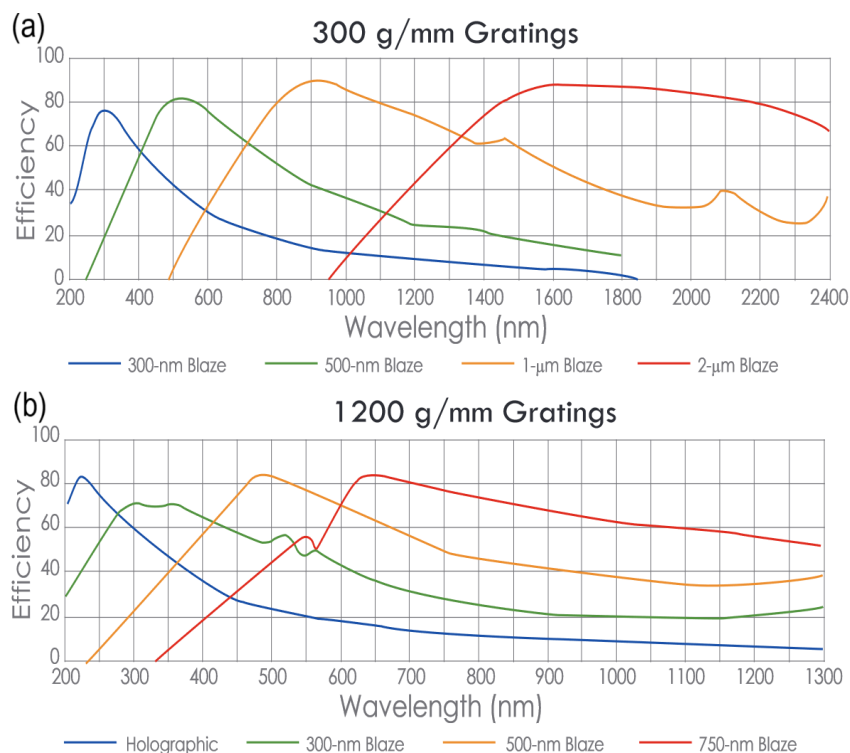


Figura 14 – Eficiência das grades de difração do espectrômetro SP2356, em função do comprimento de onda λ Em (a) a eficiência da grade de resolução 300g/mm e em (b) a eficiência da grade de resolução 1200g/mm. Dados extraídos do manual do fabricante (INSTRUMENTS, 2017).

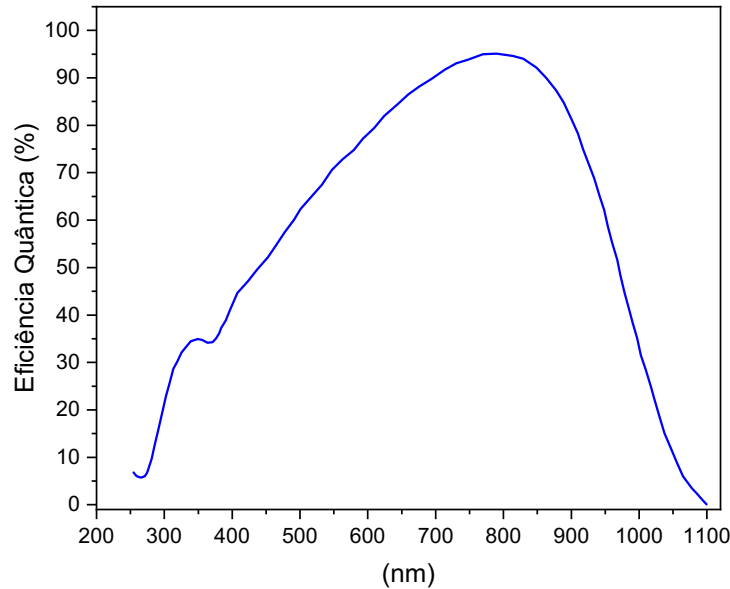


Figura 15 – Eficiência da CCD PIXIS 256BR, em função do comprimento de onda. Dados extraídos do manual do fabricante (INSTRUMENTS, 2020).

3.3 Sistema de contagem em coincidência dos fótons Stokes e anti-Stokes correlacionados temporalmente

A seguir, será apresentado o sistema de detecção da correlação entre as componentes Stokes e anti-Stokes, por meio do experimento de contagem em coincidência de fótons e determinação de $g_{S,aS}^2(0)$.

Na investigação da tomografia de estados do processo SaS, o sinal Raman, após passar pela lente L_2 , é enviado a um filtro dicróico (Dic. Figura 16), que reflete o sinal anti-Stokes e transmite o sinal Stokes. Utilizou-se um filtro dicróico com comprimento de onda de corte em 765 nm. Logo, excitando a amostra com o laser em 785 nm, todo espalhamento com comprimento de onda abaixo de 765 nm é refletido, enquanto comprimentos de onda acima de 765 nm são transmitidos pelo dicróico posicionado a 45° em relação à incidência do sinal Raman. Nesta configuração, fótons remanescentes do laser são transmitidos junto com o sinal Stokes. Esta configuração é desejada, uma vez que o sinal Stokes é muito mais intenso que o anti-Stokes, e dessa forma, a passagem de fótons do laser até o detector APD-S causará menos impacto sobre as medidas.

Após o dicróico, foram utilizadas duas montagens experimentais diferentes. Em uma primeira configuração, Figura 16, foi utilizado um monocromador da Newport, modelo Cornestone 260, cuja curva de eficiência encontra-se na Figura 17, que permite selecionar um determinado comprimento de onda no espectro da luz, sendo que para o experimento em questão foi selecionado o que transmite apenas os fótons anti-Stokes espalhados por fônons de mesma frequência daqueles que participam do processo Stokes, isto é, $\omega_{aS} = \omega_L + \nu_q$, funcionando nesse cenário como um filtro com uma janela de transmissão espectral muito

estreita. Para selecionar apenas o espalhamento Raman Stokes de frequência $\omega_S = \omega_L - \nu_q$ quando o foco for medir o sinal de ν_q , o sinal foi direcionado para APD sem utilização de filtro.

Em uma segunda configuração, Figura 18, após o dicróico foi utilizado um filtro (BP_S), modelo FF01-875/25 centrado no comprimento de onda de detecção desejado para o sinal Stokes (λ_S) para seleção do sinal desejado, e um filtro passa banda (BP_{aS}) centrado no comprimento de onda de detecção desejado para o sinal anti-Stokes, modelo FF01-711/25. Ambos os filtros são da fabricante *Semrock*.

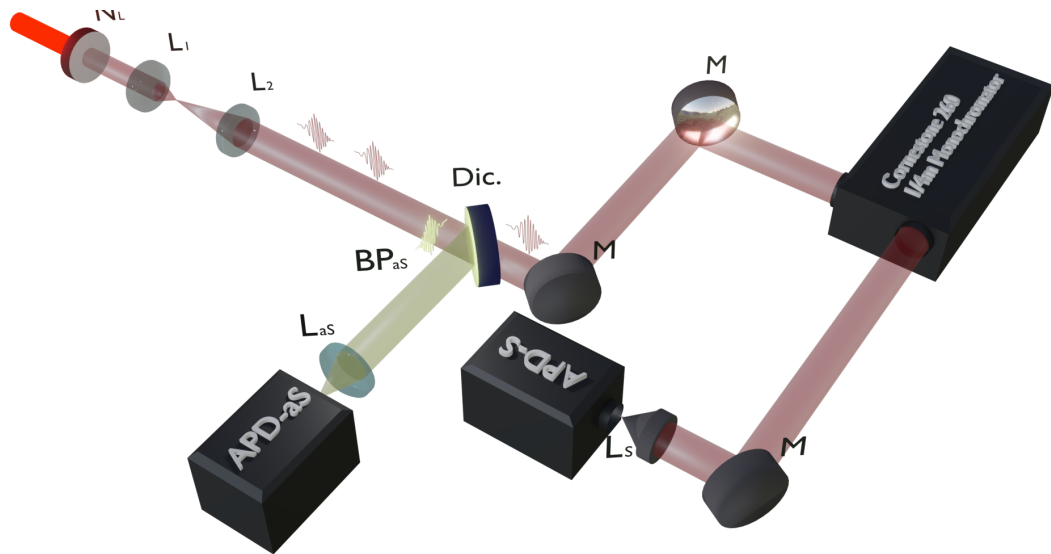


Figura 16 – Montagem óptica para detecção em coincidência dos fótons S e aS com filtragem por monocromador. N_L é um filtro *notch* centrado no comprimento de onda do laser. *Dic.* é um divisor de feixe dicróico. $L_{S,aS}$ refere-se a lentes acromáticas plano convexas que focalizam o sinal Raman nos respectivos APD's. M são espelhos de prata que direcionam o sinal S para o monocromador e posteriormente para a APD.

Após selecionado pelos filtros, de acordo com o espectro Raman observado da amostra, o sinal Raman de interesse é focalizado nos detectores (APD's) Stokes e anti-Stokes. No caso do sinal anti-Stokes, uma lente plano convexa acromática L_{aS} de distância focal igual a 45 mm (o que determina o tamanho do foco do sinal Raman nos detectores, que deve ser menor que as áreas de detecção dos APD's), modelo AC254-045-A da *Thorlabs*, é utilizada para esse processo. Com relação ao sinal Stokes, no caso da primeira montagem, uma lente objetiva, NIKON Plan Fluor 20x0.45, é utilizada para focalizar o sinal, e na segunda montagem uma lente plano convexa acromática L_S , modelo modelo AC254-030-A da *Thorlabs* é utilizada. Os contadores de fótons, APD's (do inglês *Avalanche Photodiodes*) são dispositivos de estado sólido que exploram o efeito fotoelétrico para converter luz em sinal elétrico. Foi utilizado um modelo da Excelitas, o APD SPCM-AQRH-14, mostrado na Figura 19, cuja área de detecção (diâmetro) é de $170 \mu\text{m}$, um tempo de cegueira de

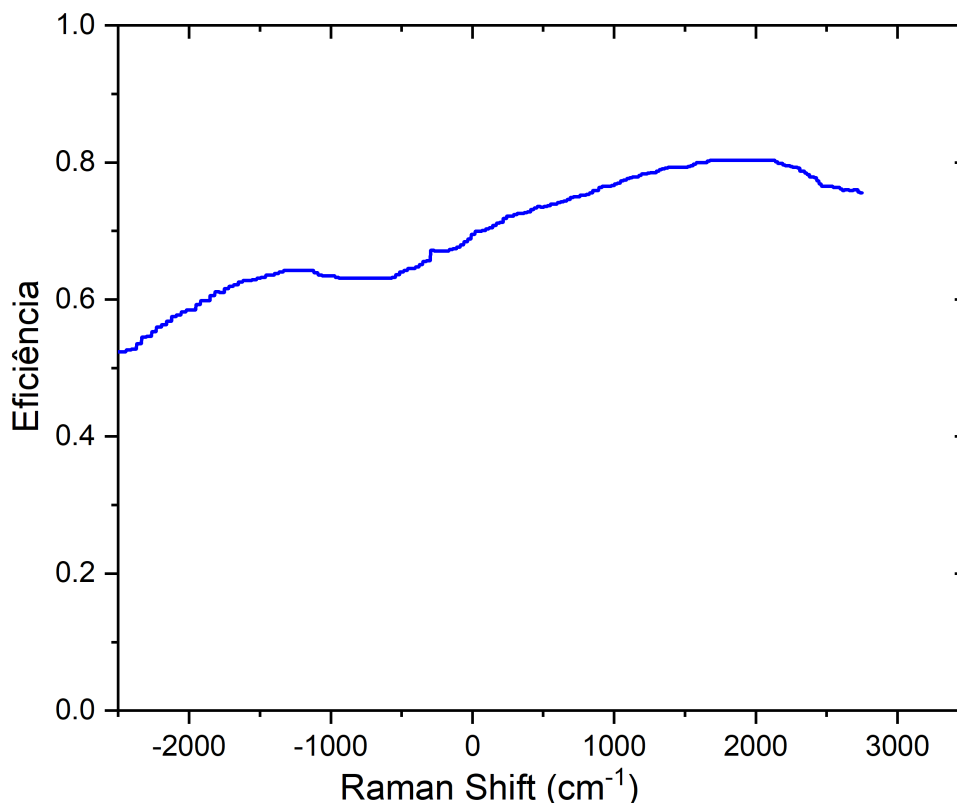


Figura 17 – Eficiência das grade da grade do monocromador Cornestone 260, em função do comprimento de onda. Dados extraídos do manual do fabricante (CORPORATION,).

22 ns, que corresponde ao tempo mínimo entre duas detecções subsequentes. A taxa de contagem no escuro dos APD's é de 100 contagens por segundo (c/s), equivalente ao ruído das detecções. Desde de que esse APD detecta um fóton aproximadamente a cada 22,7 ns, com um tempo de resposta da ordem de picossegundos, ele pode atingir uma taxa máxima de contagem de 37×10^6 (c/s).

Os APD's utilizados têm uma eficiência quântica da ordem 70% na detecção de fótons com comprimento de onda na faixa de 700 nm (veja Figura 20), ideal para a detecção do sinal anti-Stokes do espalhamento Raman do diamante quando o laser de excitação da amostra tem comprimento de onda em 785 nm. Para detecção dos fótons Stokes do diamante, a eficiência cai para aproximadamente 50% em torno 870 nm. A eficiência total de detecção do APD é uma especificação que considera eventuais erros na fotodetecção, tais como estatística de chegada no tempo de escuro do APD, reflexões superficiais na área de detecção, bem como da eficiência quântica relacionada à probabilidade de ocorrência do efeito fotoelétrico para determinada energia dos fótons, referente às taxas de transições entre o estado inicial e final do elétron quando absorve um fóton (GARRISON; CHIAO, 2008).

Após a absorção de um fóton, o APD produz um pulso elétrico com saídas do tipo TTL. O sinal TTL, com uma amplitude de 2.2 V, possui largura temporal máxima

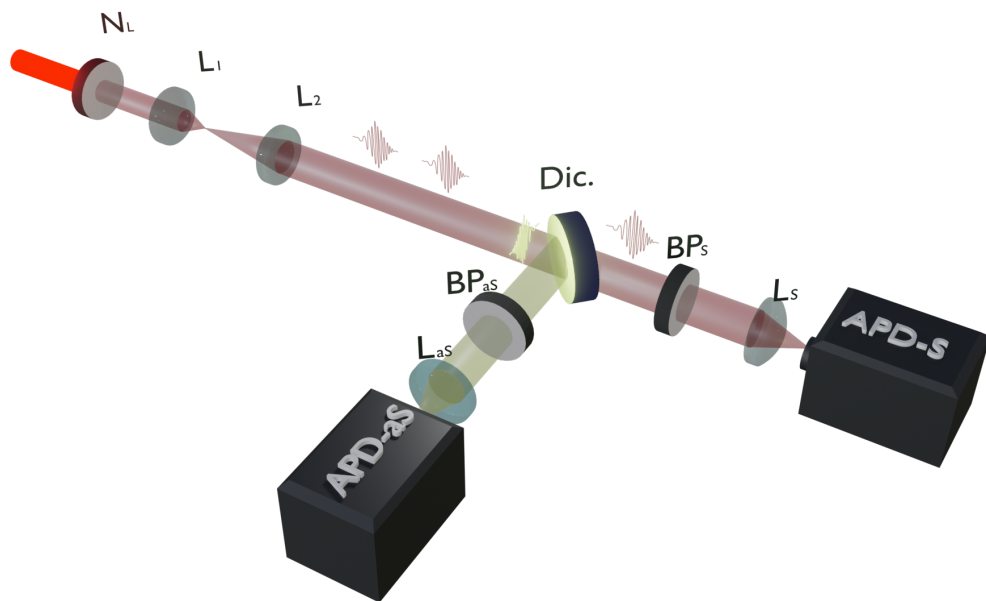


Figura 18 – Montagem óptica para detecção em coincidência dos fótons S e aS com filtragem por filtros óticos. N_L é um filtro *notch* centrado no comprimento de onda do laser. *Dic.* é um divisor de feixe dicróico. $BP_{S,aS}$ são filtros passa banda no comprimento de onda Stokes e anti-Stokes, respectivamente, e $L_{S,aS}$ refere-se a lentes acromáticas plano convexas que focalizam o sinal Raman nos respectivos APD's. Adaptado de (JUNIOR, 2020)



Figura 19 – APD SPCM-AQRH-14. Imagem retirada do manual do fornecedor (TECHNOLOGIES, 2020)

de 350ps (largura à meia altura do pulso), relacionada ao tempo de resposta do detector. Os APD's Stokes e anti-Stokes são conectados ao correlacionador temporal PicoHarp300, também da PicoQuant, que possui duas entradas Channel 0 e Channel 1 (Figura 21) e que aceitam somente sinal negativo de até -1V. Para usar a saída TTL do respectivo APD, é necessária a utilização de um inversor e atenuador de sinal elétrico, SIA400, conforme

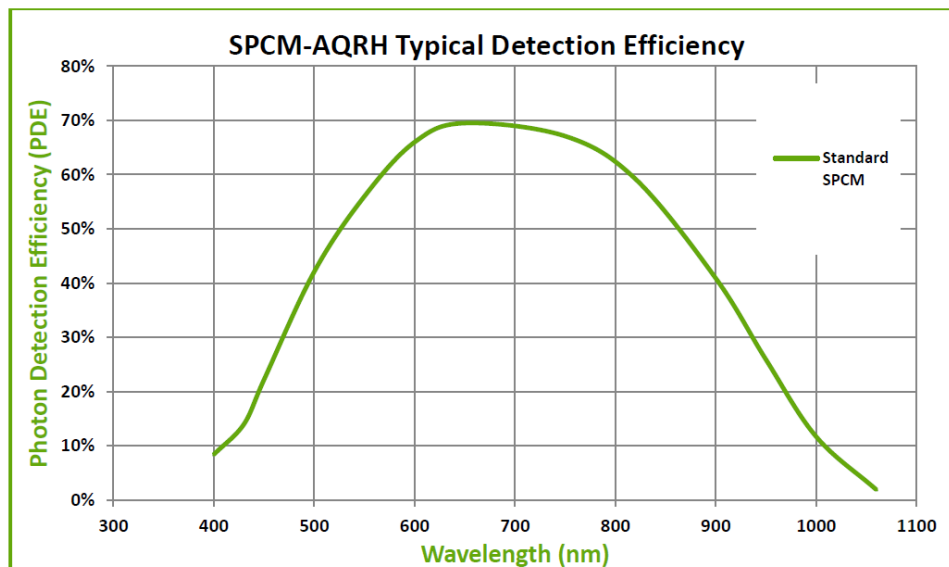


Figura 20 – Eficiência do APD SPCM-AQRH-14, em função do comprimento de onda. Imagem retirada do manual do fornecedor (TECHOLOGIES, 2020)

Figura 22.



Figura 21 – Correlacionador temporal PicoHarp300. Imagem retirada da página web do fornecedor: <https://www.picoquant.com/> em 20/05/2021

Os APDs são conectados ao correlacionador temporal PicoHarp 300 por meio de cabos coaxiais de impedância de 50Ω . Um dos APD's é conectado ao canal 0 por meio de um cabo coaxial de 1 metro, enquanto o outro APD é conectado ao canal 1 utilizando um cabo coaxial de aproximadamente 20 metros, o que gera um atraso em torno de 92 ns, no sinal entre as APD's. Este atraso é incluído para que fótons gerados em coincidência no material sejam detectados com um atraso, possibilitando assim medir diferenças de tempo entre os fótons gerados tanto positiva quanto negativa. Geralmente, o APD-S é conectado ao canal 0 e o APD-aS ao canal 1. No entanto, não importa o canal que estejam conectados desde que o cabo maior esteja ligado sempre ao canal 1.

O PicoHarp 300 possui dois modos de operação, T2 e T3, que podem ser utilizados de acordo com o experimento que se deseja realizar. No modo T2, normalmente utilizado

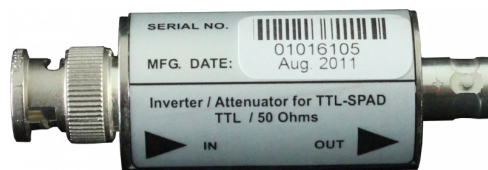


Figura 22 – O módulo SIA 400 é um módulo passivo cuja funcionalidade é inverter e atenuar (20 dB) pulsos TTL produzidos, neste caso, pelos APD's utilizados, para pulsos negativos compatíveis com unidades PicoQuant . Imagem retirada da página web do fornecedor: <https://www.picoquant.com/> em 20/05/2021

para medidas de contagem em coincidência, ambos os sinais dos APD's são tratados identicamente do ponto de vista funcional, sendo utilizados os mesmos circuitos eletrônicos para processá-los. Os eventos relativos aos tempos de detecção dos fótons em cada um dos APD's são tratados de forma idêntica e gravados à parte. Em cada caso, o registro de um evento gerado contém informações sobre a origem (se canal 1 ou 0) e o tempo de chegada do evento (tempo de detecção do fóton) referente ao tempo de início da medição total.

Durante uma medida de coincidência de fótons, o correlacionador temporal determina o tempo decorrido entre duas detecções sucessivas em detectores distintos, analisando os sinais emitidos pelos APD's. Para isso, o PicoHarp 300 utiliza um circuito denominado *Time to Digital Converter* (TDC) em cada uma das entradas 0 e 1 (Figura 23), capaz de medir diferenças de tempo com base nos tempos de atraso de sinais elétricos (KALISZ, 2004), que chegam dos APDs, realizada por um outro circuito chamado CDF (Constant Fraction Discriminator), capaz de fornecer um sinal de saída digital com propriedades de temporização quase independentes da altura do pulso (BINKLEY, 1992). O TDC conta o tempo de detecção de cada fóton em cada APD com uma resolução temporal de aproximadamente 4 ps. Subtraindo-se os eventos registrados no canal 1 pelos do canal 0, um histograma da diferença temporal entre os eventos é obtido.

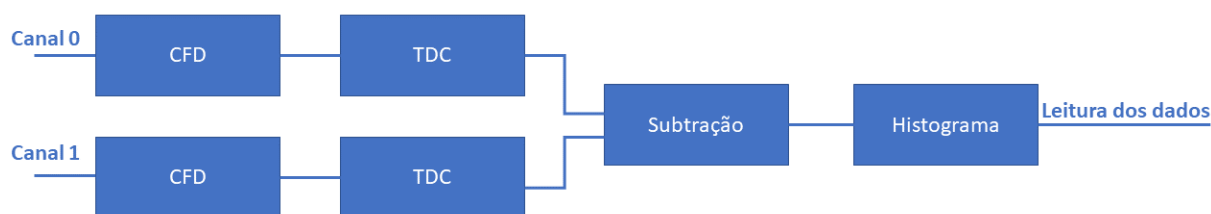


Figura 23 – Esquema do circuito digital do PicoHarp 300. Adaptada de (WAHL, 2007)

O PicoHarp trabalha com uma resolução temporal entre 4 ps e 512 ps, duas ordens de grandeza maior do que a largura do pulso do laser (≈ 200 fs). Assim, o pico central em $\Delta_\tau = 0$ (Figura 24 (d)) referente à detecção dos fótons Stokes e anti-Stokes no mesmo tempo, $t_S = t_{aS}$ (Figura 24 (a)), dentro da janela de detecção do PicoHarp, representa a ocorrência dos processo S e aS dentro de um mesmo pulso do laser. O picos de coincidência para valores negativos de Δ_τ correspondem à ocorrência primeiro do processo anti-Stokes seguido do espalhamento Stokes. Se o processo aS ocorre no primeiro pulso, e o processo S

ocorre no pulso seguinte, teremos então uma coincidência em $-13,2$ ns (Figura 24 (c)). Caso o processo S ocorra no terceiro pulso que chega a amostra, após a detecção do processo aS, teremos um pico em $-26,4$ ns, e assim sucessivamente. Já os valores de $\Delta\tau > 0$ representam a detecção primeiro do processo Stokes seguida do anti-Stokes (Figura 24 (b)).

O processo de detecção dos fótons Stokes e anti-Stokes nos APD's está descrito na Figura 25. À esquerda, encontra-se descrito o processo de detecção dos fótons Stokes e anti-Stokes nos APD's. À direita, temos descrito o processo de leitura realizada e a correlação temporal entre os pulsos dos dois APD's. Durante um período de medição T , quando ocorre qualquer sobreposição temporal entre os pulsos emitidos pelos APD's, dentro de uma janela T_R , uma coincidência é computada.

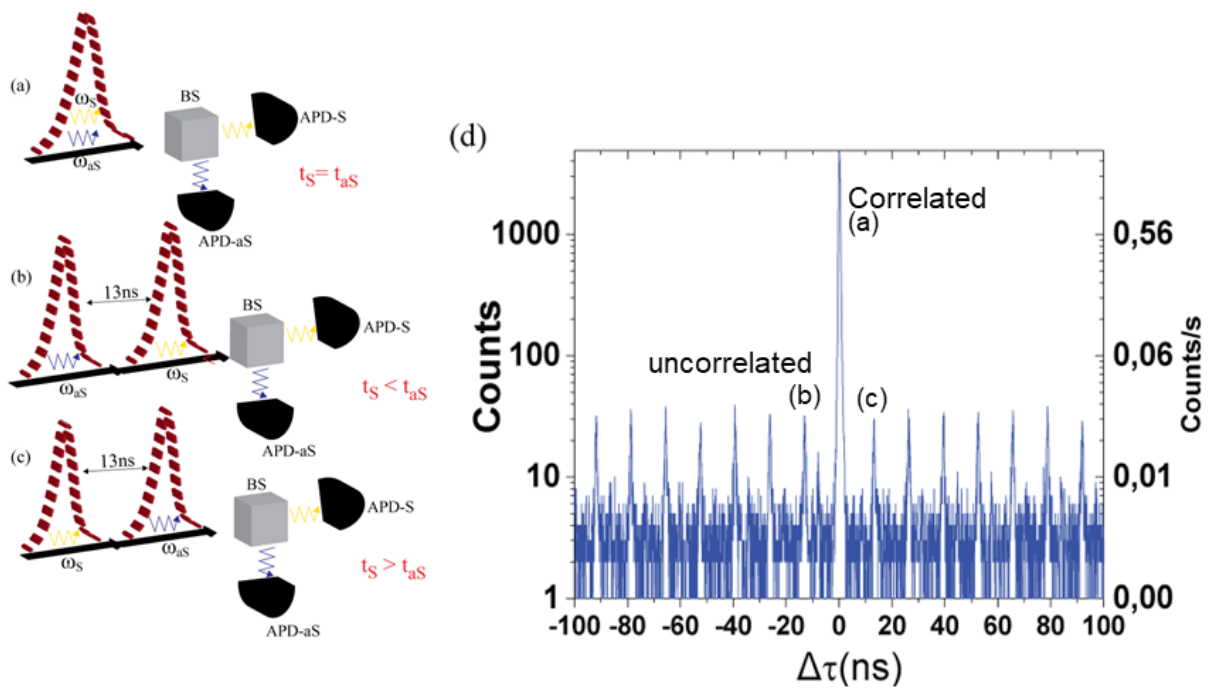


Figura 24 – Esquema de detecção de contagem em coincidência e construção do histograma de correlação.

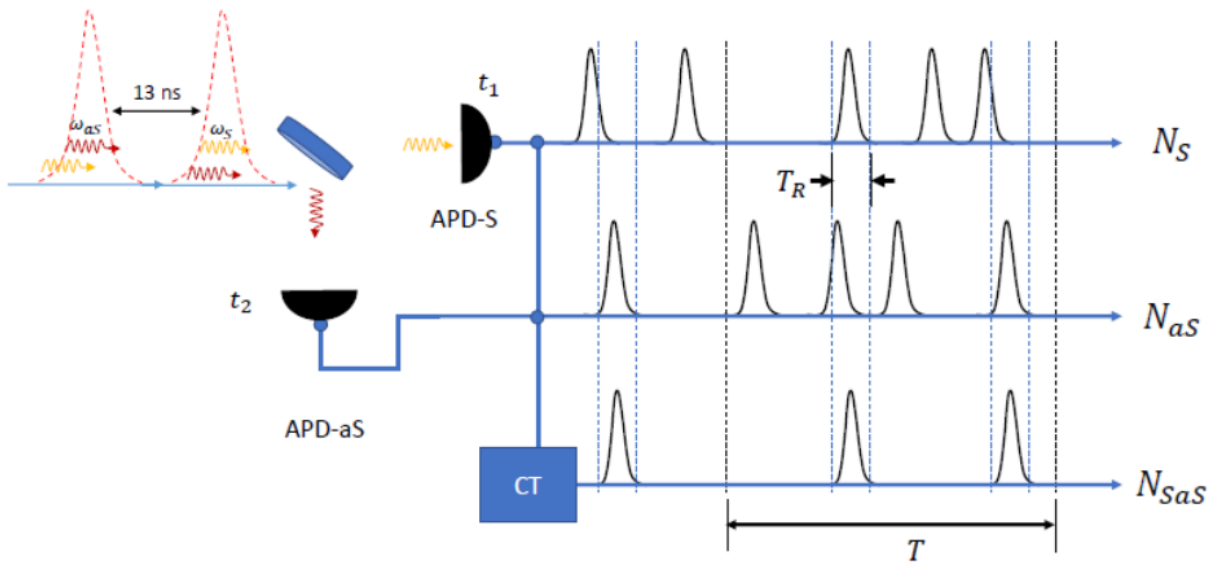


Figura 25 – Esquemático da medida de contagem em coincidência. À esquerda, encontra-se descrito o processo de detecção dos fótons Stokes e anti-Stokes nos APD's. À direita, temos descrito o processo de leitura realizada e a correlação temporal entre os pulsos dos dois APD's. Durante um período de medição T , quando ocorre qualquer sobreposição temporal entre os pulsos emitidos pelos APD's, dentro de uma janela T_R , uma coincidência é computada. Fonte: (JUNIOR, 2020)

3.4 Seleção de polarização

Como veremos mais a frente, para realizar a tomografia do estado de polarização do estado SaS, é necessário utilizar e analisar fótons com as diversas polarizações representativas da esfera de Bloch. Ou seja, é preciso rotacionar as polarizações lineares, bem como transformar de linear para circularmente polarizada. Para isso, utilizam-se as placas de onda.

Placas de onda são placas confeccionadas a partir de materiais birrefringentes cujo objetivo é alterar as fases entre as componentes do campo elétrico que estão oscilando ao longo do eixo óptico e na direção perpendicular a ele (HECHT, 2017). Esta propriedade birrefringente introduz uma diferença de velocidade entre a luz polarizada ao longo dos eixos principais rápido e lento da placa de onda. O eixo principal rápido da placa de onda tem um índice de refração mais baixo, o que resulta em uma maior velocidade para a luz polarizada nesta direção. Por outro lado, o eixo lento tem um índice de refração mais alto, ocasionando uma menor velocidade para a luz com esta polarização. Quando a luz passa por uma placa de onda, essa diferença de velocidade leva a uma diferença de fase entre os dois componentes de polarização ortogonal.

Para realização do experimento de tomografia do fenômeno SaS, será feita uma combinação entre placas de $1/2$ onda e de $1/4$ onda, em combinações de ângulos previamente calculado, como descrito mais a frente.

3.4.1 Placa de meia onda (*Half-wave plate*)

A placa de $\lambda/2$ onda é aquela na qual a diferença de fase obtida entre as duas componentes do campo elétrico da luz se propagando paralela ou perpendicular ao eixo óptico equivale a $1/2$ do período, ou seja, π . Na Figura 26, encontra-se ilustrado o efeito da placa no sinal do laser.

Quando um feixe polarizado linearmente incide em uma placa de meia onda em um ângulo θ , e a polarização deste feixe não coincide com um desses eixos, a polarização de saída será linear e girada a um ângulo 2θ em relação à polarização do feixe de entrada.

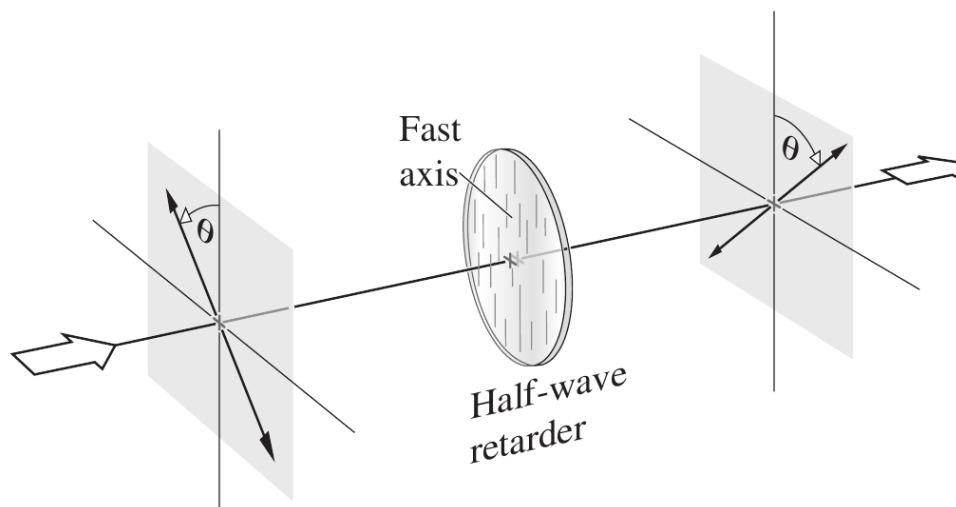


Figura 26 – Uma placa de meia onda gira o sinal do laser inicialmente linearmente polarizada em um ângulo θ através de um ângulo total de 2θ . A luz incide no primeiro e terceiro quadrantes, e surge oscilando no segundo e quarto quadrantes. Extraída de (HECHT, 2017)

Para realização do experimento, será utilizada para rotacionar o sinal Stokes uma placa de $\lambda/2$ onda acromática Thorlabs, modelo AHWP05M-980, com faixa de comprimento de onda de 690-1200nm. Para o sinal anti-Stokes será utilizada uma placa de $\lambda/2$ onda da Tower Optical, modelo A-12.7-A-.500-B-4, com faixa de comprimento de onda de 610-850nm.

3.4.2 Placa de quarto de onda (*Quarter-wave plate*)

A placa de $\lambda/4$ onda é aquela na qual a diferença de fase obtida entre as duas componentes do campo elétrico da luz se propagando paralela ou perpendicular ao eixo óptico é $\lambda/4$ do período, ou seja, $\pi/2$. Na Figura 27, encontra-se ilustrado o efeito da placa no sinal do laser. Neste experimento a placa será utilizada para transformar o feixe do laser inicialmente com polarização linear, em um feixe circularmente polarizado, à direita ou à esquerda de acordo com o ângulo de incidência do laser como o eixo óptico da placa.

No respectivo experimento, a função da placa de $\lambda/4$ onda é fazer aparecer uma fase de $\pi/2$ entre as componentes. O objetivo da tomografia é medir a projeção do estado em cada polarização, e a placa de $\lambda/4$ onda é importante para conferir a projeção do estado na polarização circular.

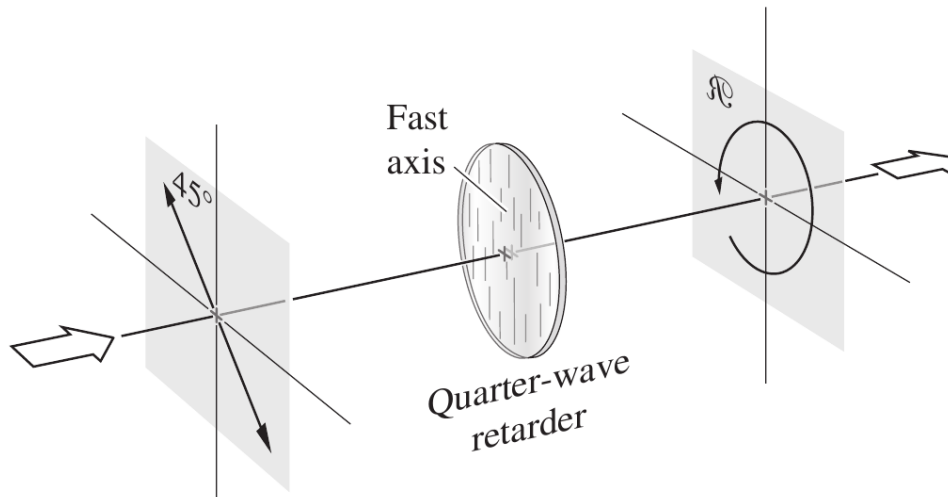


Figura 27 – A placa de um quarto de onda transforma a luz inicialmente linearmente polarizada em um ângulo de 45° do seu eixo óptico, em luz circularmente polarizada a direita (girando no sentido horário olhando em direção à fonte). Extraída de (HECHT, 2017).

Para realização do experimento, foi utilizado para rotacionar o sinal Stokes uma placa de $\lambda/4$ onda acromática Thorlabs, modelo AQWP05M-980, com faixa de comprimento de onda de 690-1200 nm. Para o sinal anti-Stokes será utilizada uma placa de $\lambda/4$ onda da Tower Optical, modelo A-12.7-A-.500-B-4, com faixa de comprimento de onda de 610-850 nm.

3.4.3 Rotacionador de placas

Para realizar o experimento de tomografia de estados, foi necessário confeccionar algumas peças para adaptar as placas no sistema de medida, de forma que as mesmas fossem acopladas aos motores de passo para rotacioná-las de forma automática, de forma que fosse possível combinar as placas com as respectivas angulações para se obter os operadores desejados para efetuar a tomografia de estados SaS. Na Figura 28, encontra-se um detalhamento do rotacionador proposto, onde a placa de onda é inserida em um tubo fabricado em alumínio, fixado a um rolamento, que será preso em um suporte, que também foi fabricado (Figura 29), que será montado em uma base na mesa ótica onde o experimento será realizado. A montagem final proposta encontra-se ilustrada na Figura 30.

O rotacionador proposto será acoplado a um motor de passo, através de uma correia dentada, de forma que, após calibrado, ou seja, encontrada a posição de 0° do

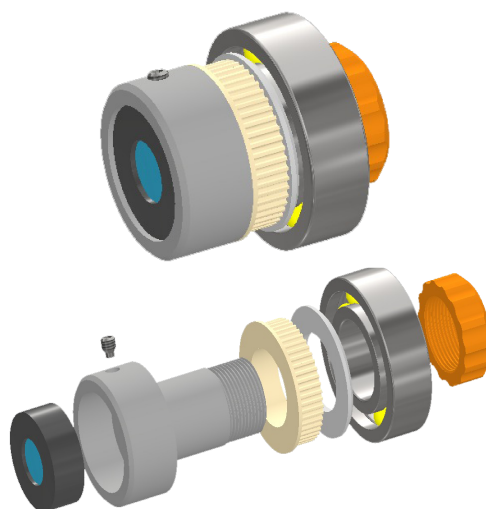


Figura 28 – Rotacionador de placas. Fonte: Victor Monken

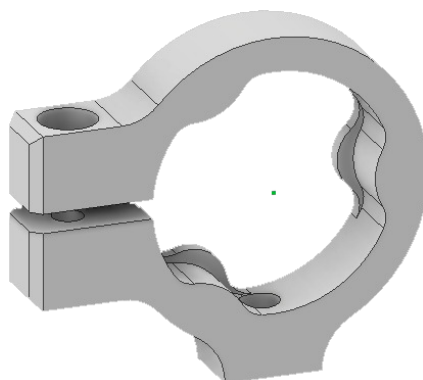


Figura 29 – Suporte Rolamento. Fonte: Victor Monken

sistema, a placa possa ser rotacionada automaticamente. A forma como as placas serão controladas segue descrita na seção a seguir.

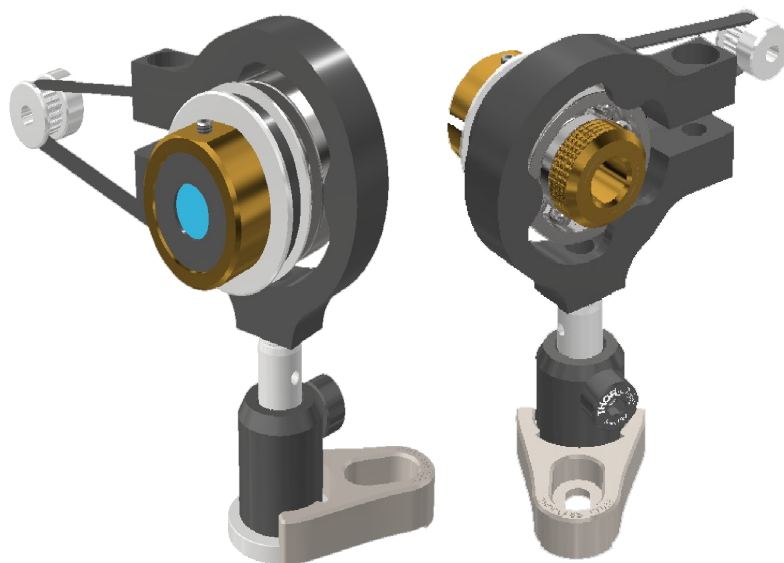


Figura 30 – Montagem Rotacionador de placas. Fonte: Victor Monken

3.4.4 Sistema de controle de placas de onda para experimento de tomografia

Com o objetivo de realizar o experimento de tomografia do estado SaS, fez-se necessário implementar um sistema que automatizasse a rotação das placas de onda $\lambda/2$ e $\lambda/4$. Para implementação desse sistema foi utilizada uma placa Arduino, que é uma plataforma de prototipagem eletrônica (BANZI; SHILOH, 2014), de fácil implementação para controle geral do sistema. O mesmo foi utilizado para controle de 4 motores de passo, modelo NEMA 17, que foram utilizados para rotacionar as placas em um determinado ângulo. Para controle dos motores, foi utilizado um módulo dedicado a esta função. O modelo escolhido foi o *EasyDriver* (SPARKFUN, 2013). Ele foi projetado por Brian Schmalz e foi desenvolvido em torno do CI A3967. Este CI permite o acionamento de motores de passo bipolares com configurações de 4, 6 ou 8 fios. A placa pode funcionar com sistemas de 3,3 V ou 5 V, o que a torna extremamente versátil.

A facilidade de uso e implementação para controle de motores de passo, conforme ilustrado na Figura 31, permitiu realizar o controle dos quatro motores utilizando apenas um arduino. Além da alimentação via USB do arduino, foi necessário utilizar uma fonte de alimentação de 12V para alimentar os módulos *EasyDriver*.

Para facilitar esse processo de controle dos motores, foi desenvolvida uma interface de controle simples utilizando a linguagem de programação *Processing*, conforme ilustrado na Figura 32. Cada botão da interface foi identificado com um determinado valor de ângulo (-45° , -22.5° , 0° , 22.5° , 45°) que, quando clicado, enviava um sinal via porta serial para o arduino de forma que o mesmo envia um comando para o motor girar. OS botões foram identificados referente a fóton de seleção (S ou aS) e qual placa estava acionando $\lambda/2$ ou $\lambda/4$.

O diagrama esquemático, com detalhes de conexão do sistema proposto para

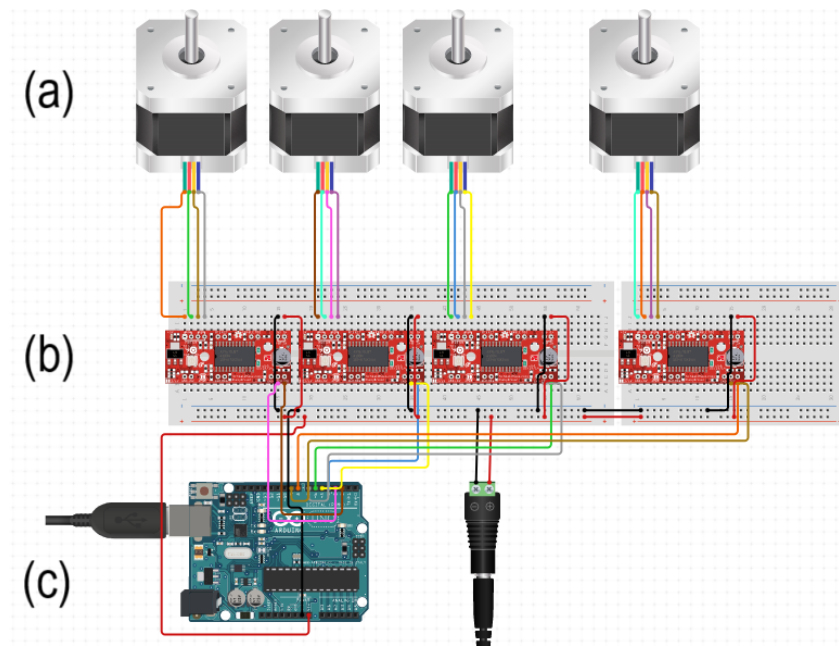


Figura 31 – Esquema geral do sistema de automatização das placas de onda. Em (a) os motores de passo, modelo NEMA17 de 1.5A, utilizados para rotacionar as placas de onda. Os mesmos foram interligados a módulos de controle *Easydriver* (b) que recebem comandos de rotação a partir da placa arduino (c).

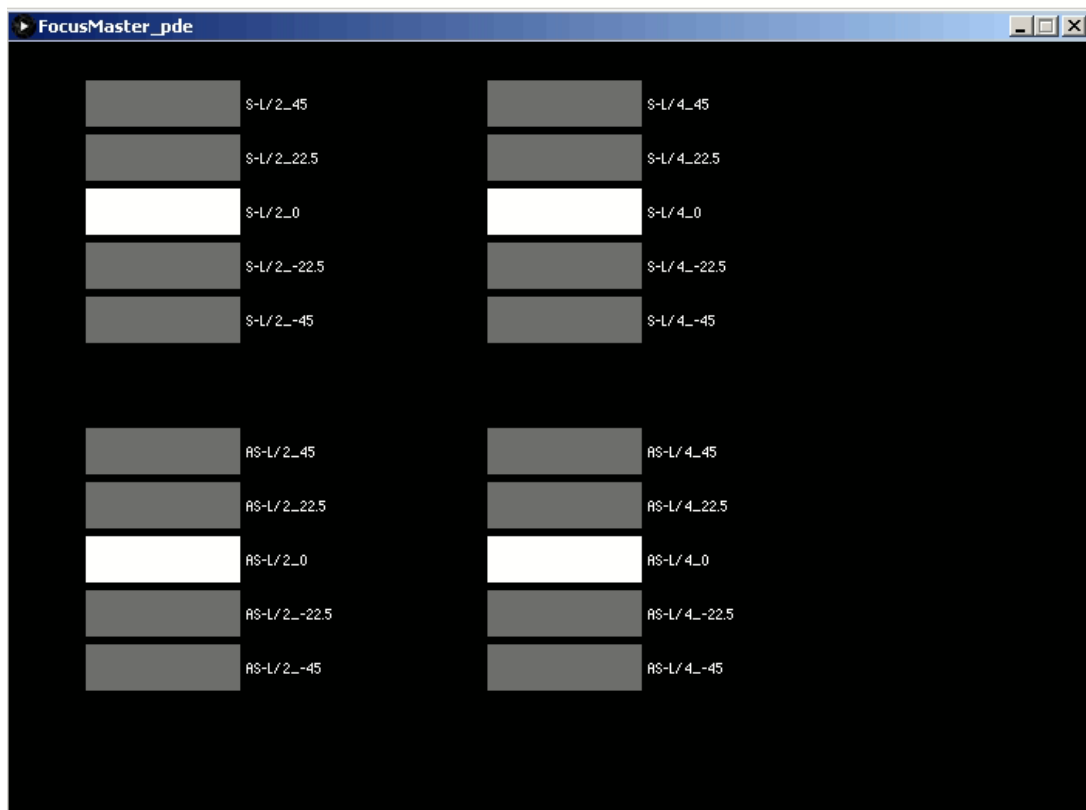


Figura 32 – Interface de controle para rotacionar as placas de ondas.

controle dos placas de onda encontra-se representado na Figura 33. Os motores são identificado pelo círculo com a letra "M"ao centros. Os módulos de controle são identificados

pelos retângulos identificados por cada placa de onda responsável por controlar. Por exemplo, o módulo responsável por controlar a placa de $\lambda/2$ do caminho de medição do fóton Stokes está identificado como $L2 - S$. As conexões da placa arduino estão representadas na parte superior a esquerda do esquemático.

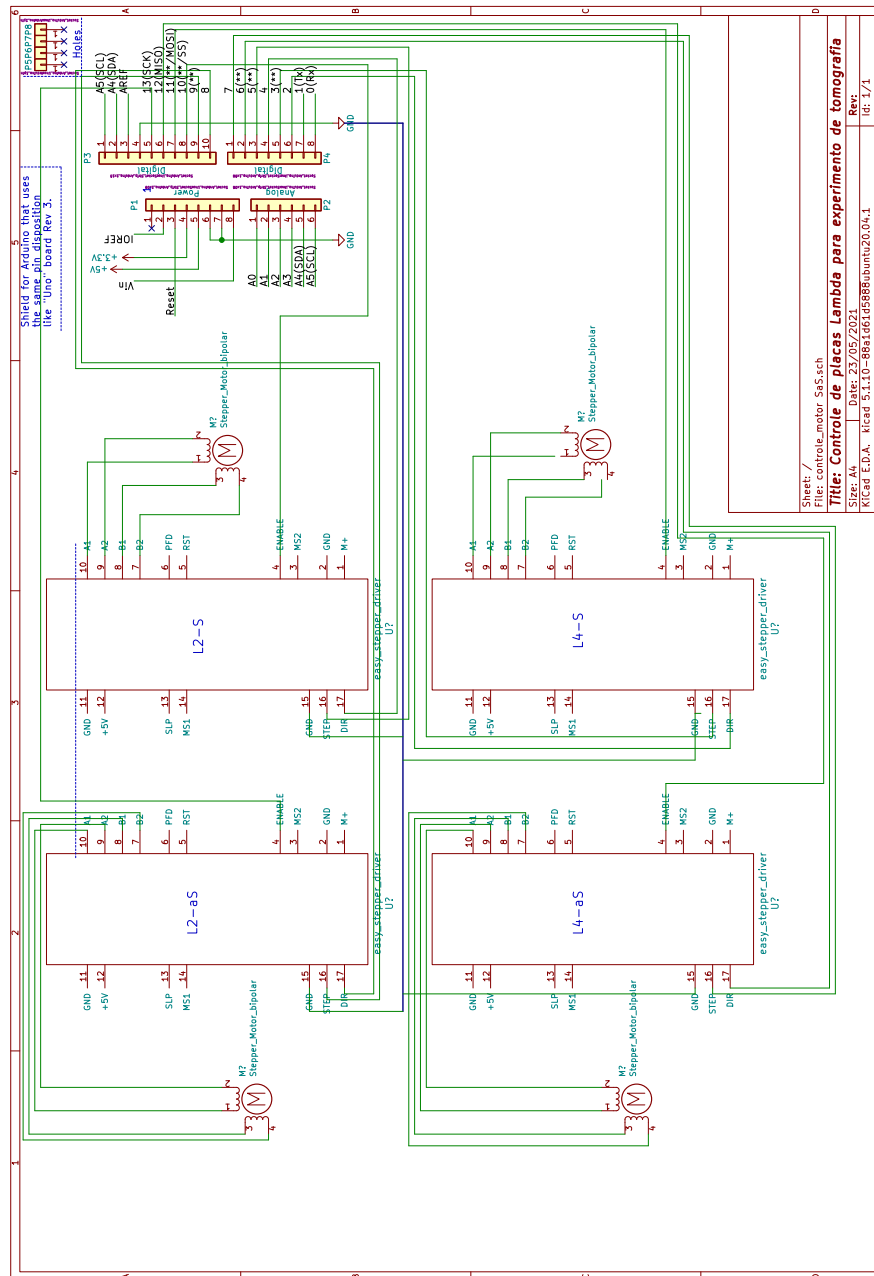


Figura 33 – Esquemático de conexões do sistema de controle de rotação das placas. Os motores são identificados pelo círculo com a letra "M"ao centros. Os módulos de controle são identificados pelos retângulos identificados por cada placa de onda responsável por controlar. Por exemplo, o módulo responsável por controlar a placa de $\lambda/2$ do caminho de medição do fóton Stokes está identificado como $L2 - S$. As conexões da placa arduino estão representadas na parte superior a esquerda do esquemático.

3.5 Eficiências de detecção do processo SaS

O processo de detecção do espalhamento correlacionado SaS sofre um impacto considerável quando as eficiências de todos os elementos ópticos utilizados no caminho óptico do sistema de medição são levadas em consideração. Tal impacto decorre, sobretudo, do fato de que os fótons Stokes e anti-Stokes têm comprimentos de onda diferentes e, principalmente, conforme descrito na seção 2.1.1, pelo fato de a cada 10^6 fótons que incidem na amostra apenas 1 fóton espalhar inelasticamente. Trabalhos futuros precisam ser realizados de forma a melhorar a eficiência desse processo.

A eficiência de detecção do SaS é determinada multiplicando a eficiência total de detecção do fóton Stokes pela eficiência de detecção do fóton anti-Stokes. Tais eficiências são obtidas levando em consideração a eficiência dos APD's, figura 20, utilizados para detecção dos fótons espalhados, bem como o *overlap* dos filtros passa-banda utilizados para selecionar os respectivos fótons S e aS. Os valores corrigidos das medidas de correlação são obtidos através da equação 3.1, onde *Eff_APD'S* é obtida multiplicando-se as eficiências das APD's S e aS.

$$Valor_Real = \frac{Valor_medido}{(overlap_filtros * (Eff_APD's)) * Potencia^2} \quad (3.1)$$

Os dados obtidos nos experimentos de tomografia e CHSH realizados para caracterização do estado do processo SaS, foram corrigidos em função da eficiência do sistema conforme descrito acima.

Com o objetivo de complementar a análise do processo SaS, os dados referentes às medidas do espectro Raman foram corrigidos em função da eficiência da grade de difração e da CCD utilizada no espectrômetro. Tal correção se faz necessária para que I_s e I_{aS} sejam obtidos mais próximos dos valores reais, de forma a caracterizar o fenômeno em estudo corretamente.

$$Valor_Real = \frac{Valor_medido}{(Eff_GRD_DIFR) * (Eff_CCD)} \quad (3.2)$$

Capítulo 4

Resultados e Discussões

Utilizando o aparato instrumental apresentado na seção 3.1 a 3.3, foram realizados experimentos para caracterização do sistema de fótons, bem como para uma melhor compreensão do fenômeno a ser estudado. Em um primeiro momento foram realizadas medidas na região real e virtual do sinal Stokes do espectro do diamante, de forma a compreender melhor o fenômeno de correlação. Em seguida, foi realizada uma caracterização mais detalhada do espalhamento correlacionado onde, fazendo-se uso de um monocromador, foi realizada uma caracterização da região do virtual antes do pico real Stokes de primeira ordem, e na região do virtual entre o sinal de espalhamento Raman de primeira (1 fônon) e segunda (2 fônons) ordens.

Por fim, foram realizadas medidas de tomografia para caracterização completa do estado do par de fótons correlacionado SaS, analisando os fótons espalhados em função da orientação do eixo cristalográfico do diamante. Após analisados os resultados obtidos com as medidas de tomografia, foram realizadas medidas de desigualdade de Bell-CHSH com o objetivo de confirmar o emaranhamento em polarização do par de fótons SaS, em função dos resultados obtidos com as medidas de tomografia de estados.

4.1 Espectro Raman do Diamante

Para o estudo realizado neste trabalho foi definido a utilização de uma amostra de diamante (Type IIac Diacell design(100) oriented), que consiste em átomos de carbono formando um tetraedro regular cuja célula unitária é conhecida como cúbica de face centrada (FCC), com uma base que consiste em dois átomos de carbono associados a cada local da rede (AGGARWAL; RAMDAS, 2019). Dentre os materiais disponíveis o diamante é o preferido para estudar par de fótons correlacionados (LEE et al., 2012; KASPERCZYK et al., 2015; ANDERSON et al., 2018; VELEZ et al., 2019; JÚNIOR et al., 2019; JÚNIOR et al., 2020), uma vez que a dependência da energia de excitação do laser (KASPERCZYK et al., 2015; JÚNIOR et al., 2019), deslocamento Raman e momento de espalhamento

(JÚNIOR et al., 2019), e tempo de vida do fônon, tanto na região de ressonância, quanto fora dela (JÚNIOR et al., 2020), já foram explorados.

No espectro das Figuras 34 e 35, especificamos os principais picos Raman do diamante. Na figura 34 apresentamos o espectro da amostra do diamante, desde -3300 cm^{-1} a 3300 cm^{-1} , sendo excitado com laser de fs, e na Figura 35, o espectro para o laser de ps.

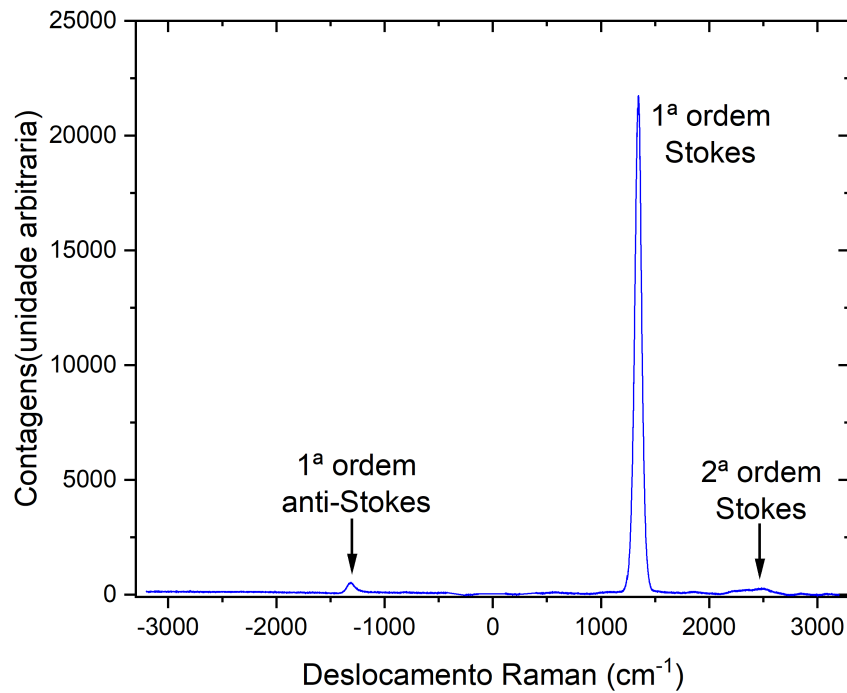


Figura 34 – Espectro Raman do diamante obtido excitando a amostra com laser de fs.

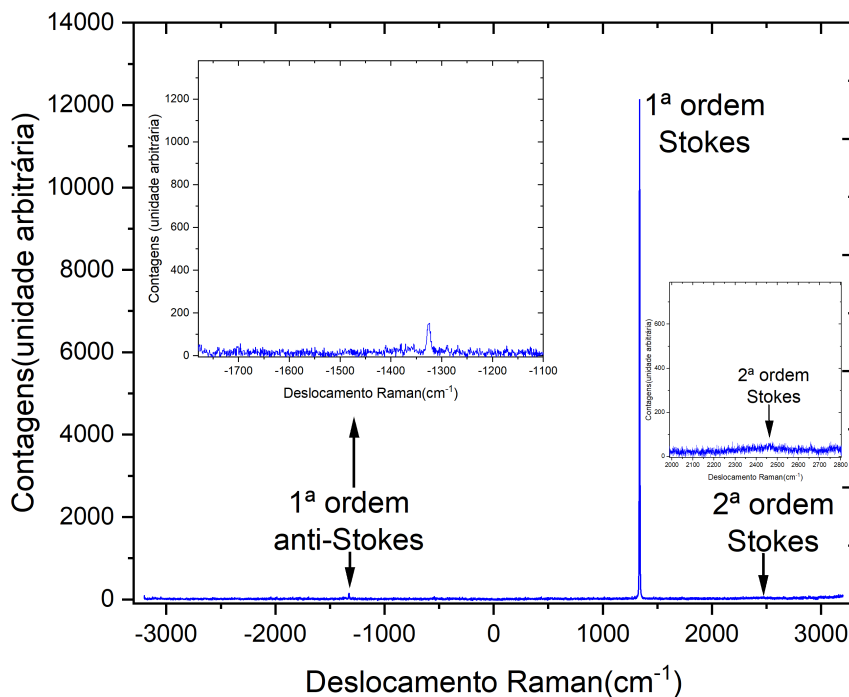


Figura 35 – Espectro Raman do diamante obtido excitando a amostra com laser de ps.

Para a caracterização do sistema de dois fótons SaS correlacionados, foram realizadas medidas de correlação nas regiões real e virtual do espalhamento Raman do diamante. A região conhecida como real do espectro Raman, corresponde a $\pm 1332 \text{ cm}^{-1}$, que em termos de comprimento de onda corresponde a 876,6 nm para o Stokes e 710,7 nm para o anti-Stokes considerando excitação em 785 nm. As regiões consideradas como virtual são regiões selecionadas antes e depois do pico Raman, que para o diamante foi selecionada a região de $\pm 900 \text{ cm}^{-1}$ antes do pico, que corresponde a 845 nm para o Stokes e 733,2 nm para o anti-Stokes, e depois do pico foi selecionada a região de $\pm 1700 \text{ cm}^{-1}$, que em comprimento de onda corresponde a 905 nm para o Stokes e 692 nm para o anti-Stokes.

4.2 Medida SaS Real e Virtual no Diamante com laser de fs e ps

Com o intuito de caracterizar a geração de pares de fótons Stokes e anti-Stokes resultantes do processo SaS virtual e real, realizou-se uma investigação da intensidade do espalhamento Raman correlacionado em uma amostra de diamante. Para este fim, foi utilizada a montagem óptica apresentada na Figura 36, onde são apresentados todos os elementos óticos utilizados. Aqui, o objetivo foi fazer um estudo comparativo com relação aos lasers de fs e ps, para definir qual seria o mais indicado para realizar o experimento de tomografia de estados quânticos.

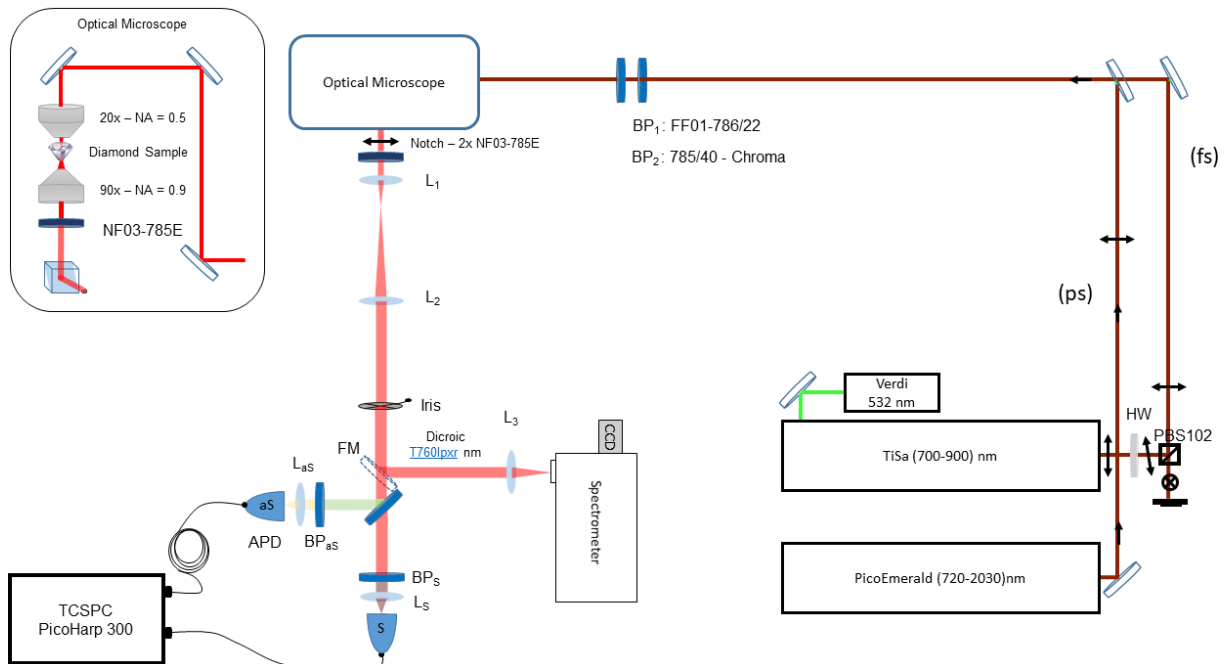


Figura 36 – Montagem experimental completa, que foi discutida por partes no capítulo 3. A excitação da amostra correspondem à descrição apresentada nas figuras 6 e 8 e a iluminação corresponde à figura 11.

Para a realização do experimento, para a região do real (região de ressonância

do material), a amostra foi excitada com laser com potência definida em torno de 5 mW, utilizando o laser de fs, e 3,7 mW utilizando o laser de ps. Para as regiões do virtual (região fora da região de ressonância), a amostra foi excitada com potência em torno de 52 mW utilizando o laser de fs, e 64 mW utilizando o laser de ps. As potências dos lasers para realização dos experimentos foram definidas em função das contagens máximas dos APD's, garantindo assim uma margem de segurança de forma a evitar a saturação ou danos aos detectores.

Para realizar a filtragem dos sinais S e aS na região do real, utilizamos o filtro passa-banda centrado em 875 nm e com largura de banda mínima de 25 nm para o filtrar o sinal Stokes, e um filtro para o anti-Stokes, cujo centro da banda de transmissão é 711 nm, com uma largura mínima de 25 nm. Para a região do virtual antes do pico, utilizamos o filtro passa-banda centrado em 850 nm e com largura de banda mínima de 13 nm para o filtrar o sinal Stokes, e um filtro para o anti-Stokes, cujo centro da banda de transmissão é 730 nm, com uma largura mínima de 10 nm. Por fim, para a região do virtual depois do pico utilizamos o filtro passa-banda centrado em 910 nm e com largura de banda mínima de 10 nm para o filtrar o sinal Stokes, e um filtro para o anti-Stokes, cujo centro da banda de transmissão é 690 nm, com uma largura mínima de 8 nm. Todos os filtros utilizados para realizar os experimentos foram produzidos pela *Edmund Optics*, tais filtros possuem uma alta transmissão (acima de 96 %) em suas respectivas bandas, e uma transmissão próximo a zero (menor que 0,0001 %) fora delas.

Referente à medida de contagem em coincidência da região do real, foram gerados os histogramas (a) e (b) da Figura 37. Em 37(a), referente ao laser de fs, a amostra foi excitada com 5,4 mW de potência, obtendo taxa de contagem na APD-S de 400 kHz e na APD-aS 2 kHz. Uma taxa de contagem de correlação, integradas em um tempo de aquisição de 1800 s, para $\Delta\tau = 0$ ns em torno de 580 coincidências, e uma contagem média, para $\Delta\tau \neq 0$ ns, de 22,6 coincidências. Aqui adotamos $\Delta\tau$ para representar a variação do tempo ($t + \tau$) da equação 2.14. Em 37(b), referente ao laser de ps, a amostra foi excitada com 3,7 mW de potência, obtendo taxa de contagem na APD-S de 81,9 kHz e na APD-aS, 0,6 kHz. Uma taxa de contagem de correlação para $\Delta\tau = 0$ ns em torno de 364 coincidências e uma contagem média, para $\Delta\tau \neq 0$ ns de 90.

Na medida de contagem em coincidência da região do virtual antes do pico, 900 cm^{-1} foram gerados os histogramas (a) e (b) da figura 38. Observamos em 38(a), referente ao laser de fs, em que a amostra foi excitada com 52 mW de potência do laser de fs, obtendo taxa de contagem na APD-S de 19 kHz e na APD-aS, 3,3 kHz. Uma taxa de contagem de correlação para $\Delta\tau = 0$ ns em torno de 23276 coincidências e uma contagem média, para $\Delta\tau \neq 0$ ns de 62,5. Em 38(b), referente ao laser de ps, a amostra foi excitada com 64 mW de potência do laser de ps, obtendo taxa de contagem na APD-S de 21,1 kHz e na APD-aS, 1,73 kHz. Uma taxa de contagem de correlação para $\Delta\tau = 0$ ns em torno

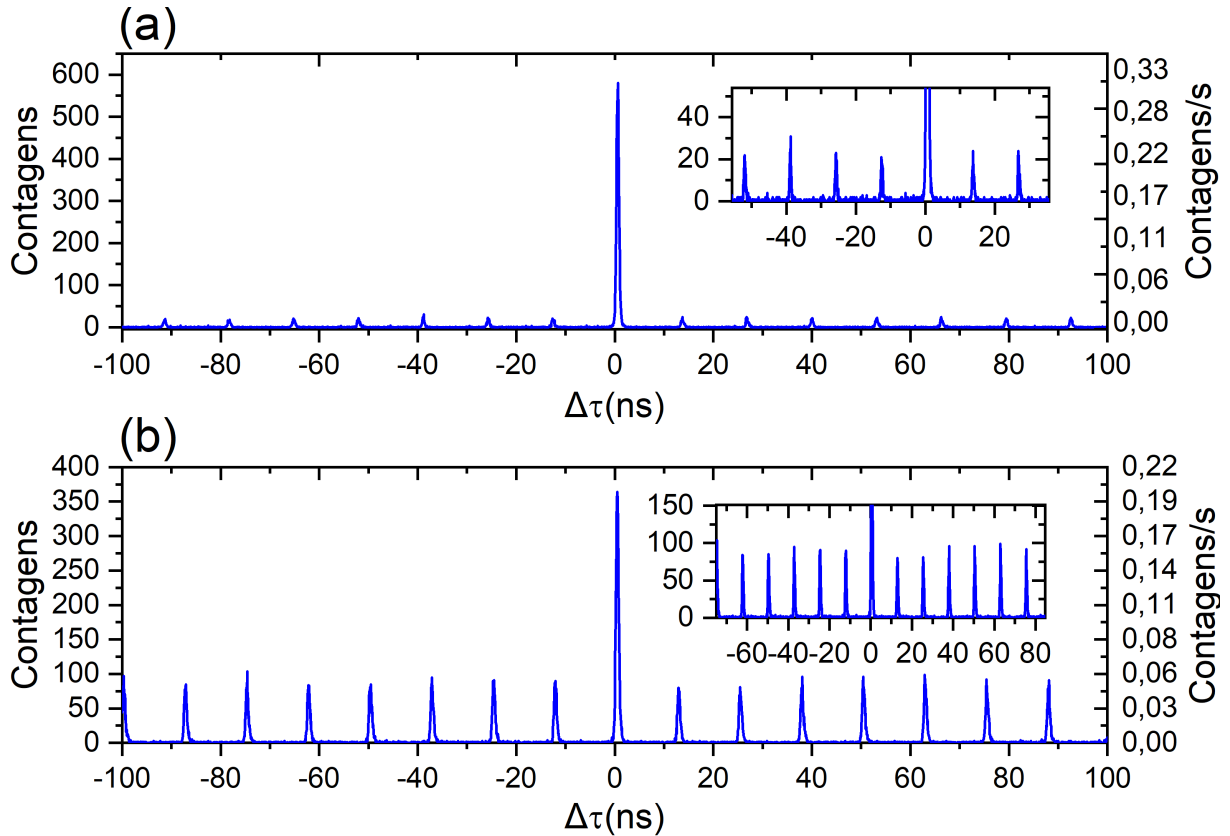


Figura 37 – Histograma mostrando o resultado das contagens em coincidências na região do espalhamento real, 1332 cm^{-1} , utilizando os filtros 875/25 nm para APD-S e 711/25 nm para a APD-aS. Em (a) a amostra foi excitada com 5,4 mW de potência do laser de fs, obtendo taxa de contagem na APD-S de 400 kHz e na APD-aS, 2 kHz. Em (b) a amostra foi excitada com 3,7 mW de potência do laser de ps, obtendo taxa de contagem na APD-S de 81,9 kHz e na APD-aS, 0,6 kHz.

de 6050 coincidências e uma contagem média, para $\Delta\tau \neq 0$ ns de 26,4.

Por último, na medida de contagem em coincidência da região do virtual depois do pico, 1700 cm^{-1} , foram gerados os histogramas (a) e (b) da Figura 39. Observamos em 39(a), referente ao laser de fs, onde a amostra foi excitada com 52 mW de potência, obtendo taxa de contagem na APD-S de 27,4 kHz e na APD-aS, 2,85 kHz. Uma taxa de contagem para $\Delta\tau = 0$ ns em torno de 9116 coincidências e uma contagem média, para $\Delta\tau \neq 0$ ns de, 59,1. Em 39(b), referente ao laser de ps, a amostra foi excitada com 64 mW de potência, obtendo taxa de contagem na APD-S de 22,4 kHz e na APD-aS, 0,54 kHz. Uma taxa de contagem de correlação para $\Delta\tau = 0$ ns em torno de 1607 coincidências e uma contagem média, para $\Delta\tau \neq 0$ ns de, 13,3.

Os resultados obtidos, conforme descrito acima, encontram-se condensados na Tabela 2.

O valor médio das coincidências para $\Delta\tau \neq 0$ ns foi medido dentro do intervalo de -100 ns a 500 ns, embora nos gráficos apresentamos somente o intervalo de -100 ns a 100 ns.

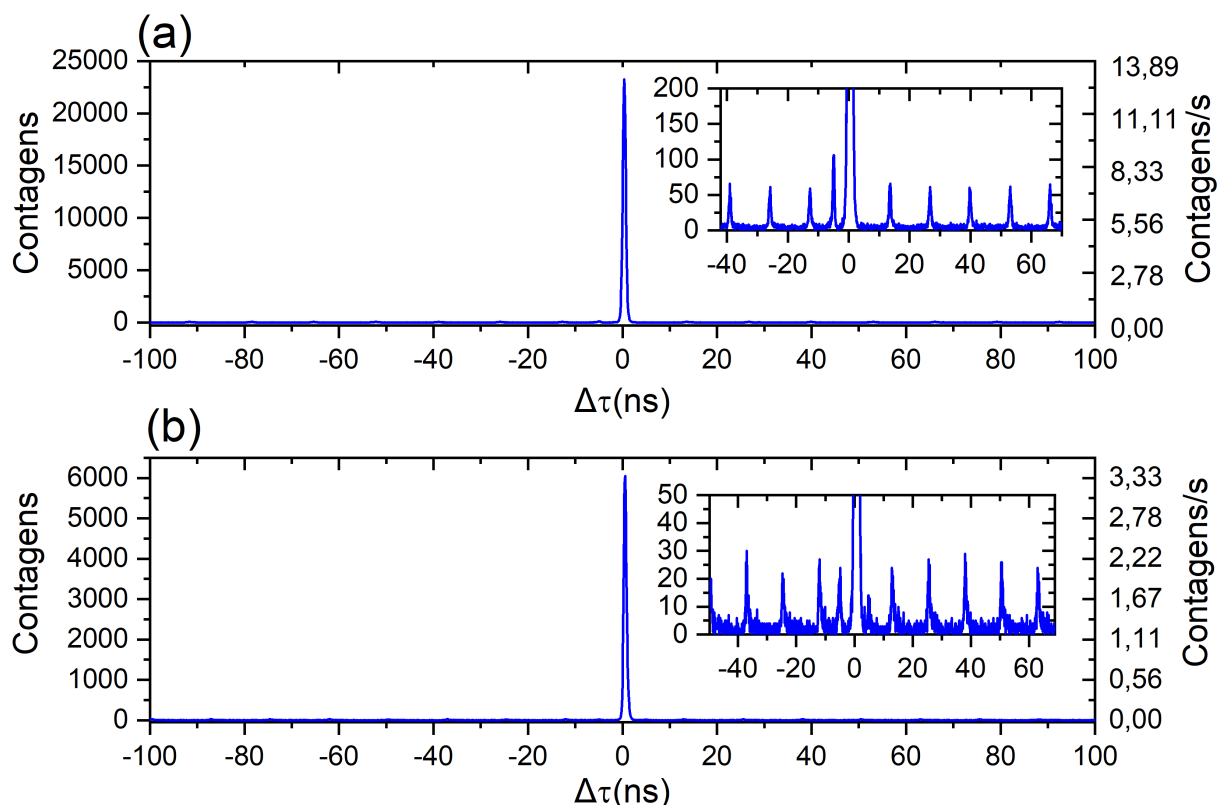


Figura 38 – Histograma mostrando o resultado das contagens em coincidências na região do espalhamento virtual, 900 cm^{-1} , utilizando os filtros 850/10 nm para APD-S e 730/10 nm para a APD-aS. Em (a) a amostra foi excitada com 52 mW de potência do laser de fs, obtendo taxa de contagem na APD-S de 19 kHz e na APD-aS, 3,3 kHz. Em (b) a amostra foi excitada com 64 mW de potência do laser de ps, obtendo taxa de contagem na APD-S de 21,1 kHz e na APD-aS, 1,73 kHz.

Raman shift (cm^{-1})	Laser	Potência Laser (mW)	Contagem Stokes(kHz)	Contagem a-Stokes(kHz)	$\Delta\tau = 0$	$\Delta\tau \neq 0$
1332	fs	5	33,7	0,4	580	22,6
	ps	3,6	81,9	0,6	364	90
900	fs	52	19	3	23276	62,5
	ps	64,6	21,1	1,7	6050	26,4
1700	fs	52	27,4	2,8	9116	59,1
	ps	63,5	24,2	0,5	1607	13,3

Tabela 2 – Correlação SaS obtida nos experimentos realizados com os lasers fs e ps, integradas em um tempo de aquisição de 1800 s, nas regiões do espalhamento real e virtual, conforme descrito no texto.

Os valores negativos para $\Delta\tau$ são obtidos com a linha de atraso composta por uma cabo coaxial de 20 metros ligado à APD-aS, e correspondem à detecção de fótons anti-Stokes antes da detecção do fóton Stokes, ambos geralmente oriundos do espalhamento Raman não correlacionado. A linha de atraso gera um retardo de 100 ns no sinal da APD-aS em

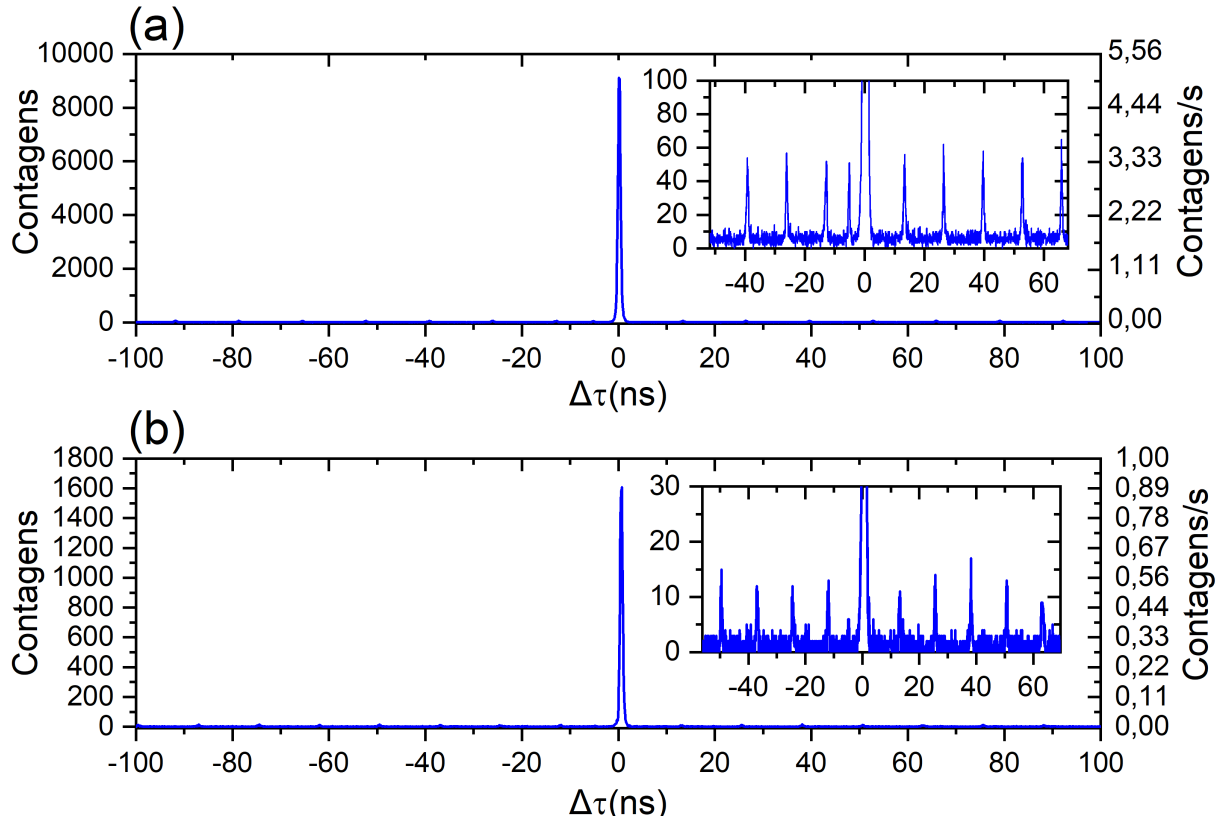


Figura 39 – Histograma mostrando o resultado das contagens em coincidências na região do espalhamento virtual, 1700 cm^{-1} , utilizando os filtros 910/10 nm para APD-S e 690/8 nm para a APD-aS. Em (a) a amostra foi excitada com 52 mW de potência do laser de fs, obtendo taxa de contagem na APD-S de 27,4 kHz e na APD-aS 2,85 kHz. Em (b) a amostra foi excitada com 64 mW de potência do laser de ps, obtendo taxa de contagem na APD-S de 22,4 kHz e na APD-aS 0,54 kHz.

relação à chegada do sinal da APD-S no correlacionador, desta forma, uma medida de coincidência equivale a um ponto no histograma para $\Delta\tau = 100\text{ ns}$.

Com base nas contagens em coincidência obtidas em cada medida, foi obtido para cada caso o valor da intensidade da correlação, I_{SaS} , em função do tempo de aquisição, que corresponde à contagem de correlações medidas por segundo. Esse valor é obtido subtraindo das coincidências em $\Delta\tau = 0$, a média das contagens onde $\Delta\tau \neq 0$, dividindo pelo tempo de aquisição, que no caso de todas as medidas foi de 1800 s. Os valores obtidos em todas as medidas encontram-se condensados na Tabela 3, sendo que fs, refere-se aos valores para o laser de fs, e ps refere-se aos valores para o laser de ps.

Adicionalmente, devido às potências utilizadas para cada laser, nas regiões definidas, terem sido diferentes para não saturar as APD's, conforme descrito previamente, os dados das intensidades foram normalizadas em função do quadrado da maior potência utilizada em cada laser para realização do experimento proposto, e sequencialmente os dados foram normalizados em função do maior valor observado, que neste experimento foi

com a medida realizada com o laser de fs. Os resultados obtidos encontram-se representados na Tabela 3, sendo que fs_{norm} , referem-se aos valores normalizados para o laser de fs, e ps_{norm} refere-se aos valores normalizados para o laser de ps.

Realizadas as medidas de contagem em coincidência, o próximo passo foi obter o valor para a função de correlação de segunda ordem normalizada $g^{(2)}(0)$, para cada uma das medidas, dividindo o valor das coincidências em $\Delta\tau = 0$ ns pelo valor obtido das médias das contagens para $\Delta\tau \neq 0$ ns. Os valores obtidos para cada região, de acordo com o laser utilizado para excitar a amostra, encontra-se representados na Tabela 4.

I_{SaS}		Virtual (900 cm^{-1})	Real (1332 cm^{-1})	Virtual (1700 cm^{-1})
(1/s)	fs	12,9	0,3	5
	ps	3,4	0,1	0,9
	fs_{norm}	0,4	1	0,1
	ps_{norm}	0,06	0,9	0,02

Tabela 3 – Intensidade SaS obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps, nas regiões do espalhamento real e virtual, conforme descrito no texto. fs e ps referem-se às médias das contagens divididas pelo tempo de aquisição para cada laser utilizado. fs_{norm} e ps_{norm} referem-se as medidas normalizadas em função do quadrado da maior potência utilizada para cada laser e posteriormente pelo maior valor de medida observada, que neste experimento foi com a medida realizada com o laser de fs.

$g^{(2)}$	Virtual (900 cm^{-1})	Real (1332 cm^{-1})	Virtual (1700 cm^{-1})
fs	372,2	25,7	154,2
ps	228,8	4	120,7

Tabela 4 – Função de correlação de segunda ordem normalizada $g^{(2)}$ obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps nas regiões do real e virtual, conforme descrito no texto.

Diante dos resultados obtidos, pôde-se perceber que as medidas de correlação realizadas na região de 900 cm^{-1} , utilizando o laser de fs, apresentaram os melhores resultados, sendo obtido uma I_{SaS} da ordem de 12,9 contagens por segundo e uma correlação normalizada de segunda ordem $g^{(2)}$ em torno de 372,2, como mostrado na Tabela 4. Estes resultados obtidos indicam que a montagem experimental utilizando o laser de fs é o melhor cenário para realizar o experimento de tomografia de estados.

Um último teste que realizamos para selecionar o aparato experimental foi a filtragem do sinal Stokes utilizando um monocromador no lugar do filtro passa banda. Para isso, utilizou-se a montagem ótica da Figura 40, que apresenta todos os elementos

óticos utilizados. Nela, substituímos o filtro de interferência passa banda Stokes, BPS, por um monocromador Oriel Cornerstone 260 da *Newport* acoplado com uma grade de 600 linhas/mm. Tal mudança nos permite selecionar o sinal S. Com a fenda de saída do monocromador com abertura de $14 \mu\text{m}$, a resolução é de 7 cm^{-1} . Visto que o sinal Raman anti-Stokes é geralmente pouco intenso, o filtro BP_{aS} do APD anti-Stokes foi removido, para que os resultados das medidas não sejam influenciados pela filtragem. Com isso, todo o sinal anti-Stokes, a partir de -420 cm^{-1} , refletido pelo filtro dicróico, é focalizado no APD-aS. Isso resulta em um leve aumento das contagens acidentais, devido ao aumento da taxa de contagens únicas, R_{aS} , do APD-aS, diminuindo o valor $g_{S,aS}^2(0)$.

A potência utilizada para excitar a amostra foi de 104 mW nas medidas obtidas com laser de fs, e uma potência em torno de 80 mW com o laser de ps. Com base nos resultados obtidos pode-se perceber que na região do real, como laser de ps, obteve-se um maior número de contagens em coincidência, mas isso se deve ao fato de que o espectrômetro corta parte do pico largo do laser de fs.

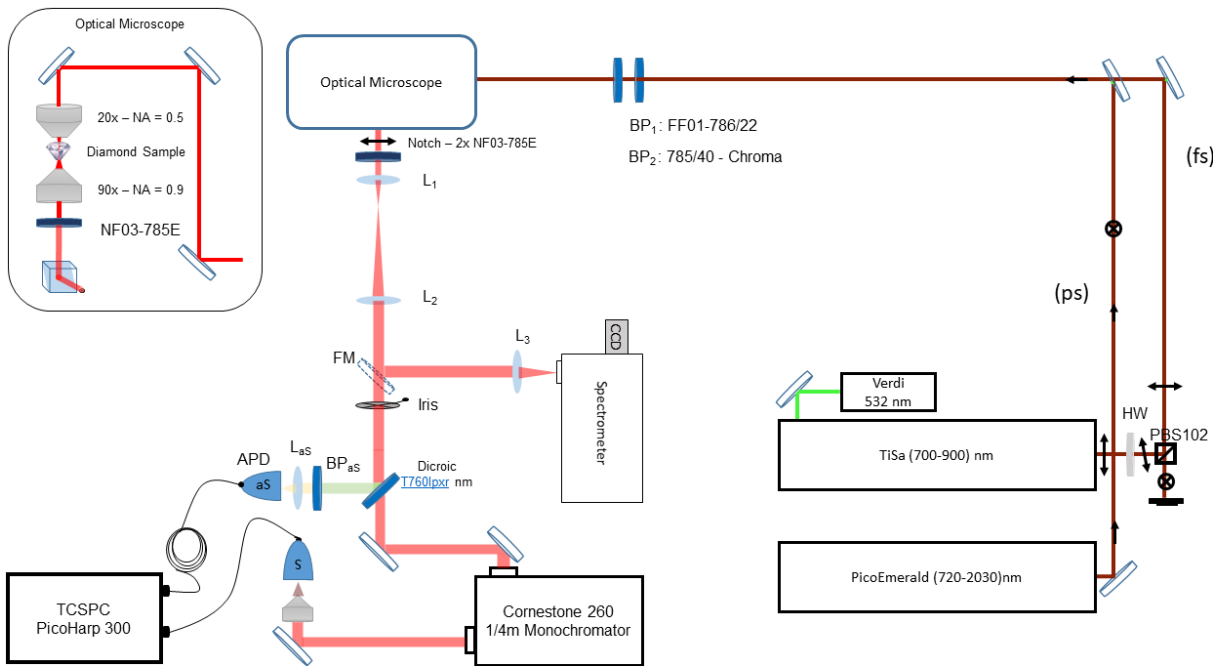


Figura 40 – Apresentamos a montagem experimental com monocromador, que foi discutida por partes no Capítulo 3. A excitação da amostra correspondem à descrição apresentada nas Figuras 6 e 8 e a iluminação corresponde à Figura 11.

Com base nas contagens em coincidência obtidas em cada medida, foi obtido para cada caso o valor da intensidade da correlação, $I_{S,aS}$, em função do tempo de aquisição, que corresponde às contagens de correlações medidas por segundo. Esse valor é obtido subtraindo as coincidências em $\Delta\tau = 0$, pela médias das contagens onde $\Delta\tau \neq 0$, dividindo pelo tempo de aquisição, que no caso de todas as medidas foi de 600 s. Os valores obtidos em para todas as medidas encontram-se condensados na Tabela 5, sendo que fs, referem-se aos valores para o laser de fs, e ps refere-se aos valores para o laser de ps. Conforme medida

anterior, os dados das intensidades foram normalizadas em função do quadrado da maior potência utilizada em cada laser para realização do experimento proposto e sequencialmente os dados foram normalizados em função do maior valor de medida observada, que neste experimento foi com o laser de ps, sendo que fs_{norm} , referem-se aos valores normalizados para o laser de fs, e ps_{norm} refere-se aos valores normalizados para o laser de ps.

I_{SaS}		Virtual (900 cm^{-1})	Real (1332 cm^{-1})	Virtual (1700 cm^{-1})
(1/s)	fs	1,9	4,7	0,7
	ps	0,37	21,2	0,1
	fs_{norm}	0,05	0,1	0,02
	ps_{norm}	0,02	1	0,006

Tabela 5 – Intensidade SaS obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps utilizando o monocromador, conforme descrito no texto. fs e ps referem-se às médias das contagens divididas pelo tempo de aquisição para cada laser utilizado. fs_{norm} e ps_{norm} referem-se as medidas normalizadas em função do quadrado da maior potência utilizada para cada laser e posteriormente pelo maior valor de medida observada, que neste experimento foi com o laser de ps.

Realizadas as medidas de contagem em coincidência, o próximo passo foi obter o valor para a função de correlação de segunda ordem normalizada $g^{(2)}(0)$, para cada uma das medidas, dividindo o valor das coincidências em $\Delta\tau = 0$ ns pelo valor obtido das médias das contagens para $\Delta\tau \neq 0$ ns. Os valores obtidos para cada região, de acordo com o laser utilizado para excitar a amostra, encontram-se representados na Tabela 6.

$g^{(2)}$	Virtual (antes do pico)	Real	Virtual (depois do pico)
fs	7,6	1,4	3,1
ps	7,4	2,1	2,2

Tabela 6 – Função de correlação de segunda ordem normalizada $g^{(2)}$ obtida nos experimentos realizados com os lasers de fs e ps utilizando o monocromador, conforme descrito acima.

Por fim, optou-se por usar o laser de fs em 785nm para realizar os experimentos, em vez de utilizá-lo em 633nm, fazendo-se uso de um oscilador ótico paramétrico (OPO), como consta na literatura, pois constatou-se que não há ganhos em contagem significativos utilizando o mesmo, e o melhor é não utilizá-lo, de forma a proporcionar uma melhor estabilidade ao sistema.

Finalmente, comparando os dados das Tabelas 3 e 4, com 5 e 6, conclui-se que a filtragem utilizando filtros é mais adequada que a filtragem utilizando o monocromador.

O trabalho descrito nessa seção foi realizado em parceria com o estudante de mestrado Lucas Valente de Carvalho, tendo gerado um artigo completo publicado nos anais da conferência *SPIE Optical Engineering + Applications, 2022*, (CARVALHO et al., 2022).

4.3 Tomografia de estados SaS

Com base nos resultados obtidos pode-se concluir que o melhor cenário experimental para realizar as medidas de tomografia de estados para caracterizar a natureza quântica do fenômeno SaS é o que utiliza o laser de fs para a realização das medidas.

O próximo passo foi utilizar a configuração aqui determinada para realizar a tomografia de estados SaS, utilizando o aparato descrito na seção 3.4. Para realização do experimento, cada uma das placas foi girada para selecionar fótons espalhados em um determinado ângulo, realizando várias combinações, 36 no total, para que a tomografia do fenômeno SaS fosse realizada completamente, conforme especificado na Figura 41. Cada cor das figuras representa uma combinação das placas, tanto para o espalhamento Stokes, quanto para o anti-Stokes. Importante informar que existem outros métodos possíveis para realizar a tomografia de estados do SaS, porém o método proposto foi baseado em (ALTEPETER; JEFFREY; KWIAT, 2005), que diante do aparato experimental disponível, apresentou-se como o mais viável de ser realizado. Os valores dos ângulos obtidos foram calculados pela Dra. Paula Machado, que realizou pós-doutorado no laboratório e colaborou no desenvolvimento deste trabalho.

Importante ressaltar que para a realização das medidas de tomografia, o sistema de excitação da amostra de diamante teve que ser modificado. Como o intuito deste trabalho era analisar o par de fótons SaS em função da polarização, não era possível prever o que ocorria com os mesmos na ótica de saída do microscópio invertido. Dessa forma optou-se por fazer montagem das objetivas de excitação e coleta na mesa ótica em três estágios de translação lineares micrométricos, o que permite movimentá-la em xyz de forma a coincidir os focos das objetivas utilizadas.

Realizamos experimentos medindo a correlação SaS nas regiões espectrais para a dispersão Raman real (cerca de 1332 cm^{-1}) e virtual (cerca de 900 cm^{-1}) no diamante. Excitamos a amostra com um laser pulsado no comprimento de onda de 785nm com 52mW (P_v) atingindo a amostra no caso virtual e 5mW (P_r) de potência para medidas na região espectral real. O tempo total de aquisição foi de 5 minutos nos dois casos.

POL	H	H	H	V	H	+	H	-	H	R	H	L
Fóton	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS
$\lambda/2$	0	0	0	45	0	22,5	0	-22,5	0	-22,5	0	22,5
$\lambda/4$	0	0	0	0	0	45	0	45	0	0	0	0
POL	V	H	V	V	V	+	V	-	V	R	V	L
Fóton	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS
$\lambda/2$	45	0	45	45	45	22,5	45	-22,5	45	-22,5	45	22,5
$\lambda/4$	0	0	0	0	0	45	0	45	0	0	0	0
POL	+	H	+	V	+	+	+	-	+	R	+	L
Fóton	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS
$\lambda/2$	22,5	0	22,5	45	22,5	22,5	22,5	-22,5	22,5	-22,5	22,5	22,5
$\lambda/4$	45	0	45	0	45	45	45	45	45	0	45	0
POL	-	H	-	V	-	+	-	-	-	R	-	L
Fóton	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS
$\lambda/2$	-22,5	0	-22,5	45	-22,5	22,5	-22,5	-22,5	-22,5	-22,5	-22,5	22,5
$\lambda/4$	45	0	45	0	45	45	45	45	45	0	45	0
POL	R	H	R	V	R	+	R	-	R	R	R	L
Fóton	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS
$\lambda/2$	-22,5	0	-22,5	45	-22,5	22,5	-22,5	-22,5	-22,5	-22,5	-22,5	22,5
$\lambda/4$	0	0	0	0	0	45	0	45	0	0	0	0
POL	L	H	L	V	L	+	L	-	L	R	L	L
Fóton	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS	S	aS
$\lambda/2$	22,5	0	22,5	45	22,5	22,5	22,5	-22,5	22,5	-22,5	22,5	22,5
$\lambda/4$	0	0	0	0	0	45	0	45	0	0	0	0

Figura 41 – Combinações de ângulos placas de onda $\lambda/2$ e $\lambda/4$. Os fótons S e aS foram selecionados combinando as polarizações V, H, +, -, R e L. Os valores dos ângulos atribuídos a cada placa de onda foram calculados em função da seleção da polarização dos fótons de forma a se construir a matriz de densidade na base HV. Fonte: Dra. Paula Machado.

4.3.1 Setup experimental para tomografia

Para realizamos a seleção dos fótons SaS a determinada polarização conforme descrito na Figura 41, foi utilizado o setup experimental conforme Figura 42.

O laser com polarização horizontal (H) em relação ao quadro de referência do laboratório que sai do Mira 900F passa por uma placa de meia onda (HWP) e um feixe polarizado (PBS) para controlar a potência e converter a polarização em vertical (V) antes de chegar à amostra. Com o espelho flip (FM na Fig. 42) no local, o material pode ser caracterizado espectralmente através da espectroscopia Raman convencional. Para realizarmos as medidas de tomografia para caracterização do estado do par de fótons SaS, o espelho flip (FM) é removido e a luz dispersa é enviada para um divisor de feixe 50/50 (BS). Ressaltamos aqui que o filtro dicróico utilizado durante a caracterização do processo SaS teve que ser substituído pelo BS, uma vez que foi constatado durante o processo de alinhamento do sistema para realização das medidas de tomografia que o dicróico estava modificando a polarização dos fótons incidentes.

Após o BS, uma placa de meia onda (HWP), uma placa de quarto de onda (QWP) e um polarizador de feixe (PBS) foram usados para selecionar as polarizações dos fótons

S e aS . Para a seleção de polarização, um sistema que automatizou a rotação do HWP e do QWP foi implementado. Após o PBS, os filtros de interferência *bandpass* (BP_{aS}) foram centrados no comprimento de onda de detecção desejado para o sinal anti-Stokes (ω_{aS}) e um filtro (BP_s), centrado no comprimento de onda de detecção desejado para o sinal Stokes (ω_s) foram utilizados, para selecionar os sinais desejados. Os sinais filtrados são então focados em detectores de fotodiodo de avalanche (APDs) usando lentes acromáticas plano convexas L_s e L_{As} .

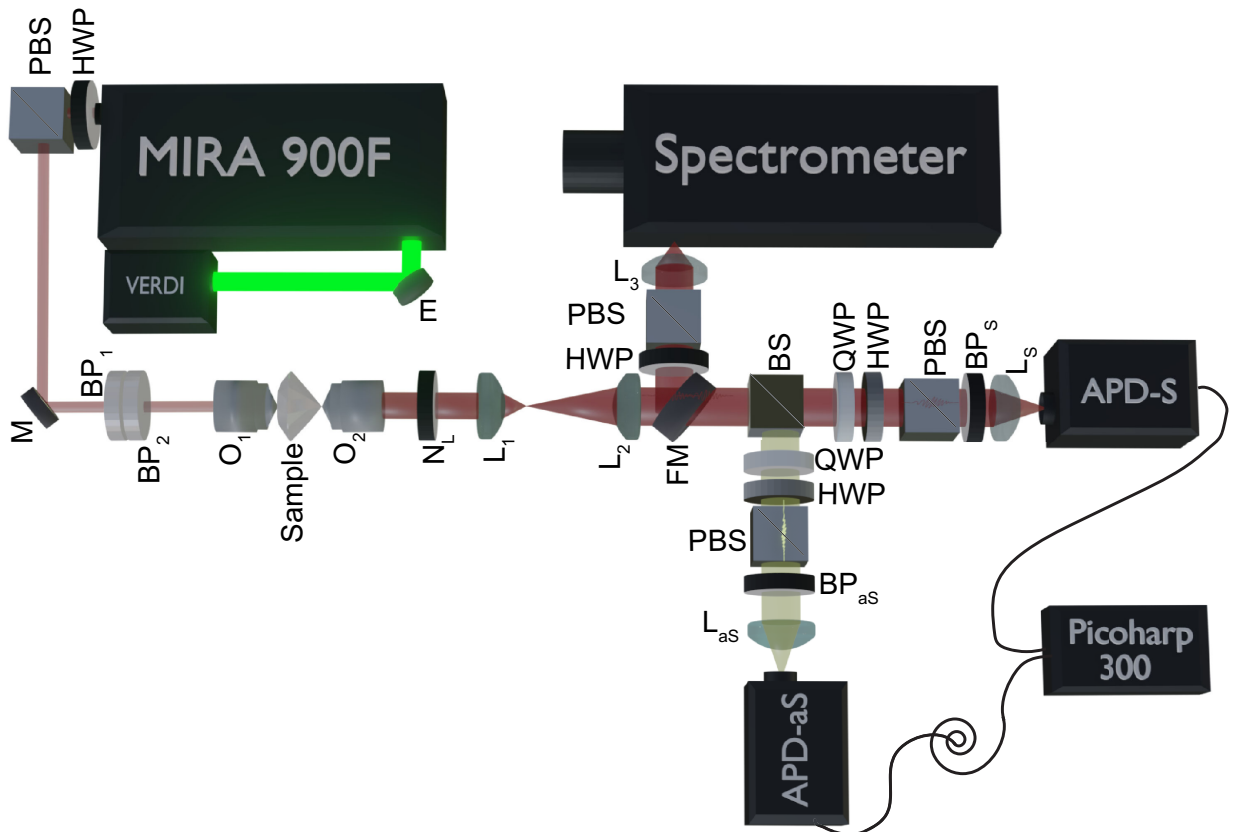


Figura 42 – Setup experimental para realização das medições de tomografia de estados do fenômeno SaS. Não era possível prever o que ocorria com os mesmos na ótica de saída do microscópio invertido. Dessa forma optou-se por fazer a montagem das objetivas de excitação e coleta na mesa ótica em três estágios de translação lineares micrométricas, o que permite movimentá-la em xyz de forma a coincidir os focos das objetivas utilizadas.

4.3.2 Caracterização espectral do diamante

Para definição da orientação cristalográfica da amostra de diamante, foi utilizada a análise de polarização de espectroscopia Raman Stokes realizada, baseada em (PRAWER; NEMANICH, 2004). Com base nesse trabalho, a geometria experimental de espalhamento é descrita na Figura 43.

Foi realizada a montagem do diamante em um estágio de rotação de forma que o ângulo $\theta = 0^\circ$ entre a orientação cristalográfica do diamante e a polarização do laser

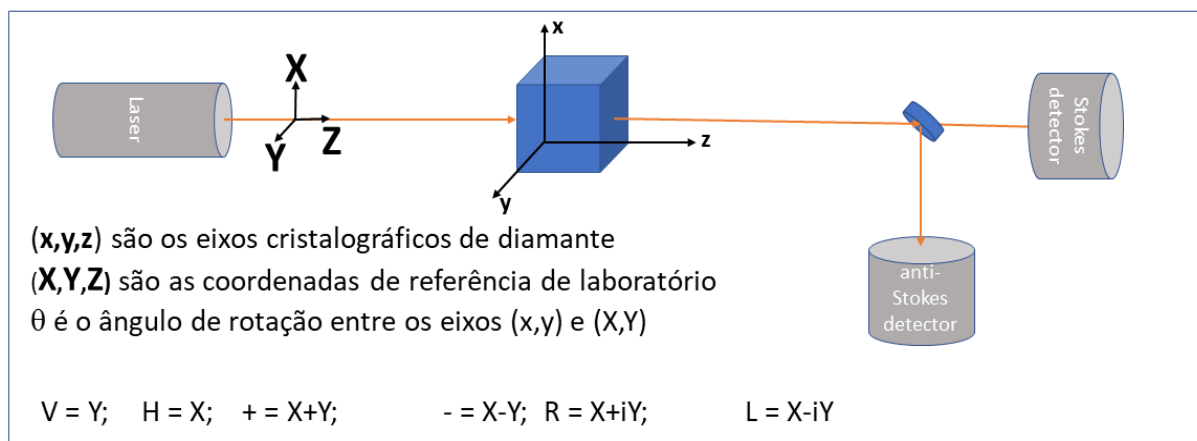


Figura 43 – Orientação cristalográfica do diamante.

incidente pudesse ser variada. $\theta = 0^\circ$ significa a direção do diamante (100) ao longo de V e $\theta = 90^\circ$ significa a direção do diamante (100) ao longo de H (ou a direção (010) ao longo de V).

A Figura 44(a) ilustra um espectro Raman típico da amostra de diamante utilizada neste estudo, que deixa evidente o pico relacionado ao espalhamento da luz pelo modo de alongamento da ligação C-C no deslocamento Raman de $\pm 1332 \text{ cm}^{-1}$. Este pico refere-se a um modo vibracional de simetria ativa de T_{2g} ativo de primeira ordem, e os picos anti-Stokes (-) são muito mais fracos, como esperado (VENKATESWARLU, 1947; JORIO et al., 2011).

A Figura 44(b) ilustra a intensidade do pico Raman Stokes $+1332 \text{ cm}^{-1}$ obtido na configuração de polarização V^iV^s e V^iH^s , onde aqui a primeira letra representa a polarização da luz incidente (i , laser), sempre vertical (V), e a segunda letra representa a polarização da luz espalhada (s). O ângulo θ fornece a orientação cristalográfica cúbica do diamante em relação a polarização da luz incidente (V^i). Ao orientar eixo do cristal de diamante ao longo da polarização do campo de entrada (V^i), o sinal Raman é girado em 90 graus (H^s) em relação à luz recebida, aparecendo na geometria de espalhamento V^iH^s . Quando o diamante é girado para ter sua direção cristalográfica orientada $\theta = 45^\circ (\pi/4)$ em relação à polarização do laser (V^i), então a luz espalhada também é orientada ao longo de V^s , aparecendo na geometria de espalhamento V^iV^s . O comportamento observado para o V^iV^s e V^iH^s na Figura 44(b) é totalmente consistente com a resposta esperada para o fônon óptico em diamante (T_{2g} simetria) (SOLIN; RAMDAS, 1970; SHANG; HSU, 1987; DRESSELHAUS; DRESSELHAUS; JORIO, 2008), com os tensores Raman dados por

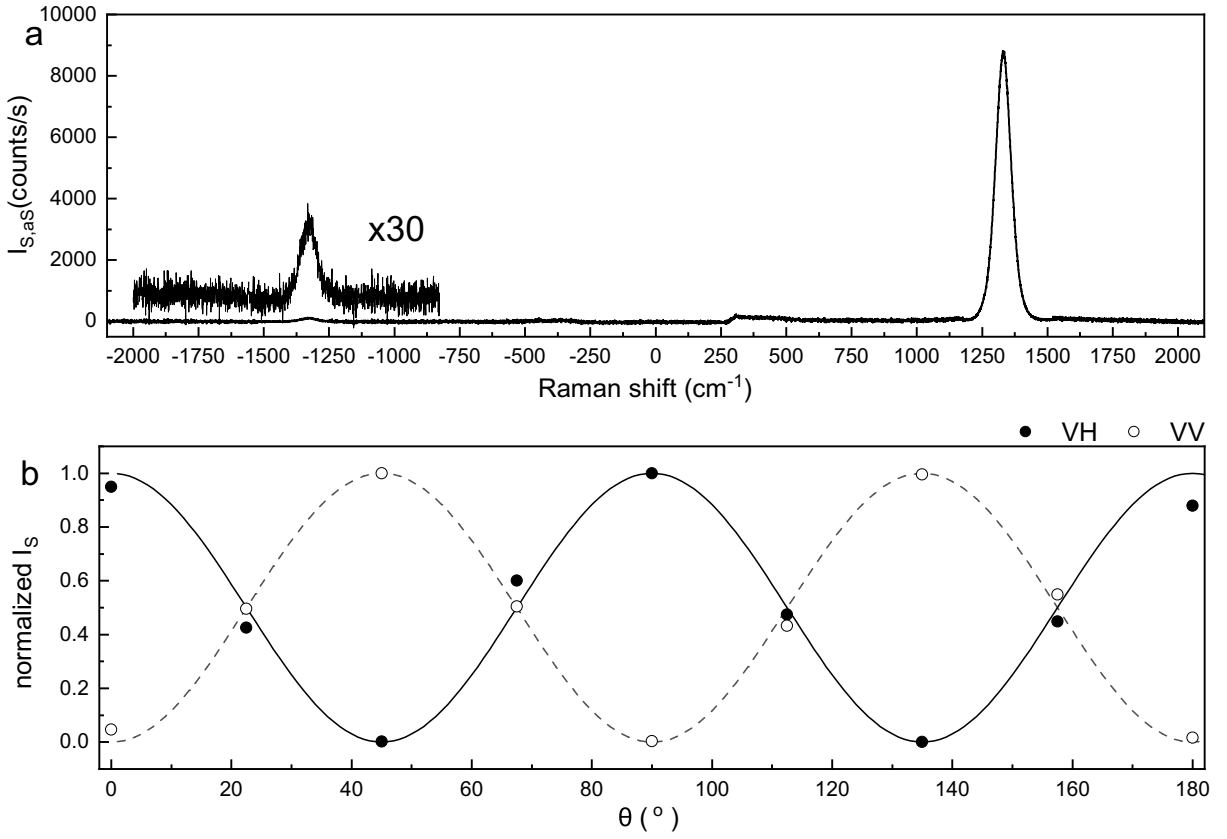


Figura 44 – (a) Espectro Raman típico do diamante obtido com o espectrômetro Raman (Fig. 42). O lado anti-Stokes é amplificado para melhor visualização do pico aS Raman. (b) Dependência angular para a resposta espectral VⁱV^s e VⁱH^s (intensidade do pico Stokes +1332 cm⁻¹) ao girar o cristal de diamante em relação à polarização da luz incidente. V e H representam polarização de luz vertical e horizontal em relação à referência laboratorial. θ é o ângulo entre a orientação V e a orientação cristalográfica do diamante, para a propagação da luz ao longo da direção (001). Pontos são dados experimentais e linhas são respostas esperadas considerando o tensor Raman α_{xy}^R para o modo T_{2g} no diamante. Pontos pretos para VⁱH^s e pontos brancos para VⁱV^s.

$$\alpha_{xy}^R = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}; \alpha_{xz}^R = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}; \alpha_{yz}^R = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad (4.1)$$

Considerando que a luz incidente e a luz espalhada se propaga na direção (001), apenas α_{xy}^R se aplica.

Com base na resposta espectral para o fônon óptico apresentado na figura 44(b), as medidas de tomografia foram realizadas com o eixo cristalográfico do diamante orientado a $\theta = 0^\circ$ e $\theta = 45^\circ$ em relação a ao eixo de polarização do laser, conforme figura 45, de forma a definir o estado do processo SaS nessas duas condições de orientação do eixo

crystallográfico do diamante.

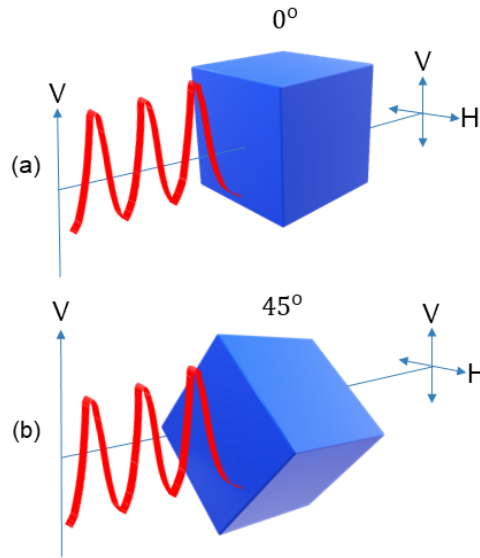


Figura 45 – (a) Diamante orientado a $\theta = 0^\circ$ grau coincidindo com o eixo cristalográfico. (b) Diamante rotacionado a $\theta = 45^\circ$ graus em relação ao seu eixo cristalográfico.

4.3.3 Correlação SaS na região de espalhamento Raman real

Os dados obtidos durante as medições foram corrigidos em função das eficiências dos elementos ópticos/instrumentos de medição, conforme descrito na seção 3.5. Na tabela 7 apresentamos um comparativo entre os dados medidos e corrigidos na base HV, o que mostra a baixa contagem do processo em função a eficiência do sistema disponível para realização das medições.

Pol	0° medido	0° corrigido	45° medido	45° corrigido
$[H_S H_a S]$	87.0	$32825 \pm 9,3$	4	1509 ± 2
$[H_S V_a S]$	7.0	$2641 \pm 2,6$	3	$1132 \pm 1,7$
$[V_S H_a S]$	5.0	$1887 \pm 2,2$	5	$1887 \pm 2,2$
$[V_S V_a S]$	42.0	$15847 \pm 6,5$	123	$46408 \pm 11,1$

Tabela 7 – Valores experimentais medidos e corrigidos na base HV, em função da eficiência do sistema de detecção para a região do real (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$). Os resultados demonstram que a detecção do processo pode ser melhorada.

A figura 46 mostra diagramas obtidos ao realizarmos as medições de coincidência Stokes-anti-Stokes quando a luz espalhada Stokes e anti-Stokes é selecionada para estar em ressonância com a energia do fônon ($\omega_{S,aS} = \omega_L \pm \omega_{ph}$), onde (\pm) representa o espalhamento (anti-Stokes/Stokes) e $\omega_{ph} = 1332 \text{ cm}^{-1}$.

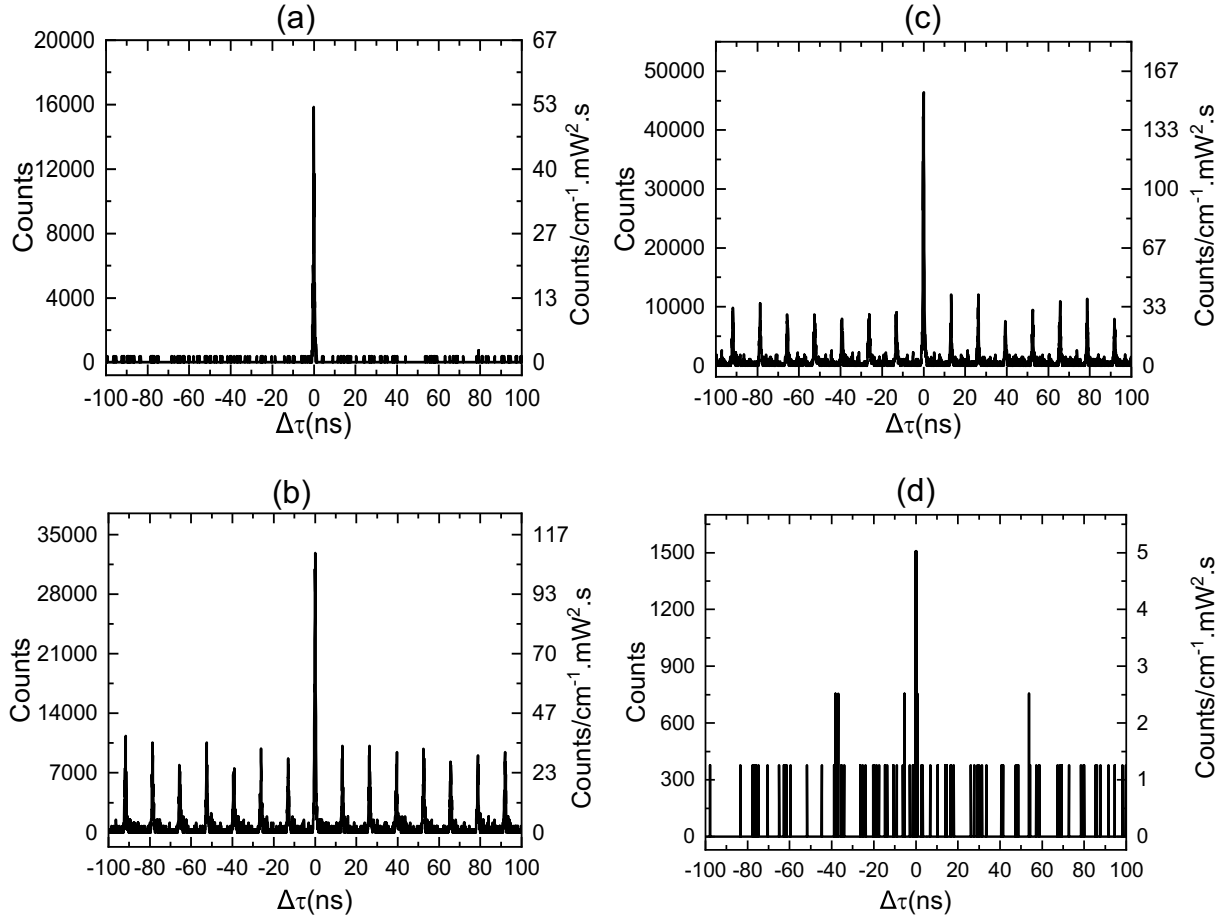


Figura 46 – Histogramas típicos para correlação de tempo SaS para ressonante $\omega_{S,aS} = \pm 1332 \text{ cm}^{-1}$: (a) $(V_S V_{aS}) \theta = 0^\circ$; (b) $(H_S H_{aS}) \theta = 0^\circ$; (c) $(V_S V_{aS}) \theta = 45^\circ$; (d) $(H_S H_{aS}) \theta = 45^\circ$. Os valores observados de g^2 são exibidos na tabela 8.

O pico em $\tau = t_S - t_{aS} = 0$ ($I_{SaS}(\tau = 0)$) representa fótons S-aS simultâneos. Os picos em $\tau \neq 0$ ($I_{SaS}(\tau \neq 0)$) representam fótons S-aS não coincidentes (não correlacionados no tempo). A quantidade de pares SaS correlacionados é obtida de $I_{SaS}(\tau = 0) - \bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, a barra em \bar{I}_{SaS} indicando o valor médio, enquanto $g^2(\tau = 0) = I_{SaS}(\tau = 0) / \bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$ é uma medida de a função de correlação de segunda ordem, e $g^2(\tau = 0) > 2$ define um fenômeno quântico.

Na primeira linha da Figura 47, para $\theta = 0^\circ$, os resultados do espalhamento Raman SaS correlacionado ($I_{SaS}(\tau = 0) - \bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) na região espectral das medições reais do fônon (Raman Shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$) sugerem algum grau emaranhamento de polarização de Stokes-anti-Stokes. Na base de VH, os fótons correlacionados de Stokes e Anti-Stokes são polarizados na mesma direção do laser incidente $V_S V_{aS}$ ou perpendicular $H_S H_{aS}$. Na base $+-$, os resultados são definidos principalmente por Stokes e anti-Stokes na mesma direção de polarização, isto é, $+_S +_{aS}$ ou $-_S -_{aS}$, com menor contribuição nas polarizações cruzadas. Da mesma forma, na base de RL, os resultados são principalmente $R_S L_{aS}$ ou $L_S R_{aS}$. Na segunda linha por $\theta = 45^\circ$, no entanto, os resultados indicam menor nível de

emaranhamento. Na base de VH, os Stokes e os fótons correlacionados anti-Stokes são polarizados principalmente na mesma direção do laser incidente, $V_S V_{aS}$. Na base $+-$ e RL, é obtida uma combinação equilibrada de todas as possibilidades.

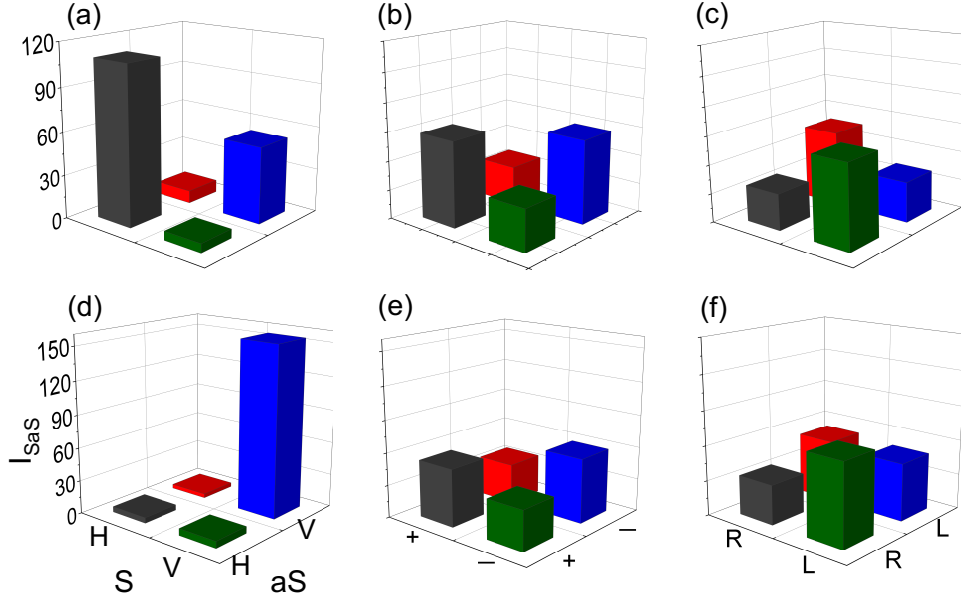


Figura 47 – Intensidade do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($I_{SaS}(\tau = 0) - \bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do real (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) e $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base $+-$, e (c-f) referente as medidas na base RL.

Na Figura 48 representamos os resultados da contagem acidental média por $\theta = 0^\circ$ e $\theta = 45^\circ$, respectivamente. Os resultados são totalmente consistentes com a dispersão Raman não correlacionada.

Na tabela 8, apresentamos os valores experimentais, incluindo $g^{(2)}$ obtidos para cada medição de polarização mostrada nas figuras 47 e 48. A maioria dos valores de $g^{(2)}$ é superior a 2, indicando a natureza quântica do fenômeno SaS. Interessante observar que $g^{(2)}$ é grande ($g^{(2)} \sim 40$) para $V_S V_{aS}$ em $\theta = 0^\circ$. Ao alterar a orientação do diamante para $\theta = 45^\circ$, a maioria dos valores de $g^{(2)}$ permanece semelhante, mas para o $[V_S V_{aS}]$ cai significativamente (para $g^{(2)} \sim 5$).

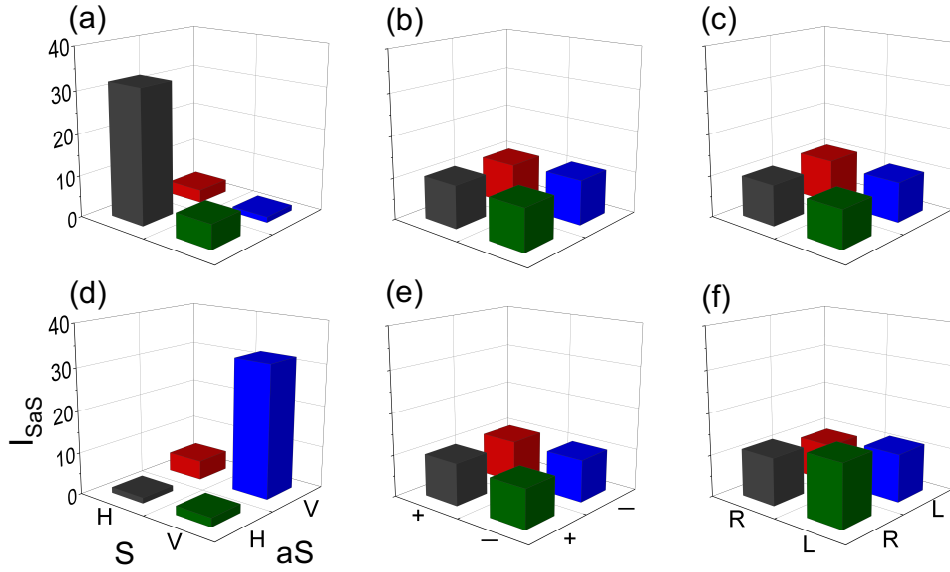


Figura 48 – Intensidade média das contagens acidentais do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do real (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) and $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base $+,-$, e (c-f) referente as medidas na base RL.

Pol	0°					45°					
	$I_{SaS}(\tau = 0)$	$\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$	$I_{(S)}(kHz)$	$I_{(aS)}(kHz)$	$g^{(2)}$	Pol	$I_{SaS}(\tau = 0)$	$\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$	$I_{(S)}(kHz)$	$I_{(aS)}(kHz)$	$g^{(2)}$
[H _S H _{aS}]	32825±9,3	9610±2,9	107,5	1,1	3,4±0,5	[H _S H _{aS}]	1509±2	404±0,4	4,1	0,4	3,8±2,4
[H _S V _{aS}]	2641±2,6	1777±1	105,5	0,5	1,5±0,6	[H _S V _{aS}]	1132±1,7	645±0,5	3,8	1	1,8±1,1
[V _S H _{aS}]	1887±2,2	932±0,6	5,3	0,9	2±1	[H _S V _{aS}]	1887±2,2	1392±0,5	111,5	0,3	1,4±0,6
[V _S V _{aS}]	15847±6,5	1,1±0,3	5,6	2,1	39,4±11	[V _S V _{aS}]	46408±11,1	9534±3,9	109,5	1,2	4,9±0,9
[+ _S + _{aS}]	17733±6,9	3094±1,4	59	0,7	5,7±1,3	[+ _S + _{aS}]	15847±6,5	3018±1	55,8	0,6	5,3±1,1
[+ _S - _{aS}]	8678±4,8	3045±1,5	58,9	0,6	2,9±0,8	[+ _S - _{aS}]	10942±5,4	2792±1,5	56,5	0,6	3,9±1,1
[- _S + _{aS}]	7923±4,6	3018±2	50,1	0,7	2,6±0,9	[- _S + _{aS}]	10941±5,4	3045±1,3	55,6	0,6	3,6±0,9
[- _S - _{aS}]	17356±6,8	3218±1,5	51,5	0,6	5,4±1,2	[- _S - _{aS}]	17733±6,9	3018±1,2	54,6	0,6	5,9±1,2
[R _S R _{aS}]	7546±4,5	2943±1,2	49,8	0,7	2,6±0,7	[R _S R _{aS}]	10187±5,2	3395±1,6	66,8	0,6	3±0,8
[R _S L _{aS}]	17356±6,8	2766±1,5	48,2	0,6	6,3±1,6	[R _S L _{aS}]	21128±7,5	4479±1,8	64,9	0,8	4,7±1
[L _S R _{aS}]	15469±6,4	3169	55,7	0,8	4,9±1	[L _S R _{aS}]	15847±6,5	2765±1,7	52,5	0,5	5,7±1,6
[L _S L _{aS}]	8301±4,7	2894	54,8	0,7	2,9±0,7	[L _S L _{aS}]	14714±6,2	3422±1,4	52,6	0,6	4,3±0,9

Tabela 8 – Valores experimentais para os dados mostrados nas Figuras 47 e 48. As contagens em coincidência e as médias das contagens acidentais são representadas, $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são representadas por kHz , onde $I_{(S)}$ refere-se às contagens na APD Stokes e $I_{(aS)}$ refere-se às contagens na APD anti-Stokes.

4.3.4 Correlação SaS na região de espalhamento Raman virtual

Os dados obtidos durante as medições foram corrigidos em função das eficiências dos elementos ópticos/instrumentos de medição, conforme descrito na seção 3.5. Na tabela 9 apresentamos um comparativo entre os dados medidos e corrigidos na base HV, o que mostra a baixa contagem do processo em função a eficiência do sistema disponível para realização das medições.

Pol	0° medido	0° corrigido	45° medido	45° corrigido
$[H_S H_a S]$	996	$7024 \pm 31,6$	147	$1037 \pm 12,1$
$[H_S V_a S]$	23	$162 \pm 4,8$	47	$331 \pm 6,9$
$[V_S H_a S]$	49	346 ± 7	105	$470 \pm 10,2$
$[V_S V_a S]$	2623	$18498 \pm 51,2$	4709	$33209 \pm 68,6$

Tabela 9 – Valores experimentais medidos e corrigidos na base HV, em função da eficiência do sistema de detecção para a região do virtual (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$). Os resultados demonstram que a detecção do processo pode ser melhorada.

A figura 49 mostra diagramas obtidos ao realizarmos medições de coincidência Stokes-anti-Stokes quando a luz espalhada Stokes e anti-Stokes é selecionada para estar fora de ressonância com a energia do fônon ($\omega_{S,aS} = \pm 900 \text{ cm}^{-1}$).

Na primeira linha da Figura 50, para $\theta = 0^\circ$, os resultados do espalhamento Raman SaS correlacionado ($I_{S_aS}(\tau = 0) - \bar{I}_{S_aS}(\tau \neq 0)$) na região espectral das medições virtuais do fônon (Raman Shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$) indicam emaranhamento de Stokes-anti-Stokes e os resultados são consistentes com o caso real. Na base de VH, os fótons correlacionados de Stokes e Anti-Stokes são polarizados na mesma direção do laser incidente $[V_S V_a S]$ ou perpendicular $H_S H_a S$. Na base $+-$, os resultados são $+_S +_{aS}$ ou $-_S -_{aS}$, na base de RL, os resultados são $R_S R_{aS}$ ou $L_S L_{aS}$. Comparando com o caso real do fônon, o emaranhamento parece ser maior. Na segunda linha por $\theta = 45^\circ$, no entanto, os resultados não indicam o mesmo emaranhamento claro. Na base de VH, os fótons correlacionados Stokes e anti-Stokes são polarizados exclusivamente na mesma direção do laser incidente, $V_S V_a S$. Na base $+-$ e RL, é obtida uma combinação mais equilibrada de todas as possibilidades.

Na Figura 51 representamos os resultados da contagem acidental média ($\bar{I}_{S_aS}(\tau \neq 0)$) para $\theta = 0^\circ$ e $\theta = 45^\circ$, respectivamente. Note que os valores absolutos são relativamente muito baixos, sujeitos a influência de ruídos.

Na tabela 10, apresentamos os valores experimentais, incluindo $g^{(2)}$ obtido para cada medição de polarização mostrada nas figuras 50 e 51. Os valores $g^{(2)}$ são consideravelmente maiores do que para o caso real, indicando maior pureza quântica, causada pelo nível mais alto de sinal aS , apenas observado para $[V_S V_a S]$ no caso real.

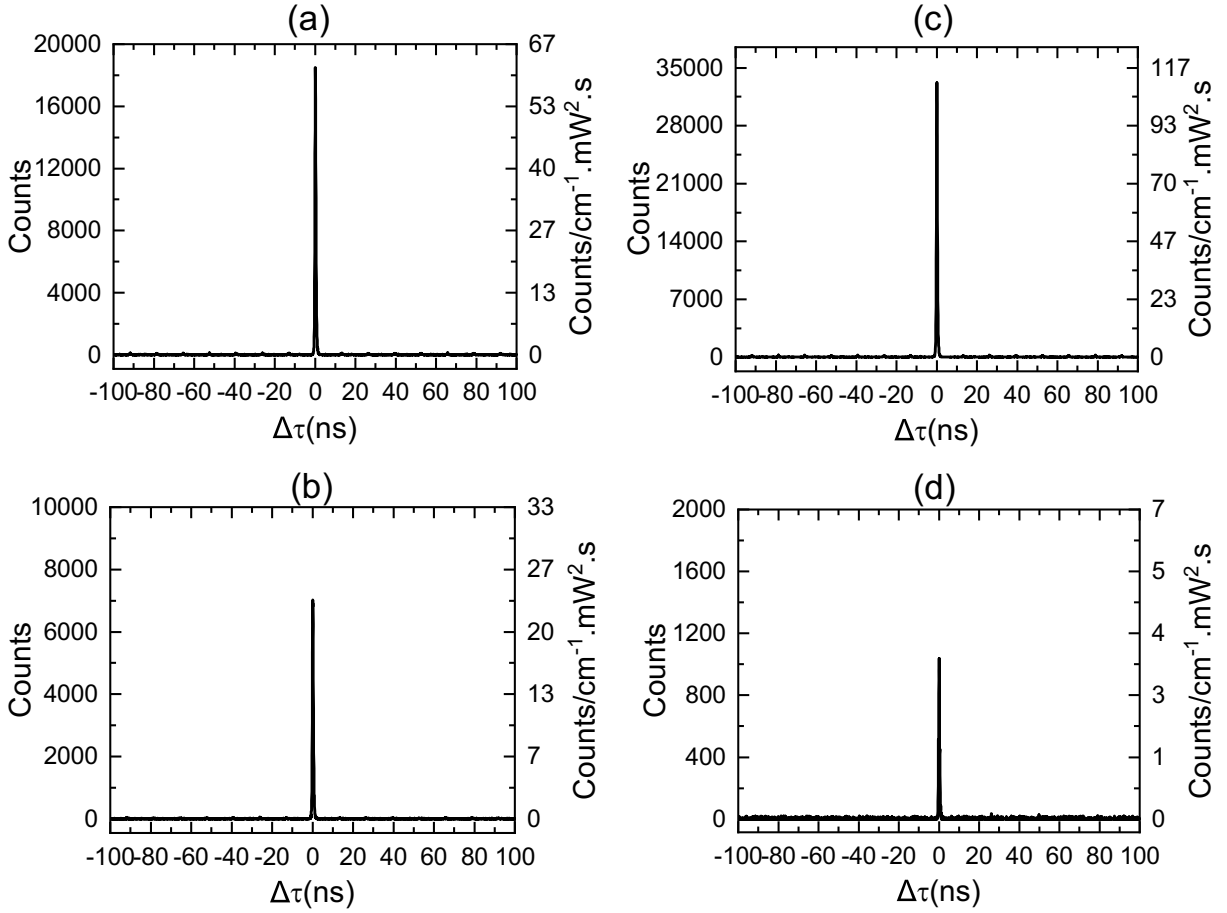


Figura 49 – Histogramas típicos para correlação de tempo SaS para ressonante $\omega_{S,aS} = \pm 900 \text{ cm}^{-1}$: (a) $(V_S V_{aS}) \theta = 0^\circ$; (b) $(H_S H_{aS}) \theta = 0^\circ$; (c) $(V_S V_{aS}) \theta = 45^\circ$; (d) $(H_S H_{aS}) \theta = 45^\circ$. Os valores observados de g^2 são exibidos na tabela 10.

Pol	0°					45°					
	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$	Pol	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$
[H _S H _{aS}]	7024±31,6	42±1,2	15,2	3,2	166±33,6	[H _S H _{aS}]	1037±12,1	21±0,73	8,9	2,2	49±12,6
[H _S V _{aS}]	162±4,8	78±2,1	14,3	5,4	2,1±0,6	[H _S V _{aS}]	331±6,9	60±0,8	9,4	7,9	5,51±1,0
[V _S H _{aS}]	346±7	62±1,3	25,7	2,85	5,6±1,2	[V _S H _{aS}]	740±10,2	47±1,4	30,5	2,2	15,6±3,6
[V _S V _{aS}]	18498±51,2	238±1,7	2,6	5,2	155,5±15,9	[V _S V _{aS}]	33209±68,6	33,7±3,2	30,7	7,6	139,6±13,4
[+ _S + _{aS}]	12003±41,3	77±1,4	19,6	4,1	155,7±20,4	[+ _S + _{aS}]	11664±40,7	89±2,6	20,3	4,4	131,3±27,3
[+ _S - _{aS}]	790±10,6	78±2	19,7	4	10,1±2,1	[+ _S - _{aS}]	5628±28,2	93±1,6	19,8	4,8	60,5±7,8
[- _S + _{aS}]	1220±13,2	81±2,1	20,2	4,3	15±3,0	[- _S + _{aS}]	6199±29,6	93±2,1	19,9	4,9	66,9±10,7
[- _S - _{aS}]	11932±41,1	75±1,7	20,6	3,8	158,6±25,5	[- _S - _{aS}]	11939±41,1	94±2,5	19,8	4,8	127,6±24,4
[R _S R _{aS}]	1241±13,3	81±1,9	20,5	4,4	15,4±2,8	[R _S R _{aS}]	3787±23,2	75±1,6	18,9	4,4	50,3±7,9
[R _S L _{aS}]	12736±42,5	80±2,2	20,1	4,4	159,4±31,3	[R _S L _{aS}]	13209±43,3	102±2,3	19,1	5,7	129,5±20,6
[L _S R _{aS}]	11805±40,9	79±1,8	19,6	4	148,6±23,9	[L _S R _{aS}]	11425±40,2	91±1,4	22,6	4,8	125,9±14,1
[L _S L _{aS}]	896±11,3	76±1,3	19,5	4,2	11,8±1,8	[L _S L _{aS}]	10501±38,6	127±2,5	22	5,8	82,4±11,6

Tabela 10 – Valores experimentais para os dados mostrados nas Figuras 50 e 51. As contagens em coincidência e as médias das contagens acidentais são representadas, $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são representadas por kHz, onde $I_{(S)}$ refere-se às contagens na APD Stokes e $I_{(aS)}$ refere-se às contagens na APD anti-Stokes.

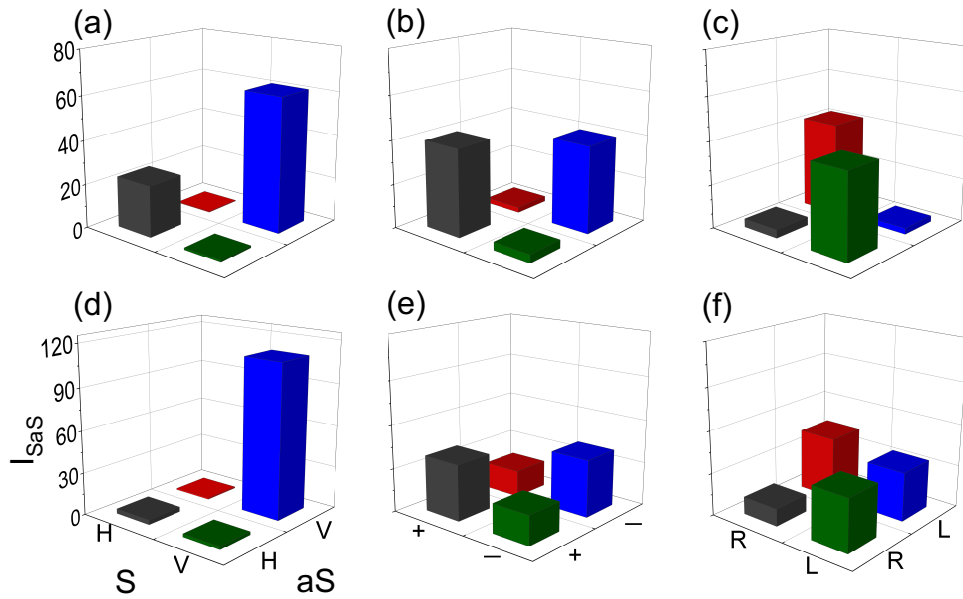


Figura 50 – Intensidade do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($I_{SaS}(\tau = 0) - \bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do virtual (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) e $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base $+,-$, e (c-f) referente as medidas na base RL.

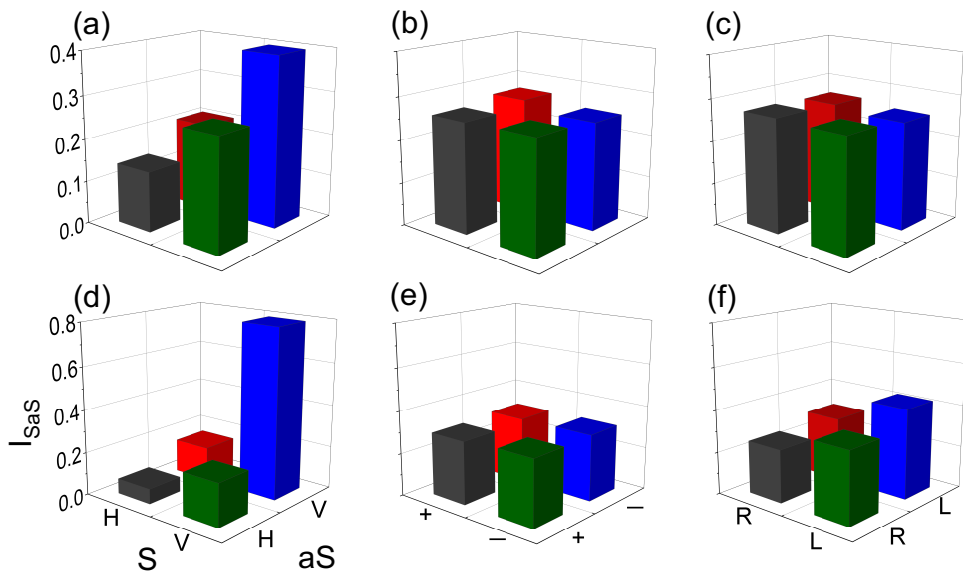


Figura 51 – Intensidade média das contagens acidentais do espalhamento correlacionado Stokes-anti-Stokes ($\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$) para a região do virtual (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com luz incidente polarizada em V, e Stokes (S) e anti-Stokes (aS) analisadas em todas as diferentes geometrias de polarização definidas na Figura 43, considerando o diamante com $\theta = 0^\circ$ (linha superior) and $\theta = 45^\circ$ (linha inferior). Sendo (a-d) referente as medidas na base HV, (b-e) referente as medidas na base $+,-$, e (c-f) referente as medidas na base RL.

4.3.5 *Maximum Likelihood Estimation* (MLE) da tomografia de estados

Para o procedimento de tomografia, novamente o feixe da excitação é sempre polarizado verticalmente, e os fótons Stokes (S) e anti-Stokes (aS) são analisados em combinações de polarizações H,V,+,-,R e L. As matrizes de densidade foram obtidas a partir da tomografia de estado quântico do fenômeno SaS, que após a realização de todas as medidas selecionando as combinações de polarização conforme descrito na figura 41, foram geradas com MLE, e as matrizes são descritas a seguir nas bases HV.

Na figura 52 estão exibidos os valores reais (a) e imaginários (b) dos elementos da matriz de estado de polarização dos fótons SaS para fônons reais (deslocamento Raman $\sim \pm 1332 \text{ cm}^{-1}$) em $\theta = 0^\circ$ e na figura 53 o estado SaS para fônons reais (deslocamento Raman $\sim \pm 1332 \text{ cm}^{-1}$) em $\theta = 45^\circ$. Na figura 54 o estado SaS para fônons virtuais (deslocamento Raman $\sim \pm 900 \text{ cm}^{-1}$) em $\theta = 0^\circ$ e na figura 55 encontra-se representado o estado SaS para fônons virtuais (deslocamento Raman $\sim \pm 900 \text{ cm}^{-1}$) em $\theta = 45^\circ$.

Na tabela 11, encontram-se listados os valores de pureza e concorrência para todas as medidas realizadas. Observando os resultados obtidos da medição realizada na região virtual com a orientação do diamante a $\theta = 0^\circ$, foi obtida uma concorrência de 0,86 e pureza de 0.963 o que indica um forte grau de emaranhamento do par SaS.

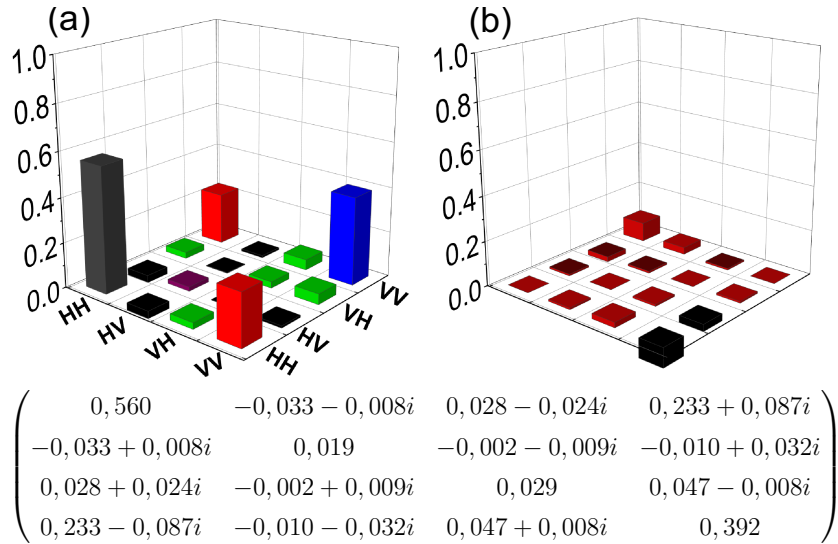


Figura 52 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons reais (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 0^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).

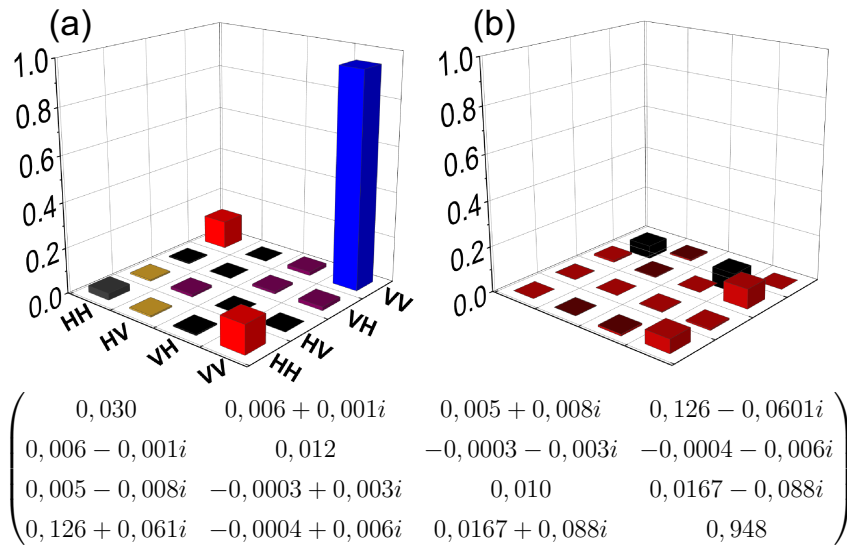


Figura 53 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons reais (Raman shift $\sim 1332 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 45^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).

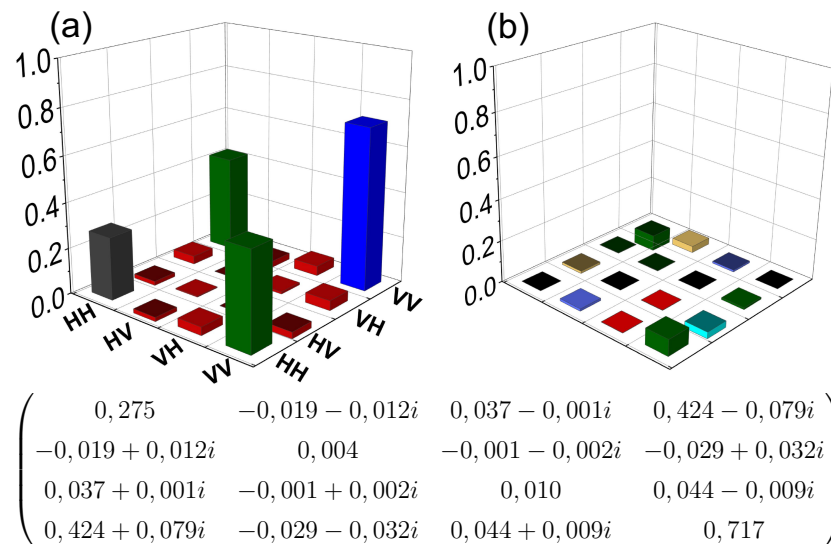


Figura 54 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons virtuais (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 0^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).

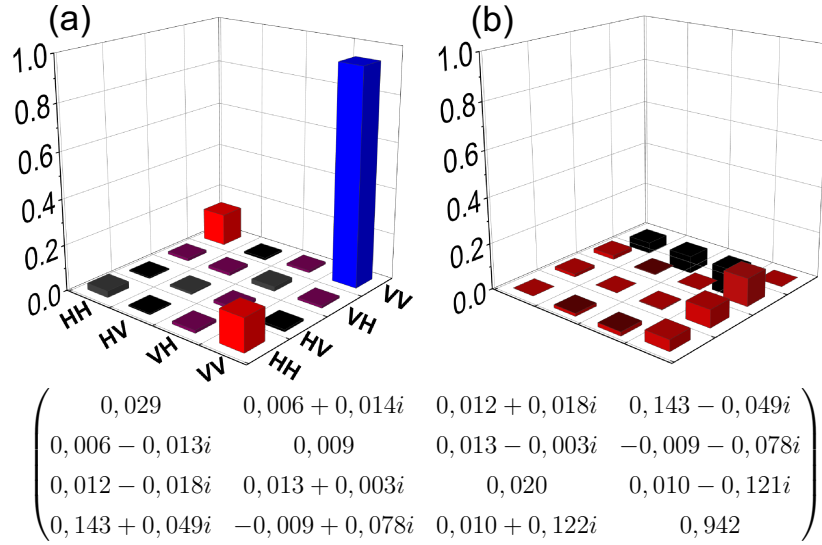


Figura 55 – MLE dos dados obtidos nas medidas de tomografia de estados do espalhamento SaS mediado por fônons virtuais (Raman shift $\sim 900 \text{ cm}^{-1}$), com diamante na posição $\theta = 45^\circ$. Foram plotadas as partes real (a) e imaginária (b).

θ	Raman shift	Concorrência	Pureza
0°	900 cm^{-1}	0,86	0,963
	1332 cm^{-1}	0,459	0,603
45°	900 cm^{-1}	0,318	0,978
	1332 cm^{-1}	0,276	0,955

Tabela 11 – Concorrência e pureza obtidos da tomografia de estado de densidade SaS em $\theta = 0^\circ$ e 45° , nas regiões do real e virtual.

4.3.6 Experimento de desigualdade CHSH do fenômeno SaS

Baseando-se nos resultados obtidos com as medidas de tomografia, com o objetivo de confirmar o possível emaranhamento em polarização do par de fótons SaS em virtude da possibilidade da super estimativa do estado utilizando o método *MLE*, conforme descrito no final da seção 2.2.5, foram realizadas medidas de desigualdade de Bell utilizando-se do método descrito em 2.2.4.

O *setup* experimental utilizado para a realização do experimento foi o mesmo utilizado para as medidas de tomografia, conforme Figura 42, sendo que foram removidas as placas $\lambda/4$ dos caminhos Stokes e anti-Stokes para realização das medidas, uma vez que apenas as placas $\lambda/2$ seriam necessárias para seleção de polarização dos fótons S e aS para realização das medidas. O sistema de controle das placas foi modificado, sendo gerada uma nova interface com os novos ângulos para realizar as medidas de CHSH.

Considerando o estado medido na região do virtual com o diamante orientado a $\theta = 0^\circ$, conforme representado na Figura 54, as medições de intensidade mostram que as probabilidades de detecção (p) dos estados $|H_S H_{aS}\rangle$ e $|V_S V_{aS}\rangle$ são 0,28 e 0,72

respectivamente. Em um primeiro momento os ângulos para realização das medidas de CHSH foram estimados numericamente, para o estado SaS $\sqrt{1-p}|V_S V_{aS}\rangle + \sqrt{p}|H_S H_{aS}\rangle$, assumindo que o mesmo é um estado puro, conforme descrito na seção 2.2.4.1, sendo obtidos para máxima violação os ângulos (0° , 45° , 21° e 69°), obtendo um valor de $|S| = 2,688$, muito próximo da violação máxima do estado de Bell ϕ_+ de $2,828$ usando os ângulos sugeridos na Tabela 1, da seção 2.2.4. Em seguida, foi realizada uma simulação de medida de desigualdade de Bell-CHSH tomando como base o estado SaS tomografado na região de 900 cm^{-1} utilizando os ângulos de teste de Bell, e o resultado obtido encontra-se na figura 56a. Após os resultados obtidos com as simulações, foram realizadas medidas de desigualdade de Bell-CHSH nas regiões do real e virtual em ambas orientações cristalográficas do diamante, utilizando os ângulos de teste para o estado ϕ_+ .

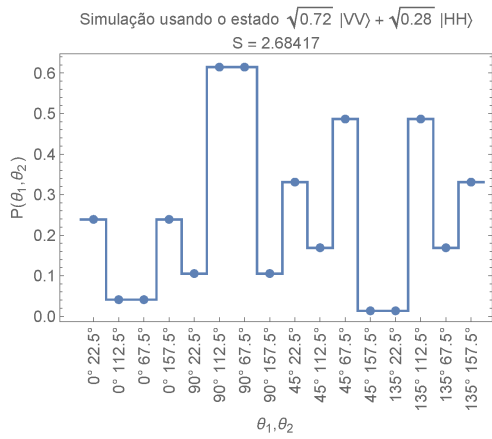
Os resultados das medições obtidos foram utilizados para verificar se em uma certa orientação do diamante em uma das regiões, a desigualdade de Bell é violada. A expectativa, com base nos resultados obtidos com as medidas de tomografia e em função dos resultados das análises utilizando o método MLE descrito na seção 2.2.5, era de que na região do virtual, com a orientação cristalográfica do diamante em $\theta = 0^\circ$, a desigualdade fosse violada.

O resultado das medidas de Bell na mesma região tomografada usada para simulação encontra-se na figura 56b. Quando comparamos o resultado da medida obtido em de 900 cm^{-1} com os resultados da simulação considerando o estado puro, constatamos que os resultados obtidos foram bem próximos, conforme representado na figura 56c.

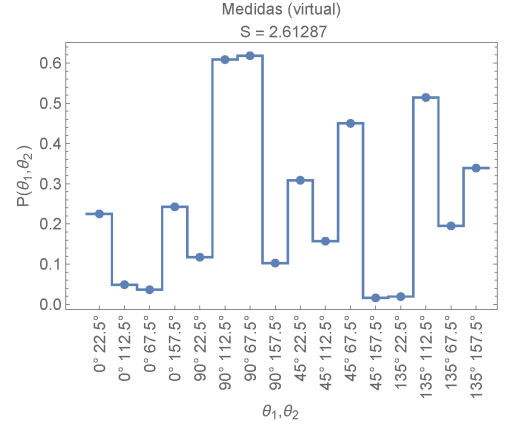
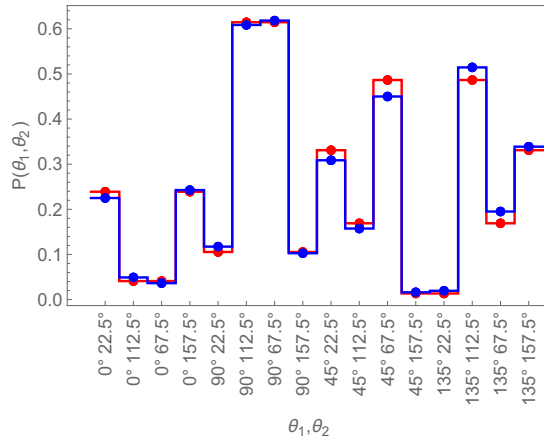
Após medições e tratamento dos dados, foram calculados os valores de Bell-CHSH para cada região em função da respectiva orientação do diamante. Os resultados obtidos, Tabela 12, demonstram que na região virtual, com o diamante orientado a $\theta = 0^\circ$ a correlação SaS viola a desigualdade, obtendo o $S = 2,61 \pm 0,03$ para a primeira medição e $S = 2,58 \pm 0,02$ para a segunda medição. Esses resultados demonstram o emaranhamento em polarização do fenômeno SaS na região virtual com o diamante orientado para $\theta = 0^\circ$, reforçando o resultado obtido com a análise MLE em medidas de tomografia.

Região	θ	Exp.1	Exp.2
Real	0°	$2,05 \pm 0,2$	$1,92 \pm 0,2$
	45°	$1,62 \pm 0,2$	$1,54 \pm 0,2$
Virtual	0°	$2,61 \pm 0,03$	$2,58 \pm 0,02$
	45°	$1,82 \pm 0,03$	$1,79 \pm 0,03$

Tabela 12 – Estimativa Bell-CHSH das medidas da correlação SaS.



(a) Simulação das medidas de Bell considerando o estado puro.


 (b) Resultados experimentais para as medidas de Bell considerando o estado SaS em 900 cm^{-1} .


(c) Comparativo desigualdade de Bell-CHSH simulado (a) e medido (b), referente ao par de fótons SaS.

Figura 56 – Análise medidas desigualdade de Bell-CHSH.

O modelo microscópico do emaranhamento de polarização observado em pares de fótons SaS no deslocamento Raman em $\pm 900 \text{ cm}^{-1}$ é proposto como resultado da coexistência de duas vias independentes que contribuem para a mistura espontânea de quatro ondas (LEVENSON; FLYTZANIS; BLOEMBERGEN, 1972; LEVENSON; BLOEMBERGEN, 1974): o tensor $\chi^{(3)}$ é a soma de uma contribuição não-ressonante $\chi_{NR}^{(3)}$ de transições eletrônicas, Figura 57 (a), que estão distantes de qualquer energia envolvida no processo de mistura de quatro ondas, mais um termo ressonante (próximo) $\chi_R^{(3)}$ que resulta da espalhamento vibracional de Raman Figura 57 (b). Usando a convenção de (LEVENSON; BLOEMBERGEN, 1974), onde a contraparte estimulada do processo estudada aqui foi investigada, rotulamos os índices do tensor $\chi^{(3)}$ na seguinte ordem: $\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_{aS}, \omega_L, \omega_L, \omega_S)$, onde $i, j, k, l = X, Y = V, H$, a última igualdade é válida para $\theta = 0^\circ$. Por exemplo, o elemento tensor $\chi_{HVVH}^{(3)}$ é responsável pela criação de fótons S e aS nas polarizações H_S, H_{aS} , oriundos de 2 fótons do laser polarizados em V.

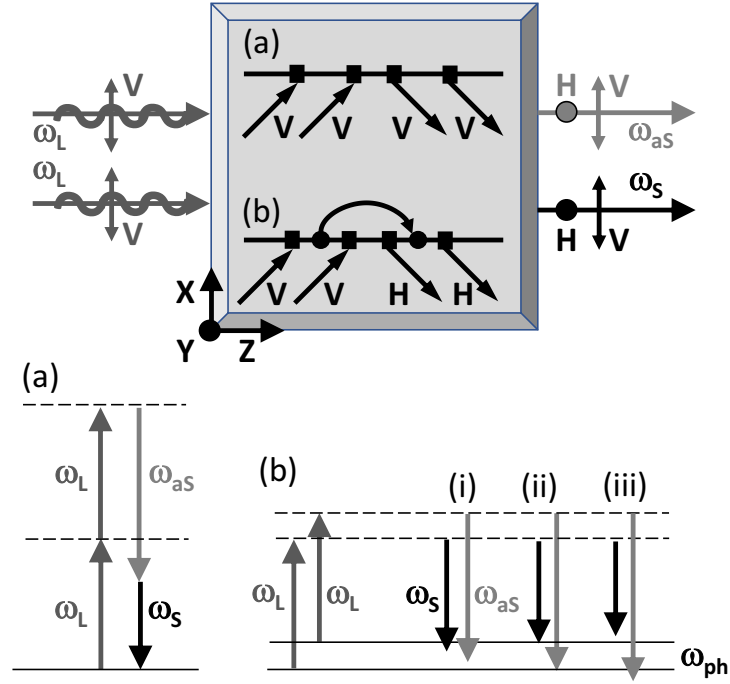


Figura 57 – Modelo microscópico evidenciando os caminhos em que dois fótons de um laser (ω_L) geram um par SaS (ω_S e ω_{aS}): (a) mistura puramente eletrônica de quatro ondas; (b) processo mediado por fônon, que pode ser ressonante (ii) ou desviado por ressonância: (i) *detuning* negativo; (iii) *detuning* positivo. V, H são as polarizações de luz ortogonais. X, Y, Z são os eixos cristalográficos de diamante.

Como o diamante é um sistema cúbico (grupo de simetria de ponto O_h) a parte não ressonante (puramente eletrônica) do tensor contém apenas três contribuições distintas diferentes de zero:

$$\chi_{NR}^{(3)} = \chi_{iii}^e + \chi_{ijji}^e + \chi_{iijj}^e. \quad (4.2)$$

Estando o cristal orientado em $[100]$ para a incidência do laser, juntamente com a geometria experimental do laser para $\theta = 0^\circ$, significa que apenas χ_{VVVV}^e e χ_{HVVH}^e contribuem, levando a (V_S, V_{aS}) e (H_S, H_{aS}) , respectivamente. Além disso, foi mostrado em (LEVENSON; BLOEMBERGEN, 1974) que $|\chi_{VVVV}^e| \simeq 3|\chi_{HVVH}^e|$, para que esperássemos 9 vezes mais pares V_S, V_{aS} que pares H_S, H_{aS} , se apenas a contribuição eletrônica estivesse atuando. A forma da contribuição ressonante (Raman) é ainda restringida pela simetria do fônon óptico que pertence à representação irreduzível degenerada tripla T_{2g} , de modo que $\chi_R^{(3)} = \chi_{HVVH}^R$ na geometria experimental para $\theta = 0^\circ$. Observe também que a fase de $\chi_R^{(3)}$ experimenta uma mudança de π quando o deslocamento Raman cruza a ressonância vibracional, de modo que os fótons gerados a partir dessa via em deslocamentos Raman maiores interferem destrutivamente com os resultantes de χ_{HVVH}^e (LEVENSON; BLOEMBERGEN, 1974).

Complementando, se negligenciarmos χ_{HVVH}^e para a simplicidade da análise, descobrimos que, para o laser polarizado em V e $\theta = 0^\circ$, o tensor de suscetibilidade não linear é apenas $\chi_{VVVV}^e + \chi_{HVVH}^R$, onde a magnitude do primeiro termo é independente, enquanto a magnitude do segundo termo depende da detecção dos pares de fótons detectados em relação ao modo vibracional Raman. Para uma escolha adequada de detecção (por exemplo, cerca de $\pm 900 \text{ cm}^{-1}$, como encontramos aqui) as contribuições eletrônicas e vibracionais têm magnitudes semelhantes. Além disso, como os pares de fótons produzidos pelas duas vias são indistinguíveis em seus modos temporais e espaciais, exceto por suas polarizações, prevemos que o estado de bi-fóton deve ser da forma $|\psi\rangle_{SaS} = c_1 |V_S, V_{aS}\rangle + c_2 |H_S, H_{aS}\rangle$. Trabalhos futuros são necessários para explorar até que ponto os coeficientes $c_1 = \sqrt{1-p}$ e $c_2 = \sqrt{p}$ podem ser ajustados pela filtragem espectral, permitindo um estado quântico personalizado.

Nas tabelas 13 e 14 são apresentados os resultados completos das medidas de contagem em coincidência realizadas na região real e nas tabelas 15 e 16 são apresentados os resultados completos das medidas de contagem em coincidência realizadas na região virtual, sendo os mesmo foram corrigidos em função da eficiência do sistema, conforme seção 3.5. Os experimentos foram realizados em dias diferentes e as medidas de cada dia foram realizadas na região do real e virtual em sequência, apenas foram alterados os filtros de seleção.

0°						45°					
$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$	$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$
0° – 22,5°	66±8,1	18,9±2,7	114	0,6	3,5±0,7	0° – 22,5°	5±2,2	1,3±0,4	8	0,4	4±2,2
0° – 112,5°	14±3,7	7,8±1	113	0,3	1,8±0,5	0° – 112,5°	4±2	2,4±0,5	7,8	0,9	1,7±0,9
0° – 67,5°	19±4,4	7±1	115	0,5	2,7±0,7	0° – 67,5°	4±2	2,4±0,6	7,6	0,7	1,7±0,9
0° – 157,5°	69±8,3	20,6±2,5	114	0,8	3,4±0,6	0° – 157,5°	3±1,7	1,3±0,5	7,8	0,3	2,3±1,5
90° – 22,5°	8±2,8	2,1±0,6	6,5	0,8	3,8±1,7	90° – 22,5°	23±4,8	4,8±0,8	108,5	0,3	4,8±1,2
90° – 112,5°	37±6,1	1,3±0,4	6,9	0,3	29,2±11,2	90° – 112,5°	102±10,1	20,6±2,0	110,5	0,8	5±0,7
90° – 67,5°	45±6,7	1,5±0,5	7	0,4	30,7±11,4	90° – 67,5°	110±10,5	20,4±1,8	111,5	0,8	5,4±0,7
90° – 157,5°	11±3,3	2,4±0,6	6,4	0,6	4,6±1,8	90° – 157,5°	22±4,7	6,9±1,0	110	0,4	3,2±0,8
45° – 22,5°	33±5,7	12,7±1,9	65	0,8	2,6±0,6	45° – 22,5°	9±3	3,3±0,7	59,5	0,3	2,7±1,1
45° – 112,5°	41±6,4	5,5±1,6	65,6	0,3	7,4±2,5	45° – 112,5°	59±7,7	13,2±1,2	60,1	0,8	4,5±0,7
45° – 67,5°	26±5,1	4,7±1,1	63,8	0,3	5,5±1,6	45° – 67,5°	50±7,1	11,1±2,1	61,2	0,8	4,5±1,1
45° – 157,5°	61±7,8	11,6±2,1	63,6	0,7	5,3±1,2	45° – 157,5°	17±4,1	4,2±0,8	59,1	0,4	4,1±1,3
135° – 22,5°	49±7	10,6±1,1	56,4	0,9	4,6±0,8	135° – 22,5°	22±4,7	3,4±0,7	60,4	0,4	6,5±1,9
135° – 112,5°	25±5	4,7±0,9	54,4	0,3	5,4±1,5	135° – 112,5°	57±7,5	11,5±1,3	33,6	1	5±0,9
135° – 67,5°	36±6	3,9±1,3	53,6	0,4	9,2±3,4	135° – 67,5°	67±8,2	11,3±1,7	60,3	0,9	5,9±1,1
135° – 157,5°	26±5,1	10,8±1,2	55,2	0,7	2,4±0,5	135° – 157,5°	12±3,5	4,7±1,1	59,4	0,3	2,5±0,9

Tabela 13 – Valores experimentais obtidos referente à primeira medição do experimento de desigualdade de Bell na região real. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz, onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento.

0°						45°					
$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$	$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$
0° – 22,5°	40±6,3	18,7±3,86	113	0,9	2,1±0,6	0° – 112,5°	3±1,7	1,4±0,49	7,4	0,2	2,1±1,4
0° – 112,5°	14±3,7	7,2±0,91	112,5	0,4	1,9±0,6	0° – 112,5°	5±2,2	2,8±0,67	7,4	0,8	1,8±0,9
0° – 67,5°	13±3,6	6,4±0,95	112	0,5	2±0,6	0° – 67,5°	5±2,2	2,5±0,5	7,4	0,9	2±1
0° – 157,5°	55±7,4	17,0±2,03	112	0,8	3,2±0,6	0° – 157,5°	3±1,7	1,4±0,49	7,3	0,2	2,1±1,4
90° – 22,5°	9±3	2,7±0,94	7,9	0,7	3,4±1,6	90° – 22,5°	30±5,5	6,9±1,63	125,5	0,2	4,4±1,3
90° – 112,5°	21±4,6	1,1±0,34	7,7	0,5	18,5±6,9	90° – 112,5°	108±10,4	25±1,75	122,5	0,7	4,3±0,5
90° – 67,5°	27±5,2	1,4±0,61	7,9	0,5	19,3±9,2	90° – 67,5°	103±10,1	23,1±2,31	124,5	0,9	4,5±0,6
90° – 157,5°	6±2,4	2,2±0,75	8,1	0,8	2,7±1,4	90° – 157,5°	20±4,5	8,1±1,48	123,5	0,3	2,5±0,7
45° – 22,5°	27±5,2	11,9±1,5	60	0,9	2,3±0,5	45° – 22,5°	14±3,7	4,5±0,72	70,4	0,3	3,1±1
45° – 112,5°	34±5,8	6,1±1	63,6	0,5	5,6±1,3	45° – 112,5°	57±7,5	16,5±2,47	71,1	0,8	3,5±0,7
45° – 67,5°	18±4,2	4,7±1,12	61,1	0,4	3,8±1,3	45° – 67,5°	59±7,7	15,1±1,59	70,7	0,8	3,9±0,7
45° – 157,5°	43±6,6	12,8±1,9	61,2	0,8	3,4±0,7	45° – 157,5°	20±4,5	5,5±1,31	71,4	0,3	3,6±1,2
135° – 22,5°	52±7,2	13,3±1,65	68,9	1	3,9±0,7	135° – 22,5°	21±4,6	4,4±1,02	64,2	0,3	4,8±1,5
135° – 112,5°	20±4,5	5,8±1,42	68,5	0,5	3,5±1,1	135° – 112,5°	52±7,2	15,1±2	62,7	0,8	3,4±0,7
135° – 67,5°	29±5,4	5,3±0,87	67,7	0,5	5,4±1,3	135° – 67,5°	75±8,7	14,6±1,93	63,4	0,8	5,1±0,9
135° – 157,5°	30±5,5	13,8±1,94	68,3	0,9	2,2±0,5	135° – 157,5°	11±3,3	4,6±0,88	63,7	0,2	2,4±0,9

Tabela 14 – Valores experimentais obtidos referente à segunda medição do experimento de desigualdade de Bell na região real. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz, onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento.

0°						45°					
$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$	$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$
0° – 22,5°	719±26,8	5,8±1,6	11,5	2,7	124±34,5	0° – 22,5°	103±10,1	3±0,97	7	2,4	34,3±11,6
0° – 112,5°	115±10,7	8,27±1,57	11,9	3,7	13,9±2,9	0° – 112,5°	30±5,5	5,27±1,44	7	5,1	5,7±1,9
0° – 67,5°	151±12,3	7,6±1,2	11,9	3,8	19,9±3,5	0° – 67,5°	46±6,8	5,73±0,85	6,8	5,5	8,0±1,7
0° – 157,5°	661±25,7	5,27±1	11,7	2,4	125,5±24,3	0° – 157,5°	96±9,8	2,4±0,49	6,9	1,9	40,0±9,1
90° – 22,5°	311±17,6	8,6±1,31	21,6	2,7	36,2±5,9	90° – 22,5°	724±26,9	8,27±1,29	25,4	2,6	87,6±14
90° – 112,5°	1828±42,8	10,6±1,14	21,2	3,9	172,5±19	90° – 112,5°	3157±56,2	19±3,18	25,4	5,2	166,2±28
90° – 67,5°	1785±42,2	11,47±1,71	21,2	3,6	155,7±23,5	90° – 67,5°	3398±58,3	23,2±2,43	25,7	5,4	146,5±15,5
90° – 157,5°	350±18,7	8±1,63	20,4	2,5	43,8±9,2	90° – 157,5°	448±21,2	7,4±1,7	25,7	2	60,5±14,2
45° – 22,5°	53±7,3	6,93±1,18	16	2,7	7,6±1,7	45° – 22,5°	145±12	5,67±1,25	15,5	2,4	25,6±6
45° – 112,5°	1296±36	9,13±1,5	16	3,8	141,9±23,6	45° – 112,5°	1644±40,5	11,67±1,81	15,4	5	140,9±22,1
45° – 67,5°	472±21,7	9,87±1,45	15,8	3,8	47,8±7,4	45° – 67,5°	1397±37,4	13,73±1,69	15,1	5,4	101,7±12,8
45° – 157,5°	913±30,2	6,93±1,69	15,6	2,6	131,7±32,4	45° – 157,5°	452±21,3	4,6±0,88	15,7	2,1	98,3±19,4
135° – 22,5°	976±31,2	6,73±1,65	16,3	2,5	145±35,8	135° – 22,5°	705±26,6	6,13±1,09	16,6	2,5	115,0±20,9
135° – 112,5°	568±23,8	10,13±1,82	16,6	3,9	56,1±10,3	135° – 112,5°	1556±39,4	12,73±1,84	16,6	5	122,2±17,9
135° – 67,5°	1520±39	10,27±2,17	16,6	3,9	148,1±31,5	135° – 67,5°	2115±46	15±2,19	16,5	5,5	141,0±20,8
135° – 157,5°	64±8	6,8±1,28	16,4	2,5	9,4±2,1	135° – 157,5°	76±8,7	4,93±0,77	16,9	2,2	15,4±3

Tabela 15 – Valores experimentais obtidos referente à primeira medição do experimento de desigualdade de Bell na região virtual. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz, onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento.

0°						45°					
$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$	$\theta_S - \theta_{aS}$	I_{SaS} ($\tau = 0$)	\bar{I}_{SaS} ($\tau \neq 0$)	$I_{(S)}$ (kHz)	$I_{(aS)}$ (kHz)	$g^{(2)}$
0° – 22,5°	779±27,9	5,47±1,3	12,4	2,8	142,5±33,2	0° – 22,5°	81±9	3,5±0,9	7,1	2,7	23,4±6,5
0° – 112,5°	242±15,6	9,33±1,4	12,3	3,9	25,93±4,2	0° – 112,5°	84±9,2	5,7±1,1	7	5,4	14,8±3,2
0° – 67,5°	99±9,9	8,87±1,9	12,1	4,2	11,17±2,6	0° – 67,5°	10±3,2	6,3±1,5	6,7	6	1,6±0,6
0° – 157,5°	939±30,6	6±1,5	12,6	2,9	156,5±38,4	0° – 157,5°	167±12,9	2,9±0,8	6,8	2,2	58,3±17
90° – 22,5°	461±21,5	10±1,7	21,4	2,6	46,1±8	90° – 22,5°	820±28,6	8,4±1,3	26,3	2,4	97,6±15,6
90° – 112,5°	2238±47,3	13,2±1,5	21,5	3	169,55±19,2	90° – 112,5°	3613±60,1	21,7±3,1	25,9	5	166,8±24,1
90° – 67,5°	2342±48,4	13,93±2,3	22	4,1	168,09±27,5	90° – 67,5°	3974±63	24,5±4,1	26,7	5,3	162,4±27,1
90° – 157,5°	354±18,8	9,2±1,6	21,4	2,9	38,48±7	90° – 157,5°	546±23,4	7,5±1	26	2,1	72,5±10,3
45° – 22,5°	40±6,3	8,07±1,4	17,2	2,8	4,96±1,2	45° – 22,5°	222±14,9	6,3±1	18,1	2,3	35,1±6,1
45° – 112,5°	1981±44,5	12,2±1,4	17,8	3,9	162,38±18,7	45° – 112,5°	2382±48,8	16,3±2,2	18,1	5,1	146,4±19,8
45° – 67,5°	837±28,9	11,4±1,8	17,7	4,1	73,42±12	45° – 67,5°	2078±45,6	16,3±2,3	18,3	5,4	127,8±18,2
45° – 157,5°	1142±33,8	7,87±1,5	17,8	2,8	145,17±28	45° – 157,5°	619±24,9	5,3±1,2	18	2	116,1±26,3
135° – 22,5°	1213±34,8	7,47±1,6	16,1	2,6	162,46±34,9	135° – 22,5°	682±26,1	5,7±1,4	16,1	2,2	119,0±29,2
135° – 112,5°	552±23,5	10,87±1,4	15,8	3,4	50,8±6,9	135° – 112,5°	1451±38,1	12,7±2	15,3	5,3	114,0±17,7
135° – 67,5°	1650±40,6	11,93±1,7	16	4	138,27±20,3	135° – 67,5°	2113±46	13,9±2	16	5,2	152,4±22,2
135° – 157,5°	122±11,0	7,33±1,6	16,3	2,7	16,64±3,9	135° – 157,5°	83±9,1	5,1±1,2	15,8	2,1	16,4±4,4

Tabela 16 – Valores experimentais obtidos referente à segunda medição do experimento de desigualdade de Bell na região virtual. As contagens coincidentes e as contagens acidentais médias são representadas por $I_{SaS}(\tau = 0)$ e $\bar{I}_{SaS}(\tau \neq 0)$, respectivamente. As contagens nas APD's são apresentadas kHz, onde I_S refere-se às contagens na APD Stokes e I_{aS} refere-se às contagens na APD anti-Stokes. $\theta_S - \theta_{aS}$ referem-se aos ângulos de seleção dos fótons S e aS espalhados durante a realização do experimento.

Capítulo 5

Conclusão e Perspectivas

Neste trabalho realizamos a caracterização do estado dos pares de fótons correlacionados Stokes-anti-Stokes em uma amostra de diamante nas regiões real e virtual do espalhamento Raman, utilizando um laser pulsado com largura temporal de fs . Durante esse estudo, através de medidas de tomografia de estados, as matrizes de densidade para ambas as regiões foram construídas, levando em consideração a orientação do eixo cristalográfico do diamante em relação à polarização da luz incidente e espalhada.

Com os resultados obtidos, foi possível identificar que a orientação cristalográfica do diamante tinha influência no espalhamento dos fótons, o que tem influência direta no emaranhamento do estado caracterizado. Com os resultados obtidos com as medidas de tomografia foi possível constatar que na região virtual com a polarização do laser incidindo coincidentemente com a orientação do eixo cristalográfico em $\theta = 0^\circ$, tinha fortes indícios de ser um estado emaranhado em polarização.

Para confirmar o emaranhamento dos pares de fótons SaS na região do virtual com o diamante orientado a $\theta = 0^\circ$, foram realizadas medidas de desigualdade de Bell, utilizando o método proposto por CHSH, e após a realização das medidas foi possível confirmar o emaranhamento do estado.

Para concluir, demonstramos a produção de pares de fótons com entradas de polarização em uma amostra de diamante através de um processo de mistura de quatro ondas. O emaranhamento é obtido apenas quando a orientação do cristal favorece dois caminhos distintos para gerar a mistura de quatro ondas. Para a luz que atinge a amostra na direção $[100]$, o emaranhamento é obtido quando o laser incidente é polarizado ao longo de um dos eixos cristalográficos, uma vez que a mistura eletrônica de quatro ondas pode manter ou alterar a polarização de fótons Stokes anti-Stokes, enquanto a mistura vibrônica de quatro ondas (dispersão do SaS) muda necessariamente suas polarizações. O emaranhamento vem da indistinguibilidade de ambos os processos, isto é, porque não é possível, mesmo em princípio, determinar qual processo ocorreu. Como resultado, a superposição dos dois caminhos possíveis gera pares de fótons no estado de polarização

emaranhado $|\psi\rangle_{AaS} = c_1 |V_S, V_{aS}\rangle + c_2 |H_S, H_{aS}\rangle$.

Curiosamente, nossos resultados indicam que as diferentes vias eletrônicas e fonônicas podem interferir para projetar a polarização do estado quântico de dois fótons quando a luz viaja no cristal em geometrias bem definidas: qual processo (eletrônico e fonônico) ocorreu, portanto, não é mais uma pergunta válida. Esses resultados obtidos, pela primeira vez em nosso conhecimento, do emaranhamento indeterminado gerado por "qual processo físico" abrem a possibilidade de explorar a espectroscopia Raman de maneiras novas. Como a dispersão do SaS foi observada em muitos meios transparentes diferentes, esse tipo de emaranhamento pode ser mais geral, condicionado à presença de diferentes caminhos microscópicos indistinguíveis de mistura de quatro ondas no meio.

Esses resultados abrem a possibilidade de combinar informação quântica e espectroscopia Raman (espalhamento SaS) para aprimorar técnicas em ambas as áreas, bem como criar novas. Um resultado mais promissor, no entanto, pode estar em uma integração mais profunda dos protocolos de informação quântica na espectroscopia Raman, permitindo uma expansão potencialmente grande de um método já poderoso para sondar materiais e sistemas biológicos.

A verificação da existência do emaranhamento dos pares de fótons SaS na região do virtual deixa o questionamento de qual seria o resultado na região do real se as medidas fossem realizadas a baixa temperatura, uma vez que nessa condição o fônons oriundos de processos térmicos seriam suprimidos, podendo ser obtido pares de fótons SaS emaranhados.

Por fim, podemos dizer que o emaranhamento quântico desempenha um papel fundamental em muitas das aplicações mais interessantes de computação quântica e informação quântica, e que apesar dos avanços trazidos nesta tese na compreensão do espalhamento Raman correlacionado, ainda há muito para ser explorado. Trabalhos aplicando par de fótons emaranhados já foram propostos, como por exemplo em criptografia, para distribuição de chave quântica (PERANIĆ et al., 2022). Pesquisas na área de redes neurais quânticas, (KWAK et al., 2021) tem grande potencial de aproveitamento do fenômeno estudado nesta tese, que podem ter aplicação prática em protocolos de redes quânticas (KOZŁOWSKI; DAHLBERG; WEHNER, 2020; RABBIE et al., 2022).

Referências

- AGGARWAL, R. L.; RAMDAS, A. K. *Physical properties of diamond and sapphire*. [S.l.]: CRC Press, 2019.
- ALBER, G. et al. *Quantum information: An introduction to basic theoretical concepts and experiments*. [S.l.]: Springer, 2003. v. 173.
- ALTEPETER, J. B.; JEFFREY, E. R.; KWIAT, P. G. Photonic state tomography. *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, v. 52, p. 105–159, 2005.
- ANDERSON, M. D. et al. Two-color pump-probe measurement of photonic quantum correlations mediated by a single phonon. *Physical Review Letters*, APS, v. 120, n. 23, p. 233601, 2018.
- BALLENTINE, L. E. *Quantum mechanics: a modern development*. [S.l.]: World Scientific Publishing Company, 2014.
- BANZI, M.; SHILOH, M. *Make: Getting started with Arduino (The Open Source Electronics Prototyping Platform)*. [S.l.: s.n.], 2014. 262 p.
- BASHKANSKY, M.; FATEMI, F. K.; VURGAFTMAN, I. Quantum memory in warm rubidium vapor with buffer gas. *Optics Letters*, v. 37, n. 2, p. 142, 2012.
- BELL, J. S. On the einstein podolsky rosen paradox. *Physics Physique Fizika*, APS, v. 1, n. 3, p. 195, 1964.
- BENNETT; DIVINCENZO, C.; P, D. Quantum information and computation. *Nature*, v. 404, n. 35, p. 247–255, 2000.
- BERCIAUD, S. et al. Electron and optical phonon temperatures in electrically biased graphene. *Physical review letters*, APS, v. 104, n. 22, p. 227401, 2010.
- BINKLEY, D. *Development and Analysis of Non-Delay-Line Constant-Fraction Discriminator Timing Circuits, Including a Fully-Monolithic CMOS Implementation*. Tese (Doutorado), 1992.
- BLOCH, F. Nuclear induction. *Physical Review*, v. 70, n. 7-8, p. 460–474, 1946.
- BOHR, N. In: *Niels Bohr Collected Works*. [S.l.]: Elsevier, 1996. v. 7, p. 339–381.
- BURTON, H. et al. Temperature dependence of ti:sapphire fluorescence spectra for the design of cryogenic cooled ti:sapphire cpa laser. *Optics Express*, v. 25, n. 6, p. 6954, 2017.
- BUSTARD, P. J. et al. Nonclassical correlations between terahertz-bandwidth photons mediated by rotational quanta in hydrogen molecules. *Optics Letters*, v. 40, n. 6, p. 922, 2015.

- CANTARERO, A. Raman scattering applied to materials science. *Procedia Materials Science*, v. 9, p. 113–122, 2015.
- CARVALHO, L. V. de et al. Properties of correlated stokes-anti-stokes raman scattering from diamond. In: . [S.l.]: Presented as the SPIE Optical Engineering + Applications, 2022, San Diego, California, United States, 2022.
- CASPANI, L. et al. Integrated sources of photon quantum states based on nonlinear optics. *Light: Science and Applications*, Nature Publishing Group, v. 6, n. 11, p. e17100–12, 2017. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1038/lsa.2017.100>>.
- CHEN, L.; LEI, J.; ROMERO, J. Quantum digital spiral imaging. *Light: Science and Applications*, v. 3, n. July 2013, 2014.
- CLAUSER, J. F. Proposed experiment to test separable hidden-variable theories. *Physics Letters A*, v. 54, n. 2, p. 117–118, 1975.
- CLAUSER, J. F. Experimental investigation of a polarization correlation anomaly. *Physical Review Letters*, v. 36, n. 21, p. 1223–1226, 1976.
- CORPORATION, N. *Cornestone 260 - 1/4m Monochromator Family*. [S.l.].
- COSTA, E. V. Measurement of luminosity intensity: polarization. *Revista Brasileira de Ensino de Física*, v. 24, n. 1, p. 37–40, 2002.
- DOLDE, F. et al. Room-temperature entanglement between single defect spins in diamond. *Nature Physics*, v. 9, n. 3, p. 139–143, 2013.
- DOWNES, A.; ELFICK, A. Raman spectroscopy and related techniques in biomedicine. *Sensors*, Molecular Diversity Preservation International (MDPI), v. 10, n. 3, p. 1871–1889, 2010.
- DRESSELHAUS, M. S.; DRESSELHAUS, G.; JORIO, A. *Group Theory: Application to the Physics of Condensed Matter*. Berlin: Springer, 2008. 582 p.
- EINSTEIN, A.; PODOLSKY, B.; ROSEN, N. Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete? *Physical Review*, v. 47, p. 777, 1935.
- EISAMAN, M. D. et al. Invited review article: Single-photon sources and detectors. *Review of Scientific Instruments*, v. 82, n. 7, 2011.
- ENGLAND, D. G. et al. From photons to phonons and back: A thz optical memory in diamond. *Physical Review Letters*, APS, v. 111, n. 24, p. 243601, 2013.
- ESPAGNAT, B. d. Quantum theory and reality. *The Philosophical Review*, v. 79, n. 2, p. 295, 1979.
- FAUGERAS, C. et al. Thermal conductivity of graphene in corbino membrane geometry. *ACS nano*, ACS Publications, v. 4, n. 4, p. 1889–1892, 2010.
- FERRARO, J. R. *Introductory Raman Spectroscopy*. 2. ed. [S.l.]: Academic Press, 2003.
- FERRIE, C.; BLUME-KOHOUT, R. Maximum likelihood quantum state tomography is inadmissible. 2018. Disponível em: <<http://arxiv.org/abs/1808.01072>>.

- FOERSTER, T. V.; GLAUBER, R. Quantum theory of light propagation in amplifying media. *Physical Review A*, APS, v. 3, n. 4, p. 1484, 1971.
- FREEDMAN, S. J.; F., J. C. Experimental test of local hidden-variable theories. *Physical Review Letters*, 1972.
- FREITAS, T. A. et al. Instrumentation for quantum correlation analysis of polarized stokes-anti-stokes photon pairs. In: . [S.l.]: Accepted to be presented as The International Symposium on Instrumentation Systems, Circuits, and Transducers-(INSCIT-2023), Rio de Janeiro-RJ, Brazil, 2023.
- FRY, E. S.; THOMPSON, R. C. Experimental test of local hidden-variable theories. *Physical Review Letters*, 1976.
- GARRISON, J.; CHIAO, R. *Quantum optics*. [S.l.]: Oxford University Press, 2008.
- HECHT, E. *Optics: A Contemporary Approach to Optics with Practical Applications and New Focused Pedagogy, Global edition*. [S.l.: s.n.], 2017. 725 p.
- HERBERT, N. Cryptographic approach to hidden variables. *American Journal of Physics*, v. 43, n. 4, p. 315–316, 1975.
- HRADIL, Z. Quantum-state estimation. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, v. 55, n. 3, p. R1561–R1564, 1997.
- HRADIL, Z.; ŘEHÁČEK, J. *Efficiency of maximum-likelihood reconstruction of quantum states*. 2001. 1083–1088 p.
- IMAI et al. *Quantum computation and information - From theory to experiment*. [S.l.]: Springer, 2006.
- INSTRUMENTS, P. *Acton Standard Series of Monochromators and Spectrographs Exit Configurations. Rev. N3*. [S.l.], 2017.
- INSTRUMENTS, P. *PIXIS : 256 1024 pixel CCD array. Rev. N5*. [S.l.], 2020.
- JAMES, D. F. et al. Measurement of qubits. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, v. 64, n. 5, p. 15, 2001.
- JEANS, J. H. The quantum theory and new theories of atomic structure. *Journal of the Chemical Society, Transactions*, Royal Society of Chemistry, v. 115, p. 865–871, 1919.
- JORIO, A. et al. Optical-phonon resonances with saddle-point excitons in twisted-bilayer graphene. *Nano Letters*, v. 14, n. 10, p. 5687–5692, 2014.
- JORIO, A. et al. *Raman Spectroscopy in Graphene Related Systems*. [S.l.]: Wiley-VCH, 2011.
- JOZSA, R. Illustrating the concept of quantum information. *IBM Journal of Research and Development*, v. 48, n. 1, p. 79–85, 2004.
- JÚNIOR, F. S. d. et al. Lifetime and polarization for real and virtual correlated stokes-anti-stokes raman scattering in diamond. *Physical Review Research*, APS, v. 2, n. 1, p. 013084, 2020.

- JÚNIOR, F. S. d. et al. Stokes–anti-stokes correlated photon properties akin to photonic cooper pairs. *Physical Review B*, APS, v. 99, n. 10, p. 100503(R), 2019.
- JÚNIOR, F. S. d. A. *Estudo da Correlação no Espalhamento Raman Stokes e anti-Stokes da água*. Dissertação (Mestrado), 2016.
- JUNIOR, F. S. d. A. *Correlações quânticas no espalhamento Raman Stokes e anti-Stokes : o equivalente fotônico dos pares de Cooper*. Tese (Doutorado), 2020.
- JÚNIOR, F. S. de A. et al. Physical properties of photonic cooper pairs generated via correlated stokes–anti-stokes raman scattering. *physica status solidi (b)*, Wiley Online Library, v. 256, n. 12, p. 1900218, 2019.
- KALISZ, J. Review of methods for time interval measurements with picosecond resolution. *Metrologia*, v. 41, n. 1, p. 17–32, 2004.
- KASPERCZYK, M. et al. Stokes–anti-stokes correlations in diamond. *Optics Letters*, v. 40, n. 10, p. 2393, 2015.
- KASPERCZYK, M. et al. Temporal quantum correlations in inelastic light scattering from water. *Physical Review Letters*, APS, v. 117, n. 24, p. 243603, 2016.
- KIM, S.; HAM, B. S. Revisiting self-interference in young’s double-slit experiments. *Scientific Reports*, Nature Publishing Group UK London, v. 13, n. 1, p. 977, 2023.
- KLYSHKO, D. N. Correlation between the stokes and anti-stokes components in inelastic scattering of light. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, v. 7, n. 6, p. 755–760, 1977.
- KNILL, E.; LAFLAMME, R.; MILBURN, G. J. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature*, v. 409, n. 6816, p. 46–52, 2001.
- KOZŁOWSKI, W.; DAHLBERG, A.; WEHNER, S. *Designing a quantum network protocol*. [S.l.]: Association for Computing Machinery, 2020.
- KUTTNER, F.; ROSENBLUM, B. Bell’s theorem and einstein’s ‘spooky actions’ from a simple thought experiment. *The Physics Teacher*, v. 48, n. 2, p. 124–130, 2010.
- KUZMICH, A. et al. Generation of nonclassical photon pairs for scalable quantum communication with atomic ensembles. *Nature*, v. 423, n. 6941, p. 731–734, 2003.
- KWAIT, P. *Kwiat Quantum Information Group - Quantum-Tomography*. 2021. Disponível em: <<https://github.com/KwiatQIM/Quantum-Tomography>>.
- KWAK, Y. et al. Quantum neural networks: Concepts, applications, and challenges. In: IEEE. *2021 Twelfth International Conference on Ubiquitous and Future Networks (ICUFN)*. [S.l.], 2021. p. 413–416.
- LAMBROPOULOS, P.; PETROSYAN, D. *Fundamentals of Quantum Optics and Quantum Information*. [S.l.]: Springer, 2007.
- LEE, K. C. et al. Entangling macroscopic diamonds at room temperature. *Science*, v. 334, n. 6060, p. 1253–1256, 2011.

- LEE, K. C. et al. Macroscopic non-classical states and terahertz quantum processing in room-temperature diamond. *Nature Photonics*, Nature Publishing Group, v. 6, n. 1, p. 41–44, 2012. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2011.296>>.
- LEVENSON, M.; FLYTZANIS, C.; BLOEMBERGEN, N. Interference of resonant and nonresonant three-wave mixing in diamond. *Physical Review B*, APS, v. 6, n. 10, p. 3962, 1972.
- LEVENSON, M. D.; BLOEMBERGEN, N. Dispersion of the nonlinear optical susceptibility tensor in centrosymmetric media. *Phys. Rev. B*, American Physical Society, v. 10, p. 4447–4463, Nov 1974. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.10.4447>>.
- LEWIS, I. R.; EDWARDS, H. *Handbook of Raman spectroscopy: From the Research Laboratory to the Process Line (Practical Spectroscopy)*. 2001. 1072 p.
- LI, Y. et al. Multiuser time-energy entanglement swapping based on dense wavelength division multiplexed and sum-frequency generation. *Physical Review Letters*, APS, v. 123, n. 25, p. 250505, 2019.
- LLEWELLYN, D. et al. Chip-to-chip quantum teleportation and multi-photon entanglement in silicon. *Nature Physics*, v. 16, n. 2, p. 148–153, 2020.
- LOUDON, R. Theory of the first-order raman effect in crystals. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, v. 275, n. 1361, p. 218–232, 1963.
- LOUDON, R.; FOERSTER, T. von. *The Quantum Theory of Light*. Third. [S.l.: s.n.], 2000. – p.
- MACDONALD, A.; AKERA, H.; NORMAN, M. Quantum mechanics and superconductivity in a magnetic field. *Australian journal of physics*, CSIRO Publishing, v. 46, n. 3, p. 333–344, 1993.
- MILBURN, G. J. Quantum optical fredkin gate. *Physical Review Letters*, v. 62, n. 18, p. 2124–2127, 1989.
- NEUMANN, J. V. *Mathematical foundations of quantum mechanics: New edition*. [S.l.]: Princeton university press, 2018. v. 53.
- NGAH, L. A. et al. *Ultra-fast heralded single photon source based on telecom technology*. 2015. L1–L5 p.
- NIELSEN, M. A.; CHUANG, I. *Quantum Computation and Quantum Information*. [S.l.]: CAMBRIDGE UNIVERSITY PRESS, 2002.
- NORTHUP, T. E.; BLATT, R. Quantum information transfer using photons. *Nature Photonics*, Nature Publishing Group, v. 8, n. 5, p. 356–363, 2014.
- OHYA, M.; VOLOVICH, I. *Mathematical foundations of quantum information and computation and its applications to nano-and bio-systems*. [S.l.]: Springer Science, 2011.
- PARIS, M.; REHACEK, J. *Quantum State Estimation*. [S.l.: s.n.], 2004. v. 828.

- PARRA-MURILLO, C. A. et al. Stokes–anti-stokes correlation in the inelastic scattering of light by matter and generalization of the bose-einstein population function. *Physical Review B*, APS, v. 93, n. 12, p. 125141, 2016.
- PERANIĆ, M. et al. Quantum communication experiments with entangled photon pairs. In: IEEE. *2022 45th Jubilee International Convention on Information, Communication and Electronic Technology (MIPRO)*. [S.l.], 2022. p. 219–222.
- PERES, A. *Quantum theory: concepts and methods*. [S.l.]: Springer, 1997.
- PIMENTA, W. M. *Caracterização e evolução de estados quânticos fotônicos e atômicos de muitos níveis*. Tese (Doutorado), 2014.
- PRAWER, S.; NEMANICH, R. J. Raman spectroscopy of diamond and doped diamond. n. 2001, p. 2537–2565, 2004.
- QIAO, H. et al. Floquet-enhanced spin swaps. *Nature Communications*, Springer US, v. 12, n. 1, p. 1–9, 2021. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1038/s41467-021-22415-6>>.
- RABBIE, J. et al. Designing quantum networks using preexisting infrastructure. *npj Quantum Information*, Nature Publishing Group UK London, v. 8, n. 1, p. 5, 2022.
- RABELO, C. *Tip-Enhanced Raman Spectroscopy in Graphene*. [S.l.: s.n.], 2019.
- RAMAN, C. V. A new radiation. *Indian Journal of physics*, v. 2, 1928.
- REIM, K. F. et al. Single-photon-level quantum memory at room temperature. *Physical Review Letters*, APS, v. 107, n. 5, p. 053603, 2011.
- REIM, K. F. et al. Towards high-speed optical quantum memories. *Nature Photonics*, Nature Publishing Group, v. 4, n. 4, p. 218–221, 2010.
- SARAIVA, A. et al. Photonic counterparts of cooper pairs. *Physical Review Letters*, APS, v. 119, n. 19, p. 193603, 2017.
- SEHELLART, P.; SOLOMON, G.; WHITE, A. High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources. *Nature Nanotechnology*, Nature Publishing Group, v. 12, n. 11, p. 1026–1039, 2017. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2017.218>>.
- SHANG, C.; HSU, H. The spatial symmetric forms of third-order nonlinear susceptibility. *IEEE journal of quantum electronics*, IEEE, v. 23, n. 2, p. 177–179, 1987.
- SLOCOMBE, L.; SACCHI, M.; AL-KHALILI, J. An open quantum systems approach to proton tunnelling in dna. *Communications Physics*, Nature Publishing Group UK London, v. 5, n. 1, p. 109, 2022.
- SLODICKA, J. M.; L. High nonclassical correlations of large-bandwidth photon pairs generated in warm atomic vapor. 2020.
- SMITH, E.; DENT, G. *Modern Raman Spectroscopy - A Practical Approach*. [S.l.]: John Wiley, 2005. 210 p.
- SOLIN, S.; RAMDAS, A. Raman spectrum of diamond. *Physical Review B*, APS, v. 1, n. 4, p. 1687, 1970.

SPARKFUN. *Easy Driver Hook-up Guide*. 2013. Disponível em: <<https://learn.sparkfun.com/tutorials/easy-driver-hook-up-guide/all>>.

TECHOLOGIES, E. *SPCM-AQRH Single Photon Counting Module*. 2020. Disponível em: <<https://www.excelitas.com/>>.

THAPLIYAL, K.; JR, J. P. Ideal pairing of the stokes and anti-stokes photons in the raman process. *Physical Review A*, APS, v. 103, n. 3, p. 033708, 2021.

VELEZ, S. T. et al. Preparation and decay of a single quantum of vibration at ambient conditions. *Physical Review X*, APS, v. 9, n. 4, p. 041007, 2019.

VELEZ, S. T. et al. Bell correlations between light and vibration at ambient conditions. *Science Advances*, v. 6, n. 51, 2020.

VENKATESWARLU, K. Temperature dependence of the intensities of raman lines. *Nature*, Nature Publishing Group UK London, v. 159, n. 4029, p. 96–97, 1947.

VENTO, V. et al. Measurement-induced collective vibrational quantum coherence under spontaneous raman scattering in a liquid. *Nature Communications*, Nature Publishing Group UK London, v. 14, n. 1, p. 2818, 2023.

VERGYRIS, P. et al. Two-photon phase-sensing with single-photon detection. *Applied Physics Letters*, v. 117, n. 2, 2020.

WAHL, M. Time-correlated single-photon counting on a chip. *Biophotonics International*, v. 14, n. 11, p. 15–16, 2007.

WEISSKOPF, V. F. Quantum theory an elementary particle: Recent discoveries, including new symmetries, have carried the search for elementary particles to a new level. *Science*, American Association for the Advancement of Science, v. 149, n. 3689, p. 1181–1189, 1965.

YANG, D.; YING, Y. Applications of raman spectroscopy in agricultural products and food analysis: A review. *Applied Spectroscopy Reviews*, Taylor & Francis, v. 46, n. 7, p. 539–560, 2011.

ZHANG, Y.; ZHANG, L.; ZHU, Y.-Y. Generation of photonic cooper pairs in nanoscale optomechanical waveguides. *Physical Review A*, APS, v. 98, n. 1, p. 013824, 2018.

ŘEHÁČEK, J.; ENGLERT, B. G.; KASZLIKOWSKI, D. Minimal qubit tomography. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, v. 70, n. 5 A, p. 1–13, 2004.

Apêndice A

Publicações

A.1 Artigos publicados em revistas científicas

1. **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Lucas V. de Carvalho, Diego Sier, Raul Corrêa, Marcelo F. Santos, Carlos H. Monken, and Ado Jorio. Microscopic origin of polarization-entangled stokes-anti-stokes photons in diamond, *Phys. Rev. A* 108, L051501 (2023)
2. **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Riichiro Saito, Marcelo F. Santos, Carlos H. Monken, and Ado Jorio. Polarization state tomography of Stokes-anti-Stokes photon pairs near and at Raman resonance in diamond. 2023.(EM FASE FINAL DE REVISÃO PARA SUBMISSÃO.)

A.2 Artigos completos em anais de conferência

1. Lucas V. de Carvalho, **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Raul Corrêa, Marcelo F. Santos, Carlos H. Monken, and Ado Jorio. Properties of correlated Stokes-anti-Stokes Raman scattering from diamond. Oral presentation in the SPIE Optical Engineering + Applications, 2022, San Diego, California, United States.
2. **T. A. Freitas**, et al., Instrumentation for quantum correlation analysis of polarized Stokes-anti-Stokes photon pairs, 2023 7th International Symposium on Instrumentation Systems, Circuits and Transducers (INSCIT), Rio de Janeiro, Brazil, 2023, pp. 1-6,doi: 10.1109/INSCIT59673.2023.10258506.

A.3 Resumos de trabalhos em conferência

1. **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Lucas V. de Carvalho, Raul Corrêa, Marcelo F. Santos, Carlos H. Monken, and Ado Jorio. Estudo das polarizações dos fótons stokes e anti-stokes no espalhamento inelástico de luz correlacionado no diamante. Apresentação de poster no VII Encontro Brasileiro de Espectroscopia Raman - EnBraER, São Pedro - SP, Brasil, 2022.
2. Lucas V. de Carvalho, **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Raul Corrêa, Marcelo F. Santos, Carlos H. Monken, and Ado Jorio. O espalhamento Raman correlacionado Stokes-anti-Stokes: um estudo da influência da largura temporal do pulso de excitação. Apresentação oral no VII Encontro Brasileiro de Espectroscopia Raman - EnBraER, São Pedro - SP, Brasil, 2022.
3. **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Lucas V. de Carvalho, Raul Corrêa, Marcelo F. Santos, Carlos H. Monken, and Ado Jorio. Polarization study of correlated stokes and anti-stokes photons in the inelastic scattering of light by diamond. Oral presentation in the 2023 Autumn Meeting of the Brazilian Physical Society (EOSBF-2023), Ouro Preto - MG, Brazil, 2023.
4. Lucas V. de Carvalho, **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Raul Corrêa, Marcelo F. Santos, Carlos H. Monken, and Ado Jorio. Properties of Correlated Stokes-anti-Stokes Raman Scattering. Poster presented in the 2023 Autumn Meeting of the Brazilian Physical Society (EOSBF-2023), Ouro Preto - MG, Brazil, 2023. POSTER
5. Diego Sier, **Tiago A. Freitas**, Paula Machado, Lucas V. de Carvalho, and Ado Jorio. Asymmetry of correlated Stokes and anti-Stokes photons in the inelastic scattered by a diamond, a polarization study. Poster presented in the 2023 Autumn Meeting of the Brazilian Physical Society (EOSBF-2023), Ouro Preto - MG, Brazil, 2023.