



**Casa abierta al tiempo**

**Grados de libertad colectivos de polaritones  
en semiconductores orgánicos.**

**Proyecto Terminal**

**Autor:**

---

Samuel de Jesús Chávez Conde

**Asesor:**

---

Miguel Angel Bastarrachea Magnani

Proyecto Terminal II: Investigación Teórica.

Clave 2111109. Trimestre 21-I.

**Licenciatura en Física.**

**Universidad Autónoma Metropolitana-Iztapalapa.**

14 de Junio de 2021.

---

## CONTENTS

I. Excitones-Polaritones	3
II. Semiconductores orgánicos	6
III. Hamiltoniano de Tavis-Cummings	8
A. Transformación de Holstein-Primakoff	16
IV. Resultados	18
A. Metodología	18
B. Evolución paramétrica de niveles energéticos	20
V. Trabajo futuro: Hamiltoniano de Tavis-Cummings-Holstein	31
VI. Conclusiones	33
Referencias	34

## I. EXCITONES-POLARITONES

Los excitones son excitaciones electrónicas de grupos y sólidos dieléctricos que juegan una regla crucial en la respuesta óptica de estos materiales. Estas excitaciones electrónicas representan pares ligados de electrones y huecos (véase Fig. 1), que pueden generarse por absorción de luz o por relajación de electrones libres y huecos después de un bombeo óptico o eléctrico [1].

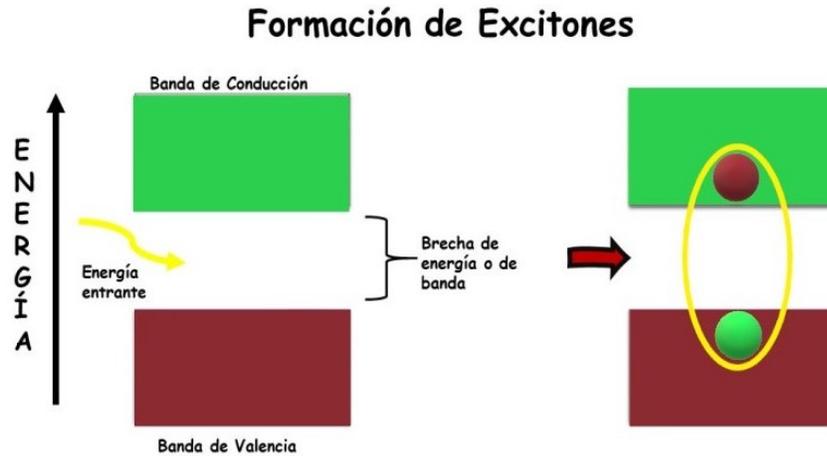


Figura 1: Generalmente, en un semiconductor la formación de un excitón ocurre cuando un electrón que se encuentra ubicado dentro la Banda de Valencia (BV) se excita a la Banda de Conducción (BC), dejando tras de sí un hueco con carga positiva, la cual interacciona con la carga del electrón atrayéndolo a través de la fuerza de Coulomb, de esta manera quedando ligados uno con el otro [2].

Durante las últimas décadas los físicos que se dedican a trabajar con el área de materia condensada han realizado numerosos estudios que involucran a los excitones en el estado de condensación de Bose-Einstein (BEC, por sus siglas en inglés). Gracias a estos estudios se descubrieron nuevas cuasipartículas llamadas excitones-polaritones o simplemente polaritones. Los excitones-polaritones son en parte materia y en parte luz [3, 4] y se forman cuando excitaciones electrónicas se mezclan fuertemente con la radiación electromagnética, a lo que se le conoce como acoplamiento fuerte de luz-materia [5, 6]. Cabe resaltar que para poder lograr este régimen, la fuerza de acoplamiento se aumenta hasta el punto en que la tasa de intercambio coherente de energía entre la luz y la materia es más alta que sus tasas de disipación [7]. Por otro lado, los niveles de energía responsables de la emisión también se alterarán [8]. En otras palabras, en este acoplamiento de luz-materia la energía es bastante grande en comparación a varias escalas energéticas del sistema,

incluyendo la térmica. En consecuencia, los modos normales del sistema no son excitaciones separadas, si no que son híbridas. En una geometría confinada, como una microcavidad óptica, los polaritones heredan la pequeña masa efectiva del fotón confinado [6], además de tener una temperatura crítica de condensación cercana a la temperatura ambiente [2]. Mientras que de su constituyente de materia, heredan la posibilidad de tener interacciones entre sí, lo cual no sucede con los fotones en el vacío. Así, en la aproximación más simple, los polaritones se comportan como un gas de cuasipartículas bosónicas que interactúan con una pequeña masa efectiva [9].

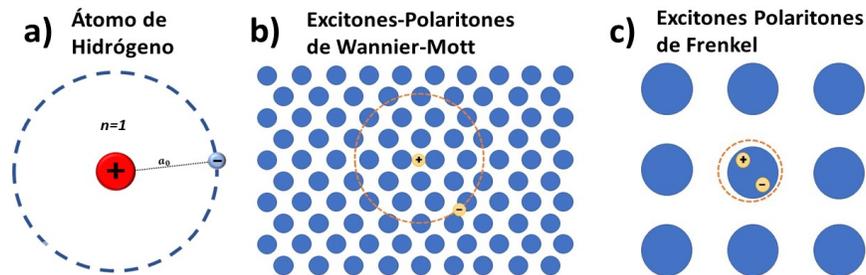


Figura 2: Esquema comparativo de los radios de los excitones-polaritones de Wannier-Mott b) y de Frenkel c) con el átomo de Hidrógeno a).

Algo importante a resaltar es que para semiconductores inorgánicos no se tiene el mismo tipo de excitón-polaritón que en semiconductores orgánicos [10]. En los semiconductores inorgánicos tenemos excitones de Wannier-Mott [11] que se pueden aproximar a partículas de carácter bosónico a bajas densidades. Mientras que en los semiconductores orgánicos encontraremos excitones-polaritones de Frenkel [12]. La principal diferencia entre estas clases de excitones-polaritones radica en la separación típica entre el electrón y el hueco. Esta separación estará dada a partir del radio de Bohr  $a_0$  y de esta manera los excitones-polaritones se asemejarán a un átomo de hidrógeno, pero con la diferencia de que la energía de ligadura es mayor en el átomo de hidrógeno la cual es de 13.6eV. En un excitón de Wannier-Mott se tendrá un radio de Bohr, relacionado con el movimiento relativo del electrón y el hueco, con una energía de enlace pequeña aproximadamente de 1meV [10, 13]. Mientras que para un excitón de Frenkel se tendrá un radio mucho menor que

el radio de Bohr, prácticamente cero, con una energía de enlace mayor, aproximadamente de 1 eV [10]. Físicamente, la distinción se origina en la competencia entre dos escalas de energía: el acoplamiento electrón-hueco y las tasas de salto de electrones y huecos entre diferentes moléculas o átomos [14] (vease la Fig. 2).

La naturaleza híbrida de los excitones-polaritones es de gran interés en diversas aplicaciones, por ejemplo en la creación de láseres [15]. El hecho de que sean mitad luz permite que los láseres polaritónicos sean prometedores como nuevas fuentes de luz coherente y no clásica con un umbral de energía extremadamente bajo. Mientras que gracias a su mitad material, los láseres polaritónicos se convierten en un terreno de pruebas único para las teorías de muchos cuerpos y de electrodinámica cuántica de cavidades. Uno de los temas de interés en la actualidad es la descripción de los grados de libertad colectivos de polaritones. En este trabajo estudiaremos los niveles de energía en este caso como función de parámetros relevantes del sistema como la desintonización radiación-materia, el acoplamiento de Rabi, y el número de excitaciones.

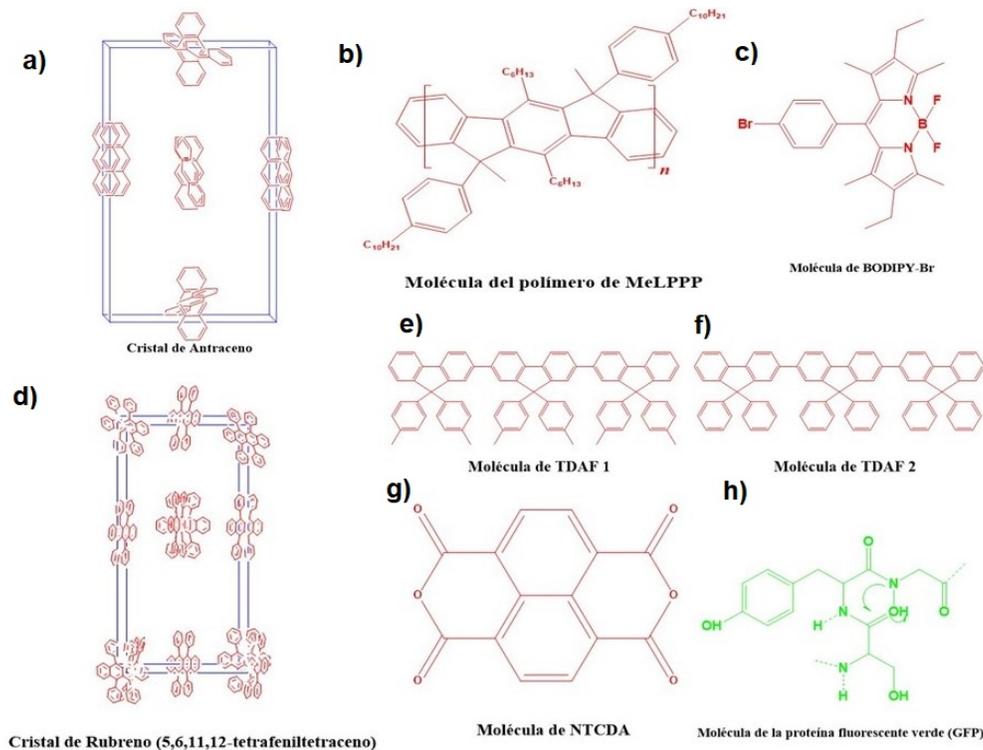


Figura 3: Estos son algunos de los materiales orgánicos utilizados para la condensación de polaritones. a) Cristal de Antraceno, b) MeLPPP, c) BODIPY-Br, d) Cristal de Rubreno, e,f) TDAF (1,2), g) NTCDA y h) GFP.

## II. SEMICONDUCTORES ORGÁNICOS

El uso de materiales orgánicos para la condensación de polaritones, es una aplicación relativamente reciente y que se encuentra en investigación. Un material orgánico comprende desde cristales orgánicos, películas finas moleculares desordenadas, polímeros y proteínas fluorescentes [6].

A continuación se ofrece un breve resumen de algunos de los materiales orgánicos que se emplean para la creación de excitones-polaritones dentro de microcavidades (véase la Fig. 3)

- **Cristales orgánicos.** Los primeros trabajos realizados en microcavidades orgánicas se centraron en emisores de bajo peso molecular [16–20]. La primera demostración de la condensación de polaritones se logró en un monocristal orgánico [6]. En los años 2004 y 2008 se demostró un fuerte acoplamiento excitón-fotón en películas nanocristalinas de dianhídrido 3,4,7,8-naftalenotetracarboxílico (NTCDA) y tetraceno policristalino [18, 21]. También, en el 2008 dos informes demostraron la existencia de microcavidades que contenían monocristales de antraceno [22, 23], con un acoplamiento luz-materia aproximado de 256 meV [6]. Por otro lado, en estudios recientes han demostrado un acoplamiento fuerte con monocristales de rubreno [24].
- **Moléculas pequeñas.** Las moléculas orgánicas de bajo peso molecular son mucho más fáciles de transformar en películas finas desordenadas o policristalinas que en monocristales [6]. Las técnicas de fabricación más utilizadas son el recubrimiento por rotación y la sublimación al vacío [25]. Ambas permiten la fabricación de películas puras (no dopadas) o películas dopadas en las que el colorante está incrustado en una matriz [6]. Uno de los materiales más estudiados para crear láseres polaritónicos es el oligómero de fluoreno (TDAF), un diodo orgánico ambipolar que puede procesarse tanto en solución como en vacío [26] y con un acoplamiento luz-materia aproximado de 600 meV [6]. Otro tipo de material estudiado es el BODIPY-Br, en el cual han demostrado que el mecanismo dominante para poblar el LP (polaritón inferior o *lower polariton* en inglés) consiste en el bombeo radiativo de excímeros débilmente acoplados [27, 28], este material presenta un acoplamiento luz-materia aproximado de 91 meV [6].
- **Polímeros.** La fotofísica de los polímeros conjugados combina características de las moléculas pequeñas y de los cristales orgánicos [6]. Pueden formarse bandas de excitones a

lo largo de la cadena polimérica debido al acoplamiento dipolo-dipolo y superintercambio entre los restos, mientras que la transferencia de Förster incoherente puede conducir a la transferencia de energía entre cadenas [29]. El polímero de tipo escalera sustituido por metilo (MeLPPP) es el primer material con recubrimiento de espín en el que se observó la condensación de polaritones [30], dicho material presenta un acoplamiento luz materia aproximado de 116 meV [6].

- **Proteínas fluorescentes.** El láser de polaritón [15], también se ha observado en las proteínas fluorescentes derivadas biológicamente [6]. Un ejemplo prototípico de este tipo de proteínas es la proteína verde fluorescente (GFP), que se aisló por primera vez de la medusa *aequorea victoria*, este tipo de molécula presenta un acoplamiento luz-materia aproximado de 194 meV [6, 31]. La mayoría de las proteínas fluorescentes están formadas por un cromóforo rodeado por rodeado por un barril beta ( $\beta$  - *barrel*), el que a su vez es formado por láminas beta ( $\beta$  - *sheets*) generadas por largas cadenas polipeptídicas [6].

En todos estos materiales se puede despreciar la estructura detallada del espectro molecular para estudiar modelos sencillos que capturen los grados de libertad de los excitones-polaritones resultante de acoplar a la luz con la transición entre el orbital molecular ocupado de más energía (HOMO, por sus siglas en inglés) y el orbital molecular no ocupado de más baja energía (LUMO, por sus siglas en inglés). Véase Fig. 4. Una descripción más detallada, por supuesto, tiene que incluir el efecto de otros grados de libertad que tendrán como consecuencia el ensanchamiento de los niveles de energía polaritónicos resultantes debido a la presencia de canales de disipación adicionales. A continuación presentaremos el modelo más simple para describir los modos colectivos de los excitones-polaritones de Frenkel.

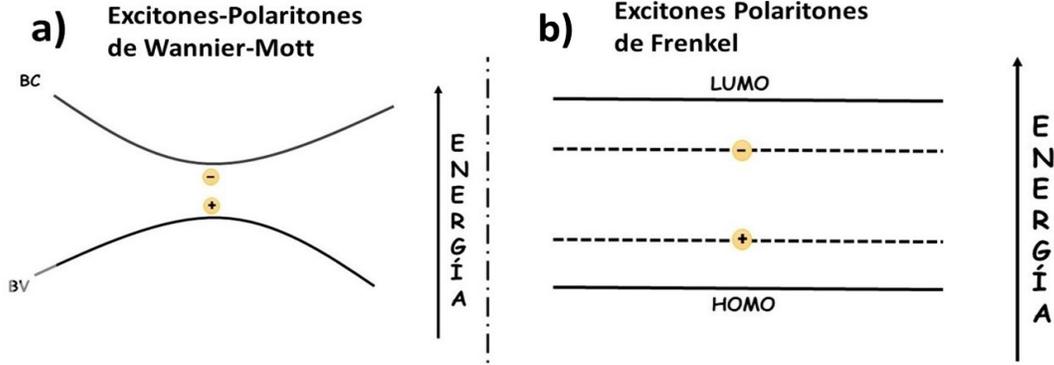


Figura 4: a) En el caso de semiconductores orgánicos los excitones-polaritones son de Wannier-Mott, ahí la interacción ocurrirá entre la BV y la BC (tal como se observa en la Figura 1), esto en semiconductores inorgánicos. b) Mientras que para semiconductores de carácter orgánico la interacción ocurrirá entre el HOMO y el LUMO. Para los semiconductores orgánicos el HOMO es lo que la BV para los semiconductores inorgánicos, de la misma manera será para el LUMO con la BC. Por otro lado, la diferencia de energía entre el HOMO y el LUMO será nuestra brecha de energía o de banda en los excitones de Frenkel [32].

### III. HAMILTONIANO DE TAVIS-CUMMINGS

Un concepto importante a tener en cuenta para lograr entender el comportamiento de los excitones-polaritones es la interacción fuerte entre luz y materia, y esto se logrará con el uso de una microcavidad óptica. Una cavidad óptica (Fig. 5) confina la luz atrapándola entre espejos y da lugar a modos ópticos discretos en los que el campo se concentra en el interior de la cavidad. Por lo tanto, puede aumentar el acoplamiento entre luz y materia, conduciendo a nuevos modos normales [6]. El primer régimen de acoplamiento será el débil, justo cuando la luz confinada cambia significativamente las propiedades de emisión de la transición molecular, a esto se le conoce como efecto Purcell [7, 33]. Para alcanzar el régimen de acoplamiento fuerte, se debe de aumentar la fuerza de acoplamiento hasta el punto en que la tasa de intercambio coherente de energía entre la luz y la materia es más alta que sus tasas de desintegración [7, 8]. Cuando se alcanza el régimen de acoplamiento fuerte, los estados originalmente coincidentes se dividen en dos estados separados, llamados estados polaritónicos, con la separación de energía entre ellos proporcional a la fuerza de acoplamiento. A este efecto se le llama división de Rabi [7].

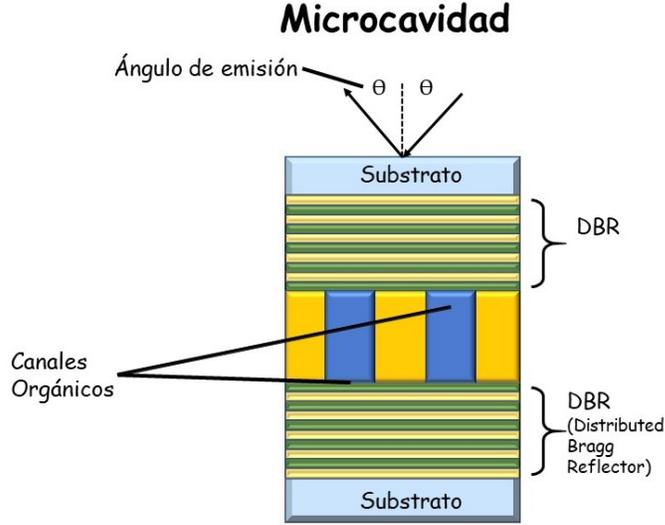


Figura 5: Estructura de una microcavidad (MC). En general las MCs consisten de una cavidad planar de Fabry-Perot con una capa central ópticamente activa confinada por dos reflectores de Bragg colocados uno frente a otro [34]. Los DBR están formados por pares de capas con diferentes índices de refracción, las cuáles se encargarán de reflejar la luz de tal manera que se genere una interferencia constructiva para cada capa. En nuestra capa central ópticamente activa es donde podremos confinar nuestros canales orgánicos o nuestros materiales orgánicos. Todas estas estructuras estarán sobre un substrato cristalino, generalmente se utiliza el cuarzo.

A continuación tomaremos en cuenta el Hamiltoniano de un sistema simple de polaritones en su segunda cuantización, el cuál nos ayudará a tener una base para el estudio del comportamiento de polaritones en microcavidades. El Hamiltoniano puede escribirse en términos de la suma de los constituyentes fundamentales y un término de interacción luz-materia [35], i.e.,

$$\hat{\mathcal{H}}_{xp} = \hat{\mathcal{H}}_p + \hat{\mathcal{H}}_x + \hat{\mathcal{H}}_i. \quad (1)$$

En dónde  $\hat{\mathcal{H}}_p$ ,  $\hat{\mathcal{H}}_x$  y  $\hat{\mathcal{H}}_i$  representan al campo resonante (fotón), al emisor (excitón) y la interacción entre la luz y la excitación de la materia dentro del sistema, respectivamente

$$\hat{\mathcal{H}}_p = E_C \hat{a}^\dagger \hat{a}, \quad (2)$$

$$\hat{\mathcal{H}}_x = E_X \hat{e}^\dagger \hat{e}, \quad (3)$$

$$\hat{\mathcal{H}}_i = \hbar\Omega(\hat{e}^\dagger \hat{a} + \hat{e} \hat{a}^\dagger), \quad (4)$$

Siendo  $E_C$  la energía del modo de la cavidad,  $E_X$  la energía de excitación del emisor,  $\hbar\Omega$  la fuerza de interacción, por último  $\hat{a}(\hat{e})$  campo (emisor) y  $\hat{a}^\dagger(\hat{e}^\dagger)$  los operadores de creación y aniquilación, respectivamente. La diagonalización del Hamiltoniano total dará las eigenenergías de los nuevos eigenestados, en forma matricial [2, 35] :

$$\hat{\mathcal{H}}_{xp} = (\hat{e}^\dagger \ \hat{a}^\dagger) \begin{bmatrix} E_X & \hbar\Omega \\ \hbar\Omega & E_C \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \hat{e} \\ \hat{a} \end{pmatrix}, \quad (5)$$

en donde

$$\mathcal{M} = \begin{bmatrix} E_X & \hbar\Omega \\ \hbar\Omega & E_C \end{bmatrix}. \quad (6)$$

Los eigenvalores serán:

$$\lambda_1 = E_U = \frac{E_X + E_C}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{(E_C - E_X)^2 + 4\hbar^2\Omega^2}, \quad (7)$$

$$\lambda_2 = E_L = \frac{E_X + E_C}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{(E_C - E_X)^2 - 4\hbar^2\Omega^2}. \quad (8)$$

Los cuáles corresponden a las energías de los polaritones superiores (UP, *upper polariton*) e inferiores (LP, *lower polariton*) (Figura 6). Un término importante es  $\delta = E_C - E_X$ , el cual nos indicará la diferencia energética entre la radiación luz-materia, y tiene por nombre desintonización. Cabe mencionar que la desintonización es un parámetro de interés, pues es un valor que podemos controlar experimentalmente, de igual manera como ocurrirá con el acoplamiento luz-materia. Los eigenvectores de los estados de los UP y LP, vienen dados por la siguiente relación [2]:

$$\hat{\mathcal{H}}_{xp} = M \begin{pmatrix} X_i \\ C_i \end{pmatrix} = E_i \begin{pmatrix} X_i \\ C_i \end{pmatrix}, \quad (9)$$

con  $|C_i|^2 + |X_i|^2 = 1$ , dónde  $i = U, L$ .  $C_i$  y  $X_i$  se les denomina como coeficientes de Hopfield [36] y denotan el contenido excitónico o fotónico de los nuevos estados propios. Estos vienen dados por [2]:

$$C_L = -\frac{\hbar\Omega}{\sqrt{\hbar^2\Omega^2 + (E_L - E_C)^2}}, \quad (10)$$

$$X_L = -\frac{E_C - E_L}{\sqrt{\hbar^2\Omega^2 + (E_L - E_C)^2}}. \quad (11)$$

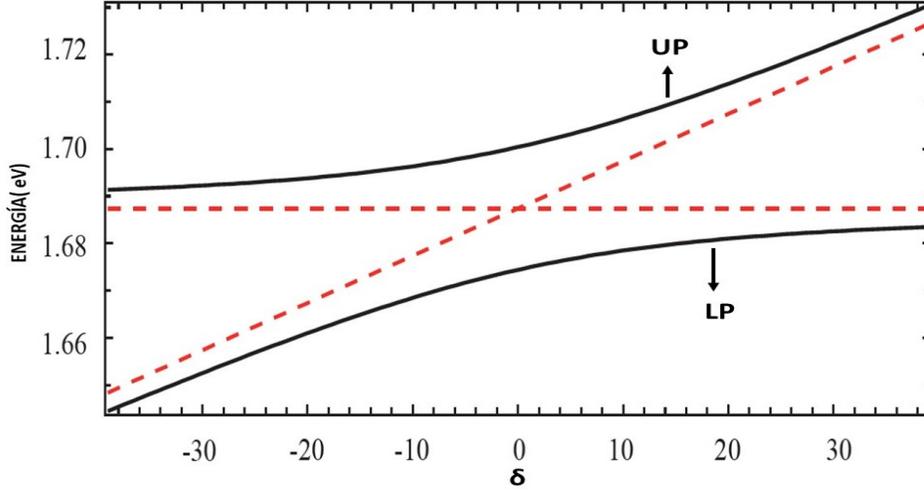


Figura 6: Las líneas sólidas negras representan la energía de los polaritones superior (UP) e inferior (LP), mientras que las líneas rojas punteadas serán las dispersiones individuales del excitón y del fotón a una desintonización cero [2].

Algo importante a mencionar, es que para describir excitones-polaritones de Frenkel utilizaremos modelos en los que no se toma en cuenta la estructura interna de las moléculas, sino sólo la existencia de la transición entre el HOMO y el LUMO. Por lo que podremos aproximar la descripción complicada de polaritones a una más simple en términos de sistemas de dos niveles que hace uso de los pauliones (matrices de espín de Pauli).

Consideremos un sistema simple de polaritones, el cual se puede representar en términos de los operadores de aniquilación y creación de las excitaciones de las moléculas individuales. Tomemos a los operadores  $\sigma_{s,n}^+$  y  $\sigma_{s,n}^-$ , donde  $n$  es el número de excitaciones de la molécula y  $s$  denota la posición donde se localiza dicha molécula. Si consideramos el  $n$ -ésimo estado excitado no degenerado, nuestros operadores  $\sigma_{s,n}^+$  y  $\sigma_{s,n}^-$  satisfacen las siguientes relaciones de conmutación [37]:

$$\sigma_{s,n}^- \sigma_{s,n}^+ - \sigma_{s,n}^+ \sigma_{s,n}^- = 1 - 2\sigma_{s,n}^+ \sigma_{s,n}^- \quad (12a)$$

$$\sigma_{s,n}^- \sigma_{s,n}^- = 0, \quad (12b)$$

$$\sigma_{s,n}^- \sigma_{s',n}^- - \sigma_{s',n}^- \sigma_{s,n}^- = 0, \quad (12c)$$

$$\sigma_{s,n}^+ \sigma_{s',n}^- - \sigma_{s',n}^- \sigma_{s,n}^+ = 0, \quad s \neq s'. \quad (12d)$$

Entonces,  $\sigma_{s,n}^+$  y  $\sigma_{s,n}^-$  son operadores de Pauli (pauliones). Las ecuaciones (12a,b) y (12c,d) son combinaciones de las relaciones de conmutación para el operador de Fermi cuando  $s = s'$  y el

operador de Bose cuando  $s \neq s'$  [38]. Por lo tanto, reescribiendo al Hamiltoniano del sistema simple de polaritones de Frenkel en términos de pauliones (omitiendo los índices  $n$  y  $s$ ) tomará la siguiente forma:

$$\mathcal{H} = \omega \hat{a}^\dagger \hat{a} + \epsilon \sigma^+ \sigma^- + g (\sigma^+ \hat{a} + \hat{a}^\dagger \sigma^-), \quad (13)$$

dónde nuestra constante de acoplamiento es  $g := \hbar \Omega$ ,  $E_C := \omega$  y  $E_X := \epsilon$ . Este nuevo Hamiltoniano es llamado el modelo de Jaynes-Cummings (J-C) y describe un modelo sencillo de un modo de radiación fotónico acoplado a un sistema de dos niveles [39]. Este sistema de dos niveles con energía  $\epsilon$  se describe mediante las matrices de Pauli  $\sigma^\pm$  correspondientes a las transiciones ascendentes o descendentes entre los estados HOMO y LUMO de cada molécula, de manera que  $\sigma^\pm$  crea (destruye) un excitón. Es necesario resaltar que el último término de nuestro Hamiltoniano describe el acoplamiento coherente entre los excitones y los fotones. Este acoplamiento es distinto de la tasa de absorción o emisión incoherente. Al tener acoplamientos coherentes en el modelo de J-C, significa que tendremos nuevos estados propios, y superposiciones de excitones y fotones, es decir, los polaritones [6].

Consideremos la ecuación (13), en este caso el valor de nuestra constante de acoplamiento,  $g$ , para una sola molécula es pequeña, por lo que la separación energética de Rabi también será pequeña. Como la intensidad del campo se escala como  $1/\sqrt{V}$  para el modo de volumen  $V$ , entonces una opción para aumentar  $g$  es disminuyendo  $V$ . Pero no podemos hacer pequeño a  $V$ , debido a que está limitado por la longitud de onda de la luz dentro de la cavidad. Entonces otra posibilidad para aumentar nuestra energía de Rabi es acoplando muchas partículas al mismo modo de cavidad [6]. Por lo que al considerar esta última opción llegaremos al modelo de Tavis-Cummings (T-C) i.e.,

$$\mathcal{H} = \sum_n [\omega \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_n + \epsilon \sigma_n^+ \sigma_n^- + g (\sigma_n^+ \hat{a}_n + \hat{a}_n^\dagger \sigma_n^-)]. \quad (14)$$

Algo importante a resaltar es que la separación de Rabi aumenta  $N$ -veces, esto nos indica que está dependerá de la densidad de área de las moléculas [6]. Por lo que será necesario representar a nuestro Hamiltoniano dentro del espacio de momentos. Para esto será necesario que tomemos en cuenta un marco rotatorio, es decir, aplicaremos la transformada de Fourier  $\hat{a}_n = \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i\phi} / \sqrt{N}$  en nuestro Hamiltoniano, por lo que tomará la siguiente forma:

$$\mathcal{H} = \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + \sum_n \epsilon \sigma_n^+ \sigma_n^- + \sum_{n,\mathbf{k}} \frac{g}{\sqrt{N}} (\sigma_n^+ \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i\phi(\mathbf{k})} + H.c.) \quad (15)$$

En donde  $\phi(\mathbf{k}) = \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n$ . De esta manera obtendremos al modelo generalizado de T-C:

$$\mathcal{H} = \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + \sum_n \epsilon \sigma_n^+ \sigma_n^- + \sum_{n,\mathbf{k}} \frac{g}{\sqrt{N}} (\sigma_n^+ \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n} + H.c.) \quad (16)$$

Aquí podemos observar que el acoplamiento luz-materia tiene un factor de fase que depende del vector de onda en el plano  $\mathbf{k}$  y la posición molecular  $\mathbf{r}_n$ . En este caso la dispersión de fotones en la cavidad se modifica de la forma del espacio libre  $\omega_k = ck$  y se convierte en  $\omega_k = c\sqrt{\mathbf{k}^2 + (2\pi pL)^2}$ , dónde  $\mathbf{k}$  es el vector de onda en el plano,  $p$  es un número entero y  $L$  es la longitud efectiva de la cavidad. Dentro de una microcavidad, esta dispersión es cuadrática a valores pequeños de momento, es decir,  $\omega_k \simeq \omega_0 + \hbar k^2/2m_{ph}$ , dónde  $m_{ph}$  es la masa del fotón, la cual es  $10^4$  veces más pequeña que la masa del electrón [6]. Si tomamos el caso en dónde el momento es cero, tendremos que los eigenvalores de la energía son los siguientes:

$$E_k^\pm = \frac{1}{2} \left[ \epsilon + \omega_k \pm \sqrt{(\omega_k - \epsilon)^2 + 4g^2 N^{-1}} \right], \quad (17)$$

donde la desintonización será  $\delta = \omega_{k=0} - \epsilon$ , notemos que el resultado es el mismo que encontramos para el sistema simplificado que nos dió las energías de los polaritones en (7) y (8).

Ahora, vamos a reescribir el Hamiltoniano en términos de operadores que sólo consideren modos colectivos. Sabemos que el operador Hamiltoniano conmuta con  $\mathbf{J}^2$ , i.e.,  $[H, \mathbf{J}^2] = 0$ , por lo que será posible representar nuestro Hamiltoniano generalizado de T-C en términos de los operadores de momento angular que se consideran operadores de pseudoespín. Los operadores de momento angular son los siguientes:

$$J_z = \frac{1}{2} \sum_i \sigma_z^i; \quad (18)$$

$$J_\pm = \sum_i \sigma_i^\pm \quad (19)$$

Estos operadores  $J_z$  y  $J_\pm$  cumplen con las reglas de conmutación de momento angular:  $[J_z, J_\pm] = \pm \hbar J_\pm$  y  $[J_+, J_-] = 2\hbar J_z$ . En este modelo generalizado de T-C en términos de pauliones estamos considerando  $N$ -sistemas de 2 niveles, por lo que la dimensión del espacio de Hilbert viene dada por  $\dim H = 2^N$ . El espacio de Hilbert se puede separar en representaciones de pseudoespín, es decir, los eigenvalores  $j(j+1)$  del operador  $\mathbf{J}^2$ , con  $\mathbf{J} = (J_x, J_y, J_z)$ . Esta dimensión contendrá todas las representaciones desde  $j = N/2$  hasta 0, i.e.,  $\{2^N\} = \{N/2, N/2 - 1, N/2 - 2, \dots, 0\}$ . Para este trabajo solo nos enfocaremos en modos colectivos, en otras palabras en la representación totalmente simétrica  $j = N/2$  ( $j = N/2$  es la longitud de pseudoespín). De este modo la dimensión de nuestro espacio de Hilbert pasará de  $2^N$  a una dimensión de  $N + 1$ .

Concentrémonos en la contribución de la materia del Hamiltoniano, es decir  $\sum_n \epsilon \sigma_n^+ \sigma_n^-$ , el cual podremos reescribirlo al considerar que  $\sigma_n^\pm = \sigma_n^x \pm i\sigma_n^y$ ,  $\sigma_i^2 = \mathbb{1} \forall i$  y  $[\sigma_n^x, \sigma_n^y] = i2\sigma_n^z$

$$\begin{aligned}
 \hat{\mathcal{H}}_x &= \sum_n \epsilon \sigma_n^+ \sigma_n^- = \epsilon \sum_n (\sigma_n^x + i\sigma_n^y) (\sigma_n^x - i\sigma_n^y) = \\
 &\epsilon \sum_n [(\sigma_n^x)^2 - i\sigma_n^x \sigma_n^y + i\sigma_n^y \sigma_n^x + (\sigma_n^y)^2] = \\
 &\epsilon \sum_n [(\sigma_n^x)^2 - i[\sigma_n^y, \sigma_n^x] + (\sigma_n^y)^2] = \\
 &\epsilon \sum_n [(\sigma_n^x)^2 + (\sigma_n^y)^2] + 2\epsilon \sum_n \sigma_n^z = \\
 &2\epsilon \sum_n \mathbb{1} + 2\epsilon(2J_z) = 2\epsilon N + 2\epsilon(2J_z) = \\
 &2\epsilon(2j) + 2\epsilon(2J_z) = 4\epsilon(j + J_z)
 \end{aligned}$$

Entonces la contribución de la materia se puede reescribir como lo siguiente:

$$\sum_n \epsilon \sigma_n^+ \sigma_n^- = 4\epsilon(j + J_z) \quad (20)$$

Ahora enfoquémonos en la parte de interacción luz-materia de nuestro Hamiltoniano, i.e.,

$$\begin{aligned}
 \hat{\mathcal{H}}_{int} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{n,\mathbf{k}} g(\sigma_n^+ \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} + \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \sigma_n^- e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n}) = \\
 &\frac{g}{\sqrt{N}} \left( \sum_n \sum_{\mathbf{k}} \sigma_n^+ \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} + \sum_n \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \sigma_n^- e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} \right) \quad (21)
 \end{aligned}$$

Consideremos a la transformada de Fourier  $\hat{a}_n = \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} / \sqrt{N}$  y expandamos el factor  $e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n}$ , i.e.,

$$e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} = 1 + (-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n) + \frac{1}{2}(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n)^2 \quad (22)$$

Al realizar esta expansión el término  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_n$  será menor que la unidad, que significa quedarse a una aproximación de momento cero. Esta aproximación asume que cada una de las excitaciones materiales interactúa con el mismo campo independientemente de sus variaciones espaciales y se le conoce como aproximación de onda larga [40]

$$\sum_n \sum_{\mathbf{k}} \sigma_n^+ \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n} \longrightarrow \hat{a} \sum_n \sigma_n^+ = 2\hat{a}J_+ \quad (23)$$

Análogamente para  $\sum_n \sum_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \sigma_n^- e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_n}$ . Por lo que nuestro Hamiltoniano de interacción se vuelve en el siguiente:

$$\hat{\mathcal{H}}_{int} = \frac{2g}{\sqrt{N}} (\hat{a}J_+ + \hat{a}^\dagger J_-) \quad (24)$$

Al reescribir a nuestro Hamiltoniano total tendremos el Hamiltoniano de Tavis-Cummings:

$$\hat{\mathcal{H}} = \omega \hat{a}^\dagger \hat{a} + 4\epsilon(j + J_z) + \frac{2g}{\sqrt{N}} (\hat{a} J_+ + \hat{a}^\dagger J_-). \quad (25)$$

Podemos definir el operador de número de excitaciones como  $\hat{N}_{exc} = \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_n \sigma_n^+ \sigma_n^- = \hat{a}^\dagger \hat{a} + 4\epsilon(j + J_z)$ , que nos indica cuántos fotones y cuántos grados colectivos de excitones hay excitados en el sistema. Como estamos trabajando en la aproximación de onda rotante (RWA, por sus siglas en inglés), válida para el régimen de acoplamiento fuerte, el operador de número de excitaciones se convierte en una cantidad conservada [41]. Seguiremos la demostración de que  $\hat{N}_{exc}$  es una cantidad conservada en [42]. Consideremos la transformación unitaria

$$U = e^{i\phi_0 \hat{N}_{exc}} \quad (26)$$

donde  $\phi_0$  es un ángulo arbitrario. Vemos que

$$U \hat{a} U^\dagger = e^{i\phi_0 \hat{a}^\dagger \hat{a}} \hat{a} e^{-i\phi_0 \hat{a}^\dagger \hat{a}} \quad (27)$$

Tomemos en cuenta que los operadores atómicos conmutan con los operadores del campo porque corresponden a sistemas diferentes. Ahora consideremos el lema de Baker-Hausdorf-Campbell que señala que para cualesquiera dos operadores A y B se tiene que

$$e^{i\lambda A} B e^{i\lambda A} = B + i\lambda [A, B] + \frac{(i\lambda)^2}{2!} [A [A, B]] + \dots \quad (28)$$

Obtenemos que

$$e^{i\phi_0 \hat{a}^\dagger \hat{a}} \hat{a} e^{-i\phi_0 \hat{a}^\dagger \hat{a}} = \left( 1 - i\phi_0 + \frac{(i\phi_0)^2}{2!} - \frac{(i\phi_0)^3}{3!} + \dots \right) \hat{a} = e^{-i\phi_0} \hat{a}. \quad (29)$$

Entonces también se cumple que

$$(U \hat{a} U^\dagger)^\dagger = (e^{-i\phi_0} \hat{a})^\dagger = U \hat{a}^\dagger U^\dagger = e^{i\phi_0} \hat{a}^\dagger. \quad (30)$$

Ahora para los operadores atómicos

$$U J_+ U^\dagger = e^{i\phi_0 J_z} J_+ e^{-i\phi_0 J_z}. \quad (31)$$

Tenemos que  $J_+$  conmuta con  $\mathbf{J}^2$  y con el operador número. Aplicando el lema de Baker-Hausdorf, recordando que  $[J_z, J_+] = J_+$  con  $\hbar = 1$

$$e^{i\phi_0 J_z} J_+ e^{-i\phi_0 J_z} = \left( 1 - i\phi_0 + \frac{(i\phi_0)^2}{2!} - \frac{(i\phi_0)^3}{3!} + \dots \right) J_+ = e^{i\phi_0} J_+. \quad (32)$$

Y por tanto tenemos entonces también que:

$$(UJ_+U^\dagger)^\dagger = (e^{i\phi_0}J_+)^\dagger = UJ_-U^\dagger = e^{-i\phi_0}J_- \quad (33)$$

Por otro lado es inmediato que

$$UJ_zU^\dagger = J_z \quad (34)$$

Ahora, aplicando la transformación unitaria al Hamiltoniano generalizado de T-C (25)

$$UH_{TC}U^\dagger = \omega\hat{a}^\dagger\hat{a} + 4\epsilon(j + J_z) + \frac{2g}{\sqrt{N}}(\hat{a}J_+ + \hat{a}^\dagger J_-) \quad (35)$$

De esta manera nuestro Hamiltoniano queda invariante, i.e.,

$$UH_{TC}U^\dagger = H_{TC} \quad (36)$$

Como resultado  $[H_{TC}, N_{exc}] = 0$ .

Por otro lado, algo a tomar en cuenta si se quiere representar al Hamiltoniano de T-C generalizado en su forma matricial es necesario considerar las siguientes propiedades de los operadores atómicos y fotónicos:

$$\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle, \quad (37)$$

$$\hat{a}^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle, \quad (38)$$

$$\hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle = n|n\rangle, \quad (39)$$

$$J_z|j, m\rangle = m|j, m\rangle, \quad (40)$$

$$J_\pm|j, m\rangle = C_\pm|j, m \pm 1\rangle, \quad (41)$$

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

donde  $|n\rangle$  y  $|j, m\rangle$  son estados de Fock y momento angular, respectivamente. Estas relaciones son muy importantes, debido a que se emplean para resolver numéricamente el Hamiltoniano generalizado de T-C como se indicará más adelante.

### A. Transformación de Holstein-Primakoff

Generalmente, para una aproximación de dos niveles de los excitones de Frenkel partimos del modelo generalizado de T-C, pero en dicho modelo tenemos operadores de Fermi. Una forma de obtener operadores bosónicos es a través de la siguiente aproximación, llamada transformación

de Holstein-Primakoff (H-P) [43]. Consideremos nuevamente a nuestros operadores  $J_+$  y  $J_-$ , los cuáles podremos reescribir en términos de los operadores de Bose  $\hat{b}^\dagger$  y  $\hat{b}$ , que siguen la regla de conmutación  $[\hat{b}, \hat{b}^\dagger] = 1$ , quedando de la siguiente manera:

$$J_- = \left( \sum_{n=0}^{\infty} v_n (\hat{b}^\dagger)^n (\hat{b})^n \right)^{\frac{1}{2}} \hat{b}, \quad (42)$$

$$J_+ = \hat{b}^\dagger \left( \sum_{n=0}^{\infty} v_n (\hat{b}^\dagger)^n (\hat{b})^n \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (43)$$

en donde  $v_n$  son coeficientes reales. Supongamos que los operadores  $\sigma^+$  y  $\sigma^-$  satisfacen la siguiente condición

$$J_- J_+ + J_+ J_- = 1 \quad (44)$$

esto para el caso de que  $\hat{b}^\dagger$  y  $\hat{b}$  en (42) y (43) sean operadores de Bose. Sustituyendo (42) y (43) en (44) y considerando la identidad  $(\hat{b}^\dagger)^{n+1} (\hat{b})^{n+1} = (\hat{N}_b - n) (\hat{b}^\dagger)^n (\hat{b})^n$ , donde  $\hat{N}_b = \hat{b}^\dagger \hat{b}$ , por lo tanto (44) tomará la siguiente forma

$$J_- J_+ + J_+ J_- = \sum_{n=0}^{\infty} v_n \left[ 2(\hat{b}^\dagger)^{n+1} (\hat{b})^{n+1} + (n+1)(\hat{b}^\dagger)^n (\hat{b})^n \right] = 1 \quad (45)$$

encontrando a  $v_n$

$$v_n = \frac{-2}{1+n} a_{n-1} = \frac{(-2)^n}{(1+n)!} \quad (46)$$

Por lo que la transformación exacta de Pauli con operadores de Bose, tomaran la siguiente forma

$$J_- = \left( \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-2)^n}{(1+n)!} (\hat{b}^\dagger)^n (\hat{b})^n \right)^{\frac{1}{2}} \hat{b} \quad (47)$$

$$J_+ = \hat{b}^\dagger \left( \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-2)^n}{(1+n)!} (\hat{b}^\dagger)^n (\hat{b})^n \right)^{\frac{1}{2}} \quad (48)$$

Consideremos ahora al operador de Pauli  $\hat{L} = J_+ J_-$  y representemoslo en términos del operador de número de bosones

$$\hat{L} = \hat{N}_b + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-2)^n}{(1+n)!} \hat{N}_b (\hat{N}_b - 1) \dots (\hat{N}_b - n) \quad (49)$$

Con está relación será posible encontrar que para los estados con número par arbitrario de bosones corresponden a  $\hat{L} = 0$ , y que para los estados con número arbitrario impar de bosones a  $\hat{L} = 1$ . Por

lo tanto, las transformaciones (47), (48) y (49) no dan lugar a números de bosones correspondiente a números de pauliones "no físicos"(es decir, números  $\hat{L} > 1$ ) [37]. De las transformaciones (47) y (48) podremos encontrar la representación de H-P, la cual es la siguiente:

$$J_- = \sqrt{N - \hat{b}^\dagger \hat{b} \hat{b}} \quad (50)$$

$$J_+ = \hat{b}^\dagger \sqrt{N - \hat{b}^\dagger \hat{b}} \quad (51)$$

Ahora aproximemos el Hamiltoniano T-C generalizado (25), con H-P. Consideremos al límite termodinámico cuando  $\frac{\hat{b}^\dagger \hat{b}}{N} \rightarrow 0$ , entonces las ecuaciones (50) y (51) se transformarán en

$$J_- = \sqrt{N - \hat{b}^\dagger \hat{b} \hat{b}} \approx \sqrt{N} \hat{b} \quad (52)$$

y

$$J_+ = \hat{b}^\dagger \sqrt{N - \hat{b}^\dagger \hat{b}} \approx \sqrt{N} \hat{b}^\dagger \quad (53)$$

Al sustituir (52) y (53) en (25) quedará de la siguiente forma:

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + 4\epsilon(j + J_z) + \frac{2g}{\sqrt{N}} (\hat{a} \hat{b}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{b}) \quad (54)$$

Al utilizar la aproximación de H-P en nuestro modelo generalizado de T-C podemos observar que regresamos al problema de dos osciladores acoplados (modelo simplificado de polaritón). Por lo tanto, las ramas de polaritones son justamente las soluciones obtenidas de la diagonalización del Hamiltoniano (5). Pero en el presente trabajo nos enfocaremos a resolver el problema generalizado de T-C sin aproximarlo y observar los polaritones resultantes.

## IV. RESULTADOS

A continuación presentamos un análisis del espectro de energía de los modos polaritónicos que se obtienen al diagonalizar el Hamiltoniano de TC para diferentes valores de sus parámetros, como función de la destintonización luz-materia.

### A. Metodología

Para poder realizar la diagonalización de este Hamiltoniano se utilizó el software Wolfram Mathematica. Tal como se mencionó con anterioridad, se ocuparon las relaciones (37-41) con

el fin de representar a nuestro Hamiltoniano de forma matricial. Pero para que el programa de la diagonalización reconozca a nuestros elementos de matriz, será necesario reescribirlos de la siguiente manera. Consideremos que

$$\hat{H}_{TC}|E_n\rangle = E_n|E_n\rangle, \quad (55)$$

$$|n\rangle \otimes |j, m\rangle = |n, m\rangle \quad (56)$$

y

$$\langle n', m' | \hat{H}_{TC} | n, m \rangle \quad (57)$$

Por otro lado tenemos a los términos de nuestro Hamiltoniano son los siguientes

$$\hat{H}_f = \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \otimes \mathbb{1}, \quad (58)$$

$$\hat{H}_e = 4\epsilon(j + J_z \otimes \mathbb{1}), \quad (59)$$

$$\hat{H}_{int} = \frac{2g}{\sqrt{N}} (\hat{a} \otimes J_+ + \hat{a}^\dagger \otimes J_-). \quad (60)$$

Entonces reescribiendo los valores de nuestros Hamiltoniano

$$\begin{aligned} \langle n', m' | \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} | n, m \rangle &= \langle n' | \otimes \langle m' | \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \otimes \mathbb{1} | n \rangle \otimes | m \rangle \\ &= n_1 \langle n' | n \rangle \langle m' | m \rangle = n \delta_{n'n} \delta_{m'm} \end{aligned}$$

Por lo tanto

$$\langle n', m' | \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} | n, m \rangle = n_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \quad (61)$$

Análogamente para nuestros los otros valores, tendremos que

$$\langle n', m' | J_z | n, m \rangle = m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} \quad (62)$$

$$\langle n', m' | \hat{a} J_+ | n, m \rangle = \sqrt{n_1} \sqrt{j(j+1) - m_1(m_1+1)} \delta_{n'n} \delta_{m'm} \quad (63)$$

$$\langle n', m' | \hat{a}^\dagger J_- | n, m \rangle = \sqrt{n_1+1} \sqrt{j(j+1) - m_1(m_1-1)} \delta_{n'n} \delta_{m'm} \quad (64)$$

Ahora podemos escribir el valor esperado de nuestro Hamiltoniano

$$\begin{aligned} \langle n', m' | \hat{H}_{TC} | n, m \rangle &= \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} n_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm} + 4\epsilon(j + m_1 \delta_{n'n} \delta_{m'm}) \\ &+ \frac{2g}{\sqrt{N}} (\sqrt{n_1} \sqrt{j(j+1) - m_1(m_1+1)} \delta_{n'n} \delta_{m'm} \\ &+ \sqrt{n_1+1} \sqrt{j(j+1) - m_1(m_1-1)} \delta_{n'n} \delta_{m'm}) \end{aligned} \quad (65)$$

De esta manera será más fácil construir la matriz Hamiltoniana en nuestro programa y finalmente diagonalizarla. Cabe destacar que en nuestra base estamos representando al número de fotones en términos del número de excitaciones, ya que con esto se toma en cuenta esta cantidad conservada. Entonces, será necesario representar a número de excitaciones  $\hat{N}_{exc} = \hat{a}^\dagger \hat{a} + 4\epsilon(j + J_z)$  en términos de sus eigenvalores. Tomando en cuenta que esta es una cantidad conservada, podemos escribir lo siguiente:

$$\hat{N}_{exc}|E_n\rangle = \lambda|E_n\rangle \quad (66)$$

Por los que podremos reescribir el operador de número de excitaciones en términos de sus valores propios como:

$$\lambda = n + m + j \quad (67)$$

Y finalmente de está relación podremos despejar al número de fotones en términos del número de excitaciones a  $n = \lambda - (m + j)$ .

### B. Evolución paramétrica de niveles energéticos

A continuación se mostrará un un análisis para comparar que los modos resultantes del sistema de dos niveles de los polaritones en función de la desintonización, coinciden para el caso de en el que tendremos un solo átomo y una excitación en nuestro Hamiltoniano generalizado de T-C.

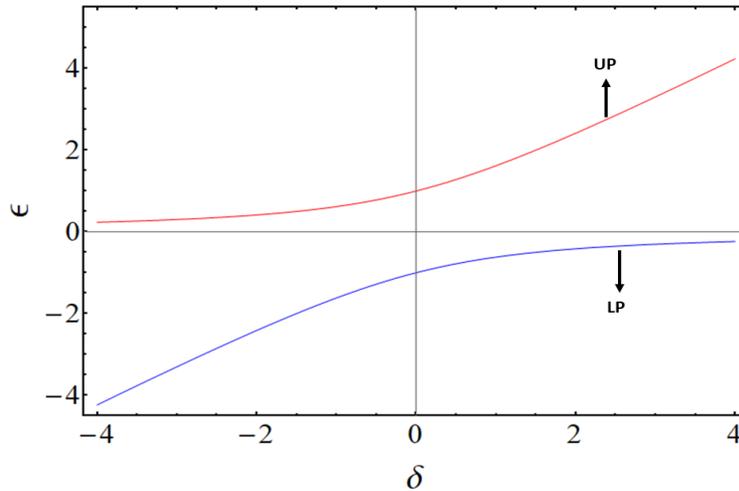


Figura 7: Modos resultantes del sistema de dos niveles de los polaritones superior (UP) e inferior (LP) como función de la desintonización de luz-materia.

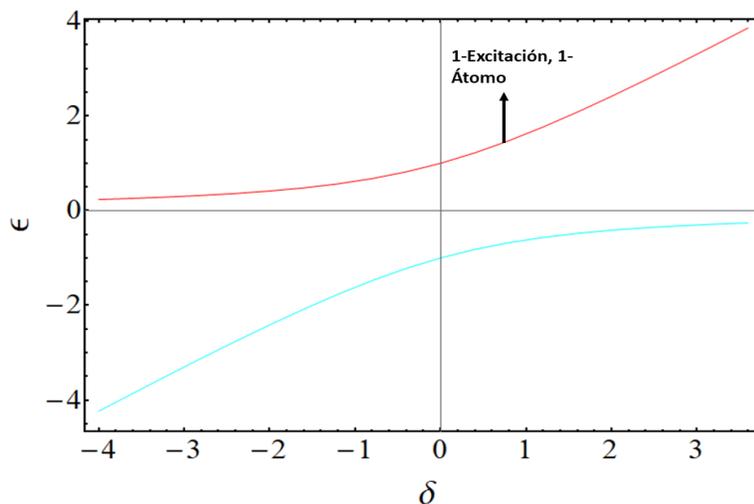


Figura 8: Eigenenergías para el caso más simple de 1 un átomo y 1 excitación de los polaritones superior (línea roja) e inferior (línea azul claro) como función de la desintonización de luz-materia, resultante de la diagonalización del modelo de T-C.

Como podemos apreciar al comparar el caso de los modos resultantes del sistema de dos niveles de los polaritones (Fig. ??) con el caso más simple de 1 átomo y 1 excitación (Fig. ??), podemos concluir que coinciden perfectamente, tal como se puede apreciar en la Fig. 9:

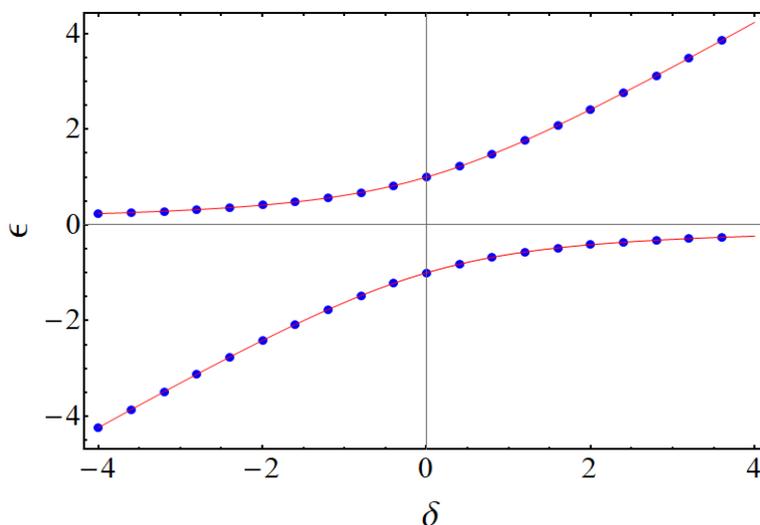


Figura 9: Es este caso las líneas rojas sólidas representan los modos resultantes del sistema de dos niveles de los polaritones y los puntos azules representan el caso con una excitación y un átomo en nuestro modelo generalizado de T-C.

A continuación mostraremos la evolución paramétrica de los niveles energéticos al aumentar el número de excitaciones. Para este análisis se tomo un número fijo de átomos  $j = 5$ , un acoplamiento de 1eV y se consideraron un número de excitaciones desde 0 hasta 10. Cabe destacar que aumentar el número de átomos sólo cambia el número de niveles de energía que tendremos. Antes de entrar por completo al análisis comprobaremos existencia de los  $N + 1$  estados de nuestros diferentes niveles de energía.

Consideremos los siguientes valores para el caso de una sola excitación, se espera tener 2 estados para nuestros diferentes niveles de energía. Si  $\lambda = 1$ ,  $j = 5$  y  $n = 0$ , de la ecuación (73), obtendremos que

$$1 = 0 + m + 5 \rightarrow m = -4$$

Sustituyendo estos valores en  $|n, m\rangle$ , obtendremos nuestro primer estado

$$|0, -4\rangle \tag{68}$$

análogamente para  $n = 1$

$$1 = 1 + m + 5 \rightarrow m = -5$$

$$|1, -5\rangle \tag{69}$$

Este análisis puede realizarse de forma inductiva para las siguientes excitaciones. Procediendo a mostrar la evolución paramétrica de los niveles energéticos, se podrá observa lo siguiente. Para cero excitaciones tenemos un sólo estado dado por el estado de excitón (que corresponde a la ausencia de interacción radiación-materia), como se muestra en la Fig. 10. Al ir aumentando las excitaciones veremos los estados polaritónicos ir apareciendo (véase Figs. 11 a 20).

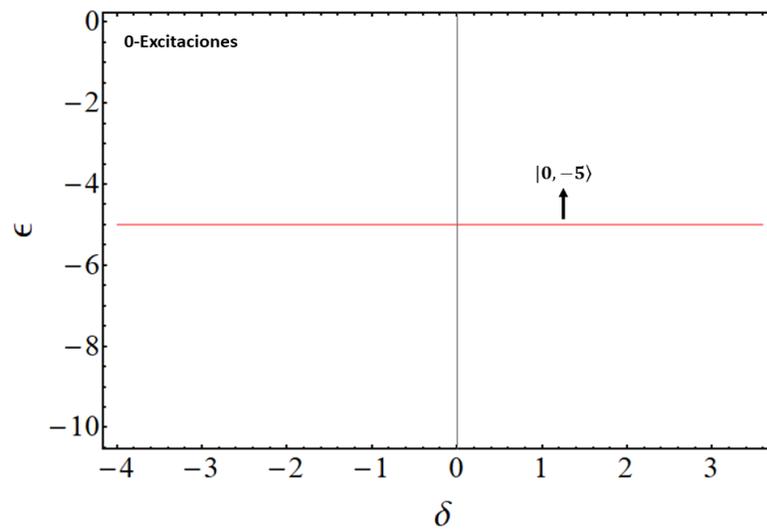


Figura 10: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{ meV}$  y 0 excitaciones. Para este caso debemos de tener 1 estado. Dicho estado, es nuestro estado base

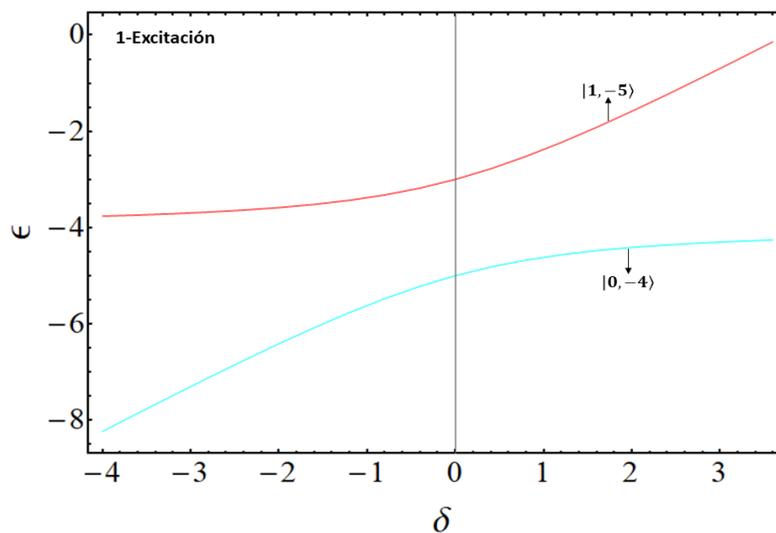


Figura 11: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{ meV}$  y 1 excitación. Aquí tendremos 2 estados.

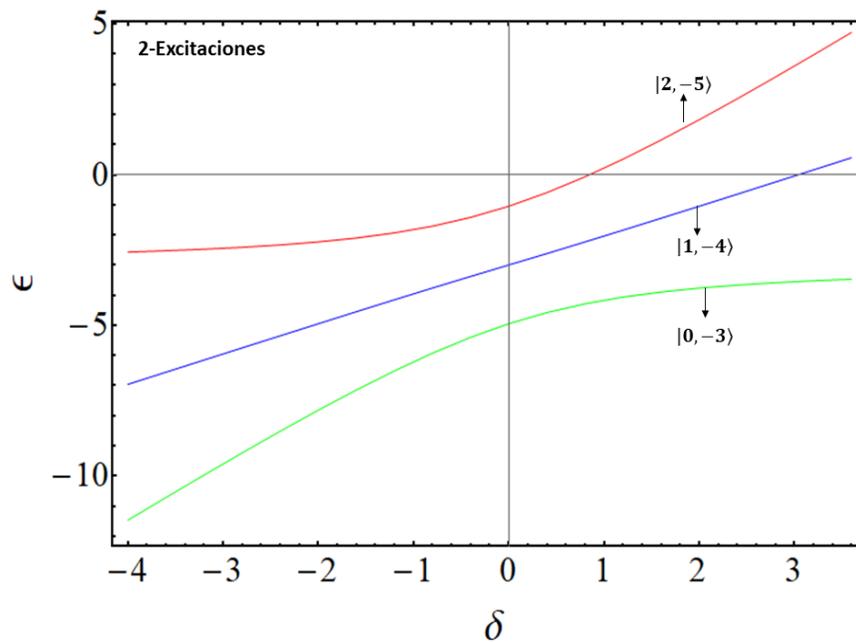


Figura 12: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 2 excitaciones. Para este caso debemos de tener 3 estados.

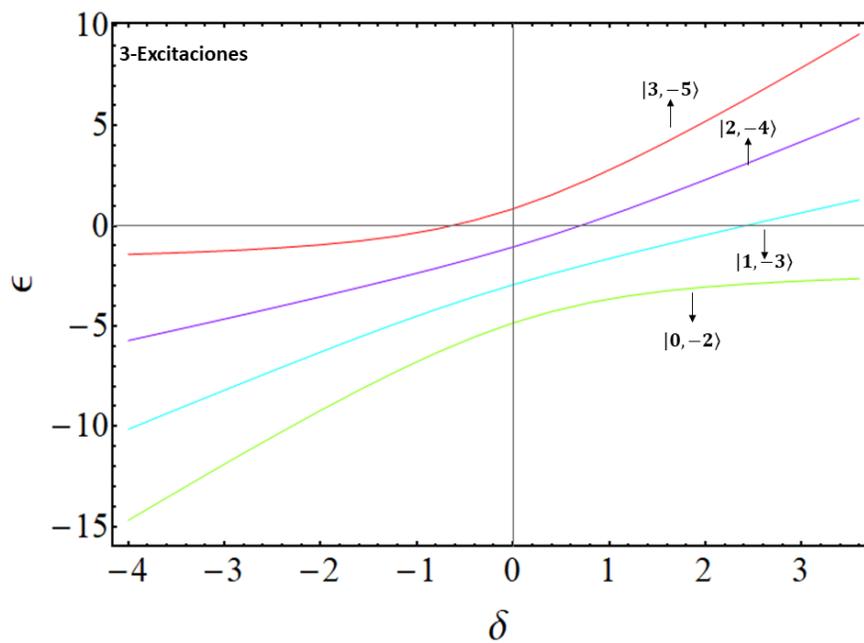


Figura 13: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 3 excitaciones. Para este caso debemos de tener 4 estados.

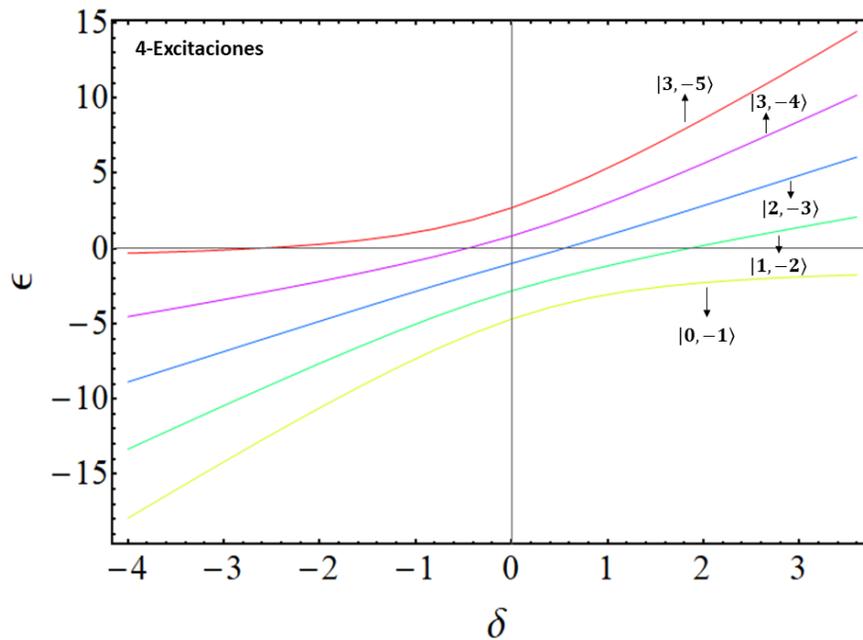


Figura 14: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 4 excitaciones. Para este caso debemos de tener 5 estados.

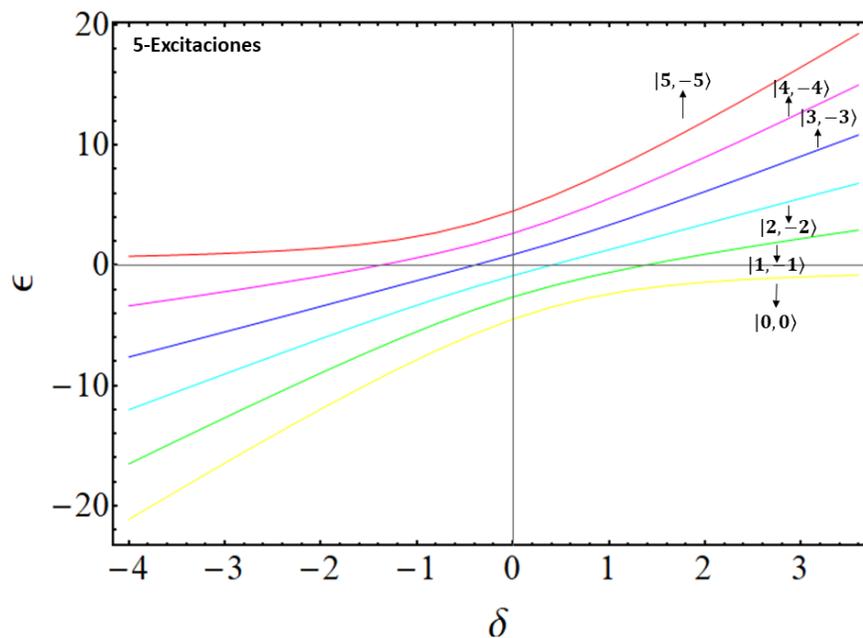


Figura 15: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 5 excitaciones. Para este caso debemos de tener 6 estados.

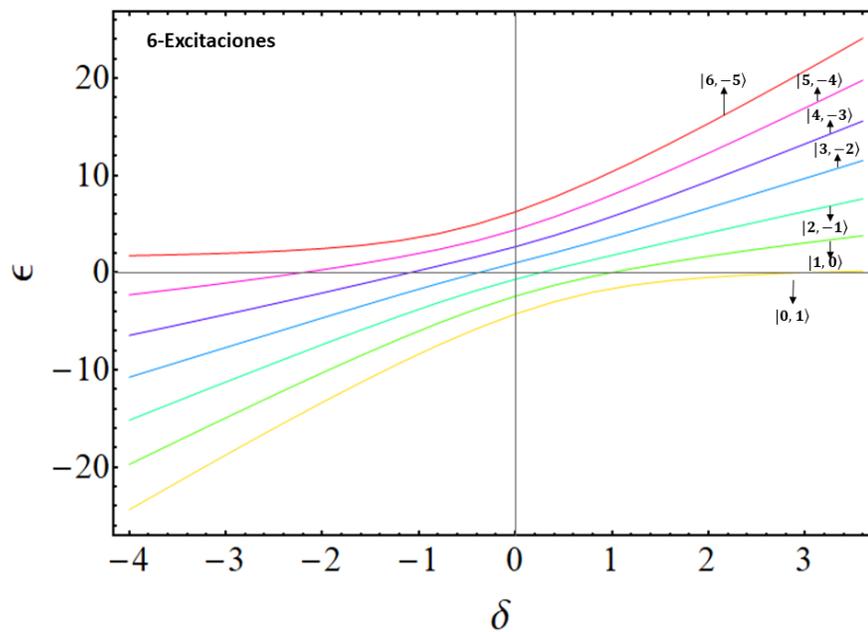


Figura 16: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 6 excitaciones. Para este caso debemos de tener 7 estados.

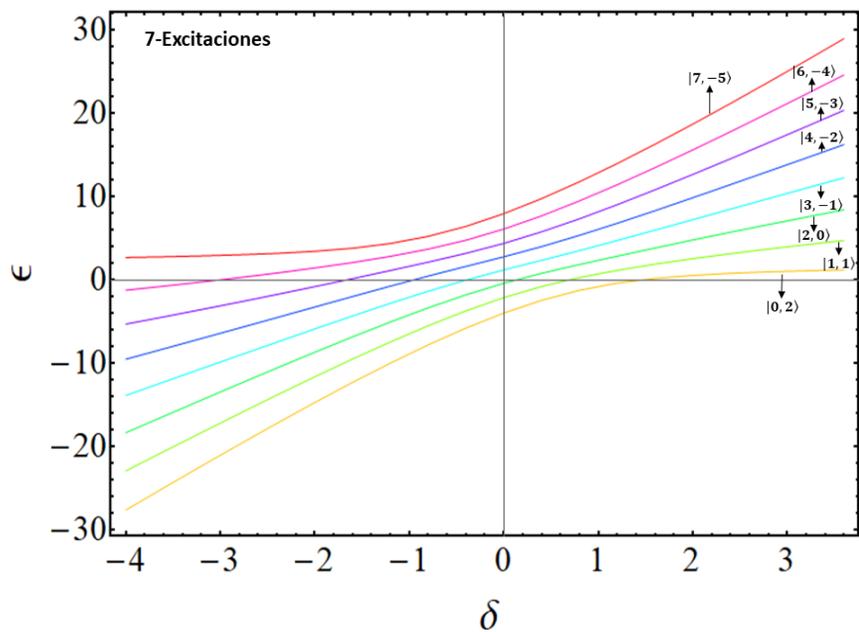


Figura 17: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 7 excitaciones. Para este caso debemos de tener 8 estados.

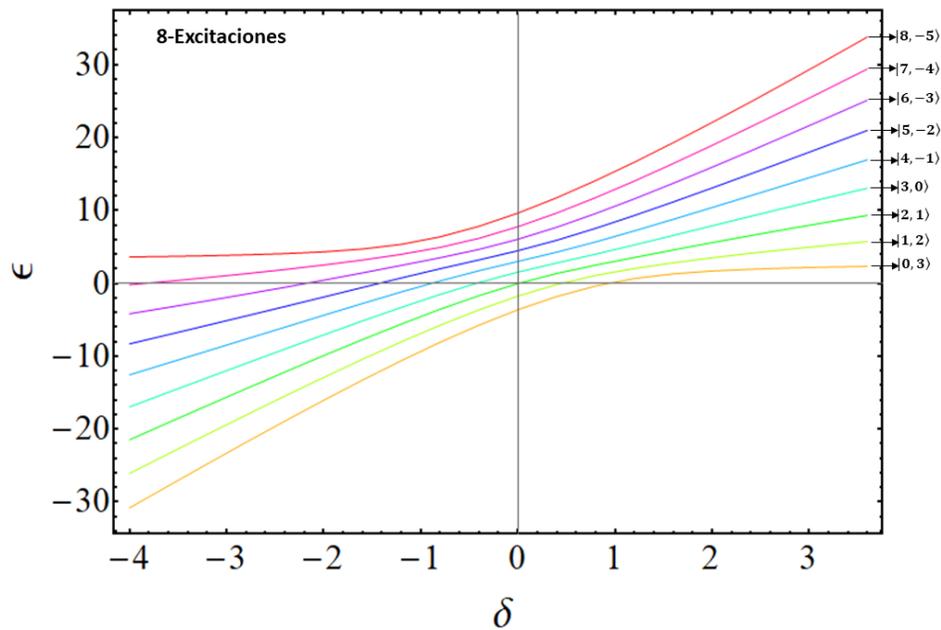


Figura 18: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 8 excitaciones. Para este caso debemos de tener 9 estados.

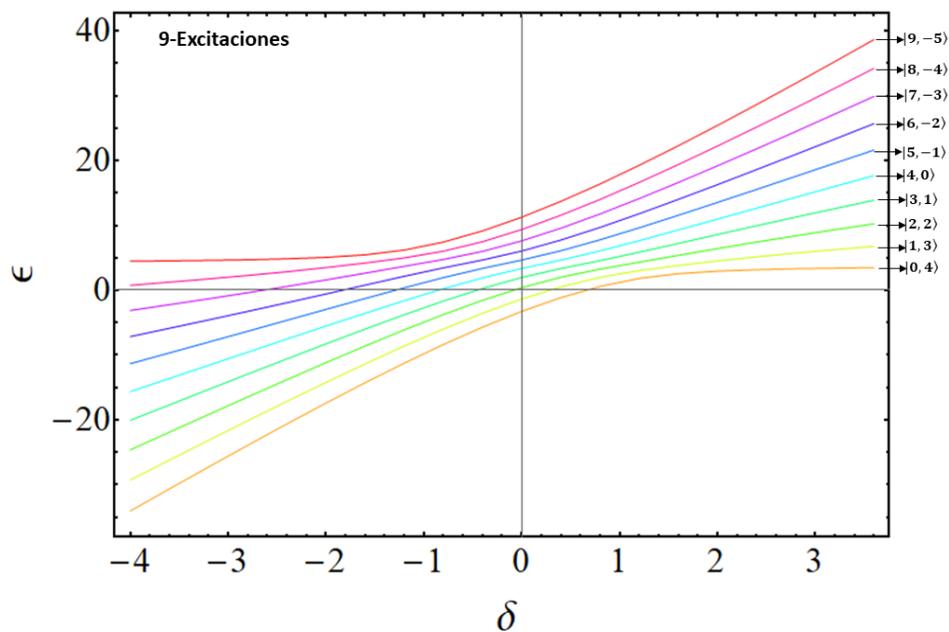


Figura 19: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 9 excitaciones. Para este caso debemos de tener 10 estados.

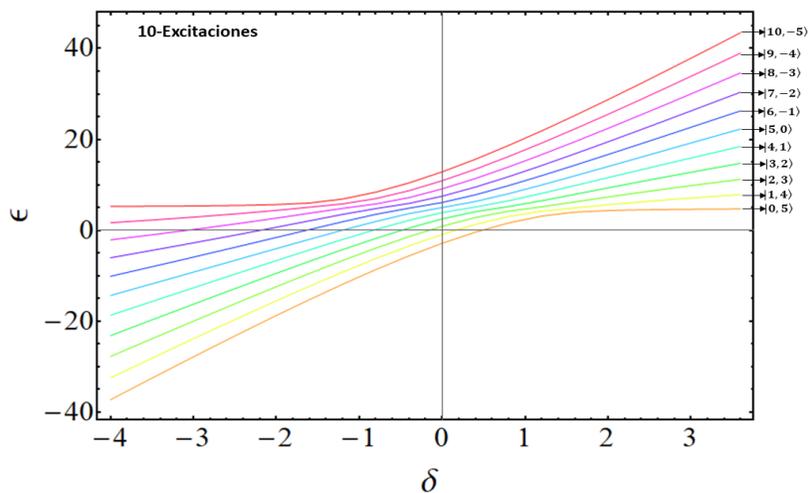


Figura 20: Gráfica de los eigenestados con 5 átomos fijos, acoplamiento luz-materia de  $1\text{meV}$  y 10 excitaciones. Para este caso debemos de tener 11 estados.

Como podemos apreciar, conforme el número de excitaciones va en aumento, la escala energética cambiará. Por otro lado, un resultado importante se obtiene al visualizar el espectro completo con todo el conjunto de todas las excitaciones. Para poder realizar un análisis más claro del espectro se tomarán en cuenta hasta 5 excitaciones. Después se mostrará el comportamiento del espectro al variar el acoplamiento, tomando en cuenta los valores de  $0\text{eV}$ ,  $0.1\text{eV}$ ,  $0.5\text{eV}$  hasta  $1\text{eV}$ . A continuación, el gráfico con el espectro de 5 excitaciones:

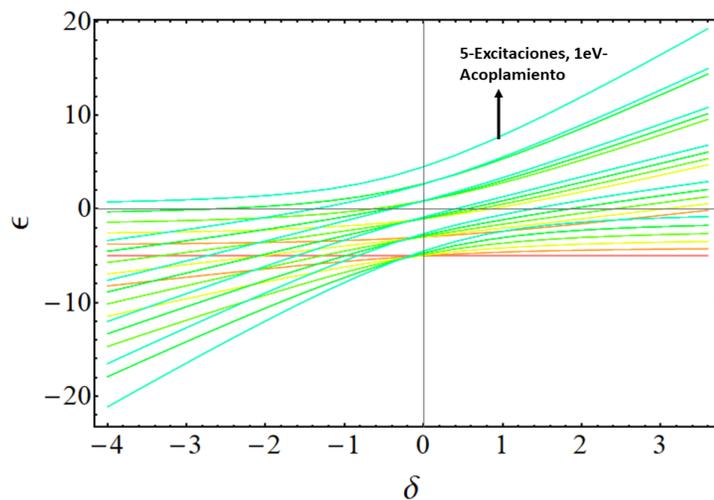


Figura 21: Espectro de 5 excitaciones.

Algo interesante que se puede observar en el gráfico es que en nuestro estado base hay un punto de transición hacia otro estado, en dicho punto el sistema se encuentra en resonancia, es decir, la desintonización es  $\delta = 0$  (esto se puede apreciar de mejor forma dentro de la Figura 22). Del lado derecho del punto de transición será un estado excitónico, mientras que en lado derecho será un estado fotónico. También esta transición de estados implicará que cambié la desintonización, lo que conlleva a que los polaritones cambien a estados de menor energía .

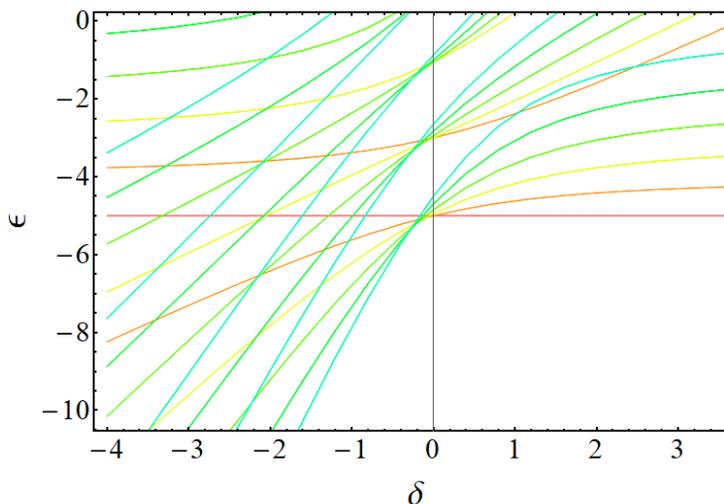


Figura 22: Espectro de 5 excitaciones reescalado.

Comenzando con el caso de acoplamiento  $0eV$ , tendremos lo siguiente:

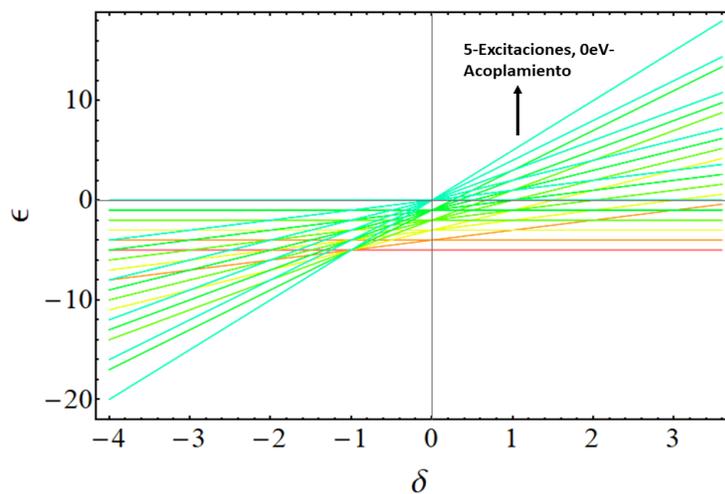


Figura 23: Espectro de 5 excitaciones con un acoplamiento  $0eV$ .

En este caso se obtiene un resultado esperado: en ausencia de interacción aparecen cruces entre los diferentes niveles de energía porque los estados de la luz y la materia no están acopladas y evolucionan independientemente. Todos estos cruces señalan degeneraciones (dentro del espacio de modos colectivos). En el caso en que aumentemos el acoplamiento a  $0.1eV$ , se obtiene lo que se muestra en la Fig. 24.

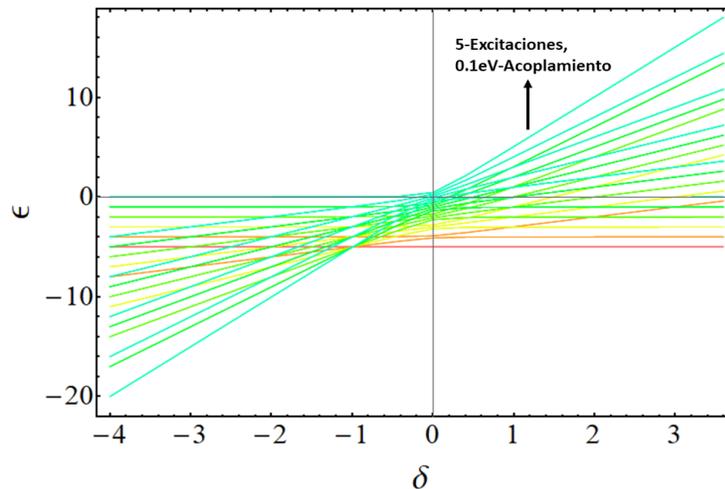


Figura 24: Espectro de 5 excitaciones con un acoplamiento  $0.1eV$ .

En este caso el acoplamiento es muy pequeño, el cruce de estados comienza a desaparecer y deja de existir degeneración. Pero estos efectos no son muy evidentes hasta aumentar el acoplamiento a  $0.5eV$ . Aquí tendremos lo que se muestra en la Fig. 25.

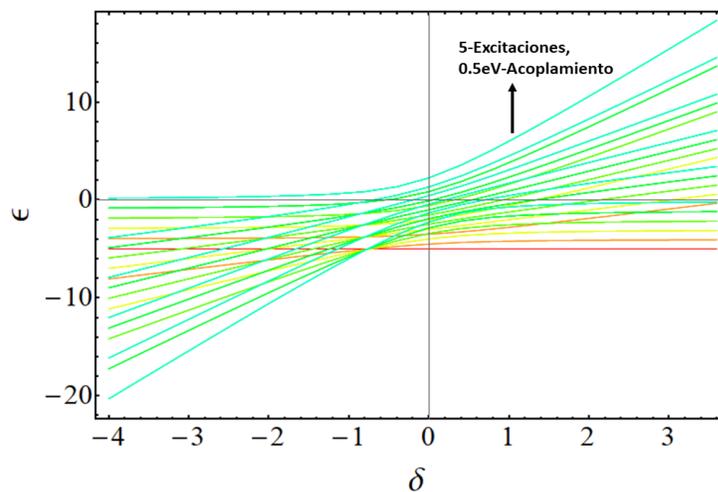


Figura 25: Espectro de 5 excitaciones con un acoplamiento  $0.5eV$ .

En este caso ocurre prácticamente lo mismo que para el acoplamiento de  $0.1eV$ , se aprecia de manera más clara la desaparición de los cruces y seguimos sin degeneración en la energía. En el caso de acoplamiento de  $1eV$  se puede apreciar en la Figura 21, aquí se observa la desaparición más clara de los cruces entre los estados. También el polaritón superior deja de tener cruces con otros estados. Cabe mencionar que la degeneración en la energía no aparece, a excepción de un acoplamiento cero, esto se debe a que el número de excitaciones no supera al número de átomos. Pero este análisis aun no está completo, pues será necesario considerar  $\lambda > n$ . A continuación se mostrará el espectro para 10 excitaciones.

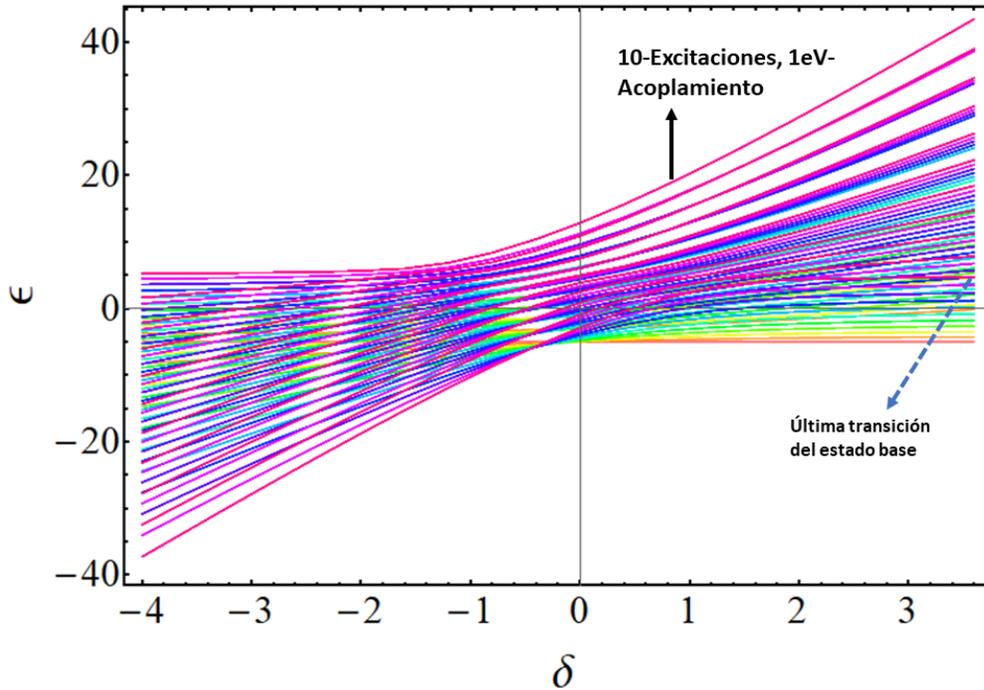


Figura 26: Espectro del conjunto de 10 excitaciones.

En este caso los cruces en el polaritón superior desaparecen totalmente. Además existe degeneración en la energía, aunque esta degeneración no es tan trivial y surge gracias a nuevos cruces entre los estados, para este caso se pudieron encontrar 4 estados degenerados.

## V. TRABAJO FUTURO: HAMILTONIANO DE TAVIS-CUMMINGS-HOLSTEIN

Como hemos podido apreciar, existen diversos modelos que nos ayudan a estudiar el comportamiento de polaritones. El modelo de Jaynes-Cummings nos ayuda a describir el acoplamiento

fuerte entre luz y materia. Ahora, si tomamos en cuenta el acoplamiento fuerte colectivo de moléculas en una microcavidad plana, este se describirá con el modelo de Tavis-Cummings generalizado. Como sabe estos modelos son de dos niveles y describen a los polaritones dentro de materiales orgánicos. Pero de cierta forma la información que obtenemos está incompleta, debido a que en estos materiales orgánicos el comportamiento se vuelve mas complicado, siendo específicos, sus espectros de emisión y de absorción dependen de otros grados de libertad internos del sistema. Por lo que dejan de ser sistemas de dos niveles [6, 41]. Existen varios procesos fotofísicos que causan este comportamiento de semiconductores orgánicos, por ejemplo los modos vibracionales. Estos modos provienen de la superficie de energía potencial de las coordenadas nucleares [6]. Consideremos las energías cinética y potencial tanto de los electrones como de los núcleos, la interacción entre ellos y su acoplamiento con la luz. Ahora, consideraremos por simplicidad una cavidad con un modo y un modelo de una sola molécula:

$$\hat{\mathcal{H}} = T_e(\hat{p}_e) + T_n(\hat{p}_n) + V(\hat{r}_e, \hat{r}_n) + \omega_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + \mathbf{d}(\hat{p}_e, \hat{p}_n) \cdot \mathbf{A}_0(\hat{a} + \hat{a}^\dagger) \quad (70)$$

El potencial  $+V(\hat{r}_e, \hat{r}_n)$  incluye interacciones internucleares y electrón-nuclear. El acoplamiento luz-materia también implica que el elemento del dipolo incluya tanto operadores electrónicos como nucleares. La constante  $\mathbf{A}_0$  describe la intensidad de campo de un solo fotón. En este caso vamos a considerar el acoplamiento fuerte entre luz-materia en la aproximación de Born-Oppenheimer, en el límite cuando el acoplamiento luz-materia es la escala más grande es parte de los grados de libertad rápidos [44]. En esta aproximación, la parte electrónica y óptica del Hamiltoniano se diagonalizan en una coordenada nuclear dada, dando superficies de energía potencial polaritónica [6]. También podemos aproximar a la energía potencial nuclear de forma cuadrática. y suponiendo que el elemento del dipolo depende solo del estado electrónico, tendremos la siguiente relación:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{TCH} = \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} + 4\epsilon(j + J_z) + \frac{2g}{\sqrt{N}} (\hat{a} \hat{b}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{b}) \\ + \sum_n \omega_v [\hat{c}_n^\dagger \hat{c}_n - \lambda_0 \sigma_n^+ \sigma_n^- (\hat{c}_n^\dagger + \hat{c}_n)] \end{aligned} \quad (71)$$

Este Hamiltoniano es el de Tavis-Cummings-Holstein (T-C-H) [45]. Este modelo describe un modo vibracional de un oscilador armónico para cada molécula acoplada con el estado electrónico. Constituye el siguiente paso más simple para tratar el problema de excitones-polaritones en materiales orgánicos, pues los grados vibracionales no están presentes en el caso de los semiconductores inorgánicos [46]. En este modelo podemos observar que aparece un nuevo término dónde cada

molécula está descrita por dos estados electrónicos (los operadores de Pauli  $\sigma_n$ ) y un grado de libertad (armónico) vibracional. El término final en el Hamiltoniano refleja el desplazamiento entre la coordenada vibratoria óptima en el estado fundamental electrónico y en los estados electrónicos excitados. El parámetro  $\lambda_0$  está relacionado con el parámetro de Huang-Rhys  $S$  mediante la relación  $S = \lambda_0^2$ , que puede entenderse como el número típico de cuantos vibracionales excitados en una transición electrónica de la molécula (en el caso de la ausencia del acoplamiento fuerte con la luz). El parámetro de Huang-Rhys es la medida de la fuerza del nivel de interacción entre los estados excitados y fundamentales de los electrones [47]. También este mismo parámetro  $\lambda_0$  está relacionado con el cambio de Stokes entre el pico del espectro de absorción y del espectro de emisión (en el caso de la ausencia del acoplamiento fuerte con la luz). Aproximadamente, las escalas de Stokes cambian como  $\omega_v \lambda_0^2$ .

## VI. CONCLUSIONES

En primer lugar, se estudió cómo es que se puede llegar del Hamiltoniano de excitones de Frenkel en semiconductores orgánicos a un Hamiltoniano simple de interacción radiación luz-materia donde se estudiaron sus grados de libertad colectivos. Los modelos de grados de libertad colectivos son importantes porque permiten tener una primera aproximación al espectro de los polaritones. Después se estudió la evolución paramétrica del espectro como función de la desintonización para distintos valores del número de excitaciones y del acoplamiento. Se observó que con un número dado de excitaciones tendremos la aparición de más ramas polaritónicas, las cuales se relacionarán con la dimensión de nuestro Hamiltoniano de T-C en términos de la base de momento angular. Al considerar todas las excitaciones posibles en conjunto observamos que al cambiar la desintonización, los estados con mayor número de excitaciones resultan ser de menor energía, promoviendo una transición para el polaritón inferior. Dado que el número de excitaciones se conserva, esta transición no es posible físicamente. Sin embargo, hacia el acoplamiento ultra fuerte, cuando la aproximación de onda rotante deja de ser válida, el número de excitaciones ya no es una cantidad conservada, por lo que esta transición es posible. Esa es una línea futura de estudio. Por otro lado, esto no ocurre para el polaritón superior: este siempre está determinado por el número máximo de excitaciones. Adicionalmente, como trabajo futuro se piensa estudiar el espectro del Hamiltoniano de Tavis-Cummings-Holstein y comparar nuestros resultados para la evolución paramétrica

de niveles en presencia de un nuevo grado de libertad.

---

- [1] WY Liang. Excitons. *Physics Education*, 5(4):226, 1970.
- [2] Konstantinos Lagoudakis. *The physics of exciton-polariton condensates*. EPFL Press, 2019.
- [3] David W Snoke and Jonathan Keeling. The new era of polariton condensates. *Phys. Today*, 70(10):54–60, 2017.
- [4] Gabriel Christmann, Raphaël Butté, Eric Feltn, Jean-Francois Carlin, and Nicolas Grandjean. Room temperature polariton lasing in a gan/ algan multiple quantum well microcavity. *Applied Physics Letters*, 93(5):051102, 2008.
- [5] SI Pekar. The theory of electromagnetic waves in a crystal in which excitons are produced. *Sov. Phys. JETP*, 6(4):785, 1958.
- [6] 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.
- [7] DS Dovzhenko, SV Ryabchuk, Yu P Rakovich, and IR Nabiev. Light–matter interaction in the strong coupling regime: configurations, conditions, and applications. *Nanoscale*, 10(8):3589–3605, 2018.
- [8] Päivi Törmä and William L Barnes. Strong coupling between surface plasmon polaritons and emitters: a review. *Reports on Progress in Physics*, 78(1):013901, 2014.
- [9] Peter Littlewood. Condensates made of light. *Science*, 316(5827):989–990, 2007.
- [10] V Agranovich and GF Bassani. *Thin Films and Nanostructures (Electronic Excitations in Organic Based Nanostructures, Volume 31)*. New York: Elsevier Academic Press, 2003.
- [11] Gregory H Wannier. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals. *Physical Review*, 52(3):191, 1937.
- [12] YI Fenkel. Excitons. *Phys. Rev.*, 37:17, 1931.
- [13] Robert Seiple Knox. Theory of excitons. *Solid State Phys.*, 5, 1963.
- [14] Hermann Haken. *Quantum field theory of solids, an introduction*. 1976.
- [15] 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.
- [16] Davide Comoretto et al. *Organic and hybrid photonic crystals*. Springer, 2015.

- [17] DG Lidzey, DDC Bradley, T Virgili, A Armitage, MS Skolnick, and S Walker. Room temperature polariton emission from strongly coupled organic semiconductor microcavities. *Physical review letters*, 82(16):3316, 1999.
- [18] 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.
- [19] Russell J Holmes and Stephen R Forrest. Exciton-photon coupling in organic materials with large intersystem crossing rates and strong excited-state molecular relaxation. *Physical Review B*, 71(23):235203, 2005.
- [20] RF Oulton, N Takada, J Koe, PN Stavrinou, and DDC Bradley. Strong coupling in organic semiconductor microcavities. *Semiconductor science and technology*, 18(10):S419, 2003.
- [21] Stephane Kena-Cohen and Stephen R Forrest. Giant davydov splitting of the lower polariton branch in a polycrystalline tetracene microcavity. *Physical Review B*, 77(7):073205, 2008.
- [22] S Kéna-Cohen, M Davanço, and SR Forrest. Strong exciton-photon coupling in an organic single crystal microcavity. *Physical review letters*, 101(11):116401, 2008.
- [23] 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.
- [24] 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.
- [25] Stephen R Forrest. The path to ubiquitous and low-cost organic electronic appliances on plastic. *Nature*, 428(6986):911–918, 2004.
- [26] C-C Wu, Y-T Lin, K-T Wong, R-T Chen, and Y-Y Chien. Efficient organic blue-light-emitting devices with double confinement on terfluorenes with ambipolar carrier transport properties. *Advanced Materials*, 16(1):61–65, 2004.
- [27] Tamsin Cookson, Kyriacos Georgiou, Anton Zasedatelev, Richard T Grant, Tersilla Virgili, Marco Cavazzini, Francesco Galeotti, Caspar Clark, Natalia G Berloff, David G Lidzey, et al. A yellow polariton condensate in a dye filled microcavity. *Advanced Optical Materials*, 5(18):1700203, 2017.
- [28] Richard T Grant, Paolo Michetti, Andrew J Musser, Pascal Gregoire, Tersilla Virgili, Eleonora Vella, Marco Cavazzini, Kyriacos Georgiou, Francesco Galeotti, Caspar Clark, et al. Efficient radiative pumping of polaritons in a strongly coupled microcavity by a fluorescent molecular dye. *Advanced*

- Optical Materials*, 4(10):1615–1623, 2016.
- [29] William Barford. *Electronic and optical properties of conjugated polymers*, volume 159. Oxford University Press, 2013.
- [30] Johannes D Plumhof, Thilo Stöferle, Lijian Mai, Ullrich Scherf, and Rainer F Mahrt. Room-temperature bose–einstein condensation of cavity exciton–polaritons in a polymer. *Nature materials*, 13(3):247–252, 2014.
- [31] Andrew B Cubitt, Roger Heim, Stephen R Adams, Aileen E Boyd, Larry A Gross, and Roger Y Tsien. Understanding, improving and using green fluorescent proteins. *Trends in biochemical sciences*, 20(11):448–455, 1995.
- [32] Martin Pope, Charles E Swenberg, et al. *Electronic processes in organic crystals and polymers*, volume 39. Oxford University Press on Demand, 1999.
- [33] Edward M Purcell, Henry Cutler Torrey, and Robert V Pound. Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid. *Physical review*, 69(1-2):37, 1946.
- [34] Edgar Armando, Cerda Méndez, Raúl Eduardo, and Balderas Navarro. Fabricación y caracterización de microcavidades ópticas de silicio poroso Fabricación y caracterización de microcavidades ópticas de silicio poroso . 2019.
- [35] Arash Rahimi-Iman. *Polariton Physics: From Dynamic Bose–Einstein Condensates in Strongly-Coupled Light–Matter Systems to Polariton Lasers*, volume 229. Springer Nature, 2020.
- [36] JJ Hopfield. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals. *Physical Review*, 112(5):1555, 1958.
- [37] VM Agranovich and BS Tshich. Collective properties of frenkel excitons. *Sov. Phys. JETP*, 26(1):104–112, 1968.
- [38] Nikolai Nikolaevich Bogoliubov. *Lectures on quantum statistics*, volume 2. CRC Press, 1970.
- [39] ET Jaynes and FW Cummings. *Ieee* 51, 89 (1963). *ISI*, 1963.
- [40] Rasoul Alaee, Carsten Rockstuhl, and Ivan Fernandez-Corbaton. An electromagnetic multipole expansion beyond the long-wavelength approximation. *Optics Communications*, 407:17–21, 2018.
- [41] M Ahsan Zeb, Peter G Kirton, and Jonathan Keeling. Exact states and spectra of vibrationally dressed polaritons. *ACS Photonics*, 5(1):249–257, 2018.
- [42] M. Bastarrachea. *Fenómenos críticos en sistemas átomo-campo*. PhD thesis, Universidad Nacional Autónoma de México, CDMX, 2016.

- [43] T Holstein and H I Primakoff. Field dependence of the intrinsic domain magnetization of a ferromagnet. *Physical Review*, 58(12):1098, 1940.
- [44] Javier Galego, Francisco J Garcia-Vidal, and Johannes Feist. Cavity-induced modifications of molecular structure in the strong-coupling regime. *Physical Review X*, 5(4):041022, 2015.
- [45] Justyna A Ćwik, Sahinur Reja, Peter B Littlewood, and Jonathan Keeling. Polariton condensation with saturable molecules dressed by vibrational modes. *EPL (Europhysics Letters)*, 105(4):47009, 2014.
- [46] Raphael F Ribeiro, Luis A Martínez-Martínez, Matthew Du, Jorge Campos-Gonzalez-Angulo, and Joel Yuen-Zhou. Polariton chemistry: controlling molecular dynamics with optical cavities. *Chemical science*, 9(30):6325–6339, 2018.
- [47] Vidyasagar Sriramoju and Robert R Alfano. Laser tissue welding analyzed using fluorescence, stokes shift spectroscopy, and Huang-Rhys parameter. *Journal of biophotonics*, 5(2):185–193, 2012.