



ACOPLAMIENTO ULTRA-FUERTE EN SEMICONDUCTORES ORGÁNICOS EN MICROCAVIDADES

Autor:

Luis Alberto De la Rosa Báez

Asesor:

Dr. Miguel Angel Bastarrachea Magnani

PROYECTO TERMINAL I: INVESTIGACIÓN TEÓRICA

CLAVE 2111107. TRIMESTRE 21-P.

Licenciatura en Física

Universidad Autónoma Metropolitana-Iztapalapa

18 de Octubre 2021

Contents

I. Introducción	3
A. Excitón-polaritón	3
B. Semiconductor orgánico	5
C. Microcavidades	7
II. Hamiltoniano de Tavis-Cummings	8
A. Holstein-Primakoff	10
B. Solución numérica	12
III. Hamiltoniano de Tavis-Cummings-Holstein	16
A. Holstein-Primakoff	17
B. Solución numérica	19
C. Conservación total de excitaciones	21
IV. Resultados	21
V. Conclusiones	23
Referencias	24

I. Introducción

Los *polaritones* son cuasipartículas en parte luz y en parte materia que resultan de la fuerte interacción entre sus componentes fundamentales. Los polaritones se pueden crear y controlar en diversos materiales, en particular, en semiconductores orgánicos dentro de una microcavidad. Esto crea nuevos estados cuánticos como condensados de Bose-Einstein y superfluidos cuánticos de luz [1]. Además de la interacción entre la radiación y la materia, los polaritones creados en semiconductores orgánicos también interactúan con las excitaciones vibracionales de las moléculas del material. En este proyecto se estudian los grados de libertad colectivos de los polaritones en semiconductores orgánicos dentro de microcavidades usando el *Hamiltoniano de Tavis-Cummings-Holstein* (TCH). Se pretende resolver mediante técnicas analíticas y computacionales, el espectro del modelo de TCH para encontrar sus propiedades como función de los parámetros del sistema. Esto constituye una primera parte de un estudio que pretende analizar a futuro el efecto del *Acoplamiento Ultra-Fuerte* en los polaritones orgánicos dentro de una microcavidad.

A. Excitón-polaritón

Cuando un fotón excita a un electrón dentro de un semiconductor éste se mueve desde la banda de valencia hasta la banda de conducción y deja un hueco con carga positiva. El hueco atrae al electrón a través de la Fuerza de Coulomb de tal forma que el electrón y el hueco quedan ligados [2]. A este sistema electrón-hueco se le conoce como *excitón* y se le puede considerar una partícula eléctricamente neutra, ver Fig.1. Cabe destacar que este sistema se presenta tanto en semiconductores como en aislantes pero nosotros trabajaremos con el primer caso [3].

Según el tipo de semiconductor y dependiendo de la distancia que separa al electrón del hueco y del espín que adoptan los electrones vamos a tener dos tipos de excitones:

- a) **Excitón de Wannier - Mott:** Este tipo de excitón se da típicamente en semiconductores inorgánicos. La energía de ligadura de estos excitones es menor que el ancho de la banda prohibida y su radio de separación oscila entre los 40 y los 100 Å, por tanto, mayor que el parámetro de la red (la red cristalina en que se presenta este excitón). Entonces, la dinámica del excitón es equivalente a la de un

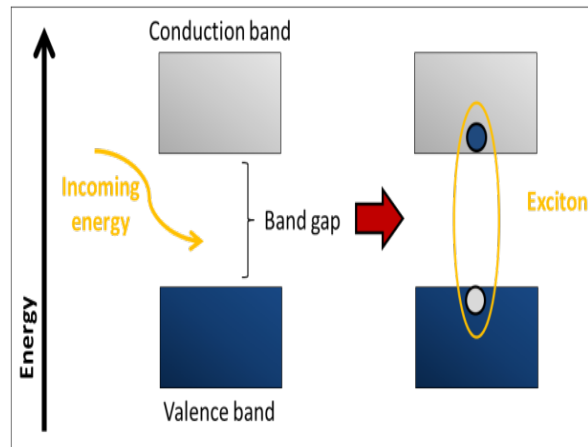


Figura 1: Formación de un excitón. Tomado de Ref. [4]

par de cargas de signos opuestos moviéndose en un material con una permitividad dieléctrica grande [5].

- b) **Excitón de Frenkel:** Estos excitones se presentan en semiconductores orgánicos. Tiene una energía de ligadura típica del orden de 1.0 eV y la permitividad dieléctrica del material es muy pequeña [6]. Esto provoca que la interacción entre el electrón y el hueco sea muy fuerte y esto, a su vez, que su radio de separación sea menor a 5 Amstrong (es una molécula excitónica).

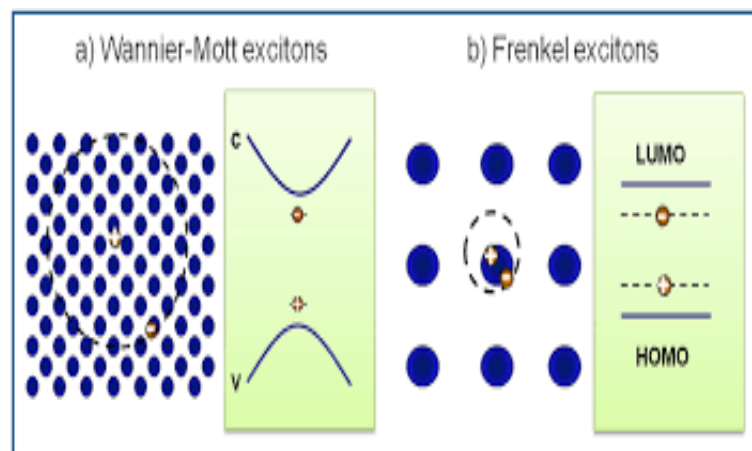


Figura 2: El tamaño del radio que separa al electrón del hueco y el tipo de material donde se presentan estos excitones, es su principal diferencia. Tomado de Ref. [7].

Si encerramos al excitón recién creado en una microcavidad óptica (sistema de espejos donde la luz queda confinada durante un tiempo entre sus fronteras) y considerando que cuando el excitón se deshace emite un fotón, este fotón puede ser reabsorbido por

el semiconductor y crear otro excitón. Cuando el tiempo que dura esta reabsorción es menor al tiempo que viven los fotones dentro de la cavidad obtenemos lo que conocemos como *acoplamiento fuerte entre luz y materia* y obtenemos una nueva cuasipartícula llamada *excitón-polaritón* [8, 9].

En pocas palabras, los excitones-polaritones o simplemente polaritones son cuaspartículas mixtas de luz y materia que surgen del acoplamiento fuerte entre fotones y excitones en una microcavidad y tienen un tiempo de vida media corto, típicamente alrededor de los picosegundos (10^{-12} s) [10].

B. Semiconductor orgánico

Un semiconductor orgánico es aquel semiconductor que se basa en el carbono y tienen estructura de cristales o polímeros. Están compuestos de anillos aromáticos o cadenas conjugadas con enlaces dobles/triples y sencillos alternados. En estos materiales la conductividad, y la conjugación, van aumentando con la oxidación y con esto se logran cambios significativos en sus propiedades eléctricas, mecánicas, ópticas, químicas y térmicas[11, 12].

En los semiconductores orgánicos los electrones se encuentran en estados energéticos localizados que actúan como pozos de potencial. Estos estados localizados pueden ser los de las moléculas individuales en los cristales moleculares, los estados de las cadenas poliméricas individuales o los estados de los segmentos de estas cadenas donde la conjugación es interrumpida por defectos estructurales o químicos [13].

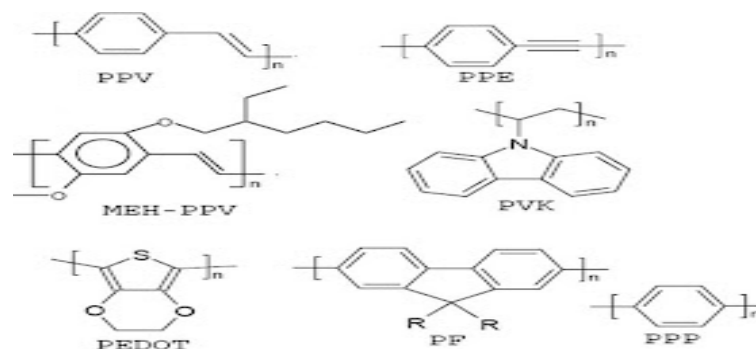


Figura 3: Principales semiconductores orgánicos. Tomado de Ref. [13]

Un método que es importante señalar es el *dopaje* en semiconductores orgánicos, pues se usa con el objetivo de que el material conduzca mayormente por huecos o electrones

y suministrar los espacios vacíos en la banda de valencia, es decir, es el proceso por el cual se introducen portadores de carga a un semiconductor orgánico para convertirlo en conductor mediante altos niveles de dopaje. Los átomos dopantes se insertan de forma adicional sin reemplazar a los átomos en la cadena principal de la molécula [14].

Un electrón puede pasar del HOMO (orbital molecular mas ocupado) al LUMO (orbital molecular mas vacío) creando una vacancia o electrón-hueco después de dicha excitación que puede migrar a través de la molécula, formando un excitón-polaritón [15].

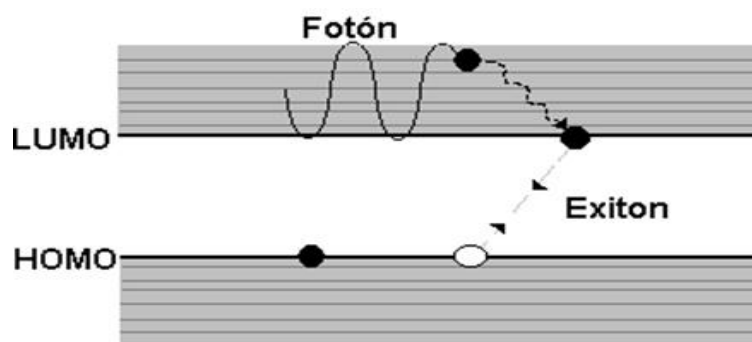
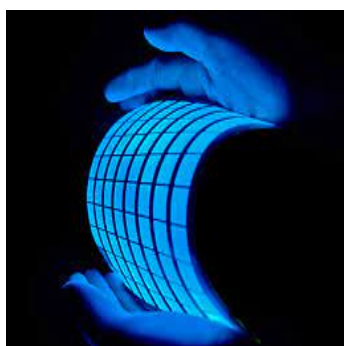


Figura 4: Esquema representativo del HOMO y el LUMO. Tomado de Ref. [15]

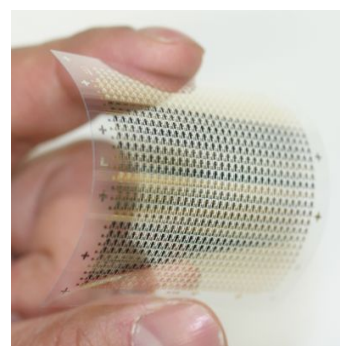
Estos materiales han dado lugar a la electrónica orgánica, o electrónica de los plásticos. Además se perfilan como “plásticos electrónicos” en celdas solares, transistores, y sensores, memorias y diodos orgánicos emisores de luz (OLED) por mencionar algunos [13, 15].



(a)Panel solar



(b)OLEDs



(c)Memorias orgánicas

Figura 5: Algunas aplicaciones de los semiconductores orgánicos. Imágenes tomadas de la web.

Esta es una motivación acerca de lo que se puede lograr trabajando con polaritones, sin embargo, aun hay mucho por descubrir acerca de ellos. Es por esto que este proyecto se

centra en la formación de excitones-polaritones y en el análisis de sus grados de libertad colectivos para encontrar sus propiedades espectrales.

C. Microcavidades

Una cavidad óptica es un dispositivo en el que los rayos de luz quedan confinados mediante espejos. Para construir una cavidad óptica debemos colocar dos espejos planos o curvos frente a frente y separados por una distancia d . Este sistema nos permite amplificar la luz gracias a que en el centro, como lo muestra la Figura 6, contiene un amplificador con un medio activo (rubí, He-Ne, CO₂, etc) que al inyectar luz (bombeo óptico) provoca una emisión espontánea del medio activo, por lo que se emitirán fotones y después de varios viajes de ida y vuelta entre los espejos, se estabiliza la potencia. Posteriormente, una pequeña porción de los fotones saldrá a través del espejo parcialmente reflejante produciendo un haz de luz monocromático y coherente [7, 16].

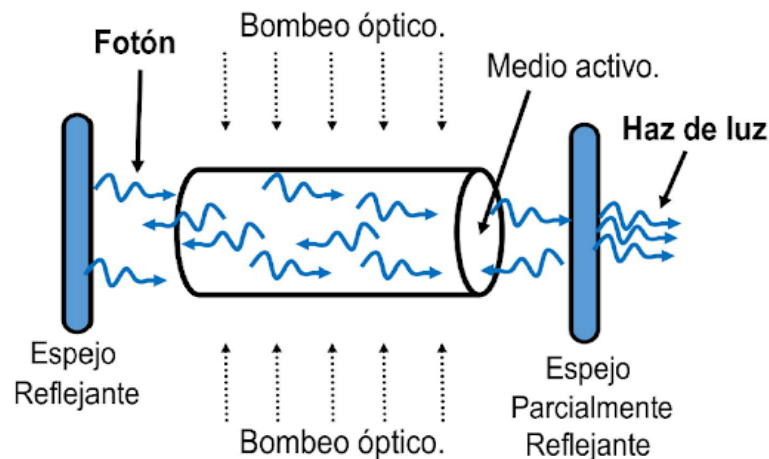


Figura 6: Cavidad o resonador óptico formado por dos espejos. Tomado de Ref. [17].

Entonces, una microcavidad es una cavidad óptica de dimensiones similares o menores a la longitud de onda de la luz que se desea confinar. Consiste en una cavidad planar Fabry-Perot, la cual está formada por dos espejos de alto índice de reflexión llamados “Reflectores Distribuidos de Bragg” (DBR por sus siglas en inglés). Un DBR consiste de capas alternadas de índice de refracción alto n_a y bajo n_b , colocados uno frente del otro y separados por una capa espaciadora con índice de refracción n_c , que permite que los

fotones interactuen como pozos cuánticos [18].

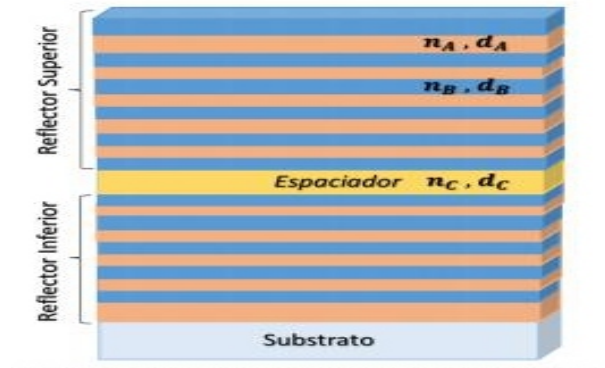


Figura 7: Estructura básica de una microcavidad de Fabry Perot. El espesor de la capa espaciadora es $\lambda_0/2\eta_c$ donde λ_0 es la longitud de onda de la luz que se desea confinar. Los espesores de las capas de los reflectores DBR son $\lambda_0/4\eta_a$ y $\lambda_0/4\eta_b$. Tomado de Ref. [18]

Uno de las ventajas principales de las microcavidades ópticas es permitir estudios para describir las interacciones entre luz y materia [19]. Estas tienen varios regímenes, en particular, el acoplamiento débil y el fuerte. En el primero el fotón emitido tiene una probabilidad casi nula de ser reabsorbido, por lo tanto, la excitación es disipada. En cambio, en el acoplamiento fuerte la microcavidad presenta una oscilación, es decir, los fotones emitidos por los excitones se reabsorben y reemiten varias veces antes de salir de la cavidad. Esto es, la energía de excitación del sistema se transfiere de ida y vuelta entre el estado de excitación y el estado del fotón de la cavidad, a esto lo conocemos como *oscilación de Rabi*. Esto se cumple siempre y cuando el modo de la cavidad y el estado excitónico estén en resonancia.

II. Hamiltoniano de Tavis-Cummings

Para entender mejor la interacción entre la luz y la materia es necesario comprender primero la *Aproximación de Onda Rotante* (RWA por sus siglas en inglés), el cual proviene del estudio de la resonancia magnética. Sabemos que si tenemos un objeto con un momento magnético \vec{M} y un momento angular \vec{L} , en un campo magnético \vec{B} , éste presenta una torca τ , de modo que el ángulo entre \vec{B} y \vec{M} permanece constante el tiempo. Si \vec{B} está orientado en la dirección z entonces las soluciones de las ecuaciones dinámicas de \vec{M} nos van a expresar una rotación en contra de las manecillas del reloj [20].

Si queremos que exista resonancia magnética debemos agregar un campo magnético \vec{b} dependiente del tiempo al campo constante que está en la dirección z , este campo rota en un plano perpendicular al campo constante y en el mismo sentido que el momento magnético. Si \vec{b} gira en sentido contrario a las manecillas del reloj va a ejercer una torca constante sobre \vec{M} . Pero si \vec{b} gira en el sentido de la manecillas del reloj entonces girará con el doble de frecuencia y su influencia es muy pequeña por lo que normalmente no se le toma en cuenta. Al acto de desprestigiar los términos que giran en el sentido de las manecillas del reloj se le conoce como la *aproximación de la onda rotante* [20, 21].

Sabiendo esto, la interacción luz-materia se puede dividir en dos partes: con RWA y sin RWA. Nosotros nos enfocaremos en el primero, pues cuando las frecuencias de la luz y la materia están cerca de la resonancia, estos términos se pueden omitir. En cambio, en el régimen de acoplamiento ultra-fuerte la RWA no está justificada y entran en juego todos los términos de la interacción luz-materia [22]. Tomando el caso para N excitones esta interacción se puede representar con el modelo de Tavis- Cummings (TC):

$$\hat{H} = \omega \hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{\omega_0}{2} \sum_i \hat{\sigma}_z^i + \frac{2g}{\sqrt{N}} \sum_i (\hat{\sigma}_+^i \hat{a} + \hat{\sigma}_-^i \hat{a}^\dagger), \quad (\text{II.1})$$

donde se ha usado el hecho de que [23]:

$$\hat{\sigma}_{r,n}^- \hat{\sigma}_{r,n}^+ - \hat{\sigma}_{r,n}^+ \hat{\sigma}_{r,n}^- = 1 - 2\hat{\sigma}_{r,n}^+ \hat{\sigma}_{r,n'}^-, \quad (\text{II.2})$$

$$\hat{\sigma}_{r,n}^- \hat{\sigma}_{r,n}^- = 0, \quad (\text{II.3})$$

$$\hat{\sigma}_{r,n}^- \hat{\sigma}_{r',n}^- - \hat{\sigma}_{r',n}^- \hat{\sigma}_{r,n}^- = 0, \quad (\text{II.4})$$

$$\hat{\sigma}_{r,n}^+ \hat{\sigma}_{r',n}^- - \hat{\sigma}_{r',n}^- \hat{\sigma}_{r,n}^+ = 0 \quad , \quad r' \neq r. \quad (\text{II.5})$$

donde r es la posición de la molécula y n es el número de excitaciones de dicha molécula. Estas relaciones se cumplen para el n -ésimo estado excitado no degenerado. Ahora, usando la siguiente relación:

$$\hat{J}_z = \frac{1}{2} \sum_i \hat{\sigma}_z^i. \quad \hat{J}_\pm = \sum_i \hat{\sigma}_\pm^i. \quad (\text{II.6})$$

podemos reescribir el hamiltoniano de TC en términos de operadores colectivos de pseu-

doespín como:

$$\hat{H}_{TC} = \omega \hat{a}^\dagger \hat{a} + \omega_0 J_z + \frac{g}{\sqrt{N}} (J_+ \hat{a} + J_- \hat{a}^\dagger). \quad (\text{II.7})$$

donde:

- \hat{a}^\dagger y \hat{a} son los operadores de creación y aniquilación, respectivamente.
- ω y ω_0 son las frecuencias del modo de cavidad y la frecuencia de excitación, respectivamente.
- N es el número de átomos y esta definido como $N = 2j$ donde j es la longitud de pseudoespín, de modo que $J^2 |j, m\rangle = j(j+1) |j, m\rangle$.
- $\hat{\sigma}_\pm$ y $\hat{\sigma}_z$ son matrices de Pauli que describen el espín atómico para cada átomo.
- J_z y J_\pm son los operadores de momento angular de espín, estos son los grados de libertad colectivos a estudiar.
- g es la fuerza de acoplamiento entre la luz y la materia.

El primer término de la ecuación II.7 representa la interacción del fotón, el segundo término representa a los grados colectivos de los excitones y el tercer término representa la interacción luz-materia.

A. Holstein-Primakoff

Con el objetivo de encontrar los modos polaritónicos básicos, podemos emplear una transformación sobre los grados de libertad excitónicos y aproximar los operadores de pseudo-espín a operadores bosónicos. Podemos bozonizar los operadores de momento angular de espín mediante la *transformación de Holstein-Primakoff* [24] la cual nos dice que:

$$J_+ = \hat{b}^\dagger \sqrt{N} \sqrt{1 - \frac{\hat{b}^\dagger \hat{b}}{N}}, \quad (\text{II.8})$$

$$J_- = \sqrt{N} \sqrt{1 - \frac{\hat{b}^\dagger \hat{b}}{N}} \hat{b}, \quad (\text{II.9})$$

$$J_z = \hat{b}^\dagger \hat{b} - N. \quad (\text{II.10})$$

Aproximando al límite termodinámico cuando $\frac{\hat{b}^\dagger \hat{b}}{N} \rightarrow 0$ entonces:

$$J_z = \hat{b}^\dagger \hat{b} - N \quad (\text{II.11})$$

$$J_+ = \sqrt{N} \hat{b}^\dagger$$

$$J_- = \sqrt{N} \hat{b}.$$

donde se ha tomado el hecho de que $J_z = \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^- = J_- J_+$ y donde \hat{b}^\dagger y \hat{b} son los operadores de creación y aniquilación de los nuevos bosones considerados, respectivamente, y N el número de excitones.

Sustituyendo la transformación (4.4) en el hamiltoniano (4.3) y diagonalizando \hat{H}_{TC} de la forma $\hat{H}_{TC} = PMP^{-1}$ obtenemos:

$$\hat{H}_{TC} = \begin{pmatrix} \hat{a}^\dagger & \hat{c}^\dagger \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \omega & \frac{gN}{\sqrt{N}} \\ \frac{gN}{\sqrt{N}} & \omega_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a} \\ \hat{c} \end{pmatrix}. \quad (\text{II.12})$$

donde:

$$M = \begin{pmatrix} \omega & g \\ g & \omega_0 \end{pmatrix}. \quad (\text{II.13})$$

cuyos valores propios $\det(M - \lambda I) = 0$ son:

$$\lambda_1 = \frac{\omega - \omega_0}{2} + \frac{\sqrt{(\omega + \omega_0)^2 + 4g^2}}{2}. \quad (\text{II.14})$$

$$\lambda_2 = \frac{\omega - \omega_0}{2} - \frac{\sqrt{(\omega + \omega_0)^2 + 4g^2}}{2}. \quad (\text{II.15})$$

y expresándolos en términos de la desintonización $\delta = \omega - \omega_0$ se obtiene:

$$\lambda_1 = \frac{\delta - 2\omega_0}{2} + \frac{\sqrt{(\delta)^2 + 4g^2}}{2}. \quad (\text{II.16})$$

$$\lambda_2 = \frac{\delta - 2\omega_0}{2} - \frac{\sqrt{(\delta)^2 + 4g^2}}{2}. \quad (\text{II.17})$$

Estos valores propios representan las energías de los polaritones superior (UP) e inferior (LP), de modo que $\lambda_1 = E_{UP}$ y $\lambda_2 = E_{LP}$. Estos modos se muestran como función de la desintonización entre la luz y la materia $\delta = \omega - \omega_0$ en la Fig. 8. Cabe mencionar que se está considerando N sistemas de dos niveles (qubits) por lo que la dimensión del espacio

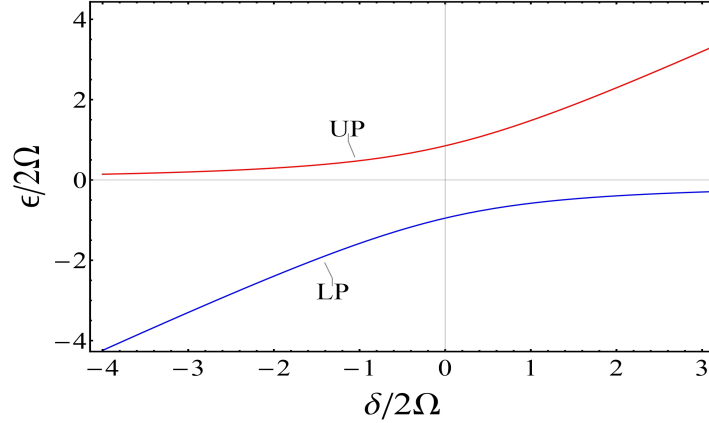


Figura 8: Espectro de energía de los polaritones superior (UP) e inferior (LP) como función de la desintonización. Esta gráfica se obtuvo con una frecuencia $\omega_0 = 0.01$ y una fuerza de acoplamiento $\gamma = 0.9$ e.V.

de Hilbert será $\dim H = 2^N$. Sin embargo, con la representación totalmente simétrica, es decir, la de bosones, la dimensión se reduce a $N + 1(2j + 1)$

B. Solución numérica

Si deseamos resolver el problema por completo, no sólo obtener las excitaciones más simples, necesitamos expresar al Hamiltoniano en una base para encontrar sus eigenestados y eigenenergías $\hat{H}_{TC}|E_n\rangle = E_n|E_n\rangle$. La base que emplearemos es el producto tensorial entre la base de Fock y la base de pseudo-espín.

$$|n\rangle \otimes |j, m\rangle = |n, m\rangle \quad (\text{II.18})$$

Ahora, debemos encontrar los elementos de matriz:

$$\langle n', m' | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n, m \rangle = n \langle n' | n \rangle \langle m' | m \rangle = n \delta_{n'n} \delta_{m'm}. \quad (\text{II.19})$$

$$\langle n', m' | J_z | n, m \rangle = m \delta_{n'n} \delta_{m'm}. \quad (\text{II.20})$$

$$\langle n', m' | \hat{a} J_+ | n, m \rangle = \sqrt{n} \sqrt{j(j+1) - m(m+1)} \delta_{n'n-1} \delta_{m'm+1}. \quad (\text{II.21})$$

$$\langle n', m' | \hat{a}^\dagger J_- | n, m \rangle = \sqrt{n+1} \sqrt{j(j+1) - m(m-1)} \delta_{n'n+1} \delta_{m'm-1}. \quad (\text{II.22})$$

Entonces, los elementos de matriz de \hat{H}_{TC} en la base en Eq. II.18 se pueden escribir

como:

$$\begin{aligned}
\langle n', m' | \hat{H}_{TC} | n, m \rangle &= \omega n \delta_{n'n} \delta_{m'm} + \omega_0 m \delta_{n'n} \delta_{m'm} \\
&+ \frac{2g}{\sqrt{N}} (\sqrt{n} \sqrt{j(j+1) - m(m+1)} \delta_{n'n-1} \delta_{m'm+1} \cdot \\
&+ \sqrt{n+1} \sqrt{j(j+1) - m(m-1)} \delta_{n'n+1} \delta_{m'm-1})
\end{aligned} \quad (\text{II.23})$$

El Hamiltoniano de TC conmuta con el operador de número de excitaciones totales

$$\hat{\Lambda} = \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{J}_z + j, \quad (\text{II.24})$$

cuyos valores propios son:

$$\lambda = n + m + j, \quad (\text{II.25})$$

despejando el numero de fotones tenemos:

$$n = \lambda - (m + j), \quad (\text{II.26})$$

y con esta relación se puede mostrar la evolución de los niveles de energía conforme cambia el número de excitaciones. Hay que destacar que $m[-j, +j]$ porque sigue el álgebra de momento angular.

Así pues, para el caso mas simple cuando solo hay un número finito de excitaciones y dejando el número de átomos (j) fijo igual a 5 como ejemplo, podemos encontrar todos los estados posibles del sistema, tal y como se muestra en la tabla siguiente:

λ	n	$m + j$	$ n, m\rangle$
$\lambda = 0$	0	0	$ 0, -5\rangle$
$\lambda = 1$	1	0	$ 1, -5\rangle$
	0	1	$ 0, -4\rangle$
$\lambda = 2$	2	0	$ 2, -5\rangle$
	1	1	$ 1, -4\rangle$
	0	2	$ 1, -3\rangle$
$\lambda = 5$	5	0	$ 5, -5\rangle$
	4	1	$ 4, -4\rangle$
	3	2	$ 3, -3\rangle$
	2	3	$ 2, -4\rangle$
	1	4	$ 1, -3\rangle$
	0	5	$ 0, -3\rangle$

Se puede ver que cuando $\lambda = 1$ sólo existen dos estados para los diferentes niveles de energía pues de ha omitido el hecho de que no puede haber fotones negativos. En el caso de una excitación compartida en el sistema, la gráfica se muestra en la Fig. 9

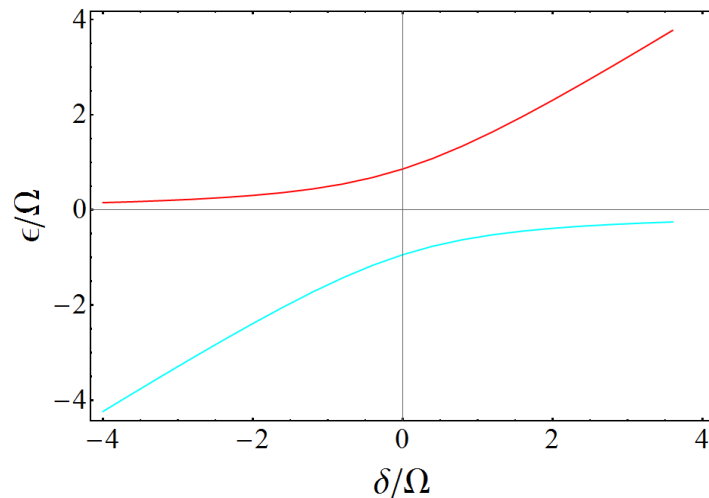


Figura 9: Gráfica de excitaciones correspondiente a $\lambda = 1$, y $j = 5$, $\omega_0 = 0.01$ y $\gamma = 0.9$. La línea roja corresponde al estado $|1, -5\rangle$ y la línea azul representa el estado $|0, -4\rangle$.

De modo que si se superponen la Fig. 8 y fig. 9, se ve que coinciden perfectamente:

Esto significa que se recuperan los resultados de la aproximación de Holstein-Primakoff con una sola excitación. Al considerar más excitaciones en el sistema $\lambda > 1$ obtenemos

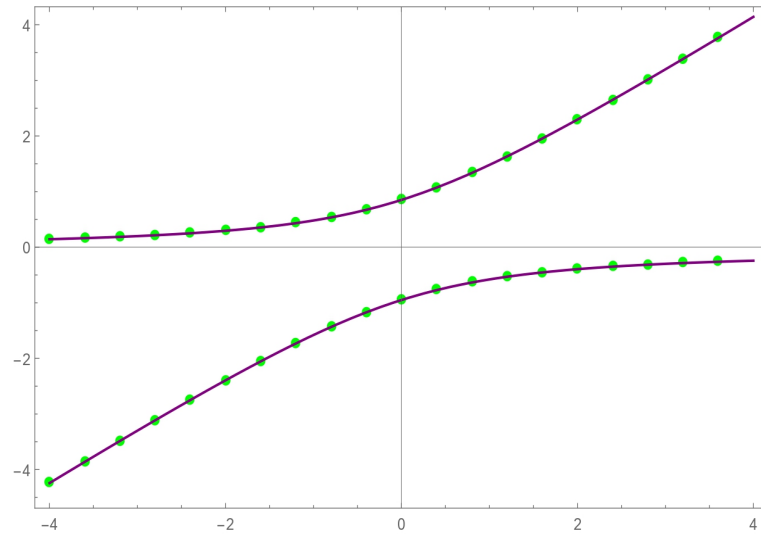


Figura 10: Las líneas moradas representan a los polaritones y las líneas punteadas representan los modos de una excitación y un átomo excitado. Ambas gráficas coinciden.

un espectro como el que se muestra en la Fig. 11 donde aparecen más estados (seis en total, como se describió en la tabla).

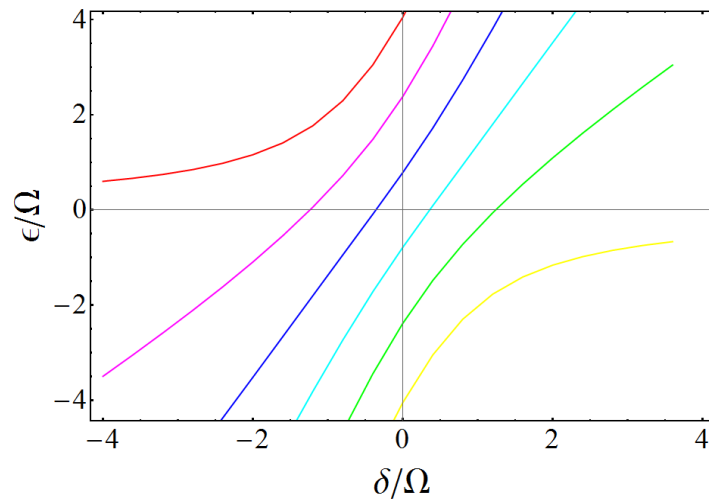


Figura 11: Gráfica correspondiente a 5 excitaciones, 5 átomos. Ahora surgen 6 estados como se describió en la tabla.

Cabe destacar que aumentar el número de átomos j cambia el número de niveles de energía que tendremos, es decir, aparecen nuevas ramas polaritónicas además de la inferior (LP) y la superior (UP).

III. Hamiltoniano de Tavis-Cummings-Holstein

El Hamiltoniano de Tavis-Cummings es un modelo que representa un sistema de N excitones de dos niveles acoplados a la luz y describe a los polaritones en semiconductores orgánicos, sin embargo, las moléculas orgánicas no son sistemas de dos niveles. El espectro de energía de los polaritones requieren de otro grado de libertad para estar completos. El modo vibracional es el grado faltante y para que el modelo esté completo se debe incluir el acoplamiento entre los estados electrónicos y la conformación molecular en los espectros [25].

El nuevo modelo resultante es el llamado *Hamiltoniano de Tavis-Cummings-Holstein* que describe la interacción fuerte entre luz y materia con la formación de polaritones, pero además incluyendo el revestimiento de estados electrónicos mediante excitaciones vibratorias [26].

$$\hat{H} = \omega \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{i=1}^N \left[\omega_0 \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_i^- + \frac{2g}{\sqrt{N}} (\hat{\sigma}_i^+ \hat{a} + \hat{\sigma}_i^- \hat{a}^\dagger) + \omega_v (\hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i - \lambda_0 \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_i^- (\hat{b}_i^\dagger + \hat{b}_i)) \right]. \quad (\text{III.1})$$

Los primeros tres términos corresponden al hamiltoniano de TC pero el término final en éste hamiltoniano refleja el desplazamiento entre la coordenada vibratoria óptima en el estado electrónico fundamental y en el estado electrónico excitado donde λ_0 está relacionado con el parámetro S de Huang-Rhys (medida de la fuerza de interacción entre los estados excitados y fundamentales de los electrones) mediante $S = \lambda_0^2$ y puede interpretarse como el desplazamiento de los modos vibracionales en unidades de la longitud, ω_v es la frecuencia de vibración y los elementos \hat{b}_i^\dagger y \hat{b}_i son los operadores de creación y aniquilación, respectivamente, de los modos vibracionales acoplados a cada excitón.

Cabe recordar que se está trabajando bajo la RWA, por lo que se conserva el número de excitaciones electrónicas, es decir, $N_{exc} = \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_i \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_i^-$ se conserva y por lo tanto $2g$ debe ser menor respecto a las frecuencias del sistema ω y ω_0 .

Este problema es complicado porque, en general, no es posible restringirnos al espacio completamente simétrico y escribir los grados de libertad colectivos. Sin embargo, a partir de este punto emplearemos una aproximación para estudiar el espectro de un Hamiltoniano TCH con grados de libertad colectivos. Vamos a suponer que los modos vi-

bracionales son independientes del sitio donde se encuentra el excitón. Además, vamos a asumir que $\omega_c = \omega_v * \lambda_0$. Entonces, usando los operadores de pseudo-espín que empleamos en el \hat{H}_{TC} obtenemos un Hamiltoniano de Tavis-Cummings-Holstein aproximado:

$$\hat{H}_{TCH} = \omega \hat{a}^\dagger \hat{a} + \omega_0 J_z + \frac{g}{\sqrt{N}} (J_+ \hat{a} + J_- \hat{a}^\dagger) + \omega_v \hat{b}^\dagger \hat{b} + \omega_c J_z (\hat{b}^\dagger + \hat{b}). \quad (\text{III.2})$$

A. Holstein-Primakoff

Del mismo modo que en el \hat{H}_{TC} , queremos encontrar las excitaciones polaritónicas más básicas del sistema. Sin embargo, no es posible construir una matriz como en el caso del Hamiltoniano de TC debido al término $\hat{J}_z (\hat{b}^\dagger + \hat{b})$ que incluye tres operadores en la aproximación de Holstein-Primakoff. Es por eso que vamos a aproximar a un campo medio ése término y escribirlo como $B \hat{J}_z$. Aplicamos entonces la transformación de Holstein-Primakoff para bozonizar y diagonalizar nuestro nuevo hamiltoniano de la forma $\hat{H}_{TCH} = P M P^{-1}$. Entonces, en este caso obtenemos:

$$\hat{H}_{TCH} = \begin{pmatrix} \hat{a}^\dagger & \hat{c}^\dagger & \hat{b}^\dagger \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \omega & g & 0 \\ g & \omega_0 + \omega_c B & 0 \\ 0 & 0 & \omega_v \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a} \\ \hat{c} \\ \hat{b} \end{pmatrix}, \quad (\text{III.3})$$

donde:

$$M = \begin{pmatrix} \omega & g & 0 \\ g & \omega_0 + \omega_c B & 0 \\ 0 & 0 & \omega_v \end{pmatrix}, \quad (\text{III.4})$$

cuyos valores propios $\det(M - \lambda I) = 0$ son:

$$\lambda_1 = E_{UP} = \frac{\omega_c B + \omega_0 + \omega}{2} + \frac{\sqrt{4g^2 + (\omega_c B + \omega_0 - \omega)^2}}{2} \quad (\text{III.5})$$

$$\lambda_2 = E_{LP} = \frac{\omega_c B + \omega_0 + \omega}{2} - \frac{\sqrt{4g^2 + (\omega_c B + \omega_0 - \omega)^2}}{2}, \quad (\text{III.6})$$

y en términos de la desintonización:

$$\lambda_1 = E_{UP} = \frac{\omega_c B + \delta - 2\omega_0}{2} + \frac{\sqrt{4g^2 N + (\omega_c B - \delta)^2}}{2} \quad (\text{III.7})$$

$$\lambda_2 = E_{LP} = \frac{\omega_c B + \delta - 2\omega_0}{2} - \frac{\sqrt{4g^2 N + (\omega_c B - \delta)^2}}{2}, \quad (\text{III.8})$$

donde nuevamente $\lambda_1 = E_{UP}$ y $\lambda_2 = E_{LP}$ son las energías de los polaritones superior e inferior respectivamente. Cabe destacar que para poder realizar el calculo de los valores propios es necesario sustituir al término $(\hat{b}^\dagger + \hat{b})$ por una constante B , es decir, como un campo clásico, de lo contrario, la matriz M no se puede escribir. Al menos, dentro de la aproximación de Holstein-Primakoff. Así pues, el espectro de los polaritones resultantes se indica en la Fig.12

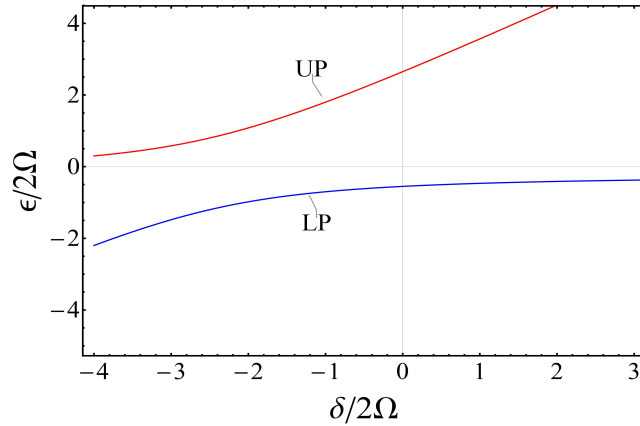


Figura 12: Modos resultantes de los polaritones superior(rojo) e inferior(azul) como función de la energía ϵ y la desintonización δ entre la luz y la materia. Se usó una frecuencia de materia $\omega_0 = 0.1$, un acoplamiento $\gamma = 1$, una frecuencia de vibración $\omega_b = 1$ y un parámetro $\omega_c = 1$.

La Figura 12 muestra el caso mas simple del \hat{H}_{TCH} cuando $\omega_c = 1$. Comparando con la Figura 9, vemos que ésta gráfica esta desplazada a la izquierda de modo que si $\omega_c = 0$ obtenemos nuevamente la representación de Tavis - Cummings. Pero si ω_c aumenta, entonces obtenemos:

Como se puede notar, conforme el valor de ω_c aumenta, las energías de los polaritones se van alineando de tal forma que cuando ω_c es muy grande los modos resultantes son totalmente paralelos. El efecto entonces de los grados de libertad vibracionales es, en la aproximación de orden más bajo, hacer más intensa la interacción radiación materia y

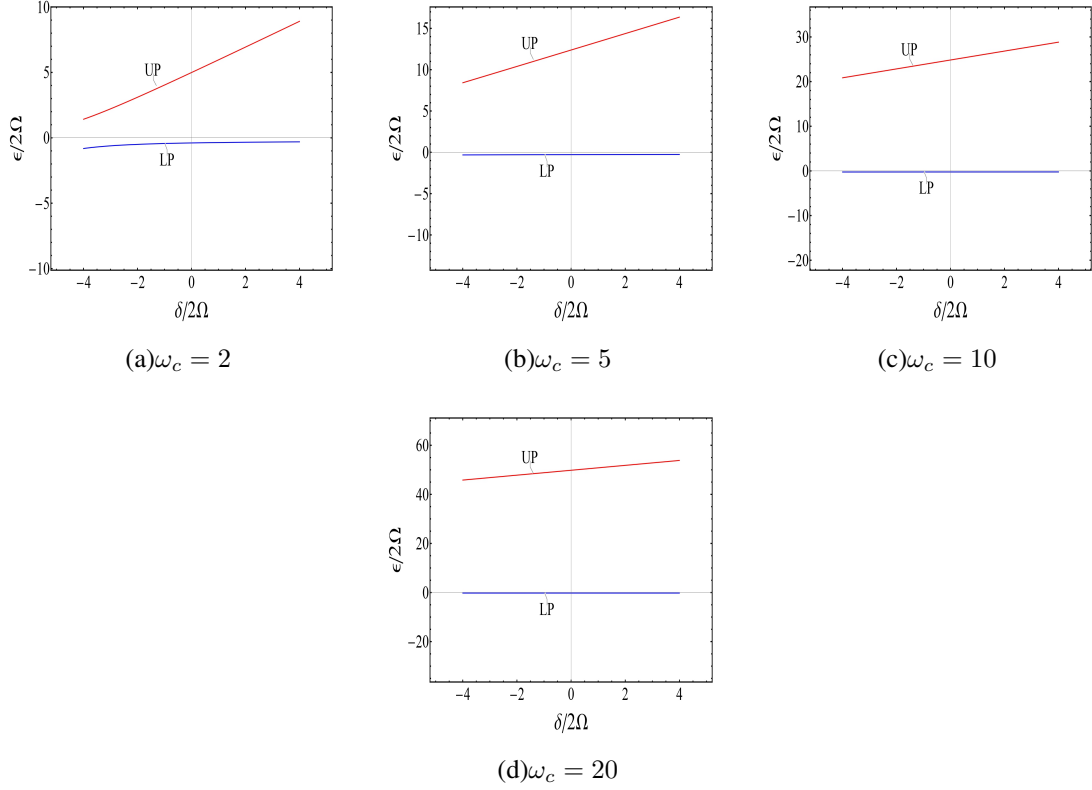


Figura 13: Gráficas de los modos resultantes de los polaritones para distintos valores de ω_c . Se usaron los mismos parámetros que la Fig.12.

recorrer el acoplamiento mínimo a desintonizaciones negativas. Lo que se puede observar de las ecuaciones anteriores. Al desarrollar el argumento de la raíz tenemos

$$(\omega - \omega_0)^2 + 2B\omega_c(\omega_0 - \omega) + 4g^2 + \omega_c^2 B^2. \quad (\text{III.9})$$

La interacción efectiva ahora es $g_{eff}^4 = g^2 + \omega_c^2 B^2/4$ y el corrimiento es $2B\omega_c(\omega_0 - \omega)$.

B. Solución numérica

Ahora bien, para encontrar el espectro de energía completo de los polaritones es necesario convertir el hamiltoniano \hat{H}_{TCH} en forma matricial de la misma manera en que lo hicimos con el Hamiltoniano de TC. Para ello se debe considerar, como punto de partida,

una base en el espacio de Fock, definidos por las relaciones de álgebra bosónica:

$$\hat{a}^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle \quad (\text{III.10})$$

$$\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle \quad (\text{III.11})$$

$$\hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle = n|n\rangle, \quad (\text{III.12})$$

$$(\text{III.13})$$

y con el operador de momento angular escrito como:

$$\hat{J}_z|j, m\rangle = m|j, m\rangle \quad (\text{III.14})$$

$$\hat{J}_\pm|j, m\rangle = C_\pm|j, m \pm 1\rangle \quad (\text{III.15})$$

con

$$C_\pm = \sqrt{j(j+1) - m(m \pm 1)}.$$

A diferencia de lo que sucedió con el Hamiltoniano de Tavis-Cummings necesitamos introducir una nueva base de Fock correspondiente a las vibraciones:

$$|n\rangle \otimes |j, m\rangle \otimes |n_b\rangle = |n, m, n_b\rangle \quad (\text{III.16})$$

donde n es el número de excitaciones, m es la masa del polaritón y n_b es el número de vibraciones. Ahora requerimos los elementos de matriz que están representados como:

$$\langle n', m', n'_b | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n, m, n_b \rangle = n \langle n' | n \rangle \langle m' | m \rangle \langle n'_b | n_b \rangle = n \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b}. \quad (\text{III.17})$$

$$\langle n', m', n'_b | \hat{b}^\dagger \hat{b} | n, m, n_b \rangle = n \langle n' | n \rangle \langle m' | m \rangle \langle n'_b | \beta \rangle = n_b \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b}. \quad (\text{III.18})$$

$$\langle n', m', \beta' | J_z | n, m, \beta \rangle = m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b}. \quad (\text{III.19})$$

$$\langle n', m', n'_b | \hat{a} J_+ | n, m, n_b \rangle = \sqrt{n+1} \sqrt{j(j+1) - m(m+1)} \delta_{n'n-1} \delta_{m'm+1} \delta_{n'_b n_b}. \quad (\text{III.20})$$

$$\langle n', m', n'_b | \hat{a}^\dagger J_- | n, m, n_b \rangle = \sqrt{n+1} \sqrt{j(j+1) - m(m-1)} \delta_{n'n+1} \delta_{m'm-1} \delta_{n'_b n_b}. \quad (\text{III.21})$$

$$\langle n', m', n'_b | \hat{b}^\dagger J_z | n, m, n_b \rangle = \sqrt{n_b+1} m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b+1}. \quad (\text{III.22})$$

$$\langle n', m', n'_b | \hat{b} J_z | n, m, n_b \rangle = \sqrt{n_b} m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b-1}. \quad (\text{III.23})$$

Finalmente, nuestro hamiltoniano \hat{H}_{TCH} queda representado en esta base como:

$$\begin{aligned}
\langle n', m', n'_b | \hat{H}_{TCH} | n, m, n_b \rangle = & \omega n D \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b} + \omega_0 (j + m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b}) \\
& + \frac{2g}{\sqrt{N}} (\sqrt{n_1} \sqrt{j(j+1) - m(m+1)} \delta_{n'n-1} \delta_{m'm+1} \delta_{n'_b n_b} \\
& + \sqrt{n_1+1} \sqrt{j(j+1) - m(m-1)} \delta_{n'n+1} \delta_{m'm-1} \delta_{n'_b n_b}) \\
& + \omega_v n B \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b} \\
& + \omega_c (\sqrt{n_b+1} m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b+1} \\
& + \sqrt{n_b} m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \delta_{n'_b n_b-1}).
\end{aligned} \tag{III.24}$$

C. Conservación total de excitaciones

Si consideramos que el número *total* de excitaciones se conserva:

$$\hat{\Lambda} = \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{J}_z + j + \hat{b}^\dagger \hat{b}, \tag{III.25}$$

entonces, el último término de la ecuación anterior, que representa a las vibraciones del sistema, siempre será cero por lo que debemos encontrar una base que incluya los operadores de creación y aniquilación de los modos vibracionales y éstos tomen valores arbitrarios. Entonces la base es tal que n_b debe ir de cero a un valor n_{bmax} que es un número máximo de vibraciones de tal forma que $\lambda = n + j + m + n_{bmax}$ ya no se conserva, sólo se conserva el operador de excitaciones original que conmuta con el Hamiltoniano de TC, es decir, $\lambda = n + j + m$. De esta manera podemos obtener los espectros de energía de los polaritones del modelo de TCH como se muestra a continuación.

IV. Resultados

A continuación se analiza la evolución de los niveles de energía resultado de la solución completa del modelo de TCH. Para esto hay que recordar que n_b aquí está tomado de forma independiente, es decir, ya no se conserva. Entonces el número de fotones n tomará la forma conocida:

$$n = \lambda - (m + j),$$

solo que ahora n_b tendria cualquier valor n_{bmax} Entonces, tomando el número de átomos $j = 2$ fijo, las excitaciones $\lambda = 2$, por ejemplo, y el número de vibraciones independiente de la base, entonces:

λ	n	$m + j$	$ n, m, n_b\rangle$
$\lambda = 2$	2	0	$ 2, -2, n_b\rangle$
	1	1	$ 1, -1, n_b\rangle$
	0	2	$ 0, 0, n_b\rangle$

se tiene entonces tres estados por cada valor de n_b para los niveles de energía. Si $\lambda = 5$ se tendrán cinco estados por cada valor de n_b para los distintos niveles de energía:

λ	n	$m + j$	$ n, m, n_b\rangle$
$\lambda = 5$	5	0	$ 4, -2, n_b\rangle$
	4	1	$ 3, -1, n_b\rangle$
	3	2	$ 2, 0, n_b\rangle$
	2	3	$ 1, 1, n_b\rangle$
	1	4	$ 0, 2, n_b\rangle$

De modo que si todas las excitaciones se conservan, entonces se recupera el mismo resultado que Tavis - Cummings. En ambos casos n_b puede tomar cualquier valor pues, reiterando, es independiente de la base luz-materia.

A continuación se presentan dos gráficas que muestran la variación de las excitaciones y como evolucionan los niveles de energía:

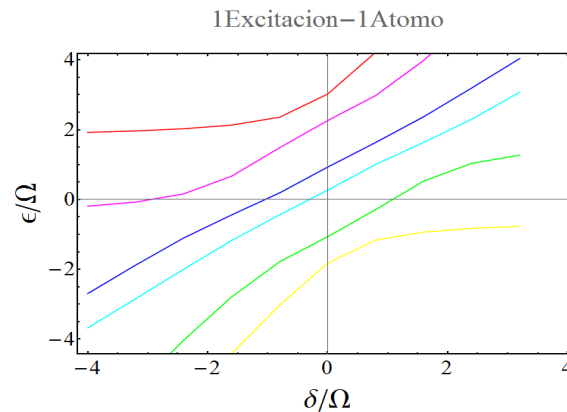


Figura 14: Gráfica con 2 excitaciones y 1 átomo. Se usó una frecuencia de materia $\omega_0 = 0.1$, un acoplamiento $\gamma = 1$, una frecuencia de vibración $\omega_b = 1$ y un parámetro $\omega_c = 1$.

La Fig. 14 muestra los niveles de energía para 1 átomo y excitaciones, se observan 6 estados representativos para la base.

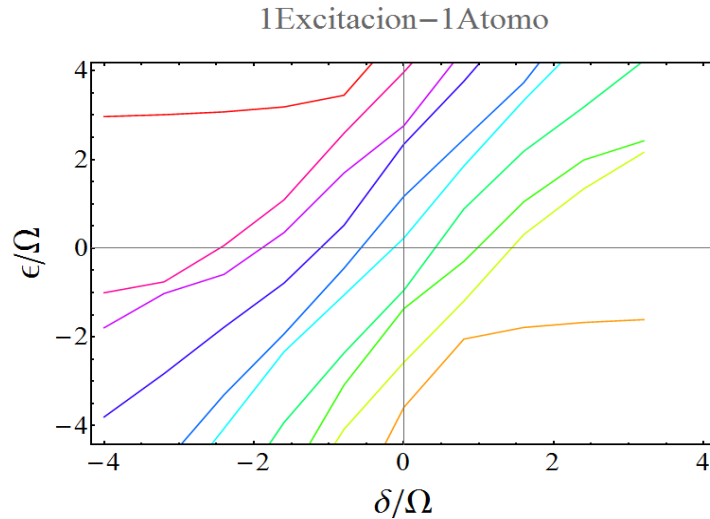


Figura 15: Gráfica con 4 excitaciones y dos átomos. Se usó una frecuencia de materia $\omega_0 = 0.1$, un acoplamiento $\gamma = 1$, una frecuencia de vibración $\omega_b = 1$ y un parámetro $\omega_c = 1$

En la Fig.15 se obtienen 10 estados representativos de la base cuando hay 2 átomos y 4 excitaciones. En ambas gráficas se está usando un $n_{bmax} = 1$ y se observa que el resultado ya no coincide exactamente con la Fig. 12, esto es de esperarse porque tomar la aproximación $\hat{b} + \hat{b}^\dagger \simeq B$ es bastante cruda. Ahora bien, en comparación con el Hamiltoniano de TC, en el espectro ahora notamos que hay algunos cruces de energía. Para entender esto con mayor profundidad es necesario explorar el espacio de parámetros. Por ejemplo, cambiar el acoplamiento luz-materia. Esto se piensa realizar como trabajo futuro.

V. Conclusiones

En esta primera parte del proyecto se investigaron los modos colectivos de los excitones-polaritones en el régimen de acoplamiento fuerte luz-materia. Esto modela el espectro de un semiconductor orgánico dentro de una microcavidad. Nos basamos tanto en el modelo del Hamiltoniano de Tavis-Cummings como en el de Tavis-Cummings-Holstein que incluye interacciones con modos vibracionales. Usamos un Hamiltoniano de TCH reducido, en el que sólo consideramos un grado de libertad vibracional colectivo.

En ambos modelos se obtuvieron los espectros de energía como función de la desin-

tonización y los espectros de los niveles de energía según el número de excitaciones, los cuales nos dicen que entre más excitaciones se le den al sistema, más ramas polaritónicas se obtienen. Se puede ver también que en el TCH si se conservan las excitaciones *totales* entonces se obtiene el mismo resultado que en el TC. Usando la aproximación de Holstein-Primakoff en ambos modelos, se observó que la presencia de los modos vibracionales altera de manera efectiva el acoplamiento entre la luz y la materia en un factor que depende proporcionalmente al acoplamiento entre los grados excitónicos colectivos y la cuadratura de la vibración. Por eso, vimos que en el modelo de TCH vemos que cuando el valor de ω_c va aumentando entonces la distancia entre el polaritón superior y el inferior va aumentando también.

Queda por estudiar el espectro como función de otros parámetros del sistema como el acoplamiento entre la luz y la materia g . Esto nos llevará naturalmente a la segunda parte de esta investigación donde estudiará el modelo de TCH en el régimen USC, es decir, un modelo de Dicke-Holstein[27, 28], donde ya no se considera la aproximación de onda rotante[29].

-
- [1] Jonathan Keeling and Stéphane Kéna-Cohen. Bose–einstein condensation of exciton-polaritons in organic microcavities. *Annual Review of Physical Chemistry*, 71(1):435–459, 2020. PMID: 32126177.
 - [2] Robert Seiple Knox. Theory of excitons. *Solid State Phys.*, 5, 1963.
 - [3] Konstantinos Lagoudakis. The physics of exciton-polariton condensates. *Epfl Press.*, 1(1), 2019.
 - [4] Cornejo A. Laureano. La revolución nanotecnológica en los nuevos materiales. un reto tecnológico para el siglo xxi. *Universidad de Jaén*, 1(1), 2015.
 - [5] Marín J.L. Riera R. Corella-Madueño A., Rosas R.A. Excitones confinados en puntos cuánticos esferoidales prolato. *Revista Mexicana De Física*, 50(4), 412-421., 1(1), 2004.
 - [6] J. Frenkel. On the transformation of light into heat in solids. i. *Physical Review* 37: 17, 1(1), 1931.
 - [7] Cohen Stephane. Strong exciton-photon coupling in organic semiconductor microcavities. *Princeton University*, 1(1), 2010.

- [8] Fabrice P. Laussy, Elena del Valle, and Carlos Tejedor. Strong coupling of quantum dots in microcavities. *Phys. Rev. Lett.*, 101:083601, Aug 2008.
- [9] A. Amo, D. Sanvitto, F. P. Laussy, D. Ballarini, E. del Valle, M. D. Martin, A. Lemaître, J. Bloch, D. N. Krizhanovskii, M. S. Skolnick, C. Tejedor, and L. Viña. Collective fluid dynamics of a polariton condensate in a semiconductor microcavity. *Nature*, 457(7227):291–295, Jan 2009.
- [10] Duong Thi Ha, Dinh Thi Thuy, Vo Thi Hoa, Tran Thi Thanh Van, and Nguyen Ai Viet. On the theory of three types of polaritons (phonon, exciton and plasmon polaritons). 865:012007, jun 2017.
- [11] Hui Deng, Gregor Weihs, David Snoke, Jacqueline Bloch, and Yoshihisa Yamamoto. Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 100(26):15318–15323, 2003.
- [12] H Kondo, Y Yamamoto, A Takeda, S Yamamoto, and H Kurisu. Optical responses in single-crystalline organic microcavities. *Journal of luminescence*, 128(5-6):777–779, 2008.
- [13] Laura Luz Valero Consuelo. Semiconductores orgánicos. <https://core.ac.uk/download/pdf/80532697.pdf>, 1(1), 2016.
- [14] José Ramón Álvarez Bada Roberto Salcedo. Mariel Leyva Esqueda, María Elena Sánchez Vergara. Cupc: Effects of its doping and a study of its organic-semiconducting properties for application in flexible devices. *Materials* 12, 3, 434, 1(1), 2019.
- [15] F Jaramillo. Semiconductores orgánicos de fácil procesamiento para transistores de efecto de campo (ofets). *Universidad Tecnológica De Pereira. Issn 0122-1701*, 1(1), 2007.
- [16] Yuta Tsuchimoto, Hikaru Nagai, Masamitsu Amano, Kazuki Bando, and Hisao Kondo. Cavity polaritons in an organic single-crystalline rubrene microcavity. *Applied Physics Letters*, 104(23):90_1, 2014.
- [17] y Gómez Vieyra A. Ibarra Villalón H.E., Pottiez O. El camino hacia la luz láser. *Revista mexicana de física E*, 64(2), 100-107, 1(1), 2018.
- [18] Ángel Andrés Torres Rosales. *Fabricación Y Caracterización De Microcavidades Ópticas De Silicio Poroso*. PhD thesis, Universidad Autónoma De San Luis Potosí., 2019.
- [19] Oscar Ruiz Cigarrillo. *Crecimiento Y Caracterización De Microcavidades Ópticas*. PhD thesis, Universidad Autónoma De San Luis Potosí., 2017.
- [20] Leandro García-Calderón Palomino. *Simulación de la dinámica del micromáser más allá de*

- la RWA. PhD thesis, PUCP., 2003.
- [21] Allen L. Y J.H. Eberly. Optical resonance and two-level atoms. *Dover Publications Inc*, 1(1):41, 1987.
- [22] RJ Holmes and SR Forrest. Strong exciton-photon coupling and exciton hybridization in a thermally evaporated polycrystalline film of an organic small molecule. *Physical review letters*, 93(18):186404, 2004.
- [23] VM Agranovich and BS Toshich. Collective properties of frenkel excitons. *Sov. Phys. JETP*, 26(1):104–112, 1968.
- [24] T Holstein and HI Primakoff. Field dependence of the intrinsic domain magnetization of a ferromagnet. *Physical Review*, 58(12):1098, 1940.
- [25] Iacopo Carusotto and Cristiano Ciuti. Quantum fluids of light. *Rev. Mod. Phys.*, 85:299–366, Feb 2013.
- [26] M Ahsan Zeb, Peter G Kirton, and Jonathan Keeling. Exact states and spectra of vibrationally dressed polaritons. *ACS Photonics*, 5(1):249–257, 2018.
- [27] E. Rico J. Kono E. Solano P. Forn-Díaz, L. Lamata. Ultrastrong coupling regimes of light-matter interaction. *arXiv:1804.09275v3*, 1:1, 2019.
- [28] Simone De Liberato4 Salvatore Savasta Anton Frisk Kockum, Adam Miranowicz and Franco Nor. Ultrastrong coupling between light and matter. *NATURE REVIEW PHYSICS.*, 1, 2019.
- [29] M. Bastarrachea. *Fenómenos críticos en sistemas átomo-campo*. PhD thesis, Universidad Nacional Autónoma de México, CDMX, 2016.