



# BENEMÉRITA UNIVERSIDAD AUTÓNOMA DE PUEBLA

INSTITUTO DE FÍSICA "LUIS RIVERA TERRAZAS"

**"DINÁMICA CUÁNTICA Y OSCILACIONES DE  
RABI EN EL MODELO DE HOLSTEIN-TAVIS-  
CUMMINGS"**

**TESIS**

QUE PARA OBTENER EL GRADO DE

**MAESTRÍA EN CIENCIAS  
(FÍSICA)**

PRESENTA

**ANA FERNANDA HERNÁNDEZ BRAVO**

DIRECTOR DE TESIS

**DR. JUAN MAURICIO TORRES GONZÁLEZ**

No. de CVU: 1224913

**ENERO DE 2025**

Universidad Autónoma de Puebla  
Instituto de Física “Luis Rivera Terrazas”

# Dinámica Cuántica y Oscilaciones de Rabi en el modelo de Holstein-Tavis-Cummings

Tesis presentada por

**Ana Fernanda Hernández Bravo**

para obtener el grado de

**Maestría en Ciencias  
(Física)**

Dirigida por

**Dr. Juan Mauricio Torres González**

Puebla, México

Enero 2025

©2025 - Ana Fernanda Hernández Bravo

Derechos Reservados

# Agradecimientos

Agradezco profundamente al Instituto de Física "Ing. Luis Rivera Terrazas" por dejarme ser parte activa y proporcionarme las herramientas y la motivación para iniciarme en la investigación científica, también al CONAHCYT por otorgarme la beca que me ha permitido poder dedicar el tiempo en esta labor.

Es un honor para mí expresar mi gratitud hacia todas aquellas personas que contribuyeron de manera significativa al desarrollo de este trabajo, tanto en el ámbito académico como personal. Sobre todo a mi asesor, el Dr. Torres, muchas gracias por su infinita paciencia y comprensión, no solo ha sido mi guía en este camino, también ha sido mi ejemplo a seguir.

A mi esposo, Jorge que ha acompañado mi trabajo y me ha motivado todo el tiempo a no rendirme y a seguir persiguiendo mis sueños a pesar de que las cosas se ponen difíciles.

A mi mami, que nunca pierde la fé en mi, que solo por ti he llegado tan lejos.

A mis amigos, Nelson y Alejandro, no tengo palabras para expresarles lo mucho que me han ayudado a crecer, que han estado ahí para escucharme y aprender juntos a lo largo de esta etapa. Y a Roberto, Cari, Marcos, Adrian y Temmy que han estado pendientes de mi y mi bienestar regalándome su tiempo y su cariño; Gracias a todos.



*Dedicado a Jorge, mi compaero de vida*



# Dinámica Cuántica y Oscilaciones de Rabi en el modelo de Holstein-Tavis-Cummings

## Resumen

En este trabajo nos centramos en el estudio de una molécula con dos estados electrónicos accesibles y un único modo vibracional interactuando con un modo del campo electromagnético. Realizamos una revisión del estudio de la interacción entre radiación y materia, junto con los conceptos y herramientas necesarios para comprender la dinámica del sistema. Además, profundizamos en el modelo paradigmático de Jaynes-Cummings (JC), específicamente en el caso no resonante.

Presentamos el hamiltoniano que describe la interacción entre la molécula y la cavidad, conocido como el hamiltoniano de Holstein-Tavis-Cummings (HTC), y explicamos el origen de los términos que lo componen. Al aplicar un desplazamiento unitario del modo vibracional, observamos una estructura similar al modelo de Rabi, que mediante una aproximación de onda rotante se reduce a una colección de modelos de Jaynes-Cummings fuera de resonancia organizados por bloques, en donde los estados vestidos del JC fotoelectrónico toman el rol de sistemas de dos niveles acoplándose al modo vibracional en un nuevo JC. Derivamos un hamiltoniano efectivo que describe la dinámica del sistema y exploramos los valores de los parámetros donde ocurre el fenómeno de colapso y resurgimiento, considerando también diferentes casos de condiciones iniciales.

Finalmente, analizamos distintas variables dinámicas que nos permiten profundizar en el estudio de las propiedades del sistema. Encontramos estados particulares que presentan entrelazamiento máximo tripartita, aportando nuevas perspectivas sobre las posibilidades de interacción cuántica entre moléculas y cavidades.

# Quantum Dynamics and Rabi Oscillations in the Holstein-Tavis-Cummings Model

## Abstract

In this work, we focus on the study of a molecule with two accessible electronic states and a single vibrational mode interacting with a mode of the electromagnetic field. We provide an overview of the interaction between radiation and matter, along with the concepts and tools necessary to understand the dynamics of the system. Additionally, we delve into the paradigmatic Jaynes-Cummings model, specifically in the non-resonant case.

We present the Hamiltonian describing the interaction between the molecule and the cavity, known as the Holstein-Tavis-Cummings Hamiltonian, and explain the origin of its terms. By applying a vibrational mode unitary displacement, we observe a structure similar to the Rabi model, which, through a rotating wave approximation, reduces to a collection of off-resonant Jaynes-Cummings models organized into blocks where the photoelectronic JC dressed states play the role of two level systems coupled to the vibrational mode in a new JC. We derive an effective Hamiltonian that describes the system's dynamics and explore the parameter values where the collapse and revival phenomenon occurs, also considering different initial condition cases.

Finally, we analyze various dynamic variables that allow us to deepen the study of the system's properties. We identify specific states exhibiting maximum tripartite entanglement, providing new perspectives on the potential for quantum interaction between molecules and cavities.

## Participación en eventos

- Poster: Modelo generalizado de Jaynes-Cummings para una molécula en una cavidad. Ana Fernanda Hernandez Bravo, Juan Mauricio Torres González, Reunión Anual DICU-DFAM, UNAM, CDMX, México (2024).
- Poster: Modelo de Holstein-Cummings para una molécula en una cavidad Ana Fernanda Hernandez Bravo, Juan Mauricio Torres González, Workshop on Open Quantum Systems and Quantum Information, BUAP, Puebla, Mexico (2024).



# Contenido

<b>1</b>	<b>Introducción</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Interacción Radiación-Materia</b>	<b>5</b>
2.1	Modelo semiclásico . . . . .	5
2.1.1	Construcción del hamiltoniano . . . . .	5
2.1.2	Hamiltoniano de un átomo en un campo electromagnético . . . . .	7
2.1.3	Modelo de Rabi . . . . .	8
2.2	Hacia el modelo de Rabi cuántico . . . . .	13
2.2.1	Cuantización del campo electromagnético . . . . .	13
2.2.2	Oscilador armónico cuántico simple . . . . .	15
2.2.3	Estados coherentes . . . . .	17
2.2.4	Función de Husimi . . . . .	19
2.2.5	Campo multimodal . . . . .	21
<b>3</b>	<b>Modelo de Jaynes-Cummings</b>	<b>23</b>
3.1	Modelo de Rabi cuántico . . . . .	23
3.1.1	Diagonalización por bloques . . . . .	28
3.2	Dinámica del hamiltoniano de Jaynes-Cummings . . . . .	29
3.2.1	Evolución temporal . . . . .	30
3.2.2	Oscilaciones de Rabi . . . . .	31
3.2.3	Fidelidad . . . . .	33
3.2.4	Aproximación a estados coherentes . . . . .	36
3.2.5	Función $Q$ para el modelo de JC . . . . .	39
<b>4</b>	<b>Modelo de Holstein-Tavis-Cummings</b>	<b>41</b>
4.1	Interacción molécula-cavidad . . . . .	41
4.2	Hamiltoniano del modelo HTC . . . . .	44
4.3	Hamiltoniano de Holstein-Tavis-Cummings para una molécula . . . . .	48
4.3.1	Aproximación a un modelo de Rabi . . . . .	50
4.4	Hamiltoniano efectivo . . . . .	51
4.5	Validez de la aproximación . . . . .	53

---

<b>5</b>	<b>Dinámica del modelo HTC</b>	<b>55</b>
5.1	Evolución temporal . . . . .	55
5.2	Aproximación a estados coherentes fonónicos . . . . .	57
5.3	Variables dinámicas estudiadas . . . . .	57
5.3.1	Un fonón en un bloque polaritónico . . . . .	58
5.3.2	Estado coherente fonónico en un bloque polaritónico . . . . .	59
5.3.3	Tiempo de resurgimiento . . . . .	62
5.3.4	Estados coherentes fotónico y fonónico . . . . .	64
5.3.5	Función $Q$ del modo óptico . . . . .	66
5.4	Entrelazamiento . . . . .	67
5.4.1	Pureza como medida de entrelazamiento . . . . .	67
5.4.2	Entrelazamiento tripartita y estados GHZ . . . . .	70
<b>6</b>	<b>Conclusiones</b>	<b>73</b>
	<b>Bibliografía</b>	<b>75</b>

# Capítulo 1

## Introducción

La electrodinámica cuántica (QED) es una teoría que tiene como objetivo el explicar la interacción entre luz y materia[1] mediante un intercambio de fotones a escalas en donde los fenómenos cuánticos se vuelven importantes. Esta nos ayuda a describir sistemas como los átomos en cavidades que han tomado especial relevancia en años recientes debido al rápido crecimiento de la rama de información cuántica.

Históricamente en 1918, H. Weyl trató de unificar las teorías de la gravedad y electricidad mediante el principio de invarianza de norma, esto lo llevó a notar un acoplamiento entre la electricidad y la materia[2]. Años más adelante, en 1926 la teoría de la mecánica cuántica desarrollada por W. Heisenberg, E. Schrödinger y P. Dirac comenzó a tomar impulso pues era capaz de describir las interacciones entre los átomos, lo que significaba que el electromagnetismo desarrollado por Maxwell necesitaba ser actualizado para estar acorde a los nuevos principios de la mecánica cuántica[4]. Para el año 1929, la teoría de QED comenzaba a desarrollarse con el propósito de conciliar estas diferencias[1]. Este esfuerzo se unió a la visión de Dirac de que la teoría cuántica necesitaba incorporar los principios de la relatividad[5], dando inicio a la tarea de describir fenómenos como la dispersión de la luz por los átomos y las interacciones de electrones de altas energías en el espacio libre, tomando en cuenta la radiación cuantizada. A lo largo del siglo XX avances en estudios sobre espectroscopía, tecnologías como el máser y posteriormente el láser lograron que los físicos de la época fueran capaces de estudiar átomos aislados interactuando con luz de manera experimental, área de estudio que se conoce como óptica cuántica[3]. Para finales de 1940, en la búsqueda por mantener un control preciso sobre los estados atómicos y concentrar la atención en un espacio físico bien definido, sugirió la idea de confinar átomos dentro de

cavidades resonantes[2], lo que facilitaría su estudio, esta estrategia conllevó a la aparición de efectos cuánticos significativos que alteraron la dinámica del sistema. Esto, a su vez, dio origen a una rama especializada de QED conocida como Electrodinámica Cuántica de Cavidades (Cavity-QED), centrada en el estudio y comprensión de estos efectos. La tecnología necesaria para llevar a cabo esta investigación no se desarrolló hasta finales de la década de 1960[6]; el modelo ideal consistía en aislar un único átomo dentro de una cavidad que permitiera la interacción con un único modo del campo electromagnético.

El ejemplo más emblemático en sistemas de átomos en cavidades es el que consideraba un átomo de dos niveles en interacción con un modo del campo electromagnético. Este modelo es llamado Modelo de Jaynes-Cummings, fue introducido en 1963[7]. A pesar de ser un modelo relativamente simple, este llevó a resultados importantes sin una contraparte clásica como es el fenómeno de colapso y resurgimiento de oscilaciones de Rabi[8]; comprobaciones experimentales del modelo de JC se han hecho en algunos sistemas físicos, no sólo en átomos en cavidades. Como ejemplo se puede hacer mención de sistemas con trampas de iones[9], qubits superconductores[10] y otras configuraciones de Cavity-QED, lo que ha proporcionado una fuerte evidencia de las predicciones de este modelo ampliando nuestro entendimiento en sistemas cuánticos. Además, el modelo de JC ha encontrado una aplicación importante en cómputo cuántico a través de la compuerta Cirac-Zoller[9] propuesta en 1995, que consiste en utilizar las interacciones entre iones atrapados y pulsos láser para implementar un tipo de operación cuántica llamada CNOT (Controlled-NOT) que invierte el estado de uno de los iones dependiendo de cómo sea este respecto a un ion de control, resulta indispensable para conseguir un conjunto universal de compuertas para cómputo cuántico[11].

Por su éxito experimental el modelo de JC ha sido extendido y generalizado para considerar sistemas más complejos incluyendo átomos de más de dos niveles, cavidades multimodales, más de un átomo en la cavidad[12, 13], entre otros. Una de estas generalizaciones es el Modelo de Tavis-Cummings[14] (TC) que describe la interacción de  $N$  partículas de dos niveles con un modo del campo electromagnético cuantizado en resonancia. Estas extensiones han dado lugar a nuevas propuestas para el desarrollo de protocolos de cómputo e información cuántica. En el régimen de muchos fotones del estado coherente, se ha explotado el fenómeno de colapso y resurgimiento de oscilaciones de Rabi para diseñar propuestas de operaciones cuánticas entrelazadoras[15, 16], lo que nos resulta de particular interés, pues en este trabajo se pretende estudiar una extensión adicional al modelo que

describa la interacción molecular con un modo del campo electromagnético.

La extensión a sistemas moleculares resulta relevante, pues recientes investigaciones en el área experimental[17] han mostrado que el comportamiento cuántico no es exclusivo de los átomos en cavidades. Si se aísla una molécula dentro de una cavidad esta se convierte en un emisor cuántico, lo que significa que en teoría sería capaz de emitir y absorber fotones. Este tipo de emisores cuánticos son importantes pues pueden emitir de manera confiable fotones individuales, componente fundamental de muchas tecnologías emergentes como la computación, comunicación y criptografía cuánticas donde protocolos cuánticos existentes pueden ser implementados.

Para describir sistemas de moléculas en cavidades se recurre modelo de Holstein-Tavis-Cummings (HTC)[18, 19] que incorpora interacciones vibracionales en moléculas ubicadas dentro de una cavidad. Esta extensión permite una descripción más completa de sistemas cuánticos de dos niveles, abordando la complejidad adicional presentada por moléculas reales. Investigaciones anteriores han demostrado que una molécula en una cavidad puede comportarse como un sistema cuántico coherente de dos niveles, demostrando una interacción eficiente entre la molécula y la cavidad[18, 21, 50]. Este comportamiento subraya la importancia de extender los resultados obtenidos del modelo de JC a estos sistemas más complejos; un fenómeno de particular interés, que aún no ha sido profundamente caracterizado en la literatura, es el colapso y resurgimiento de las oscilaciones de Rabi en el contexto del modelo HTC, esta observación abre nuevas vías de investigación en la dinámica cuántica.

Como modelo particular para esta línea de investigación se propone utilizar un hamiltoniano simplificado del tipo HTC que describe el comportamiento de una molécula con un modo vibracional interactuando con luz. La complejidad adicional que aportan los grados vibracionales en el modelo HTC abre la posibilidad de idear nuevas formas de llevar a cabo protocolos y operaciones cuánticas. Al ofrecer una mayor riqueza, las moléculas ya han mostrado previamente su importancia de manera experimental al ser buenos emisores cuánticos[18], así como necesarias en la elaboración de láseres sintonizables.

En este documento, exploramos las ideas que sustentan el planteamiento de un sistema molecular dentro de una cavidad. En el siguiente capítulo, construimos el hamiltoniano para un sistema de dos niveles, repasando primero la solución en presencia de un campo clásico como contexto histórico. Además, introducimos el concepto de campo cuantizado, junto con las herramientas necesarias para el estudio de esta clase de sistemas. En

el capítulo tres, investigamos el sistema completamente cuántico de interacción fotónica y electrónica, considerando el caso en el que las frecuencias de transición atómica y óptica no necesariamente coinciden. Resolvemos la ecuación de Schrödinger para analizar la dinámica en cualquier instante posterior, destacando el fenómeno de colapso y resurgimiento, un efecto puramente cuántico. Introducimos y verificamos la validez de la aproximación de onda rotante y una aproximación con estados coherentes que simplifica las expresiones y permite deducir el tiempo en que las oscilaciones resurgen, y analizamos esta dinámica en el espacio fase de la función  $Q$ . En el cuarto capítulo, exploramos el estudio de moléculas en cavidades, construyendo un hamiltoniano que introduce las vibraciones propias de un sistema molecular bajo la suposición de que este solo tiene acceso a dos niveles electrónicos. Buscamos una solución mediante la diagonalización y que encontramos posible bajo ciertas restricciones. El interés central de esta tesis es explorar las condiciones bajo las cuales se manifiesta el fenómeno de colapso y resurgimiento, incluso cuando el sistema cuenta con un nuevo grado de libertad asociado, por lo que en capítulo 5, mostramos diferentes escenarios de esta dinámica y descubrimos que estos sistemas presentan estados que se comportan como un sistema de tres qubits entrelazados, conocidos en la literatura como estados GHZ. También examinamos el fenómeno de entrelazamiento entre la componente electrónica y una componente híbrida fotónica-fonónica. Por último, en el capítulo 6 presentamos nuestras conclusiones sobre esta investigación.

## Capítulo 2

# Interacción Radiación-Materia

### 2.1 Modelo semiclásico

El problema más simple que involucra la interacción materia-radiación es el acoplamiento de dos niveles electrónicos con un único modo del campo electromagnético. Lo interesante de este planteamiento es que, bajo ciertas aproximaciones realistas, el problema puede reducirse a un modelo exactamente soluble.

Un sistema de dos niveles, influenciado por un campo cuya longitud de onda supera el tamaño atómico, resulta ser análogo al sistema de espín  $1/2$  en un campo magnético dependiente del tiempo[22, 23]. I. Rabi propuso en 1937 una manera de tratar el fenómeno observado en el experimento Stern-Gerlach, demostrando que mediante el uso de un campo magnético dependiente del tiempo es posible inducir la transición del momento magnético de un estado a otro, un fenómeno denominado oscilaciones de Rabi[23]. Este procedimiento se extiende entonces al modelo de un átomo de dos niveles interactuando con un campo electromagnético clásico, como se detalla a continuación.

#### 2.1.1 Construcción del hamiltoniano

Para esta sección, se construye el hamiltoniano que caracteriza al sistema, iniciando con la interacción fundamental entre un electrón y un protón bajo la influencia de un campo electromagnético externo. Este análisis nos llevará a considerar el potencial de Coulomb que describe la interacción electrostática en el átomo, complementado con términos que representan la interacción del átomo con el campo externo; avanzaremos introduciendo

la aproximación dipolar, un enfoque teórico que nos permite simplificar el hamiltoniano del sistema bajo la premisa de que la escala de longitud del átomo es significativamente menor que la longitud de onda del campo electromagnético incidente. Esta aproximación es crucial para desentrañar la dinámica del sistema átomo-radiación, permitiéndonos derivar una forma manejable del hamiltoniano.

### Hamiltoniano de un electrón interactuando con un protón en un campo electromagnético

Consideremos un átomo formado por un protón y un electrón, separados entre sí por una distancia  $\vec{r}$ . Desde el punto de vista del electrón, este interactúa con el núcleo a través de un potencial de tipo coulombiano, que denotaremos por  $V(r)$ . El hamiltoniano del electrón, por lo tanto, está compuesto por el término de partícula libre más el término del potencial al que está sujeto:

$$H_e = \frac{\vec{p}^2}{2m} + V(r). \quad (2.1.1)$$

A (2.1.1) le añadimos la presencia de un campo electromagnético externo expresado en términos del potencial vectorial  $\vec{A}$ , con lo que obtenemos:

$$\tilde{H} = H_{\text{Field}} + \frac{1}{2m} \left( \vec{p} - e\vec{A}(\vec{r}, t) \right)^2 + V(r), \quad (2.1.2)$$

$H_{\text{Field}}$  corresponde al hamiltoniano del campo libre que asumimos constante. Cuando se considera la norma de Coulomb  $\nabla \cdot \vec{A} = 0$ , el potencial vectorial  $\vec{A}$  satisface la ecuación de onda:

$$\nabla^2 \vec{A}(t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{A}(t)}{\partial t^2} = 0, \quad (2.1.3)$$

cuya solución es:

$$\vec{A}(t) = A_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} + \text{c.c.},$$

donde  $|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$  y  $\lambda$  es la longitud de onda.

Para continuar con el tratamiento hacemos uso de la aproximación dipolar.

### Aproximación dipolar

En el sistema atómico, la distancia entre el electrón y el protón es del orden de unos pocos Angstroms, mientras que la longitud de onda  $\lambda$  de la luz incidente, usualmente de una onda óptica, es de cientos de nanómetros. Esto conduce a la condición:

$$\vec{k} \cdot \vec{r} \ll 1,$$

indicando que la dependencia del potencial vectorial  $\vec{A}$  en la posición del electrón y del protón no varía significativamente a lo largo del tamaño atómico. Esto significa que tanto el electrón como el protón experimentan esencialmente la misma magnitud del potencial vectorial  $\vec{A}$ , o, equivalentemente, el mismo campo eléctrico [3]. A este razonamiento lo denominamos **aproximación dipolar** y matemáticamente se expresa como:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) \approx A(t). \quad (2.1.4)$$

### 2.1.2 Hamiltoniano de un átomo en un campo electromagnético

Utilizando la aproximación dipolar, el hamiltoniano en (2.1.2) ahora describe al átomo completo y en esencia acopla al momento del electrón con el vector potencial. Existe además un hamiltoniano equivalente para expresar al acoplamiento entre el átomo y la radiación que en su lugar acopla a la posición del electrón con el campo eléctrico  $\vec{E}$  [3], definido como

$$H = H_{\text{Field}} + \frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) - \vec{d} \cdot \vec{E}(t). \quad (2.1.5)$$

Siendo el término  $\vec{d} = e\vec{r}$  el momento dipolar eléctrico del átomo. Es posible establecer la equivalencia entre (2.1.2) y (2.1.5) si se considera a los lagrangianos de los que provienen;  $\tilde{L}$  correspondiente a  $\tilde{H}$  y  $L$  a  $H$ . Se puede demostrar difieren únicamente por un término de derivada temporal, de tal manera que:

$$L = \tilde{L} - e \frac{d}{dt} (\vec{r} \cdot \vec{A})$$

Así que tanto  $L$  como  $\tilde{L}$  llevan a las mismas ecuaciones de movimiento, por lo que en adelante utilizaremos a (2.1.5), pues su análisis nos resulta más conveniente. En general,  $H$  puede ser representado como la suma de tres partes:

$$H = H_{\text{Field}} + H_{\text{atom}} + H_{\text{int}}, \quad (2.1.6)$$

donde

$$H_{\text{atom}} = \frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r})$$

corresponde al hamiltoniano del átomo libre y

$$H_{\text{int}} = -\vec{d} \cdot \vec{E}(t) \quad (2.1.7)$$

representa la interacción del momento dipolar eléctrico del átomo con el campo eléctrico externo. Esta forma del hamiltoniano permite el análisis de la dinámica atómica en presencia de campos electromagnéticos.

### 2.1.3 Modelo de Rabi

Hasta ahora, hemos establecido el hamiltoniano del sistema en términos generales. A continuación, desarrollaremos la interacción específica entre un átomo, restringido a dos niveles, y un campo electromagnético clásico. Este escenario es conocido como modelo de Rabi [11], o modelo semiclásico de interacción, y proporciona una base sólida para comprender las dinámicas de sistemas cuánticos bajo la influencia de campos electromagnéticos externos.

Primero, consideramos un campo eléctrico de onda plana, linealmente polarizado en la dirección  $x$ , descrito por la expresión

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t) \hat{x}, \quad (2.1.8)$$

donde  $\omega$  representa la frecuencia de la onda y un átomo que solo puede acceder a dos niveles energéticos, como se muestra en el diagrama 2.1; etiquetamos al nivel superior con  $|e\rangle$ , denominado estado excitado, con una energía  $E_e = \hbar\Omega_e$ . El nivel inferior se etiqueta como  $|g\rangle$ , conocido como el estado base, con una energía  $E_g = \hbar\Omega_g$ .

Dado que estos son los únicos estados accesibles, forman una base para el espacio de Hilbert asociado al átomo, denotado como  $H_{\text{Atom}}$ . Por lo tanto,  $H_{\text{Atom}}$  se puede expresar como:

$$H_{\text{Atom}} = E_e |e\rangle\langle e| + E_g |g\rangle\langle g|.$$

En representación matricial, definiendo  $E = \frac{1}{2}(E_e + E_g)$  y  $\Omega = \Omega_e - \Omega_g$  (frecuencia de transición),  $H_{\text{Atom}}$  toma la forma:

$$H_{\text{Atom}} = \hbar \frac{\Omega}{2} \sigma_z + E \cdot \mathbb{1},$$

donde  $\sigma_z$ , la matriz de Pauli, definida como:

$$\sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}.$$

Una representación útil para  $\sigma_z$  es aquella que se expresa en términos de los llamados operadores de transición atómica, definidos como:

$$\sigma_+ = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_- = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix},$$

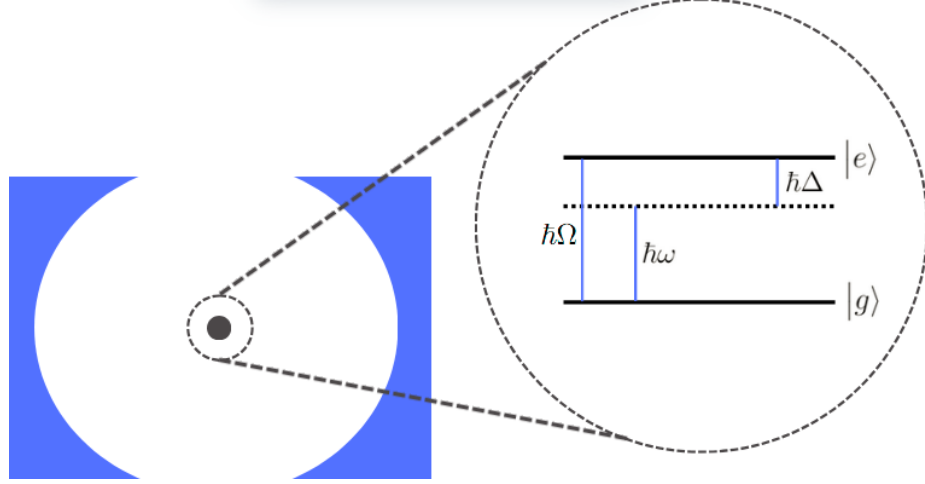


Figura 2.1: Diagrama de niveles de energía de un átomo de dos niveles con un campo clásico fuera de resonancia con frecuencia  $\omega$ , la frecuencia entre niveles  $\Omega$  y la diferencia de denotada por  $\Delta = \omega - \Omega$  también llamada *desintonía*

que, en términos de la base atómica, son:

$$\sigma_+ = |e\rangle\langle g|, \quad \sigma_- = |g\rangle\langle e|.$$

Aplicados a la base atómica, estos operadores cumplen las relaciones:

$$\begin{aligned} \sigma_+|g\rangle &= |e\rangle, & \sigma_+|e\rangle &= 0, \\ \sigma_-|g\rangle &= 0, & \sigma_-|e\rangle &= |g\rangle. \end{aligned}$$

De esta forma,  $\sigma_z$  puede expresarse como:

$$\sigma_z = \sigma_+\sigma_- - \sigma_-\sigma_+.$$

Por tanto,  $H_{\text{atom}}$  se reescribe como:

$$H_{\text{Atom}} = \frac{1}{2}\hbar\Omega[\sigma_+\sigma_- - \sigma_-\sigma_+] + E \cdot \mathbb{1},$$

Dado que la constante en la energía solo contribuye con una fase, puede omitirse. Además, fijando el cero energético en el estado base, obtenemos:

$$H_{\text{Atom}} = \hbar\Omega\sigma_+\sigma_-. \quad (2.1.9)$$

La función de onda del átomo en  $t = 0$  se representa como:

$$|\psi(0)\rangle = c_e(0)|e\rangle + c_g(0)|g\rangle, \quad (2.1.10)$$

donde  $c_e$  y  $c_g$  son las amplitudes de probabilidad de encontrar al átomo en el estado excitado y el estado base, respectivamente.

Al considerar la evolución temporal de la función de onda inicial (2.1.10), obtenemos

$$|\psi(t)\rangle = c_e(t)e^{-\frac{i}{\hbar}E_e t}|e\rangle + c_g(t)e^{-\frac{i}{\hbar}E_g t}|g\rangle, \quad (2.1.11)$$

donde  $c_e(t)$  y  $c_g(t)$  representan las amplitudes de probabilidad de encontrar al átomo en el estado excitado y en el estado base en el tiempo  $t$ , respectivamente.

Bajo las condiciones dadas en (2.1.8), el término de interacción  $H_{\text{int}}$ , que describe cómo el átomo interactúa con el campo eléctrico externo, se especifica como

$$H_{\text{int}} = -e\vec{r} \cdot E_0 \cos(\omega t)\hat{x}. \quad (2.1.12)$$

Y para analizar la dinámica del sistema átomo-campo, se busca resolver la ecuación de Schrödinger, expresada como:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = H(t) |\psi(t)\rangle, \quad (2.1.13)$$

Resulta importante expresar a (2.1.12) en términos de la base energética del átomo. Utilizando la relación de completitud

$$|e\rangle\langle e| + |g\rangle\langle g| = 1,$$

con lo que la expresión (2.1.12) ahora es

$$H_{\text{int}} = -\hbar\gamma (|e\rangle\langle g| + |g\rangle\langle e|) \cos(\omega t), \quad (2.1.14)$$

con  $\hbar\gamma = eE_0\langle e|\hat{x}|g\rangle$  que representa el elemento de matriz del dipolo eléctrico entre los estados base y excitado, modulado por la amplitud del campo eléctrico y su polarización.

Desarrollando los términos de (2.1.13), obtenemos un sistema de ecuaciones acopladas para las amplitudes de probabilidad de los estados:

$$\begin{aligned} \dot{c}_e(t) &= -i\gamma \cos(\omega t)c_g(t)e^{i\Omega t}, \\ \dot{c}_g(t) &= -i\gamma \cos(\omega t)c_e(t)e^{i\Omega t}. \end{aligned} \quad (2.1.15)$$

Al expandir el término  $\cos(\omega t)$  en su representación exponencial y aplicar la aproximación de onda rotante, simplificamos la descripción de la interacción átomo-campo. La aproximación de onda rotante nos permite ignorar aquellos términos que oscilan rápidamente, bajo la

premisa de que tienen un efecto menor en la dinámica del sistema. De esta manera, el sistema de ecuaciones para las amplitudes de probabilidad se reduce a:

$$\begin{aligned}\dot{c}_e(t) &= -i\frac{\gamma}{2}e^{i\Delta t}c_g(t), \\ \dot{c}_g(t) &= -i\frac{\gamma}{2}e^{-i\Delta t}c_e(t).\end{aligned}\tag{2.1.16}$$

Aquí,  $\Delta = \Omega - \omega$  representa la desintonía entre la frecuencia del campo electromagnético y la frecuencia de transición atómica. La desintonía mide cuán alejada está la frecuencia del campo aplicado de la resonancia atómica. Cuando  $\Delta = 0$ , el sistema se encuentra en resonancia, lo que significa que el campo electromagnético está perfectamente sincronizado con la transición atómica.

Procediendo a desacoplar las ecuaciones (2.1.15) en favor de la amplitud de probabilidad  $c_e(t)$ , derivamos la siguiente ecuación diferencial de segundo orden:

$$\ddot{c}_e + i\Delta\dot{c}_e + \frac{\gamma^2}{4}c_e = 0,$$

Proponiendo una solución a la ecuación diferencial en la forma  $e^{i\lambda t}$ , encontramos que los valores de  $\lambda$  que satisfacen la ecuación son:

$$\lambda_{\pm} = -\frac{1}{2}\left(\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + \gamma^2}\right),\tag{2.1.17}$$

donde  $\lambda_{\pm}$  representan a las soluciones de la ecuación característica. Al imponer las condiciones iniciales  $c_g(0) = 1$  y  $c_e(0) = 0$ , que corresponden a que inicialmente el átomo se encuentra en el estado base y el estado excitado está vacío, las soluciones para (2.1.15) son:

$$\begin{aligned}c_e(t) &= i\frac{\gamma}{\Omega_R}e^{-i\frac{\Delta}{2}t}\sin\left(\frac{\Omega_R}{2}t\right), \\ c_g(t) &= e^{i\frac{\Delta}{2}t}\left[\cos\left(\frac{\Omega_R}{2}t\right) + i\frac{\Delta}{\Omega_R}\sin\left(\frac{\Omega_R}{2}t\right)\right],\end{aligned}\tag{2.1.18}$$

donde  $\Omega_R = \sqrt{\Delta^2 + \gamma^2}$  es conocida como la **frecuencia de Rabi**. Esta frecuencia caracteriza la tasa de oscilación entre los estados cuánticos del átomo debido a la interacción con el campo electromagnético.

La probabilidad de encontrar al átomo en el estado excitado  $|e\rangle$  en un tiempo  $t$  es dada por:

$$P_e(t) = |c_e(t)|^2 = \frac{\gamma^2}{\Omega_R^2}\sin^2\left(\frac{\Omega_R}{2}t\right),$$

lo que demuestra la naturaleza oscilatoria de la probabilidad de transición entre los estados cuánticos del átomo. Es importante destacar que la suma de las probabilidades de encontrar

al átomo en cualquiera de los dos estados,  $|c_g|^2 + |c_e|^2$ , se conserva y es igual a 1 en todo momento, lo cual es consistente con la interpretación probabilística de la mecánica cuántica.

El resultado del modelo de Rabi es fundamental en la física cuántica, ya que demuestra que un átomo puede experimentar oscilaciones periódicas entre sus estados accesibles bajo la acción de un campo eléctrico, a una frecuencia específica denominada frecuencia de Rabi  $\Omega_R$ . Estas oscilaciones dependen directamente de la desintonía  $\Delta$ , es decir, de la diferencia entre las frecuencias del campo electromagnético y la transición atómica. En el caso de resonancia, donde  $\Delta = 0$ , la probabilidad de encontrar al átomo en el estado excitado se simplifica a:

$$P_e(t) = \sin^2\left(\frac{\gamma t}{2}\right).$$

En los momentos específicos  $t = \pi k \gamma$  siendo  $k$  cualquier número entero, el átomo se encuentra en el estado excitado. Este resultado es crucial para la manipulación precisa de estados cuánticos en experimentos de espectroscopia láser y otras aplicaciones cuánticas[24]. Al conocer la solución es posible calcular algunas cantidades, como la inversión atómica definida como la diferencia entre las probabilidades de encontrar al átomo en el estado excitado y en el estado base:

$$W(t) = P_e(t) - P_g(t) \tag{2.1.19}$$

lo que, en el caso de resonancia ( $\Delta = 0$ ), se obtiene:

$$W(t) = -\cos(\gamma t), \tag{2.1.20}$$

y cuya dinámica periódica podemos observar en la Fig.(2.2).

En  $W(t) = 0$ , el átomo se encuentra en una superposición de estados, correspondiente al estado cuántico:

$$|\psi\left(\frac{k\pi}{2\gamma}\right)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|g\rangle + i|e\rangle),$$

Este fenómeno subraya la capacidad de controlar y manipular estados cuánticos a través de campos electromagnéticos, un principio clave en tecnologías cuánticas avanzadas y experimentos de espectroscopia láser [24]. Si  $\Delta \gg 0$ , la probabilidad de que se encuentre en el estado inicial se vuelve significativamente mas grande, con lo que  $W(t)$  se mantiene cerca de este, como se muestra en el diagrama 2.2 en color azul donde el estado inicial está preparado como  $c_e = 1$ ,  $c_g = 0$ , por lo que solo en resonancia sucedería la transición entre niveles.

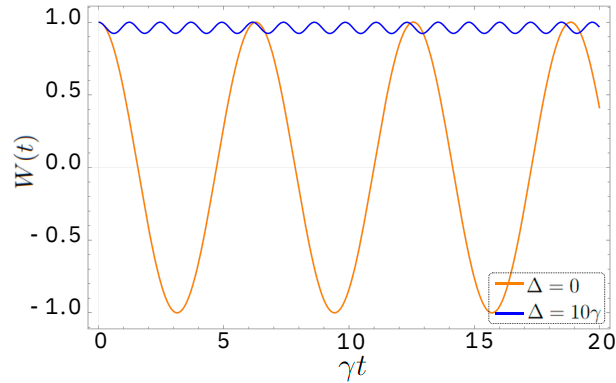


Figura 2.2: Gráfico de  $W(t)$  para  $\Delta = 0$  (en color naranja) preparando al estado inicial como el estado excitado, se puede observar como toda la población pasa del estado excitado al estado base y regresa al estado inicial de forma periódica; y para  $\Delta = 10\gamma$  (en color azul), la oscilación no se mueve del estado excitado debido al valor grande de desintonía.

## 2.2 Hacia el modelo de Rabi cuántico

En esta sección se presentan las herramientas necesarias para tratar el campo de manera cuantizada. Primero, se desarrollan los principios que permiten obtener la forma cuantizada del campo electromagnético, mostrando que este puede describirse como una colección de osciladores armónicos cuánticos. Luego, se revisan las características de estos osciladores y se analizan los estados cuánticos más similares al comportamiento clásico, conocidos como estados coherentes. Finalmente, se estudia una herramienta fundamental para el análisis de la dinámica cuántica: la función de Husimi. Esta función permite visualizar los estados en el espacio fase, proporcionando una representación del comportamiento cuántico del sistema.

### 2.2.1 Cuantización del campo electromagnético

Buscamos resolver a la ecuación de onda (2.1.3) bajo las condiciones de una cavidad, para esto seguimos el procedimiento de [25], consideremos modelar el espacio como un cubo de lado  $L$ , y posteriormente tomar el límite cuando  $L$  tiende a infinito. Los resultados, en principio, deberían ser independientes del tamaño de esta cavidad teórica [11]. Utilizando el método de separación de variables, proponemos para  $\vec{A}$  una solución de la forma:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \Upsilon q(t) \vec{v}(\vec{r}), \quad (2.2.1)$$

donde  $\Upsilon$  es un factor de normalización. Al sustituir esta propuesta en la ecuación diferencial y aplicar el proceso de separación de variables, encontramos:

$$\frac{\nabla^2 v_j(\vec{r})}{v_j(\vec{r})} = -\frac{1}{c^2} \frac{\ddot{q}(t)}{q(t)} = -k^2, \quad (2.2.2)$$

para cada componente  $j = x, y, z$  de  $\vec{r}$ , identificando que ambos lados de la ecuación deben ser iguales a una constante que tomamos como  $-k^2$ , donde  $\vec{k}$  representa el vector de onda. lo cual nos lleva a dos ecuaciones desacopladas: la ecuación de Helmholtz para la parte espacial,

$$\nabla^2 \vec{v}(\vec{r}) + k^2 \vec{v}(\vec{r}) = 0, \quad (2.2.3)$$

y una ecuación de oscilador armónico para la parte temporal,

$$\ddot{q}(t) + \omega^2 q(t) = 0, \quad (2.2.4)$$

donde  $\omega = ck$  es la frecuencia de oscilación asociada.

Bajo las restricciones impuestas por la norma de Coulomb,  $\nabla \cdot \vec{v} = 0$ , además en la frontera la componente tangencial de  $\vec{E}$  y la normal de  $\vec{B}$  desaparecen y la forma cúbica del espacio definido nos ayuda a imponer condiciones periódicas en la frontera [11], por lo tanto, las soluciones a la ecuación de Helmholtz son funciones modales  $v_\ell(\vec{r})$ , que forman un conjunto ortonormal y completo. La expansión del potencial vectorial  $\vec{A}$  en términos de estas funciones modales se da por:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \sum_{\ell} q_{\ell}(t) \vec{v}_{\ell}(\vec{r}), \quad (2.2.5)$$

La energía del campo electromagnético en la cavidad se obtiene a partir del hamiltoniano clásico, es decir, integrando a la densidad de energía total del campo:

$$H_{\text{Field}} = \frac{1}{2} \int \left( \epsilon_0 E^2 + \frac{1}{\mu_0} B^2 \right) d\vec{r}, \quad (2.2.6)$$

Al sustituir  $\vec{A}$  de la ecuación anterior y empleando relaciones vectoriales, se simplifica el hamiltoniano a:

$$H_{\text{Field}} = \sum_{\ell} H_{\ell} = \sum_{\ell} \frac{1}{2} (\dot{q}_{\ell}^2 + \omega_{\ell}^2 q_{\ell}^2), \quad (2.2.7)$$

donde la energía del campo electromagnético en una cavidad arbitraria es la suma de las energías  $H_{\ell}$  de osciladores armónicos asociados con cada modo etiquetado por  $\ell$ , el campo eléctrico y magnético juegan el rol de una posición  $q_{\ell}$  y momento  $\dot{q}_{\ell}$  canónicos, la energía de cada modo es la de un oscilador armónico [3].

A partir de las ecuaciones de Hamilton se llega a la ecuación de movimiento

$$\ddot{q}_\ell + \omega_\ell^2 q_\ell = 0, \quad (2.2.8)$$

que es en efecto la de un oscilador armónico simple con frecuencia  $\omega_\ell$ .

Es posible cuantizar a las variables  $q_\ell$  y  $\dot{q}_\ell$  utilizando una regla de correspondencia [26] reemplazándolas por sus operadores correspondientes, que satisfacen a la relación  $[q_\ell, \dot{q}_\ell] = i\hbar$ , este paso nos lleva a tratar el campo como un conjunto de osciladores armónicos cuánticos.

### 2.2.2 Oscilador armónico cuántico simple

El oscilador armónico cuántico se caracteriza por tener una energía potencial cuadrática en la posición, lo que lleva a un conjunto discreto de niveles de energía y a la posibilidad de analizar sus propiedades algebraicas mediante operadores de creación y aniquilación. Su hamiltoniano correspondiente se expresa como:

$$H_{\text{Field}} = \frac{1}{2}(p^2 + \omega^2 q^2), \quad (2.2.9)$$

donde  $p$  es el operador momento lineal,  $q$  es el operador posición, y  $\omega$  es su frecuencia angular. En esta formulación, tanto  $p$  como  $q$  son operadores hermitianos que obedecen las reglas de conmutación canónicas de la mecánica cuántica.

Para facilitar el análisis se introducen los operadores  $a$  y  $a^\dagger$ , definidos por:

$$a = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega}}(\omega q + ip), \quad (2.2.10)$$

$$a^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega}}(\omega q - ip), \quad (2.2.11)$$

estos operadores son no hermitianos y facilitan la descripción algebraica del sistema. Sus representaciones matriciales en la base de los estados de energía del oscilador tienen la forma:

$$a = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & \cdots \\ 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & \cdots \\ 0 & 0 & 0 & \sqrt{3} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{bmatrix}, \quad a^\dagger = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ 1 & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & \cdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{bmatrix}.$$

Estos operadores satisfacen la relación de conmutación fundamental  $[a, a^\dagger] = 1$ . A partir de esta relación, se define el operador número  $N = a^\dagger a$ , que cuenta el número de cuantos de

energía en el estado. La energía del oscilador se puede entonces expresar en términos de  $N$  como

$$H_{\text{Field}} = \hbar\omega \left( N + \frac{1}{2} \right), \quad (2.2.12)$$

donde el término  $\frac{1}{2}\hbar\omega$  representa la energía del punto cero, indicando que el oscilador cuántico nunca está completamente en reposo, incluso en su estado de energía más bajo [26].

Los eigenkets de  $N$  son etiquetados como  $|n\rangle$ , con eigenvalor  $n$  correspondiente a un número entero no negativo. Los operadores  $a$  y  $a^\dagger$  actuando sobre  $|n\rangle$  cumplen

$$a|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle, \quad (2.2.13)$$

$$a^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle, \quad (2.2.14)$$

Por lo que  $a$  y  $a^\dagger$  son conocidos como los operadores de aniquilación y creación respectivamente. Para el hamiltoniano  $H_{\text{Field}}$ , los eigenvalores asociados a estos estados son  $E_n = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega$ , donde el valor mínimo de energía, correspondiente al estado fundamental  $|0\rangle$ , es  $E_0 = \frac{1}{2}\hbar\omega$ .

Los estados  $|n\rangle$  pueden ser generados desde el estado base  $|0\rangle$  aplicando sucesivamente el operador de creación  $a^\dagger$  [11]:

$$|n\rangle = \frac{(a^\dagger)^n}{\sqrt{n!}}|0\rangle,$$

Estos estados forman una base completa para el espacio de Hilbert del sistema, cumpliendo la condición de completitud:

$$\sum_{n=0}^{\infty} |n\rangle\langle n| = 1.$$

La evolución temporal de los operadores de aniquilación y creación en el marco de Heisenberg revela cómo estos cambian en el tiempo:

$$a(t) = a(0)e^{-i\omega t}, \quad (2.2.15)$$

$$a^\dagger(t) = a^\dagger(0)e^{i\omega t}, \quad (2.2.16)$$

Otros estados útiles al analizar al oscilador son aquellos que más se acercan al comportamiento clásico de un oscilador, que son los estados coherentes que serán discutidos en seguida; estos son particularmente importantes por su capacidad para aproximar el comportamiento de un oscilador clásico bajo ciertas condiciones, proporcionando así un vínculo directo entre la mecánica cuántica y la mecánica clásica.

### 2.2.3 Estados coherentes

Los estados coherentes son los estados cuánticos más cercanos a un estado clásico [11], pues mantienen su forma al evolucionar con el oscilador armónico cuántico y su función de onda no se dispersa en el tiempo. Están definidos como los eigenestados del operador de aniquilación del oscilador armónico cuantizado, se requiere además el tener una superposición de los estados de número para obtener un valor distinto de cero al calcular el valor esperado del operador aniquilación [27]:

$$a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle, \quad (2.2.17)$$

donde el operador  $a$  es el operador que actúa sobre la base de los estados  $|n\rangle$  que forman una base completa para un oscilador; es no hermitiano, por lo que su eigenvalor podría ser complejo. Podemos reescribir al estado  $|\alpha\rangle$  en la base de  $|n\rangle$ , que es una base completa como:

$$|\alpha\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} p_n |n\rangle, \quad (2.2.18)$$

donde  $p_n$  es la amplitud de probabilidad del estado  $|n\rangle$ . Reemplazando en la ecuación de eigenvalores:

$$\hat{a} \sum_{n=0}^{\infty} p_n |n\rangle = \alpha \sum_{n=0}^{\infty} p_n |n\rangle, \quad (2.2.19)$$

$a$  actúa sobre la base de  $|n\rangle$  como en (2.2.13).

Estableciendo una relación de recurrencia para conocer la forma de  $p_n$  encontramos que

$$|\alpha\rangle = p_0 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle. \quad (2.2.20)$$

Y mediante la condición de normalización  $\langle\alpha|\alpha\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} |p_n|^2$ , encontramos el valor del primer coeficiente  $p_0$  en la relación de recurrencia [11] el cual es

$$p_0 = e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2}, \quad (2.2.21)$$

Sustituyendo en la expresión (2.2.20) se obtiene un estado coherente normalizado.

$$|\alpha\rangle = e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle, \quad (2.2.22)$$

El valor esperado del operador de número es  $N = |\alpha|^2$  que se interpreta como el número de fotones del campo. Para estos estados la probabilidad de detectar  $n$  fotones es una

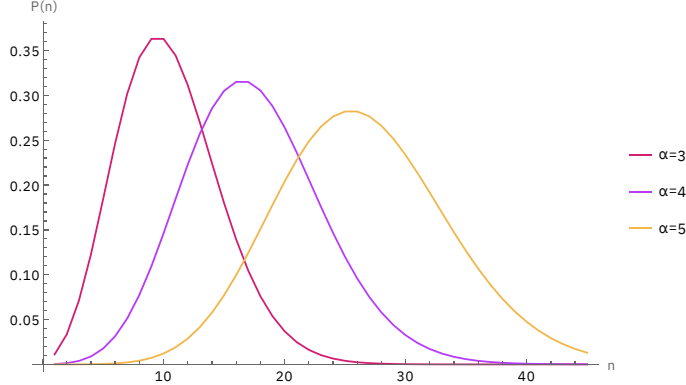


Figura 2.3: Distribuciones de probabilidad para diferentes parámetros  $\alpha$  en una distribución poissoniana de estado coherente; el número promedio de fotones dentro de la cavidad dependerá de la relación  $N = |\alpha|^2$

distribución poissoniana con media en  $N$

$$P(n) = |p_n|^2 = \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} e^{-|\alpha|^2}. \quad (2.2.23)$$

Con (2.2.22) somos capaces de analizar las propiedades del estado coherente  $|\alpha\rangle$  al moverse en un potencial armónico. Para resolver la ecuación de Schrödinger:

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\alpha(t)\rangle = H |\alpha(t)\rangle, \quad (2.2.24)$$

primero definimos que  $|\alpha\rangle$  es un estado coherente al tiempo  $t = 0$ , y expandiendo en la base de  $|m\rangle$  toma la forma:

$$|\alpha\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} p_n |n\rangle. \quad (2.2.25)$$

Del lado derecho de la ecuación (2.2.24), recordemos la expresión de eigenvalores de energía para un hamiltoniano de oscilador armónico

$$H|m\rangle = \hbar\omega(m + \frac{1}{2})|m\rangle, \quad (2.2.26)$$

por lo que el estado evolucionando en el tiempo adquiere la forma:

$$|\alpha(t)\rangle = e^{-\frac{i}{2}\omega t} \sum_m \frac{(|\alpha|e^{-\frac{i}{2}\omega t})^m}{\sqrt{m!}} e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} |m\rangle. \quad (2.2.27)$$

Se observa que en el estado evolucionado, la dependencia temporal cambia a la amplitud  $\alpha$  por  $\alpha e^{-i\omega t}$ , como si la amplitud tuviera una rotación en el plano complejo [3]. Tras un periodo de  $T = \frac{2\pi}{\omega}$ , la fase es de  $\pi$ , por lo que es un punto de energía 0 en el oscilador. En general, un estado coherente bajo evolución temporal permanece coherente.

### 2.2.4 Función de Husimi

Estudiar estados coherentes en mecánica cuántica es muy importante, debido a que estos estados constituyen un vínculo fundamental entre la física cuántica y la clásica. La transición de la descripción cuántica a la clásica es particularmente intrigante cuando examinamos el concepto de espacio fase. En mecánica clásica, el espacio fase proporciona una visión completa del sistema, combinando posición y momento para describir su dinámica. Sin embargo, en el ámbito cuántico, este concepto enfrenta desafíos significativos debido a la no conmutatividad de las variables canónicas de posición y momento [11], los estados coherentes ofrecen una perspectiva única al minimizar la relación de incertidumbre. Aprovechando tanto la parte real ( $\alpha_r$ ) e imaginaria ( $\alpha_i$ ) del estado facilitamos una representación en el plano complejo donde estos valores actúan como coordenadas en un espacio fase. En esta representación, el estado coherente se visualiza como un círculo cuya área es proporcional a la incertidumbre cuántica. Los diagramas en el espacio fase son herramientas valiosas para ilustrar la evolución temporal de los estados cuánticos, proporcionando una imagen intuitiva de su comportamiento. Aprovechando estas representaciones podemos adoptar alguna en específico que nos brinde información detallada sobre el estado cuántico, aprovechando la naturaleza estadística de la mecánica cuántica, basándonos en las distribuciones de probabilidad, que son esenciales para evaluar los valores esperados de operadores cuánticos de manera análoga a los métodos de la mecánica estadística [3]. Estas distribuciones no solo proporcionan una visión profunda del estado en cuestión, sino que también permiten el análisis de fenómenos cuánticos desde una perspectiva probabilística, enriqueciendo nuestra comprensión de la mecánica cuántica.

Una distribución en este contexto es la función de Husimi, también conocida como función  $Q$ . Una de las características distintivas de la función de Husimi es que sus valores son siempre positivos, lo que facilita la interpretación probabilística de la representación. Esta función es particularmente útil para examinar la evolución de estados coherentes bajo la influencia de diferentes interacciones.

Para un estado puro  $|\psi\rangle$  se encuentra definida como:

$$Q(\alpha) = \frac{1}{\pi} \langle \alpha | \psi \rangle \langle \psi | \alpha \rangle.$$

Definiendo  $\rho = |\psi\rangle\langle\psi|$  al que llamamos operador de densidad entonces toma la forma

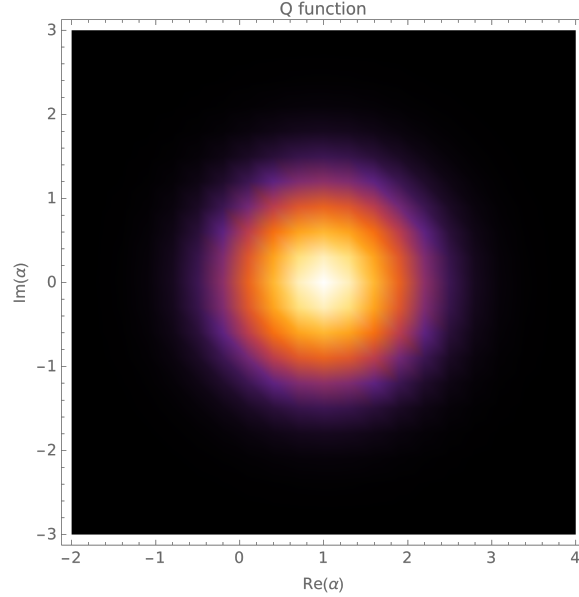


Figura 2.4: La representación del estado coherente en el espacio fase de la función  $Q$  resulta en una campana gaussiana vista desde arriba, lo que se puede observar como un círculo degradado con el ancho correspondiente a la mínima incertidumbre, en esta figura se toma como parámetro  $\alpha = 1$ .

compacta

$$Q(\alpha_r, \alpha_i) = \frac{1}{\pi} \langle \alpha | \rho | \alpha \rangle. \quad (2.2.28)$$

La función  $Q$  es entonces el valor esperado del operador densidad de un estado coherente. Analizando con esta función al operador de densidad de un estado coherente  $\rho = |\beta\rangle\langle\beta|$ , con  $|\beta\rangle$  un estado coherente [11], la función  $Q$  es:

$$Q(\alpha) = \frac{1}{\pi} |\langle \alpha | \beta \rangle|^2 = \frac{1}{\pi} \exp[-|\alpha - \beta|^2],$$

que representada en el espacio fase es una campana gaussiana simétrica con centro en  $(\beta_r, \beta_i)$ . En la figura 2.4 se puede observar la representación de un estado coherente en el espacio fase de la función  $Q$ .

Reescribiendo en sus componentes real e imaginaria se tiene:

$$Q(\alpha_r, \alpha_i) = \frac{1}{\pi} \exp [-(\beta_r - \alpha_r)^2 - (\beta_i - \alpha_i)^2]. \quad (2.2.29)$$

En cuanto a sus propiedades la función  $Q$  no cumple exactamente la ley de marginales porque no es una función de distribución estricta, esta es la razón por la que algunos textos se refieren a ella como una función de cuasi-probabilidad [3, 11] y aunque proporciona información probabilística aproximada sobre las distribuciones de posición y

momento, las proyecciones marginales (integrales a lo largo de una variable, como posición o momento) no coinciden exactamente con las distribuciones reales en esas variables. Otras distribuciones de probabilidad como lo es la función de Wigner [67], sí cumple la ley de marginales. En cuanto a la ley de composición clásica ninguna de las dos la satisface. Para propósitos de este trabajo utilizaremos a la función  $Q$  debido a la no negatividad de sus resultados y la practicidad de su definición en términos de estados coherentes.

### 2.2.5 Campo multimodal

Al avanzar hacia la comprensión del campo, retomamos los conceptos introducidos por el oscilador armónico cuántico simple al sistema del campo, donde múltiples modos de oscilación coexisten. En este contexto, el hamiltoniano del sistema no se limita a un único modo de oscilación, sino que incluye la contribución de varios modos, cada uno caracterizado por un conjunto diferente de parámetros de oscilación. Estos modos son esencialmente osciladores armónicos cuánticos independientes, cada uno descrito por sus propios operadores de aniquilación, creación y número, denotados por  $a_\ell$ ,  $a_\ell^\dagger$ , y  $N_\ell$ , respectivamente, donde  $\ell$  sirve como un índice para distinguir entre los diferentes modos. La forma explícita de estos operadores, adaptada a cada modo, es:

$$\begin{aligned} a_\ell &= \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega_\ell}}(\omega_\ell q_\ell + ip_\ell), \\ a_\ell^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega_\ell}}(\omega_\ell q_\ell - ip_\ell), \\ N &= a_\ell^\dagger a_\ell. \end{aligned}$$

Con estas definiciones, el hamiltoniano cuántico del sistema multimodal se convierte en:

$$H_{\text{Field}} = \sum_{\ell} \hbar\omega_\ell \left( N_\ell + \frac{1}{2} \right)$$

donde la suma se extiende sobre todos los modos  $\ell$ . Esta expresión demuestra cómo el hamiltoniano total es simplemente la suma de los hamiltonianos de los osciladores armónicos cuánticos individuales, cada uno con su propia frecuencia  $\omega_\ell$ .

La acción de los operadores de aniquilación y creación sobre los estados de número, así como la relación de ortogonalidad entre estos estados, se mantiene en el contexto multimodal, pero aplicada de manera independiente a cada modo. Esto significa que los estados de número para un modo específico son ortogonales a los estados de número de otro modo, y que

los operadores  $a_\ell$  y  $a_\ell^\dagger$  actúan de manera análoga a como lo hacen en el caso de un único oscilador armónico cuántico, pero dentro de su respectivo modo, y con estas definiciones es posible obtener las expresiones para el vector potencial y los campos como operadores; por lo tanto, el campo de radiación es un conjunto infinito de modos cuantizados como osciladores armónicos y está descrito como un estado cuántico. Usualmente se recurre a los eigenestados de número para ser su base, además de que estos se relacionan al concepto de fotón.

Se refiere como fotones a las excitaciones discretas del modo del oscilador del campo [3] y por tanto  $|n\rangle$  en el contexto del campo electromagnético es llamado como estado de número de fotones o estado de Fock. Pero aunque el campo electromagnético está compuesto de muchos modos, las cavidades promueven la confinación de uno solo debido a que su geometría impone restricciones espaciales sobre estos, confinando a aquellos que se ajusten a sus características, como lo son la longitud de la cavidad, las condiciones de fase y las condiciones de resonancia, lo que permite la existencia estable de modos específicos, lo que da lugar a la confinación de la luz en la cavidad. Otra característica que presentan los modos de los fotones son los estados de polarización, que se derivan de la dirección de propagación del haz, dos modos son posibles y son linealmente independientes entre sí [3], pero al confinar un haz dentro de una cavidad es posible condicionar al haz y promover la existencia de una única polarización, lo que depende enteramente del diseño de la cavidad [68]. Para este trabajo consideraremos que la cavidad solo contiene a un modo tanto de oscilación como de polarización.

Ya tenemos por tanto las herramientas que nos ayudaran a entender la generalización cuántica del modelo de Rabi, que en su forma más simple es llamada modelo de Jaynes-Cummings.

## Capítulo 3

# Modelo de Jaynes-Cummings

El modelo de Jaynes-Cummings es el modelo más simple que se ha desarrollado para la interacción de la luz con la materia, involucrando sólo un átomo y un modo del campo de radiación, y ha resultado inmensamente útil en el campo de la óptica cuántica, particularmente por sus importantes predicciones sobre propiedades dinámicas, como los fenómenos de colapso y resurgimiento de la excitación atómica.

Para el desarrollo de este capítulo se exploran los términos que conforman el hamiltoniano y se explican las razones físicas de las aproximaciones que se utilizan para derivarlo a partir de las ideas desarrolladas en el primer capítulo. Además, encontramos la solución a la ecuación de Schrödinger de este modelo, aprovechando la estructura particular del espacio de Hilbert correspondiente y, por último, se muestra la dinámica generada por las soluciones, con algunos resultados que no tienen una contraparte semiclásica, y que, mediante el uso de una aproximación a estados coherentes, podemos analizar con mayor detalle dentro del espacio fase generado por la función  $Q$ .

### 3.1 Modelo de Rabi cuántico

Conociendo que el campo electromagnético está cuantizado por modos con el comportamiento de osciladores armónicos cuánticos, lo que sigue es integrar esta noción al modelo de Rabi. El hamiltoniano de la ecuación (2.1.6) es también válido para modelar el caso en el que el campo electromagnético se encuentra cuantizado. En su forma más general, el átomo puede acceder a infinitos niveles atómicos y todos los modos del campo de radiación; pero es posible simplificarlo si se considera una cavidad capaz de albergar sólo un

modo del campo, seleccionando una frecuencia resonante específica, lo que a su vez reduce el número de modos en los que el sistema puede intercambiar energía, confinando al átomo a un subespacio de dos niveles, donde las transiciones entre estos dos estados energéticos son dominantes y cualquier otro nivel queda prácticamente excluido.

Al considerar la interacción entre el campo y los dos niveles electrónicos del átomo; debemos entonces realizar una descripción de las partes del hamiltoniano para este caso en particular. A continuación, se desarrollan los diferentes términos que conforman el hamiltoniano de Rabi cuántico y se describen las aproximaciones físicas que derivan de este al hamiltoniano de Jaynes-Cummings.

### Hamiltoniano del campo cuántico

El hamiltoniano del campo cuantizado se describe mediante la ecuación (2.2.12), donde  $\omega$  representa la frecuencia angular del sistema. Adicionalmente, estableciendo  $\frac{1}{2}\hbar\omega$  como la energía del punto cero del campo, el hamiltoniano puede expresarse como:

$$H_{\text{Field}} = \hbar\omega a^\dagger a. \quad (3.1.1)$$

### Hamiltoniano de interacción

Para realizar el análisis cuántico de esta parte del hamiltoniano, primero recuperamos la expresión (2.1.12), que es:

$$H_{\text{Int}} = e\vec{r} \cdot \vec{E}.$$

El término  $\vec{r}$  puede expresarse en la base de los operadores de transición atómica, tomando la forma:

$$\vec{r} = \wp\sigma_+ + \wp^*\sigma_-, \quad (3.1.2)$$

donde  $\wp = \langle e|\vec{r}|g\rangle$ .

En nuestro caso particular, al considerar un único modo de  $\vec{E}$  se tiene

$$\vec{E}(\vec{r}) = \epsilon_0 v(\vec{r})(a + a^\dagger), \quad (3.1.3)$$

y al sustituir (3.1.2) y (3.1.3) en el hamiltoniano de interacción, obtenemos:

$$H_{\text{Int}} = \hbar\frac{g}{2}(\sigma_+ + \sigma_-)(a + a^\dagger). \quad (3.1.4)$$

Definiendo la cantidad  $g = \frac{2e\epsilon_0|\wp \cdot v(\vec{r})|}{\hbar}$  denominado como el **parámetro de acoplamiento** que se asume como real y positivo [27].

### Hamiltoniano de Rabi cuántico

El hamiltoniano cuántico del sistema se obtiene sumando las partes (2.1.9), tomando al átomo como accesible a dos niveles energéticos, (3.1.1) para el campo cuantizado y (3.1.4) de la interacción, y es conocido como el hamiltoniano de Rabi:

$$H_R = \hbar\omega a^\dagger a + \hbar\frac{\Omega}{2}\sigma_z + \hbar\frac{g}{2}\sigma_x(a + a^\dagger). \quad (3.1.5)$$

### Marco de interacción

Resulta muy eficaz abordar  $H_R$  desde el punto de vista del marco de interacción. Este enfoque no sólo simplifica las operaciones, sino que, además, conserva la integridad de la información sobre la dinámica del sistema; en este se concibe al hamiltoniano como la suma de una parte que describe la evolución libre y otra que representa la interacción (o perturbación) entre los componentes del sistema.

$$H = H_0 + H_{\text{Int}}.$$

En este contexto, los estados evolucionan de acuerdo con la relación:

$$|\Phi(t)\rangle_I = e^{\frac{i}{\hbar}H_0 t}|\Phi(t)\rangle, \quad (3.1.6)$$

donde el subíndice I indica que los objetos están en el marco de interacción.

De manera similar, las observables se transforman de la siguiente forma:

$$O_I = e^{\frac{i}{\hbar}H_0 t} O e^{-\frac{i}{\hbar}H_0 t}, \quad (3.1.7)$$

siendo  $O$  una observable arbitraria.

En este tratamiento, el operador  $H_I$  transformado en el marco de interacción es:

$$V_I = e^{\frac{i}{\hbar}H_0 t} H_{\text{Int}} e^{-\frac{i}{\hbar}H_0 t},$$

Utilizando la ecuación de Schrödinger en el marco de interacción, la dinámica del sistema se describe con la ecuación:

$$i\hbar\frac{d}{dt}|\Psi(t)\rangle_I = V_I|\Psi(t)\rangle_I, \quad (3.1.8)$$

Al descomponer (3.1.5) para hacer uso del marco de interacción, definimos:

$$H_R = H_0 + H_{\text{Int}},$$

con:

$$H_0 = \hbar\omega a^\dagger a + \hbar\frac{\Omega}{2}\sigma_z, \quad H_{\text{Int}} = \hbar\frac{g}{2}\sigma_x(a + a^\dagger).$$

### Aproximación de onda rotante

Trabajando desde el marco de interacción, evolucionamos la parte temporal con la ecuación (3.1.8), lo que nos permite encontrar la expresión explícita de  $V_I$  que es

$$V_I = \hbar g e^{i\Omega\sigma_+\sigma_-\tau} (\sigma_+ + \sigma_-) e^{-i\Omega\sigma_+\sigma_-\tau} e^{i\omega a^\dagger a} (a + a^\dagger) e^{-i\omega a^\dagger a}. \quad (3.1.9)$$

Expandiendo la exponencial con la fórmula de Baker-Campbell-Hausdorff dada por

$$e^{\alpha A} B e^{-\alpha A} = B + \alpha [A, B] + \frac{\alpha^2}{2!} [A, [A, B]] + \dots,$$

y considerando que la evolución temporal de  $a$  y  $a^\dagger$  está dada por (2.2.16), y la de  $\sigma_\pm$  por

$$\sigma_\pm(t) = \sigma_\pm(0) e^{\pm i\Omega t},$$

entonces, (3.1.9) es:

$$V_I = \hbar g \left( \sigma_- a^\dagger e^{-i(\Omega-\omega)t} + \sigma_+ a e^{i(\Omega-\omega)t} + \sigma_- a e^{i(\Omega+\omega)t} + \sigma_+ a^\dagger e^{-i(\Omega+\omega)t} \right)$$

Los términos  $\Omega \pm \omega$  contienen la suma y la diferencia de frecuencias, respectivamente, con  $\omega$  operando en banda óptica, mientras que  $\Omega$  en la frecuencia de transición atómica. La ecuación (3.1.8) en términos de esta  $V_I$  genera una ecuación diferencial de primer orden, a la que podemos aproximar la solución de manera recursiva para el operador de evolución.

La evolución de  $H_{\text{Int}}$ , al ser un término dependiente del tiempo, obedece a la serie de Dyson, cuyas integrales dependerán de las exponenciales de cada término contenido en los denominadores  $\Omega + \omega$  y  $\Omega - \omega$ . El término  $\Omega + \omega$  oscila a una frecuencia mucho mayor que  $\Omega - \omega$ ; por lo tanto, las integrales que dependen de los términos  $\Omega - \omega$  contribuyen en varios órdenes de magnitud más comparado con aquellos que contienen el otro término, por lo que estos últimos se consideran despreciables. A esta deducción se le conoce como la aproximación de onda rotante (RWA), e impone una restricción a considerar para asegurar la validez de la aproximación, que es que el valor de la frecuencia de acoplamiento  $g$  sea siempre mucho más pequeño que el valor de la suma de frecuencias  $\Omega + \omega$ , y de un orden equiparable a la diferencia. Así es como, en el marco de interacción y bajo la influencia de la aproximación de onda rotante,  $V_I$  se reescribe

$$V_I = \hbar g (\sigma_+ a e^{i\Delta t} + \sigma_- a^\dagger e^{-i\Delta t}). \quad (3.1.10)$$

Y regresando al marco de Schrödinger, la expresión completa del hamiltoniano es

$$H_{\text{JC}} = \hbar \omega a^\dagger a + \hbar \frac{\Omega}{2} \sigma_z + \hbar \frac{g}{2} (\sigma_+ a + \sigma_- a^\dagger), \quad (3.1.11)$$

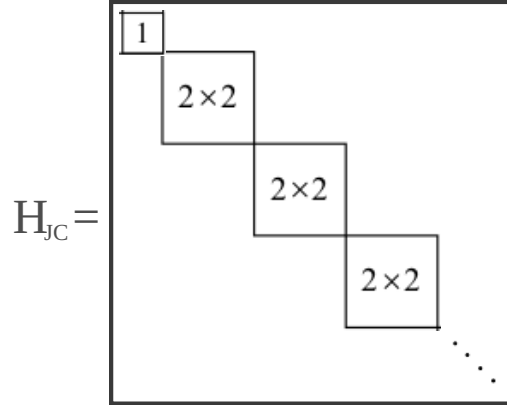


Figura 3.1: Representación matricial del hamiltoniano de Jaynes-Cummings en la base optoelectrónica del  $|n-1, e\rangle$  y  $|n, g\rangle$ . Se puede observar una estructura de bloques en la diagonal y un primer nivel desacoplado.

Conocido como el **hamiltoniano de Jaynes-Cummings**, el cual será la base de nuestro análisis en las siguientes secciones.

El término  $\sigma_+ a$  describe el proceso en el cual el átomo sube del estado  $|g\rangle$  a  $|e\rangle$ , y un fotón se absorbe en el proceso, mientras que el término  $\sigma_- a^\dagger$  describe cuando el átomo baja de  $|e\rangle$  a  $|g\rangle$  liberando un fotón. (3.1.11) genera una solución analítica en el marco de la ecuación de Schrödinger, lo que significa que podemos estudiar la evolución temporal del sistema y por tanto explorar diferentes fenómenos cuánticos, y que se desarrollará más adelante; pero antes de comenzar a resolver, observamos algunas de sus características.

### Constante de movimiento

Por tener dos niveles accesibles debe conservarse la probabilidad de estar en un estado o en otro, expresado como:

$$P_e + P_g = 1.$$

Además, la expresión  $H_{JC}$  nos indica que cada fotón creado esta acompañado de una desexcitación atómica y que cada aniquilación de fotón se acompaña de una excitación atómica a lo que se conoce como conservación de la excitación[6], matemáticamente se ve como:

$$a^\dagger a + \sigma_+ \sigma_- = \text{cte} = I. \quad (3.1.12)$$

Llamamos  $I$  a esta constante, es posible mostrar que  $I$  conmuta con  $H_{JC}$ ; indicando que es posible diagonalizarlos simultáneamente, pero analizando los eigenvalores de  $I$  en la base

Tabla 3.1: Eigensistema del operador  $I$ 

Estado	Eigenvalor
$ n-1, g\rangle$	$n-1$
$ n-1, e\rangle$	$n$
$ n, g\rangle$	$n$
$ n, e\rangle$	$n+1$
$ n+1, g\rangle$	$n+1$
$ n+1, e\rangle$	$n+2$

$\{|n\rangle \otimes |e\rangle, |g\rangle\}$  que podemos observar en la tabla 3.1,  $I$  tiene eigenvalores degenerados a pares a partir de  $|0, e\rangle$ . lo que nos indica una estructura por bloques de  $2 \times 2$  en la diagonal de  $H_{JC}$  como podemos observar en la figura 3.1. Cada bloque interactuando con un único subespacio de Hilbert aislado de dimensión  $2 \times 2$ .

### 3.1.1 Diagonalización por bloques

En lo siguiente analizamos con detalle el proceso de diagonalización por bloques, que simplifica el sistema mediante su descomposición en subsistemas más manejables. A través de este procedimiento, obtenemos los eigenvalores, que determinan las frecuencias características de las transiciones cuánticas, y los eigenvectores, que forman una base natural para expresar cualquier estado cuántico del sistema. Mediante la diagonalización del operador  $H_{JC}$  es posible determinar la solubilidad del sistema. Como se observa,  $H_{JC}$  se estructura en bloques diagonales, cada uno denominado  $H_{JC}^{(n)}$ . Dentro de cada bloque, los estados están organizados en dobletes:  $|n-1, e\rangle$  y  $|g, n\rangle$ . Hallar los eigenvalores y eigenestados de estos bloques es clave para la solución exacta del modelo.

La representación matricial de  $H_{JC}^{(n)}$  en la base de dobletes expresada en términos de matrices de Pauli para el espacio de Hilbert correspondiente a cada bloque es:

$$H_{JC}^{(n)} = \hbar \left( \omega n + \frac{\Delta}{2} \right) \cdot \mathbb{1}_{2 \times 2}^{(n)} + \hbar \frac{\Delta}{2} \sigma_z^{(n)} + \hbar \frac{g}{2} \sqrt{n} \sigma_x^{(n)}. \quad (3.1.13)$$

Si es posible representar un operador en términos de las matrices de Pauli  $\vec{\sigma} = (\sigma_0 = \mathbb{1}, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ , que forman una base para cualquier espacio  $2 \times 2$ , entonces su diagonalización se simplifica usando los coeficientes de expansión  $\vec{n} = (n_0, n_x, n_y, n_z)$  correspondientes a los términos que acompañan a la matriz de Pauli respectiva y sus eigenvalores están dados por

$$\lambda = n_0 \pm \sqrt{n_x^2 + n_y^2 + n_z^2} = n_0 \pm \varkappa \quad (3.1.14)$$

Dado que  $H_{JC}$  es un operador hermitiano, todos los coeficientes de expansión son reales. Para este caso en particular, los eigenvalores son

$$E_n^\pm = \hbar \left( \omega n + \frac{\Delta}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{g^2 n + \Delta^2} \right), \quad (3.1.15)$$

con  $\sqrt{g^2 n + \Delta^2} = \Omega_n$ , conocido como la **frecuencia de Rabi**. Los eigenestados correspondientes están relacionados como:

$$\vec{n} \cdot \vec{\sigma} |\Psi_\pm\rangle = \pm \varkappa |\Psi_\pm\rangle; \quad (3.1.16)$$

desarrollando el producto punto  $\vec{n} \cdot \vec{\sigma}$  mediante el cambio de coordenadas  $n_x = \varkappa \sin \theta$ ,  $n_z = \varkappa \cos \theta$  y resolviendo la ecuación (3.1.16), obtenemos los llamados estados vestidos, también llamados **polaritones** o estados polaritónicos. [27]:

$$\begin{aligned} |n, +\rangle &= \cos\left(\frac{\theta_n}{2}\right) |n-1, e\rangle + \sin\left(\frac{\theta_n}{2}\right) |n, g\rangle, \\ |n, -\rangle &= -\sin\left(\frac{\theta_n}{2}\right) |n-1, e\rangle + \cos\left(\frac{\theta_n}{2}\right) |n, g\rangle, \end{aligned} \quad (3.1.17)$$

donde el ángulo  $\theta_n$  se define para cada doblete como

$$\theta_n = \arctan^{-1} \left( \frac{g\sqrt{n}}{\Delta} \right). \quad (3.1.18)$$

Estas expresiones definen completamente la información del hamiltoniano. Así, la base en la que  $H_{JC}$  es diagonal es  $\{|0, g\rangle\} \cup \{|n, +\rangle, |n, -\rangle\}_{n=1}^\infty$ , también llamada base polaritónica. Físicamente, podría interpretarse como que en el sistema, la interacción entre luz y materia incrementa la brecha energética de  $\hbar\Delta$  a  $\hbar\Omega_R$ , lo que ocurre incluso en el estado  $|e, 0\rangle$  [27].

## 3.2 Dinámica del hamiltoniano de Jaynes-Cummings

En esta sección, nos enfocamos en la dinámica del hamiltoniano de Jaynes-Cummings. Una vez conocido el eigensistema es posible expresar cualquier estado inicial en la base de eigenvectores, lo que facilita la predicción precisa de su evolución temporal utilizando las propiedades del hamiltoniano diagonalizado. De este modo, se obtiene una descripción detallada de cómo el sistema evoluciona con el tiempo, aspecto esencial para el estudio de la dinámica cuántica y la coherencia del sistema. Estudiamos la evolución temporal del sistema con una distribución específica, partiendo de un estado coherente en el modo óptico. Esta evolución revela comportamientos cuánticos intrínsecos, como las oscilaciones

de Rabi, que son una manifestación directa de la interacción entre el átomo y el campo. Adicionalmente, exploramos una aproximación del estado coherente evolucionado que nos permite describir los patrones de resurgimiento y también representarlo en el espacio fase mediante la función  $Q$ , proporcionando una visualización clara de cómo el sistema transita a través de diferentes estados cuánticos coherentes durante su evolución.

### 3.2.1 Evolución temporal

Para estudiar el comportamiento del sistema en un tiempo posterior, es necesario conocer el estado  $|\Psi(t)\rangle$ , aplicando el operador de evolución temporal  $U(t)$  a un estado inicial denotado por  $|\Psi(0)\rangle$ . Generalmente, seleccionamos un estado inicial en el que el átomo está en superposición de sus estados energéticos, expresado como

$$|\phi\rangle = c_e(0)|e\rangle + c_g(0)|g\rangle \quad (3.2.1)$$

y el campo se encuentra en superposición de estados de número

$$|\alpha\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} p_n |n\rangle \quad (3.2.2)$$

de manera que el estado inicial es el producto exterior de ambos:

$$\begin{aligned} |\Psi(0)\rangle &= |\phi\rangle|\alpha\rangle \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} p_n [c_e|n, e\rangle + c_g|n, g\rangle]. \end{aligned} \quad (3.2.3)$$

Cambiando de base a de estados vestidos se convierte en:

$$|\Psi(0)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} p_n \{c_e[C|n+1, +\rangle - S|n+1, -\rangle] + c_g[S|n, +\rangle + C|n, -\rangle]\}, \quad (3.2.4)$$

Donde con una simplificación de notación nos hemos permitido usar  $C = \cos(\frac{\theta_n}{2})$  y  $S = \sin(\frac{\theta_n}{2})$  de las componentes de los eigenvectores en (3.1.17). Como conocemos el eigensistema del hamiltoniano es sencillo obtener el estado evolucionado de  $|\Psi(0)\rangle$ :

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ e^{-i\frac{\Omega_n}{2}t} D_n^+ |n, +\rangle + e^{i\frac{\Omega_n}{2}t} D_n^- |n, -\rangle \right\} \quad (3.2.5)$$

con los coeficientes:

$$D_n^+ = e^{-i\phi_n t} (p_n c_g S - p_{n-1} c_e C), \quad D_n^- = e^{-i\phi_n t} (p_n c_g C + p_{n-1} c_e S), \quad \phi_n = \omega n + \Delta,$$

Estos coeficientes proporcionan la solución completa al problema, pues todas las cantidades físicamente relevantes relacionadas con el sistema pueden obtenerse desde ahí.

Podemos reescribir (3.2.5) como si lo regresamos a la base optoelectrónica y aislar a las componentes electrónicas, de tal manera que quede como:

$$|\Psi(t)\rangle = |\chi_g(t)\rangle|g\rangle + |\chi_e(t)\rangle|e\rangle, \quad (3.2.6)$$

donde

$$|\chi_g(t)\rangle = \sum_n \mathcal{D}_n^+(t)|n-1\rangle, \quad |\chi_e(t)\rangle = \sum_n \mathcal{D}_n^-(t)|n\rangle.$$

definiendo a:

$$\begin{aligned} \mathcal{D}_n^+ &= e^{-i\frac{\Omega_n}{2}t}(CD_n^+ - e^{i\Omega_n t}SD_n^-), \\ \mathcal{D}_n^- &= e^{-i\frac{\Omega_n}{2}t}(SD_n^+ + e^{i\Omega_n t}CD_n^-). \end{aligned}$$

Lo que muestra claramente cómo solo una parte del sistema se ve afectada por la evolución, aislando a los estados ópticos por pertenecer a un bloque dado. Más adelante exploraremos lo que sucede cuando consideramos  $p_n(0)$  como la distribución específica con relevancia física.

### 3.2.2 Oscilaciones de Rabi

Cuando analizamos la evolución temporal del  $H_{JC}$ , observamos fenómenos que no tienen una contraparte semiclásica. Una cantidad muy importante para resaltar esto es la inversión de población  $W(t)$ , la cual es de interés central debido a su accesibilidad en experimentos, y al igual que en (2.1.19) expresa la diferencia de la probabilidad de estar en un estado hibridizado o en otro, y que expresada en términos de la matriz de Pauli se escribe como:

$$W(t) = \langle \Psi(t) | \sigma_z | \Psi(t) \rangle, \quad (3.2.7)$$

Esta cantidad depende directamente de la distribución del coeficiente  $p_n$ ,  $|p_n|^2$  es la probabilidad de que existan  $n$  fotones presentes en el campo al tiempo inicial. Sustituyendo para el caso en que el átomo se encuentra inicialmente en el estado excitado, es decir  $|c_e|^2 = 1$  y  $|c_g|^2 = 0$ , se encuentra que

$$W(t) = \sum_n p_n^2 \left( \frac{\Delta^2}{\Omega_n^2} + \frac{g^2 n}{\Omega_n^2} \cos(\Omega_n t) \right). \quad (3.2.8)$$

Si la distribución es la del campo vacío, es decir en  $n = 0$ , se reduce a

$$W(t) = \cos\left(\sqrt{\Omega_0^2 + g^2 t}\right),$$

cuyo valor corresponde a introducir un átomo excitado en una cavidad sin fotones, es decir al estado  $|e, 0\rangle$ .

En el caso cuántico,  $W(t)$  no desaparece y presenta un comportamiento oscilatorio; estas son llamadas **Oscilaciones de Rabi del campo vacío**. Estas no tienen contraparte clásica [11] y son el resultado de que el átomo emita espontáneamente un fotón después lo reabsorbe, reemite, y así sucesivamente.

Es posible recuperar el caso semiclásico como el de la figura 2.2 si se tiene un número muy grande de fotones en la cavidad, pero sucede algo muy interesante cuando la distribución es una distribución coherente con un número de fotones promedio  $N$ . Recurriendo a (2.2.23) y sustituyendo en (3.2.8) se obtiene:

$$W(t) = e^{-N} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{N^n}{n!} \left[ \frac{\Delta^2}{\Omega_n} + \frac{g^2 n}{\Omega_n^2} \cos(g\sqrt{nt}) \right]. \quad (3.2.9)$$

En el caso de sintonía,  $\Delta = 0$  es:

$$W(t) = e^{-N} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{N^n}{n!} \cos(g\sqrt{nt}).$$

Mostramos en la figura 3.2 la gráfica de  $W(t)$  contra un tiempo escalado  $gt$ . Se observa en esta un comportamiento oscilatorio en la población atómica que primero colapsa y después revive en un tiempo posterior. Este comportamiento se repite al avanzar en el tiempo, mientras que la amplitud de oscilación decrece y el tiempo de colapso incrementa hasta sobreponerse a los nuevos resurgimientos.

En el tiempo de colapso, el sistema se encuentra en una superposición de estados y el resurgimiento sucede como un fenómeno completamente cuántico que recibe el nombre de colapso y resurgimiento de oscilaciones de Rabi. Este fenómeno ya ha sido probado de manera experimental, visto sobre todo en el contexto de máseres de un átomo [28], cavidades de microondas de  $Q$  alto y bajo [29, 30] y trampas de iones [31], además de ser muy útil en la preparación de estados atómicos [16, 32].

Es posible explorar la validez de la aproximación de onda rotante en el JC comparada con el modelo de Rabi midiendo la fidelidad entre estados evolucionados, que exploraremos en lo siguiente.

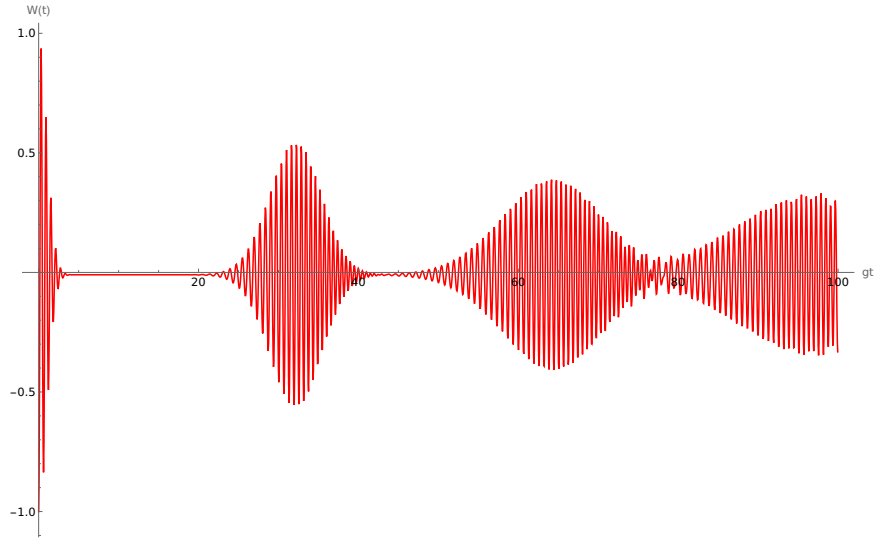


Figura 3.2: Inversión de población para 25 fotones dentro de la cavidad en una distribución de estado coherente. Se observa el fenómeno de colapso y resurgimiento de oscilaciones de Rabi.

### 3.2.3 Fidelidad

La fidelidad es una medida para saber que tan similares o cercanos son dos estados cuánticos y se utiliza para evaluar la coincidencia entre un estado con otro de referencia [33]; matemáticamente se define como:

$$F(|\psi\rangle, |\phi\rangle) = |\langle\psi|\phi\rangle|^2; \quad (3.2.10)$$

su valor se sitúa en un rango entre 0 y 1, siendo 0 dos estados ortogonales o completamente diferentes y 1 estados idénticos y es posible extenderla a un análisis temporal si alguno de los estados depende del tiempo  $t$ . Exploramos la fidelidad que existe entre los estados evolucionados con (3.1.5) denotados por  $|\psi_R(t)\rangle$  y los evolucionados con (3.1.11) denotados por  $|\psi_{JC}(t)\rangle$  de tal manera que la función de fidelidad es:

$$F(t) = |\langle\psi_R(t)|\psi_{JC}(t)\rangle|^2$$

Cuando se cumple una condición de resonancia dentro del régimen de acoplamiento fuerte, por ejemplo eligiendo los parámetros con respecto a una  $g$  fija,  $N = 25$  y  $\omega = \Omega = 1000g$  se obtiene 3.3. Aunque la fidelidad oscila, no se aleja del valor 1, prácticamente ambos estados son los mismos.

Si incrementamos el acoplamiento  $g$ , hasta hacerlo solo 100 veces menor que la frecuencia del átomo, y aun dejándolo en condición de resonancia para el mismo número de

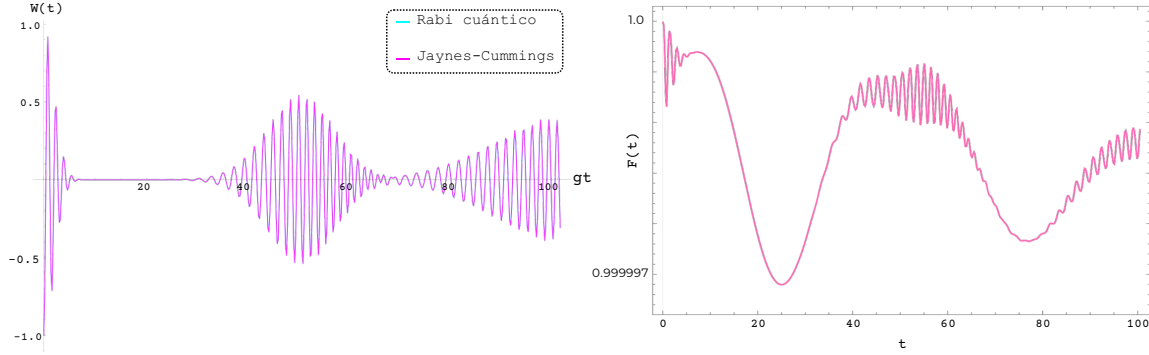


Figura 3.3: Inversión de población de un sistema en condición de resonancia  $\omega = \Omega = 1000g$ , se muestra la fidelidad entre el modelo de Rabi cuántico y el de JC, que resulta ser muy cercana a 1.

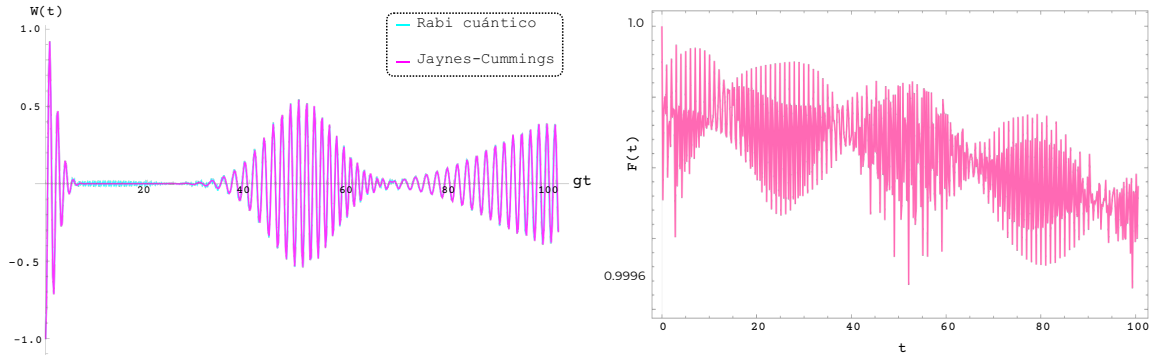


Figura 3.4:  $W(t)$  en condición de resonancia  $\omega = \Omega = 100g$ , es decir, debilitando la interacción, la fidelidad entre los dos modelos se mantiene cercana a 1.

fotones en la cavidad, los parámetros ahora serán  $\omega = \Omega = 100g$ , resultando en las gráficas de la figura 3.4. Comienza a verse que algunos términos del estado evolucionado de Rabi generan ruido, no permitiendo el colapso completo; sin embargo, la correspondencia entre ambas funciones continúa siendo buena, no bajando del valor del 0.9996 de coincidencia, por lo que la aproximación es válida.

Generando un acoplamiento en el régimen ultra-fuerte, tan solo 10 veces más pequeño que  $\omega$ , respetando la condición de resonancia  $\Delta = 0$ , el fenómeno de colapso se destruye en este régimen para el hamiltoniano de Rabi. En este orden falla la RWA, respaldado por la caída de la fidelidad a valores cercanos a 0.2 de coincidencia como se observa en la figura 3.5.

Por el contrario, si ahora lo que cambia es el valor de la sintonía, eligiendo  $\Delta = 10g$  y preparamos al estado inicial como el estado  $|g\rangle$ , el fenómeno de oscilación no se pierde,

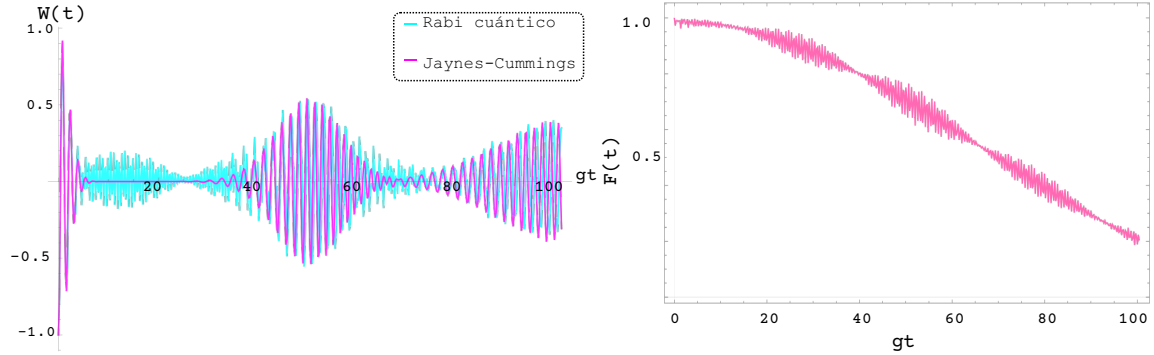


Figura 3.5: Cuando el acoplamiento se encuentra en el régimen ultra-fuerte ambos modelos difieren fuertemente, cayendo su fidelidad hasta un valor de 0.2.

pero si disminuye la amplitud del resurgimiento, y el colapso ocurre en un valor diferente al de superposición coherente. En el caso de  $|g\rangle$  oscila de  $-1$  a un valor positivo pero menor que 1, el cual dependerá directamente de  $\Delta$ . Si por el contrario preparamos desde el estado  $|e\rangle$ , oscilará de 1 a un valor negativo mayor que  $-1$ ; mientras la desintonía continúe creciendo, el valor de  $W(t)$ , tenderá a 1 o  $-1$  dependiendo el estado inicial, y en algún punto dejará de provocar la excitación y desexcitación atómica. Además manteniendo el número de fotones se tendrá una fidelidad idéntica (prácticamente constante) independientemente del estado inicial.

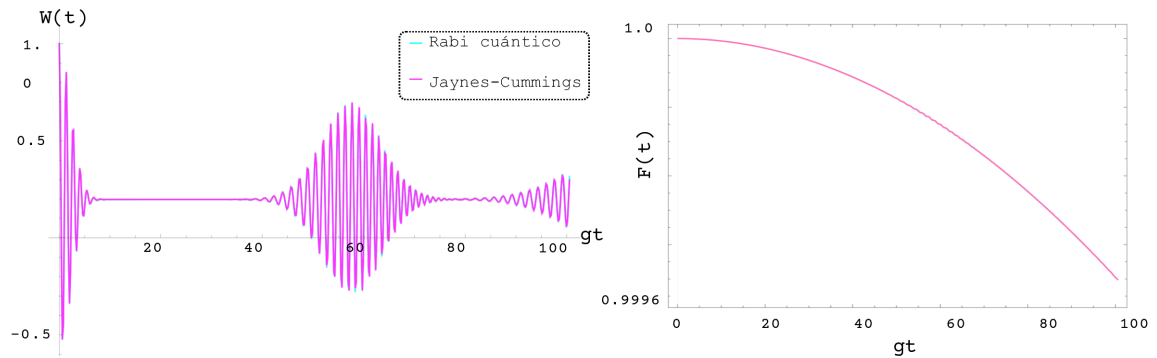


Figura 3.6:  $W(t)$  y  $F(t)$  cuando el sistema se encuentra en desintonía entre la frecuencia de transición del átomo y la frecuencia de los fotones presentes en la cavidad, preparando al estado inicial como el estado base.

La comprensión de estas oscilaciones es esencial para explorar cómo el sistema evoluciona en presencia de estados cuánticos complejos. En la siguiente sección, nos enfocamos en aproximar la evolución del sistema cuando el campo se encuentra inicialmente en

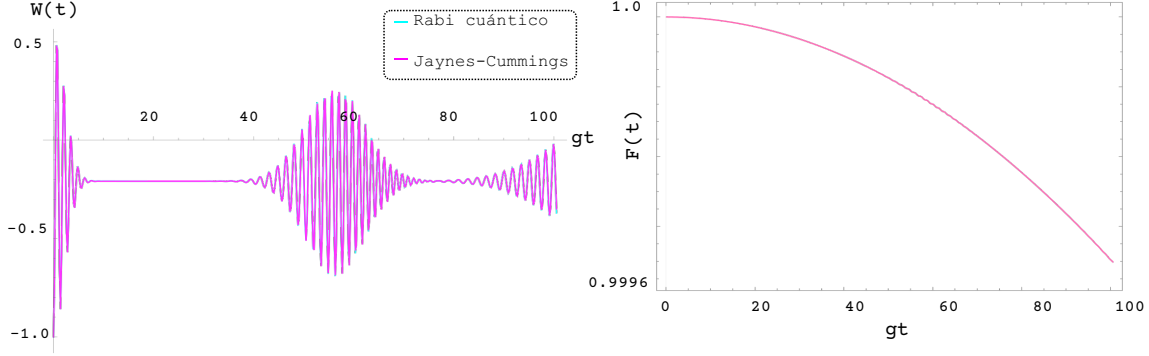


Figura 3.7: Mismas condiciones que en 3.6 pero preparando al estado inicial como el estado excitado.

un estado coherente, lo cual nos permite simplificar la descripción de la dinámica cuántica manteniendo los elementos más relevantes para el análisis.

### 3.2.4 Aproximación a estados coherentes

Es posible realizar una aproximación sobre el estado  $|\Psi(t)\rangle$  para simplificar el análisis de su dinámica, mediante la consideración de que el sistema mantiene aproximadamente la forma de un estado coherente, aislando la componente coherente mediante algunas consideraciones. Para esto, podemos aprovechar los eigenvectores de (3.1.11) dados por los estados vestidos (3.1.17).

Comenzamos la aproximación desde (3.2.5), separando a la componente de distribución fotónica  $p_n$  considerando la forma inicial de un estado coherente como en (2.2.22) y considerando la forma gaussiana, si el valor medio de  $n$ ,  $N$  es grande (es decir,  $|\alpha|^2 \gg 1$ ), esta cambia relativamente lento con el valor de  $n$ , entonces podemos considerar  $p_{n-1} \approx p_n \approx p_{n+1}$ , quedando así:

$$|\Psi(0)\rangle \simeq \sum_{n=1}^{\infty} p_n \{d_n^+ |n, +\rangle + d_n^- |n, -\rangle\},$$

donde  $d_n^{\pm} = c_g C \pm c_e S$ . Aplicando el operador de evolución, obtenemos:

$$|\Psi(t)\rangle \simeq \sum_{n=1}^{\infty} p_n e^{-i\frac{\phi_n}{2}t} \left\{ d_n^+ e^{-i\frac{\Omega_n}{2}t} |n, +\rangle + d_n^- e^{i\frac{\Omega_n}{2}t} |n, -\rangle \right\}.$$

Al regresar a la base de estados electrónicos, se tiene:

$$|\Psi(t)\rangle \simeq \sum_{n=1}^{\infty} p_n e^{-i\frac{\phi_n}{2}t} \left\{ d_n^+ e^{-i\frac{\Omega_n}{2}t} (C_n |n-1, e\rangle + S_n |n, g\rangle) + d_n^- e^{i\frac{\Omega_n}{2}t} (-S_n |n-1, e\rangle + C_n |n, g\rangle) \right\}.$$

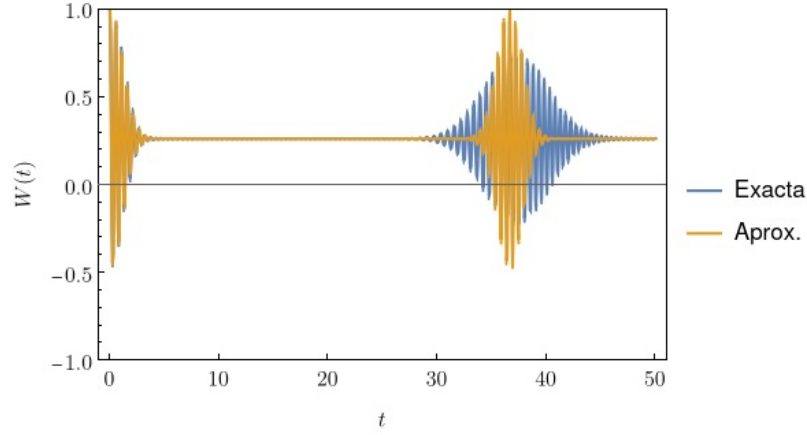


Figura 3.8:  $W(t)$  para las funciones evolucionadas del modelo de  $JC$  (en azul) y el modelo aproximado a estados coherentes (en amarillo) con número promedio de fotones suficientemente grande ( $n = 25$ ) y en condición fuera de resonancia preparado inicialmente en el estado excitado. Los tiempos de colapso y resurgimiento coinciden para ambas funciones, por lo que la aproximación es un buen candidato para la medición de otras cantidades del sistema.

Ademas al linealizar los términos  $\sqrt{n}$  mediante una serie de Taylor se tiene:

$$\sqrt{n} = \frac{1}{2} \left( \sqrt{N} + \frac{n}{\sqrt{N}} \right),$$

Por lo tanto, los términos  $\Omega_n$  alrededor de  $N$  son:

$$\Omega_n = \Omega_N + \frac{\partial \Omega_N}{\partial N} (n - N) = \phi_N + \Omega'_N n,$$

donde  $\phi_N = \Omega_N - \Omega'_N N$  y

$$\Omega'_N = \frac{\partial \Omega_N}{\partial N} = \frac{g^2}{4\sqrt{\Delta^2 + g^2 N}}; \quad (3.2.11)$$

aproximando así a  $|\Psi(t)\rangle$  de la ecuación (3.2.5) a:

$$\begin{aligned} |\Psi(t)\rangle \approx & d_N^+ e^{-i\phi_N t} \left( C_N e^{-i\Omega'_N t} |e\rangle + S_N |g\rangle \right) |\alpha e^{-i\Omega'_N t}\rangle + \\ & d_N^- e^{i\phi_N t} \left( -S_N e^{i\Omega'_N t} |e\rangle + C_N |g\rangle \right) |\alpha e^{i\Omega'_N t}\rangle. \end{aligned} \quad (3.2.12)$$

Reinterpretando el estado evolucionado como un estado coherente, el cambio de fase solo traslada al estado coherente a través de un círculo en el espacio de fase con una frecuencia dependiente del parámetro de acoplamiento y el número medio de fotones en la cavidad, manteniendo aproximadamente la forma gaussiana del estado inicial del modo fotónico.

Esta aproximación de la solución original nos permite mejorar el análisis de la dinámica, al quedar en términos de dos estados coherentes del campo, como se observa en el término  $|\alpha e^{\pm i\Omega'_N t}\rangle$ . En la fig. 3.8 se muestra a la función  $W(t)$  del modelo de Jaynes-Cummings comparado con la función generada por la evolución a partir de la aproximación generalizando a un estado inicial con desintonía, dentro de este régimen los tiempos de colapso y resurgimiento coinciden. No así la forma de la función debido al rastreo de la componente coherente realizado al momento de aislar la componente coherente.

Una de las cantidades que podemos analizar a partir de esta aproximación es el tiempo de colapso y resurgimiento.

### Tiempos característicos

En el fenómeno de colapso y resurgimiento, mencionado en secciones anteriores, identificamos dos puntos de interés temporal: el instante en que la dinámica colapsa y el momento es que el primer resurgimiento alcanza su punto máximo. Al primero se le denomina tiempo de colapso ( $t_c$ ) y al segundo, tiempo de resurgimiento ( $t_r$ ). Podemos calcularlos basándonos en los resultados de la aproximación de estados coherentes de la sección anterior, donde observamos que los estados atómicos son independientes del estado inicial. En contraste, los componentes del campo, dados por  $|\alpha e^{\pm i\Omega'_N t}\rangle$ , difieren en una frecuencia de  $\Omega'_N$ .

El momento en que las fases coinciden nuevamente se define como el tiempo  $t_r$ , es decir,

$$|\langle \alpha e^{-i\Omega'_N t_r} | \alpha e^{i\Omega'_N t_r} \rangle| = 1. \quad (3.2.13)$$

Debido a la no ortogonalidad de los estados coherentes, (3.2.13) se iguala a

$$e^{-|\alpha|^2(1-\cos(2\Omega'_N t_r))} \simeq e^{-|\alpha|^2 2(\Omega'_N)^2 t_r^2}.$$

Valido unicamente para tiempos cortos, despejando  $t_r$  obtenemos:

$$t_r = \frac{\pi}{\Omega'_N}, \quad (3.2.14)$$

En  $t_r$ , la oscilación alcanza su punto más alto después del primer colapso.

Los estados coherentes giran alrededor de un círculo en el espacio de fase con una frecuencia  $\Omega_N$ . Para visualizar esto gráficamente, recurrimos la función  $Q$  [11]; Por otro lado

$$t_c = \frac{1}{g} \quad (3.2.15)$$

por lo que el colapso depende enteramente del valor de  $g$ .

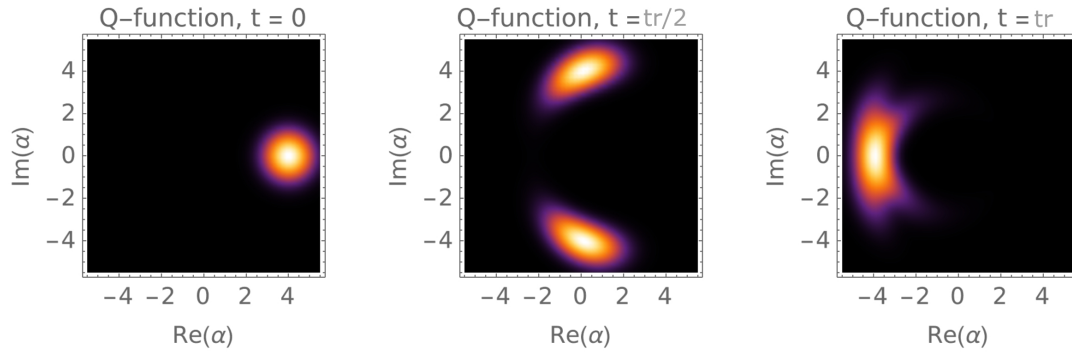


Figura 3.9: Función  $Q$  para el contexto de la fig. 3.2. Representado en el espacio fase el fenómeno de colapso y resurgimiento es el resultado de la división del estado coherente, que se mueve a través de este y se recombina en un tiempo posterior, generando nuevas oscilaciones.

### 3.2.5 Función $Q$ para el modelo de JC

Para analizar la función  $Q$ , es necesario conocer el operador de densidad  $\rho$  del sistema. En este caso,  $\rho$  está formado por estados puros, por lo que su expresión es:

$$\rho_{JC} = |\Psi(t)\rangle\langle\Psi(t)|.$$

En particular, el estado de la cavidad está descrito por el operador

$$\rho_d = |\chi_g(t)\rangle\langle\chi_g(t)| + |\chi_e(t)\rangle\langle\chi_e(t)|, \quad (3.2.16)$$

que es el operador de densidad reducido, con este último la función  $Q$  toma la forma

$$\begin{aligned} Q(\alpha) &= \langle\alpha|\rho_d|\alpha\rangle \\ &= |\langle\alpha|\chi_g\rangle|^2 + |\langle\alpha|\chi_e\rangle|^2. \end{aligned}$$

Tomando el caso particular donde fijamos  $c_e = 1$ ,  $c_g = 0$  y a  $p_n$  como la distribución de un estado coherente, encontramos las figuras 3.9 en los tiempos  $t = 0$ ,  $t = \frac{t_r}{2}$  y  $t = t_r$ .

#### Representación en el espacio fase

Al tiempo  $t = 0$ , el estado coherente se representa como un círculo; en tiempos posteriores se divide en dos componentes. Podemos relacionar la oscilación y su colapso con esta separación de componentes en el espacio fase, como se muestra en la segunda figura de 3.9; el colapso de la oscilación surge cuando ambas componentes dejan de interactuar

entre sí al no ocupar el mismo espacio en el espacio fase y el resurgimiento ocurre cuando las componentes se encuentran en un tiempo posterior y vuelven a ocupar el mismo espacio en el tiempo  $t_r$ . La imperfección del resurgimiento se explica por la deformación de las componentes del estado, que ya no son estados coherentes perfectos. Sin embargo, aun con esta deformación, la aproximación a estados coherentes resulta muy útil, ya que respeta el tiempo de viaje de las componentes y el tiempo de resurgimiento calculado para este caso también resulta correcto.

Ahora que conocemos el paradigma, podemos buscar la generalización en busca de adaptar al caso de emisores cuánticos diferentes, como veremos en el siguiente capítulo.

## Capítulo 4

# Modelo de Holstein-Tavis-Cummings

### 4.1 Interacción molécula-cavidad

Recientemente, otros tipos de sistemas además de los átomos han despertado un interés considerable en el estudio de problemas correlacionados de materia-luz, ampliando significativamente el alcance del estudio de la interacción entre radiación y materia. Este interés se ha extendido a sistemas moleculares, debido a que estos modelos proporcionan sistemas cuánticos muy compactos con transiciones energéticas, que abarcan desde el rango de microondas hasta el ultravioleta [17], asociadas a estados electrónicos, rotacionales y vibracionales [34]. Por definición, una molécula es una agrupación de dos o más átomos unidos mediante enlaces químicos, que pueden ser tanto del mismo como de diferentes elementos.

El acoplamiento entre moléculas y fotones en cavidades ha sido posible de manera experimental solo en los últimos años [34]. Se han registrado dos tipos de interacciones: acoplamiento débil y fuerte. Aunque en el acoplamiento débil la dinámica vibracional prácticamente no se ve afectada [35], dentro del régimen de acoplamiento fuerte suceden fenómenos interesantes. Este fue observado por primera vez en micro cavidades con semiconductores inorgánicos [36, 37], donde se descubrió que la presencia del campo electromagnético modifica las transiciones ópticas del material; también se ha logrado con semiconductores orgánicos [38, 39, 40], que han mostrado una modificación dramática en

su dinámica de emisión y energía, estableciendo rutas novedosas para la generación de luz no clásica [41, 42]. Por lo anterior, el estudio de materiales orgánicos se ha extendido a otros sistemas como J-aggregates, cristales de pequeñas moléculas, polímeros conjugados, entre otros [43]. Generalmente, estos experimentos han sido realizados en un régimen de acoplamiento fuerte en colectivos, es decir, con muchas moléculas acopladas a un único modo. No obstante, ya se ha alcanzado el régimen de pocas moléculas o incluso de una sola [44]. En este contexto la interacción de la luz con materia orgánica puede alterar propiedades de las moléculas como el transporte [45, 46], la superirradiación [47], propiedades fotoquímicas [48], incrementos en la conductividad [49], e incluso la modificación de la estructura molecular [50]. Además, se han registrado fuertes corrimientos en las frecuencias vibracionales durante el acoplamiento, lo que indica la aparición de nuevos estados hibridizados de la materia a temperaturas altas [49, 51]. En la literatura, estos estados se denominan polaritones orgánicos [51], que son una mezcla de excitaciones fotónicas, electrónicas y vibracionales. A las excitaciones vibracionales también se les conoce como fonones [52], es decir cuantos de energía vibracional.

Debido al importante rol que juegan los modos vibracionales, se ha observado la aparición de nuevos picos en el espectro de emisión [53], lo que implica que este sistema no puede ser tratado simplemente como un sistema de dos niveles acoplado a un campo de radiación [54], los modos vibracionales deben ser considerados. Este hecho ha representado un obstáculo para el desarrollo de aplicaciones del uso de moléculas en óptica cuántica. Sin embargo, se ha demostrado experimentalmente que una molécula orgánica dentro de una micro cavidad óptica puede comportarse como un sistema cuántico coherente de dos niveles [17]. Este experimento consistió en capturar una molécula de tipo hidrocarburo aromático policíclico (PAH), específicamente dibenzoterileno (DBT), dentro de un cristal de antraceno (AC) en una cavidad de tipo Fabry-Perot, generada por una fibra óptica y un arreglo de espejos a baja temperatura (4K). Se buscaba examinar el efecto del confinamiento en la respuesta óptica de la cavidad, y se observó que la transmisión de esta última cayó en un 99%, indicando que el acoplamiento era exitoso, y que la molécula se estaba comportando como un emisor cuántico altamente eficiente, demostrando un incremento en la emisión molecular impulsado por el acoplamiento, una característica necesaria para considerarlo un sistema cuántico de dos niveles [17]. Este tipo de emisores cuánticos son importantes pues pueden emitir de manera confiable fotones individuales, componente fundamental de muchas tecnologías emergentes como la computación, comunicación y criptografía cuánticas

donde protocolos cuánticos existentes pueden ser implementados. La importancia de este descubrimiento radica en que los modelos de pocos niveles son capaces de capturar la física esencial en la predicción de propiedades [49], por lo que poder afirmar que se puede sintetizar como uno de dos niveles nos ayuda a predecir importantes propiedades de los sistemas moleculares, esta aproximación es aplicable cuando hay una clara separación entre niveles electrónicos, como en el caso de moléculas pequeñas, pero no para moléculas con una complicada estructura electrónica; otro hallazgo relevante es que cuando un electrón es excitado ópticamente, el núcleo reordena su configuración para minimizar la energía electrónica. Sin embargo, cuando el sistema está confinado dentro de una cavidad, esta reorganización del núcleo se suprime [55].

Para abordar la adición de los modos vibracionales a la dinámica, se recurre al modelo de Holstein-Tavis-Cummings (HTC), donde los modos vibracionales se modelan como un único modo fonónico [51, 52]. Esta herramienta ha mejorado la comprensión de las micro cavidades fuertemente acopladas [17], tratando los niveles electrónicos, nucleares y fonónicos en igualdad de condiciones, a diferencia de otros modelos que aún recurren a planteamientos clásicos o que abordan el problema de manera perturbativa al acoplamiento excitón-fonón [56]. Las aplicaciones de los sistemas de moléculas orgánicas confinadas incluyen el control de reacciones químicas [55] y fenómenos de transporte, así como el estudio de propiedades de la óptica no lineal. Se espera que con estos sistemas se puedan desarrollar dispositivos opto-electrónicos mejorados para aplicaciones de óptica cuántica en cavidades, y que se puedan manipular para llevar el sistema a un estado predeterminado, útil en protocolos de control [49]. Estos sistemas también son candidatos para generar condensados de Bose-Einstein de polaritones a altas temperaturas [54, 57], pues los polaritones, o estados hibridizados de luz y materia, que en capítulos anteriores encontramos son los estados vestidos del modelo de JC, ya han demostrado estabilidad a temperatura ambiente [58].

El régimen de acoplamiento fuerte se hace evidente cuando la fuerza de interacción (referida como espaciamiento de Rabi [35]) excede la transición óptica y el empuje del modo de la cavidad. Cuando esto ocurre, pueden presentarse cambios periódicos en la energía entre los modos acoplados, descritos en el capítulo anterior como oscilaciones de Rabi, a veces también llamadas pulsos. En moléculas orgánicas, se han reportado espaciamientos muy grandes (del orden de 110 meV), en contraste con los valores bajos obtenidos para moléculas inorgánicas, lo cual hace que estas estructuras sean atractivas para estudios fundamentales de dinámica coherente en sistemas excitón-fotón [35]. Sin embargo, a pesar de la presencia

del espaciamiento, no se han reportado caracterizaciones de las oscilaciones de Rabi para esta clase de sistemas, a pesar de que, bajo las características del régimen de acoplamiento fuerte, deberían presentarse entre estados hibridizados. Tampoco se ha estudiado el impacto del modo fonónico en las oscilaciones comparadas con el sistema paradigmático de dos niveles.

El objetivo del siguiente capítulo es incorporar los grados de libertad vibracionales que proporcionan las moléculas, permitiendo explorar las características cuánticas de estos sistemas con mayor profundidad. Es por ello que en este trabajo se plantea iniciar con el modelo más sencillo que incluye una molécula con un modo fonónico. En las siguientes secciones, presentamos la metodología utilizada para encontrar una solución analítica a esta generalización, ofreciendo así una visión más completa del fenómeno.

## 4.2 Hamiltoniano del modelo HTC

Podemos describir la interacción entre moléculas confinadas en una cavidad óptica que contiene un modo discreto del campo electromagnético, mediante un modelo cuántico que capture la dinámica del sistema y describa su interacción con las transiciones electrónicas y vibracionales. Para esto debemos considerar que el hamiltoniano incluya las contribuciones de la energía electrónica y vibracional de las moléculas, así como la energía del campo de radiación de la cavidad, junto con sus términos de acoplamiento.

### Hamiltoniano de Holstein

El hamiltoniano de Holstein fue introducido por primera vez en 1959 en el contexto del estudio de cristales [19], y se ha recuperado en años recientes debido a la simplicidad con la que integra los grados de libertad vibracionales [47, 59].

Debido a que las moléculas son sistemas de muchos cuerpos, que involucran las coordenadas de todos los electrones y núcleos de los átomos que las conforman, un hamiltoniano que las describa debe incluir las contribuciones potenciales tanto nucleares como electrónicas generadas debido a las fuerzas repulsivas núcleo-núcleo y electrón-electrón con cargas iguales y las fuerzas atractivas de la interacción entre electrones y núcleos con cargas opuestas [56]. Es necesario entender como modelar a la molécula libre para después examinar su comportamiento dentro de la cavidad electromagnética. La idea básica consiste en que los átomos que conforman a la molécula se encuentran atados compartiendo electrones y por tanto tienen una configuración en equilibrio, pero, si uno de los electrones experimenta

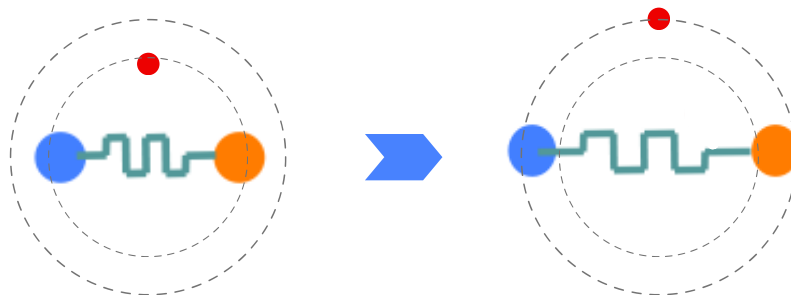


Figura 4.1: Esquema simplificado de una molécula diatómica, ambos átomos unidos mediante un enlace. Como un punto rojo se representa un electrón perteneciente a la nube electrónica de la molécula; tiene cierta trayectoria cuando está en su energía base, pero al excitarse y subir a un nivel energético superior modifica la fuerza del enlace, debilitándolo y generando una separación mayor entre los átomos, suponiendo que no alcanza la energía de disociación.

una transición a un nivel de energía electrónico superior, se generará un aumento en la separación de los átomos pues al estar un poco más alejado del núcleo, se incrementará la fuerza con la que los núcleos se repelen entre sí, podemos ver una representación simplificada de esta idea en la figura 4.1.

Por lo anterior, para la construcción del modelo se considera la **aproximación de único electrón activo**, es decir, que todos menos un electrón se encuentran congelados alrededor del núcleo, y este único electrón tendrá permitido saltar a un nivel electrónico superior. Consideramos a la configuración inicial de equilibrio como el estado base representada por  $|g\rangle$ ; y  $|e\rangle$  al estado correspondiente al salto del electrón a un nivel energético superior (también llamado movimiento electrónico o estado excitado), la transición entre ambos estados esta generada por los operadores  $\sigma_{\pm}$ . Al igual que en el modelo de Rabi, el hamiltoniano que describe esta dinámica es análogo al de (2.1.9).

También debemos considerar que una molécula conformada por  $n$  átomos va a tener al menos  $3n - 6$  modos vibracionales o movimientos nucleares en el espacio de configuraciones de coordenadas nucleares; a pesar de que es un espacio muy grande en las reacciones y procesos moleculares no todos los modos vibracionales son relevantes, solo algunos de estos son significativos durante los procesos, entonces pueden ser sintetizados en una única coordenada que se conoce como coordenada de reacción [56, 60, 61]. Las coordenadas de reacción son un parámetro del progreso de una reacción química que se compara con el cambio en la energía, cuantificando cambios estructurales y energéticos [62], por lo que en realidad serian una representación abstracta del espacio de coordenadas nucleares y están ligadas a la posición de los átomos en la molécula. Con este recurso se logra re-

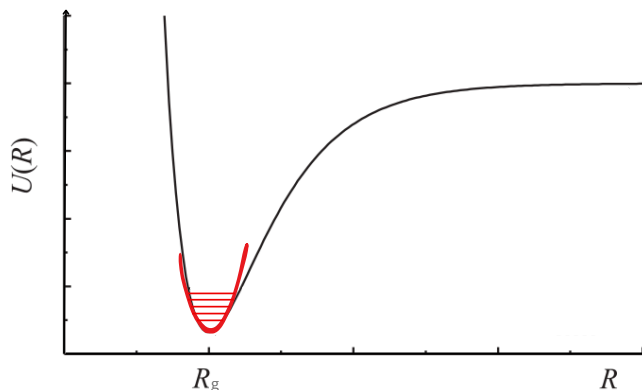


Figura 4.2: Es posible aproximar cerca del mínimo del pozo a un oscilador armónico cuantizado con operador de aniquilación  $b$

ducir la complejidad de los movimientos vibracionales introduciendo a la coordenada de reacción como un potencial efectivo del movimiento nuclear en el marco de la aproximación de Born-Oppenheimer. Esta aproximación considera que los movimientos nucleares son independientes de los movimientos electrónicos debido a la enorme diferencia de masas entre ambos, por consiguiente, la vibración del núcleo es muy lenta comparada con la de los electrones, que se traduce en que las transiciones electrónicas suceden tan rápido que el núcleo no tiene tiempo para reorganizarse o moverse significativamente, así que la posición del núcleo se toma como fija. De manera esquemática la curva del potencial efectivo toma la forma representada en la figura 4.2, en el espacio de la energía potencial dependiente de la coordenada de reacción  $R$ . Un punto estacionario de  $R$  representa a un mínimo global del potencial efectivo.

Si nos restringimos al régimen de pequeñas desviaciones, es posible aproximar al potencial como un oscilador armónico simple con un operador de aniquilación  $b$ , al que en la literatura se refieren como modo normal [56], o en otros textos como **modo fonónico** [47, 58], por una analogía con los huecos y electrones en cristales. El hamiltoniano que describe al modo fonónico es entonces:

$$H_{\text{phonon}} = \hbar\nu b^\dagger b, \quad (4.2.1)$$

con  $\nu$  como la frecuencia fonónica. El punto estacionario de  $|g\rangle$  es denotado por  $R_g$  y es menor al punto estacionario de  $|e\rangle$   $R_e$ , la diferencia entre ellas es el desplazamiento de la coordenada de reacción  $R$  [56]. En general la transición electrónica debilita el enlace, y sucede tan rápido que la transición ocurre de manera vertical en el espacio del potencial

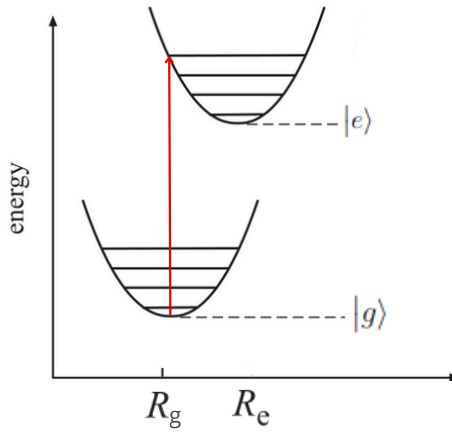


Figura 4.3: Esquema del cambio de niveles energéticos según el principio de Franck-Condon; asumimos las frecuencias de vibración de la molécula como iguales en ambos niveles.

efectivo siguiendo el principio de Franck-Condon como se ve en el diagrama 4.3. De acuerdo con este principio, las moléculas absorberán solo la energía correspondiente a transiciones permitidas y no existirán niveles fonónicos por encima del nivel de energía de disociación de la barrera de potencial, entonces la absorción de fotones por la molécula lleva a una transición al estado excitado en lugar de la disociación. Por simplicidad se asume que las frecuencias fonónicas de los estados base y excitado son las mismas, es decir la frecuencia  $\nu$ , permitiendo así la representación como un sistema de dos niveles y un modo fonónico [21].

El hamiltoniano de acoplamiento electrón-fonón surge de considerar una expansión en serie de Taylor a segundo orden del potencial entre los electrones congelados y el electrón que tiene permitida la transición, y que se desplaza ligeramente de su posición. Considerando que la interacción electrón-fonón no podrá excitar al electrón de un estado electrónico a otro pues las energías fonónicas son mucho más pequeñas que las requeridas para una transición electrónica. Su forma es entonces

$$H_{e-p} = \frac{\eta}{2}(b^\dagger + b)\sigma_+\sigma_-.$$

A esta forma particular se le conoce como acoplamiento de Holstein (existen otras formas de describir al hamiltoniano de acoplamiento, pero el de Holstein es el más simple). La frecuencia  $\eta$  es conocida como la frecuencia de Holstein y tanto esta frecuencia como el desplazamiento de la coordenada de reacción  $R$  se relacionan entre sí con el factor de Huang-Rhys, denotado por  $s$ , que es un factor adimensional que caracteriza a la fuerza

de acoplamiento electrón-fonón [52, 59].  $s$  cumple con la relación  $s = R^2$ , que de manera experimental se ha medido entre 0 y 2 [60, 63], mientras que  $\eta = 2R\nu$ . Es importante notar que en el límite cuando  $R = 0$  se reduce al sistema de dos niveles.

El hamiltoniano de Holstein está compuesto por tres términos como sigue:

$$H_H = \hbar\nu b^\dagger b + \hbar\Omega\sigma_+\sigma_- + \hbar\frac{\eta}{2}(b + b^\dagger)\sigma_+\sigma_-, \quad (4.2.2)$$

donde  $\Omega$  es la frecuencia vertical de transición de Franck-Condon.  $H_H$  puede ser generalizado a más moléculas y más modos fonónicos dependiendo de si más de una coordenada de reacción resulta relevante en la descripción, pero para efectos de nuestro estudio consideraremos una única molécula con un único modo fonónico, para lo que (4.2.2) resulta adecuada.

### Hamiltoniano de Tavis-Cummings

Como se explicó previamente, al considerar que la molécula transiciona entre dos estados electrónicos, y que la contribución fonónica no puede generar dichas transiciones, podemos considerar a la molécula encerrada en la cavidad como un sistema de dos niveles que sigue las reglas del hamiltoniano de Jaynes-Cummings para la absorción y emisión de fotones, con lo que los fonones no se acoplan activamente a la cavidad.

Generalizando a  $N$  moléculas, la dinámica de la cavidad y su acoplamiento esta dada por el hamiltoniano de Tavis-Cummings

$$H_{TC} = \hbar\omega a^\dagger a + \hbar g \sum_{i=1}^N (a\sigma_{+i} + a^\dagger\sigma_{-i}),$$

con  $N$  como el número total de moléculas en la cavidad. Recordemos que esta expresión es válida bajo las condiciones de la aproximación dipolar y de la aproximación de onda rotante, lo que significa que es necesario considerar que el tamaño de la molécula debe ser pequeño comparado con la longitud de onda de la cavidad unimodal.

## 4.3 Hamiltoniano de Holstein-Tavis-Cummings para una molécula

El modelo de Holstein-Tavis-Cummings asume que todas las transiciones moleculares se acoplan igualmente a los fotones [59], por lo que su expresión completa para una

molécula acoplada a una cavidad unimodal y un solo modo fonónico está dado por

$$H_{\text{HTC}} = \hbar\omega a^\dagger a + \hbar\nu b^\dagger b + \hbar\Omega\sigma_+\sigma_- + \hbar\frac{\eta}{2}(b + b^\dagger)\sigma_+\sigma_- + \hbar g(a\sigma_+ + a^\dagger\sigma_-). \quad (4.3.1)$$

Existen más hamiltonianos que buscan modelar la dinámica de una molécula, por ejemplo el hamiltoniano de vibración normal efectivo empleado en [66], donde se consideran dos modos de vibración, que dan lugar a una interacción electrón-fonón más compleja, sin embargo, en nuestro caso simplificado, un único modo normal diagonal es considerado; además de que este modo no tiene la suficiente energía para generar excitaciones electrónicas con su aniquilación.

En este trabajo nos referiremos a todos los estados que se compongan de la hibridización de un estado fotónico con un estado electrónico como **estados polaritónicos** y a los estados provenientes de la coordenadas vibracionales como **estados fonónicos**. Lo que sigue es analizar este hamiltoniano con las herramientas aprendidas en los capítulos previos y encontrar sus características principales.

### Constante de movimiento

En el hamiltoniano del HTC, se observan algunos términos compartidos con el hamiltoniano de JC, específicamente aquellos que conservan la excitación, lo que anteriormente se denominó la constante  $I$  definida en (3.1.12). Es crucial verificar si esta característica se mantiene para el  $H_{\text{HTC}}$ , dado que la conmutación sugiere la existencia de una base común. Para comprobarlo, comenzamos mostrando que la parte de la interacción con la cavidad conmuta, por lo que solo basta con mostrar el cumplimiento de:

$$[H_{\text{Mol}}, I] = 0. \quad (4.3.2)$$

Esto se cumple debido a que el operador  $b$  actúa en un espacio de Hilbert diferente al de  $\sigma_\pm$  y  $a$ . Al mismo tiempo,  $\sigma_\pm$  conmuta consigo mismo y con ambos operadores de aniquilación al no compartir la misma base. Por lo tanto,  $I$  es una constante de movimiento de  $H_{\text{Mol}}$ . Sin embargo, al igual que en el modelo JC, en la base de  $I$  se obtienen eigenvalores degenerados cuando  $I$  actúa sobre los estados del hamiltoniano  $|e, n, m\rangle$  y  $|g, n, m\rangle$ . Para un valor fijo de  $m$ , el sistema está degenerado por pares a partir de  $|e, 0, m\rangle$ , lo que indica una estructura por bloques en la diagonal de  $H_{\text{HTC}}$ , y un bloque unidimensional desacoplado para cada estado con la forma  $|g, 0, m\rangle$ .

**Estructura de bloques en  $H^{(n)}$ .** Cada bloque en la diagonal, denominado  $H^{(n)}$ , tiene la estructura:

$$H^{(n)} = \hbar \begin{pmatrix} \Delta + \eta(b + b^\dagger) & \frac{g}{2}\sqrt{n} \\ \frac{g}{2}\sqrt{n} & 0 \end{pmatrix} + \left\{ n\omega - \frac{\Omega}{2} + \nu b^\dagger b \right\} \cdot \mathbb{1}_{2 \times 2}^{(n)}, \quad (4.3.3)$$

La diagonal contiene al operador de aniquilación y creación del modo fonónico, que en principio tiene elementos infinitos.

### 4.3.1 Aproximación a un modelo de Rabi

Nuestro objetivo es encontrar una manera de diagonalizar a (4.3.3), lo cual es posible siempre y cuando logremos aproximar su forma a la de un modelo de Rabi, es decir, términos antisimétricos en la diagonal. En la representación de estados de la base  $I$ , definimos al operador:

$$\Sigma_n^+ = |g, n\rangle\langle e, n-1|, \quad (4.3.4)$$

que deriva en los operadores

$$\Sigma_n^- = (\Sigma_n^+)^\dagger, \quad \Sigma_n^z = \Sigma_n^+ \Sigma_n^- - \Sigma_n^- \Sigma_n^+, \quad \Sigma_n^x = \Sigma_n^+ + \Sigma_n^-,$$

análogos a los operadores de Pauli para el subespacio particular de los niveles doblete, con el subíndice  $n$  indicando el número de bloque. Con esto, cada bloque (4.3.3) se reescribe como:

$$H^{(n)} = \hbar \left\{ \omega n - \frac{\Omega}{2} + \nu b^\dagger b + [2\Delta + \eta(b + b^\dagger)] \Sigma_n^+ \Sigma_n^- + \frac{g}{2} \sqrt{n} \Sigma_n^x \right\},$$

y junto con un desplazamiento en el espacio fase al operador de aniquilación fonónico, cambiando de  $b$  a  $b - \zeta$ , aprovechando las propiedades:

$$D(-\zeta)^\dagger b D(-\zeta) = b - \zeta, \quad D(-\zeta)^\dagger D(-\zeta) = \mathbb{1},$$

con  $D(\zeta) = e^{(\zeta b^\dagger - \zeta^* b)}$ . Obtenemos un bloque  $H^{(n)}$  desplazado, que denotaremos como  $\tilde{H}^{(n)}$ :

$$\begin{aligned} \tilde{H}^{(n)} = & \hbar \{ \nu b^\dagger b - \zeta \nu (b + b^\dagger) \mathbb{1} + [2\Delta - 2\zeta \eta + \eta(b + b^\dagger)] \Sigma_n^+ \Sigma_n^- \\ & + \frac{g}{2} \sqrt{n} \Sigma_n^x + \zeta^2 \nu + \omega n - \frac{\Omega}{2} \}. \end{aligned}$$

Imponiendo por conveniencia la condición  $\Delta = \frac{\eta^2}{\nu}$  con el desplazamiento específico  $\zeta = \frac{\eta}{2\nu}$ , se obtiene el modelo de Rabi

$$\tilde{H}^{(n)} = \hbar \left\{ \nu b^\dagger b + \frac{\eta}{2} (b + b^\dagger) \Sigma_n^z + \frac{g}{2} \sqrt{n} \Sigma_n^x + \zeta^2 \nu + \omega n - \frac{\Omega}{2} \right\},$$

cuya representación matricial es:

$$\tilde{H}^{(n)} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \eta(b + b^\dagger) & g\sqrt{n} \\ g\sqrt{n} & -\eta(b + b^\dagger) \end{pmatrix} + \hbar \left\{ \nu(b^\dagger b + \zeta^2) + \omega n - \frac{\Omega}{2} \right\}.$$

Pasando a una representación de estados polaritónicos, que en esta tesis usamos como convención para referirnos a los estados vestidos del JC en resonancia:

$$|n, \pm\rangle = \frac{|n-1, e\rangle \pm |n, g\rangle}{\sqrt{2}},$$

Se definen los operadores:

$$S_n^\pm = |n, \mp\rangle\langle n, \pm|, \quad S_n^z = S_n^+ S_n^- - S_n^- S_n^+, \quad S_n^x = S_n^+ + S_n^-.$$

Reescribiendo así al hamiltoniano desplazado como:

$$\tilde{H}^{(n)} = \hbar \left\{ \nu b^\dagger b + \frac{g}{2} \sqrt{n} S_n^z + \frac{\eta}{2} (b + b^\dagger) S_n^x + \zeta^2 \nu + \omega n - \frac{\Omega}{2} \right\}.$$

Cada bloque correspondiendo a un modelo de Rabi cuántico. Expandiendo el producto  $(b + b^\dagger) S_n^x$  y considerando una aproximación de onda rotante, dentro del régimen de acoplamiento fuerte, deberá cumplirse:

$$\nu \gg \frac{\eta}{2}. \quad (4.3.5)$$

Existe respaldo para esta afirmación en la literatura [17, 60, 63]. De acuerdo con los valores experimentales de  $s$  [59, 64], el valor de  $\eta$  oscila entre 0 y  $0.7\nu$ . Cuando el factor  $s$  es 0, se regresa al sistema de dos niveles.

Encontramos entonces un hamiltoniano efectivo que denotaremos como  $\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n)}$ :

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n)} = \hbar \left\{ \nu b^\dagger b + \frac{g}{2} \sqrt{n} S_n^z + \frac{\eta}{2} (S_n^+ b + S_n^- b^\dagger) + \zeta^2 \nu + \omega n - \frac{\Omega}{2} \right\} \quad (4.3.6)$$

Que es nuevamente un Hamiltoniano del tipo JC. Recordemos que esto es válido cuando se cumple una condición cercana a la resonancia entre el modo fonónico y el acoplamiento opto-electrónico modulado por la raíz del número de excitaciones.

## 4.4 Hamiltoniano efectivo

Al tener un hamiltoniano efectivo del bloque una forma del modelo de JC, nos sugiere la existencia de una constante de movimiento, pero esta vez en la base polaritónica, proponemos a esta constante como  $\mathcal{I}$ :

$$\mathcal{I} = b^\dagger b + S_n^+ S_n^-,$$

que actúa en la base polaritónica y la base fonónica descritas por el estado  $|m, n, \pm\rangle$

Al calcular el conmutador  $[\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n)}, \mathcal{I}]$  se encuentra que es 0 y sus eigenvalores degenerados por pares a partir de  $|0, n, +\rangle$ ; por lo que cada bloque efectivo vuelve a revelar la estructura de bloques de  $2 \times 2$  en la diagonal a los que llamaremos  $\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n,m)}$ . Y desacopla al bloque unidimensional del estado  $|0, n, -\rangle$ . En la base polaritónica  $\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n,m)}$  tiene una representación matricial como sigue:

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n,m)} = \hbar \begin{pmatrix} \delta_n & \frac{\eta}{2}\sqrt{m} \\ \frac{\eta}{2}\sqrt{m} & -\delta_n \end{pmatrix} + \hbar C_{nm} \cdot \mathbb{1}_{2 \times 2}^{(n)}, \quad (4.4.1)$$

donde  $\delta_n = g\sqrt{n} - \nu$  y  $C_{nm} = \omega n + \nu(m - 1 + \zeta^2) - \frac{1}{2}(\Omega - g\sqrt{n})$ . Reescrito en términos de las matrices de Pauli para el espacio de Hilbert correspondiente:

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n,m)} = \hbar \{ C_{nm} \sigma_0^{(n)} + \frac{\eta}{2} \sqrt{m} \sigma_x^{(n)} + \delta_n \sigma_z^{(n)} \}. \quad (4.4.2)$$

Con un procedimiento análogo al realizado para obtener los eigenvalores del JC encontramos:

$$E_{\text{eff}}^{\pm} = \hbar \{ C_{nm} \pm \Omega_{nm} \} \quad (4.4.3)$$

donde  $\Omega_{nm} = \sqrt{\delta_n^2 + \eta^2 m}$  al que por analogía llamaremos **frecuencia de Rabi efectiva**.

Los eigenestados correspondientes, considerando  $n_x = \frac{\eta}{2}\sqrt{m}$  y  $n_z = \delta_n$ , con el cambio de coordenadas a  $n_x = \Omega_{nm} \sin \theta$  y  $n_z = \Omega_{nm} \cos \theta$  son:

$$\begin{aligned} |E_{nm}^+\rangle &= \cos\left(\frac{\theta_{nm}}{2}\right) |m-1, n, +\rangle + \sin\left(\frac{\theta_{nm}}{2}\right) |m, n, -\rangle, \\ |E_{nm}^-\rangle &= -\sin\left(\frac{\theta_{nm}}{2}\right) |m-1, n, +\rangle + \cos\left(\frac{\theta_{nm}}{2}\right) |m, n, -\rangle, \end{aligned} \quad (4.4.4)$$

El ángulo  $\theta_n$  se define para cada doblete como

$$\theta_{nm} = \arctan\left(\frac{\frac{\eta}{2}\sqrt{m}}{\delta_n}\right). \quad (4.4.5)$$

La base en la que nuestro hamiltoniano efectivo es diagonal es  $\{|m, 0, g\rangle\}_{m=0}^{\infty} \cup \{|0, n, -\rangle\}_{n=1}^{\infty} \cup \{|m-1, n, +\rangle, |m, n, -\rangle\}_{n,m=1}^{\infty}$ .

## Soluciones

La solución dependerá del bloque en el que se desenvuelva la dinámica del sistema. Recapitulando, cuando se está en el estado electrónico sin interacción con fotones el hamiltoniano es unidimensional y su base es  $\{|m, 0, g\rangle\}_{m=0}^{\infty}$

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(0,m)} = \hbar \nu m,$$

es decir, el oscilador armónico fonónico que describe las vibraciones de la molécula. Cuando la condición pertenece a la base  $\{|0, n, -\rangle\}_{n=1}^{\infty}$ , que encontramos son eigenestados del HTC, estos se desacoplan y no interactúan con otros bloques del modelo, por lo que su hamiltoniano es también unidimensional en la base polaritónica.

$$\tilde{H}_{\text{eff}}^{(n>0,0)} = \hbar \left\{ \nu \zeta^2 + \omega n - \frac{1}{2}(g\sqrt{n} - \Omega) \right\},$$

Para el resto de bloques con  $n, m > 0$ , con base  $\{|m-1, n, +\rangle, |m, n, -\rangle\}_{n,m=1}^{\infty}$ , tienen eigenvalores  $E_{\text{eff}}^{\pm}$  y eigenestados  $|E_{nm}^{\pm}\rangle$ , donde los estados vestidos se acoplan a los modos fonónicos  $m$  y  $m-1$ .

## 4.5 Validez de la aproximación

**Influencia de Parámetros:** Según las condiciones establecidas por la aproximación al hamiltoniano efectivo se deberían estar cumpliendo las siguientes relaciones:

- $\nu \gg \eta/2$ , Es seguro que se cumpla mientras el desplazamiento de la coordenada de reacción  $R$  en la excitación es cercano a 0; perderá validez si  $R$  se vuelve considerable.
- $g\sqrt{n} \sim \nu$  Esta es la llamada condición de resonancia. Por lo tanto, mientras  $\nu$  sea muy cercana al valor de  $g$  modulado con la raíz del número de fotones, el hamiltoniano efectivo funcionará correctamente. Ahora bien, la resonancia no necesariamente se exige sobre la diferencia entre las frecuencias óptica y de transición electrónica.
- $\Omega = \omega + \eta^2/\nu$  Aunque no se impone una resonancia estricta en el sentido de  $\Delta = 0$ , para evitar ruido se exige que  $\Omega$  solo tenga un ligero desfase comparado con  $\omega$ . Este desfase, tomando en cuenta el valor de  $\eta$ , se encuentra en el orden de  $0.001g$ .

Por ejemplo, tomando un valor genérico para el acoplamiento  $g$  y fijando el número de fotones en  $\alpha$ , los otros parámetros deberían tener el siguiente orden de magnitud en pro de mantener una alta fidelidad:

$$\omega = 1000g, \quad \nu = \alpha g, \quad \eta \simeq 0.01g, \quad \Omega = \omega + \frac{\eta^2}{\nu} \simeq 1000.001g, \quad (4.5.1)$$

lo que indica que, en el régimen de acoplamiento fuerte, la frecuencia fonónica  $\nu$  debe ser significativamente mayor que la frecuencia de acoplamiento opto-electrónico  $g$ . Al mismo

tiempo, los fonones deberían acoplarse de manera débil con los fotones dentro de la cavidad. Por otro lado, la frecuencia fonónica  $\nu$  está relacionada con el número de fotones en la cavidad. Mientras el acoplamiento con la cavidad se mantenga en el régimen fuerte, esta relación debe mantenerse en función de la raíz del número de fotones. De manera experimental se ha encontrado que los parámetros  $g, \eta$  y  $\nu$  se encuentran en el orden de MHz, mientras que la  $\omega$  tiene un orden mucho mayor comparado a estos últimos que va desde los GHz (en el espectro correspondiente a las microondas), hasta los cientos de THz (en el visible), lo que indica que las condiciones de la aproximación son consistentes con los valores experimentales.

**Valores esperados** Ante el desplazamiento necesario para encontrar el hamiltoniano efectivo (4.3.6), buscamos entender cómo podría afectar en la medición, especialmente en el caso de los valores esperados, lo cual es importante en operadores como  $W(t)$ . Es posible mostrar que, siempre y cuando el operador  $O$  sea independiente de la base sobre la que actúa el desplazamiento  $\zeta$ , el valor esperado permanece invariante, es decir:

$$\langle \Psi(t) | O | \Psi(t) \rangle = \langle \tilde{\Psi}(t) | O | \tilde{\Psi}(t) \rangle.$$

En el siguiente capítulo, haremos uso de esta noción, estandarizando las mediciones a efectuarse sobre estados sin desplazamiento.

## Capítulo 5

# Dinámica del modelo HTC

Es conveniente explorar la aplicación del modelo de HTC para llevar a cabo operaciones en compuertas entrelazadoras, aprovechando el fenómeno de colapso y resurgimiento de las oscilaciones de Rabi, como se ha hecho anteriormente con sistemas de dos átomos [15, 16]. Para ello, es indispensable, en primera instancia, realizar un análisis detallado de la dinámica cuántica del modelo y de los tiempos característicos en el fenómeno de oscilaciones de Rabi. En este capítulo, derivamos de forma explícita el estado evolucionado temporalmente del sistema utilizando el eigensistema. También generamos una aproximación de estado coherente en el modo fonónico. Después, presentamos nuestros resultados sobre la generación de oscilaciones de Rabi, con colapsos y resurgimientos para el sistema HTC. Por último, analizamos sus propiedades de entrelazamiento entre los modos electrónicos mediante la pureza, y mostramos uno de los ejemplos en el espacio de fase de la función  $Q$ .

### 5.1 Evolución temporal

El estado inicial para el sistema contiene la información de los tres diferentes componentes, la fotónica, que siguiendo la notación del capítulo anterior es representada por  $|\alpha\rangle$ , como en la ecuación (3.2.2); la componente electrónica con una superposición de los dos niveles (3.2.1); y añadimos la componente fonónica, denotada por el estado

$$|\beta\rangle = \sum_{m=0}^{\infty} c_m |m\rangle.$$

Si consideramos el desplazamiento del hamiltoniano efectivo en esta componente, estaremos actuando sobre esta componente desplazada, expresada como:

$$|\tilde{\beta}\rangle = D^\dagger(-\zeta)|\beta\rangle = e^{i\text{Im}(\zeta\beta^*)}|\beta + \zeta\rangle$$

Eligiendo tanto a  $\beta$  como a  $\zeta$  reales, la fase desaparece.

Considerando las tres componentes. el estado inicial se denota por:

$$|\tilde{\Psi}(0)\rangle = |\phi\rangle|\alpha\rangle|\tilde{\beta}\rangle,$$

donde la componente opto-electrónica es igual que en (3.2.5). A su vez, expresado en base polaritónica se convierte en

$$|\alpha\rangle|\phi\rangle = \sum_n [d_n^+|n, +\rangle + d_n^-|n, -\rangle], \quad (5.1.1)$$

donde los coeficientes  $d_n^\pm$  están definidos como:

$$d_n^\pm = \frac{c_{n-1}c_e \pm c_n c_g}{\sqrt{2}}$$

y junto con el estado fonónico toma la forma:

$$|\tilde{\Psi}(0)\rangle = \sum_{nm} \tilde{c}_m [d_n^+|n, +\rangle + d_n^-|n, -\rangle] |m\rangle \quad (5.1.2)$$

Conociendo ya el eigensistema, el vector evolucionado es

$$|\tilde{\Psi}(t)\rangle = \sum_{nm} \{p_{nm}^+|m-1, n, +\rangle + p_{nm}^-|m, n, +\rangle\}, \quad (5.1.3)$$

con los coeficientes

$$\begin{aligned} p_{nm}^+ &= e^{-iC_{nm}t} \{C e^{-i\Omega_{nm}t} (\tilde{c}_{m-1} d_n^+ C + \tilde{c}_m d_n^- S) + S e^{i\Omega_{nm}t} (\tilde{c}_{m-1} d_n^+ S - \tilde{c}_m d_n^- C)\}, \\ p_{nm}^- &= e^{-iC_{nm}t} \{S e^{-i\Omega_{nm}t} (\tilde{c}_{m-1} d_n^+ C + \tilde{c}_m d_n^- S) - C e^{i\Omega_{nm}t} (\tilde{c}_{m-1} d_n^+ S - \tilde{c}_m d_n^- C)\}, \end{aligned}$$

simplificado con la notación  $C = \cos(\frac{\theta_{nm}}{2})$  y  $S = \sin(\frac{\theta_{nm}}{2})$  provenientes de las componentes de los eigenestados (4.4.4). En general, regresando y separando a la base electrónica podemos escribir al estado evolucionado como una parte temporal acompañado a cada estado electrónico

$$|\tilde{\Psi}(t)\rangle = |\chi_g(t)\rangle|g\rangle + |\chi_e(t)\rangle|e\rangle \quad (5.1.4)$$

con los estados temporales

$$\begin{aligned} |\chi_g(t)\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{nm} \{p_{nm}^+|m-1\rangle - p_{nm}^-|m\rangle\} |n\rangle, \\ |\chi_e(t)\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{nm} \{p_{nm}^+|m-1\rangle + p_{nm}^-|m\rangle\} |n-1\rangle \end{aligned} \quad (5.1.5)$$

## 5.2 Aproximación a estados coherentes fonónicos

Podemos intentar linealizar el valor de la frecuencia de Rabi efectiva alrededor del valor medio para  $m$  ( $M$ ) considerando una distribución coherente mediante una expansión en serie de Taylor a primer orden, con lo que la expresión de la frecuencia ahora es:

$$\Omega_{nm} = \varphi_{nM} + \Omega'_{nM}m$$

donde  $\Omega'_{nM} = \frac{\partial \Omega_{nm}}{\partial M}$  y  $\varphi_{nM} = M(\Omega_{nM} - \Omega'_{nM})$ . La expresión (5.1.3) ahora considera  $\tilde{c}_m \simeq \tilde{c}_{m+1}$  para un número suficientemente grande de fonones. Separando la componente fonónica del estado evolucionado se tiene que esta evoluciona como un estado coherente separada del estado hibridizado con una fase.

$$\begin{aligned} |\tilde{\Psi}(t)\rangle = & \sum_n e^{-iC_{nM}t} \{ e^{-i\varphi_{nM}t} (d_n^+ C + d_n^- S) |\tilde{\beta} e^{-i\Omega'_{nM}t}\rangle (C e^{-i\Omega'_{nM}t} |n, +\rangle + S |n, -\rangle) \\ & + e^{i\varphi_{nM}t} (d_n^+ C - d_n^- S) |\tilde{\beta} e^{i\Omega'_{nM}t}\rangle (S e^{-i\Omega'_{nM}t} |n, +\rangle - C |n, -\rangle) \}. \end{aligned}$$

## 5.3 Variables dinámicas estudiadas

El objetivo principal de esta investigación es determinar si en este sistema con tres componentes diferentes es posible encontrar oscilaciones de Rabi, como en el caso del modelo de Jaynes-Cummings, que poseía dos componentes, especialmente por la evidencia experimental que sugiere que este fenómeno sí se manifiesta [17].

Hasta el momento, hemos encontrado expresiones analíticas que nos han llevado a la conclusión de que, bajo ciertas restricciones, el sistema HTC puede comportarse como un sistema del tipo JC, con la diferencia de que este sistema acopla modos hibridizados a modos fonónicos. Además, hemos descubierto que existe una relación distinta a  $\Delta$  que desempeña el papel de resonancia, relacionando a la frecuencia vibracional con la frecuencia de acoplamiento. Ahora la observable (3.2.7) puede ser calculada para dos modos diferentes, para el modo óptico entre los estados base y excitado:

$$W(t) = \langle \sigma_z(t) \rangle = \langle \Psi(t) | \sigma_z | \Psi(t) \rangle, \quad (5.3.1)$$

y para el modo fonónico, entre los estados polaritónicos:

$$\mathcal{W}(t) = \langle \mathcal{Z}(t) \rangle = \langle \Psi(t) | \mathcal{Z} | \Psi(t) \rangle, \quad \mathcal{Z} = \sum_n \Sigma_z^n. \quad (5.3.2)$$

Con los parámetros de validez que obtuvimos al encontrar  $\tilde{H}_{\text{eff}}$  fuimos capaces de calcular de manera numérica el eigensistema y la evolución para diferentes escenarios, de los cuales nos interesa comparar el grado de coincidencia entre los estados generados por la evolución con  $H_{\text{HTC}}$  y con el hamiltoniano efectivo y así determinar los parámetros en los cuales la aproximación funciona de mejor manera, para ello evaluaremos la fidelidad, cuya expresión es:

$$F(t) = |\langle \psi(t) | \tilde{\psi}(t) \rangle|^2. \quad (5.3.3)$$

A continuación, presentamos las oscilaciones obtenidas al evolucionar diferentes tipos de estados iniciales de interés bajo escenarios de resonancia y no resonancia y diferentes parámetros; mantendremos una frecuencia de acoplamiento genérica  $g$ , y una frecuencia molecular  $\nu = 3g$  y cambiaremos únicamente a la frecuencia  $\eta$  en diferentes valores de acoplamiento y el estado inicial electrónico.

### 5.3.1 Un fonón en un bloque polaritónico

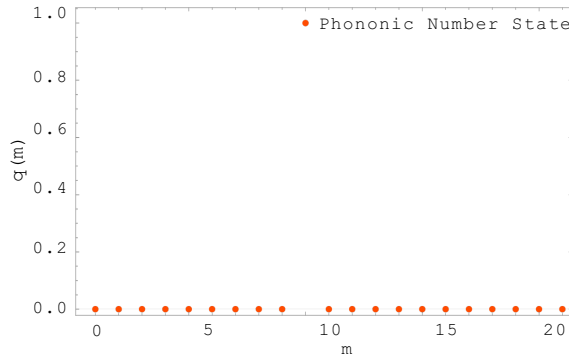


Figura 5.1: Distribución de estados de numero para un fonón en el nivel  $m = 9$ , para este caso situamos al sistema en el bloque polaritónico  $|9, -\rangle$ , generando al estado inicial  $|9\rangle|9, -\rangle$

Tomaremos el caso de un fotón en el bloque  $n = 9$ , y un fonón en  $m = 9$ , en la figura 5.1 mostramos la distribución fonónica; además elegimos como estado inicial electrónico  $c_e = 1, c_g = 0$ .

#### En resonancia

Nuestro primer caso de interés es cuando los valores de  $\nu$  y  $g\sqrt{n}$  coinciden, calculando de manera numérica a las variables dinámicas con el hamiltoniano de HTC y desde

el hamiltoniano desplazado obtenemos las figuras 5.2. El estado desarrollado es un eigenestado del modelo JC por lo que  $W(t)$  se mantiene en un valor prácticamente constante para frecuencias de acoplamiento  $\eta$  a diferentes intensidades; lo más relevante de medir en los estados polaritónicos es que observamos la oscilación de Rabi típica de un modelo en resonancia con pocos fonones, yendo periódicamente del estado  $|n, +\rangle$  al estado  $|n, -\rangle$ . En ambos casos la fidelidad (5.3.3) cercana a 1, oscilando muy ligeramente alrededor del este valor.

### Fuera de resonancia

El siguiente caso es cuando el sistema se encuentra fuera de resonancia, existen diferentes maneras de sacar de resonancia al estado, una de ellas y la primera que mostramos es la de la figura 5.3 a) donde la componente  $n$  del bloque polaritónico es diferente a la del número de fotones en la cavidad, e este caso al colocar en el bloque  $n = 10$ . La otra manera es desintonizar directamente a  $\nu$ , que es el caso de la figura 5.3 b), donde  $\nu = 3.1g$ , en ambos casos tomamos fija a  $\eta$  como  $\eta = 0.01g$

En ambos casos, podemos notar que el hamiltoniano efectivo (4.3.6) comienza a separarse ligeramente de la función original, con lo que la fidelidad empieza a decaer, aunque aún se mantiene en valores muy buenos tendiendo a 1. Notamos que, en el caso de la figura 5.3 a), este bloque no genera excitación alguna, permaneciendo prácticamente en el estado inicial en la parte fonónica, como es esperable de un bloque no resonante. Sin embargo, lo mismo sucede en el caso 5.3 b), lo que denota una sensibilidad a las condiciones iniciales. En cuanto al modo óptico, las fluctuaciones podrían deberse a ruido, pues son muy pequeñas, considerándolas prácticamente constantes alrededor de 0.

### 5.3.2 Estado coherente fonónico en un bloque polaritónico

Otra opción de interés para tomar como estado inicial es tener una distribución fonónica como coherente como en (2.2.27) que tomaremos para esta sección a su parámetro como  $\beta = 3$ , pero aun nos mantendremos en un único bloque polaritónico, volvemos a tomar  $n = 9$  y un estado inicial electrónico  $c_e = 1, c_g = 0$ , ahora el estado inicial fonónico se ve como en 5.4.

En resonancia obtenemos las figuras 5.5 para las variables dinámicas. El modo óptico tiene diferentes comportamientos dependiendo del valor de  $\eta$ ; Por otro lado, en la

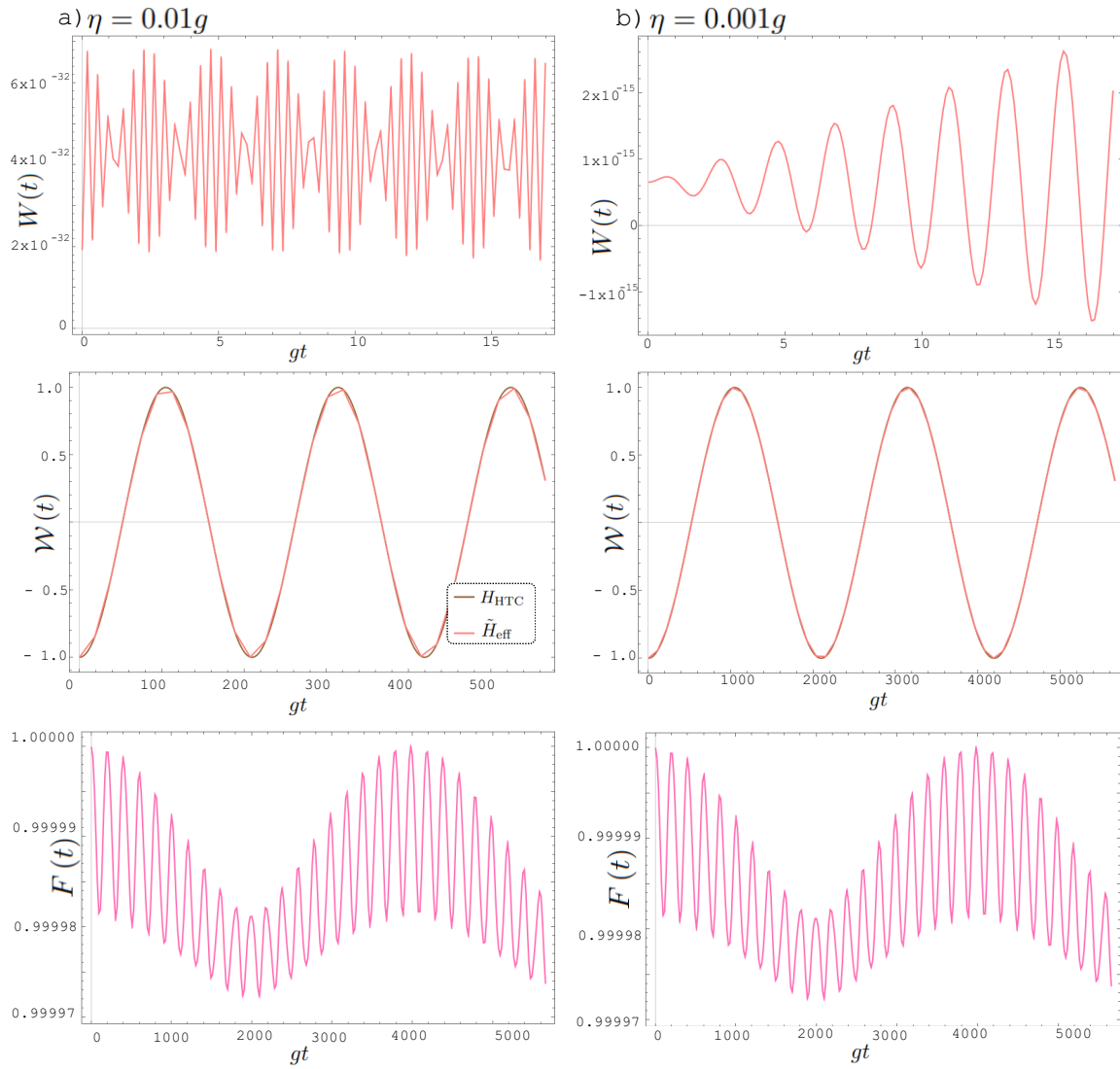


Figura 5.2: **a)** mostramos las variables  $W(t)$ ,  $\mathcal{W}(t)$  y  $F(t)$  para  $\eta = 0.01g$ , **b)** se muestran las mismas variables esta vez para un caso con acoplamiento menor  $\eta = 0.001g$

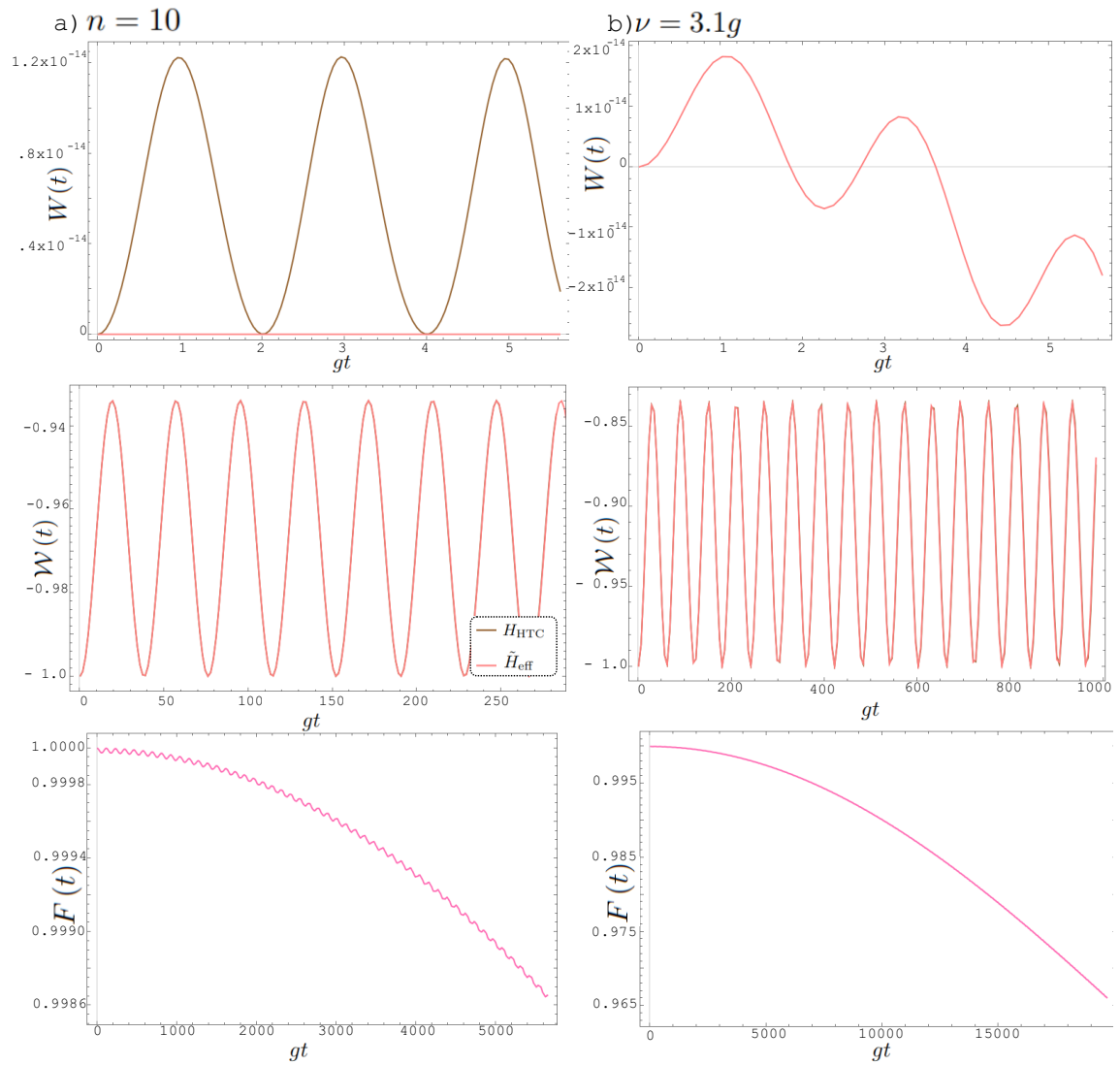


Figura 5.3: **a)** mostramos las variables  $W(t)$ ,  $\dot{W}(t)$  y  $F(t)$  para  $\eta = 0.01g$  en un bloque diferente  $n = 10$ , **b)** se muestran las mismas variables esta vez para un caso en situación no resonante  $\nu = 3.1g$

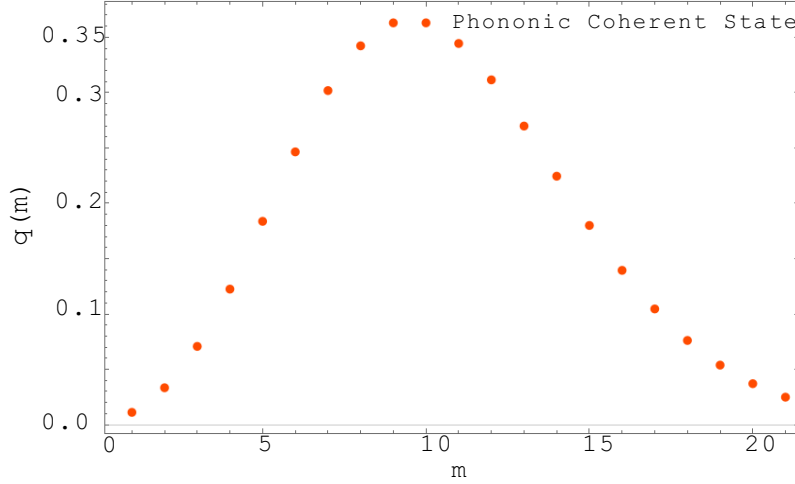


Figura 5.4: Distribución de fonones de un estado coherente con parámetro  $\beta = 3$

base polaritónica encontramos al fenómeno de colapso y resurgimiento, dadas las condiciones colapsa en el valor 0 y resurge después de un tiempo  $t_r$  que calcularemos en la siguiente sección, en este modo no hay diferencia entre acoplamientos diferentes. Por último, la fidelidad de ambos casos se mantiene hacia el valor máximo, demostrando que la aproximación del hamiltoniano efectivo es acertada.

### 5.3.3 Tiempo de resurgimiento

Debido a que la forma del hamiltoniano efectivo es del tipo Jaynes-Cummings, aun es válida la expresión del tiempo de resurgimiento (3.2.14), pero solo para este tipo de estado debido a la consideración de aproximación de estados coherentes, reparametrizada para las frecuencias del Holstein-Tavis-Cummings. El resurgimiento de las oscilaciones siguen así a la ecuación

$$\begin{aligned}
 t_r &= \frac{\pi}{\Omega'_{nM}} \\
 &= \frac{4\pi\sqrt{(g\sqrt{n} - \nu)^2 + \eta^2 M}}{\eta^2}.
 \end{aligned} \tag{5.3.4}$$

Cuando  $g\sqrt{n} = \nu$ , se reduce a  $\frac{4\pi M}{\eta}$ , que puede llegar a ser un tiempo muy largo dependiendo del valor de la frecuencia  $\eta$ .

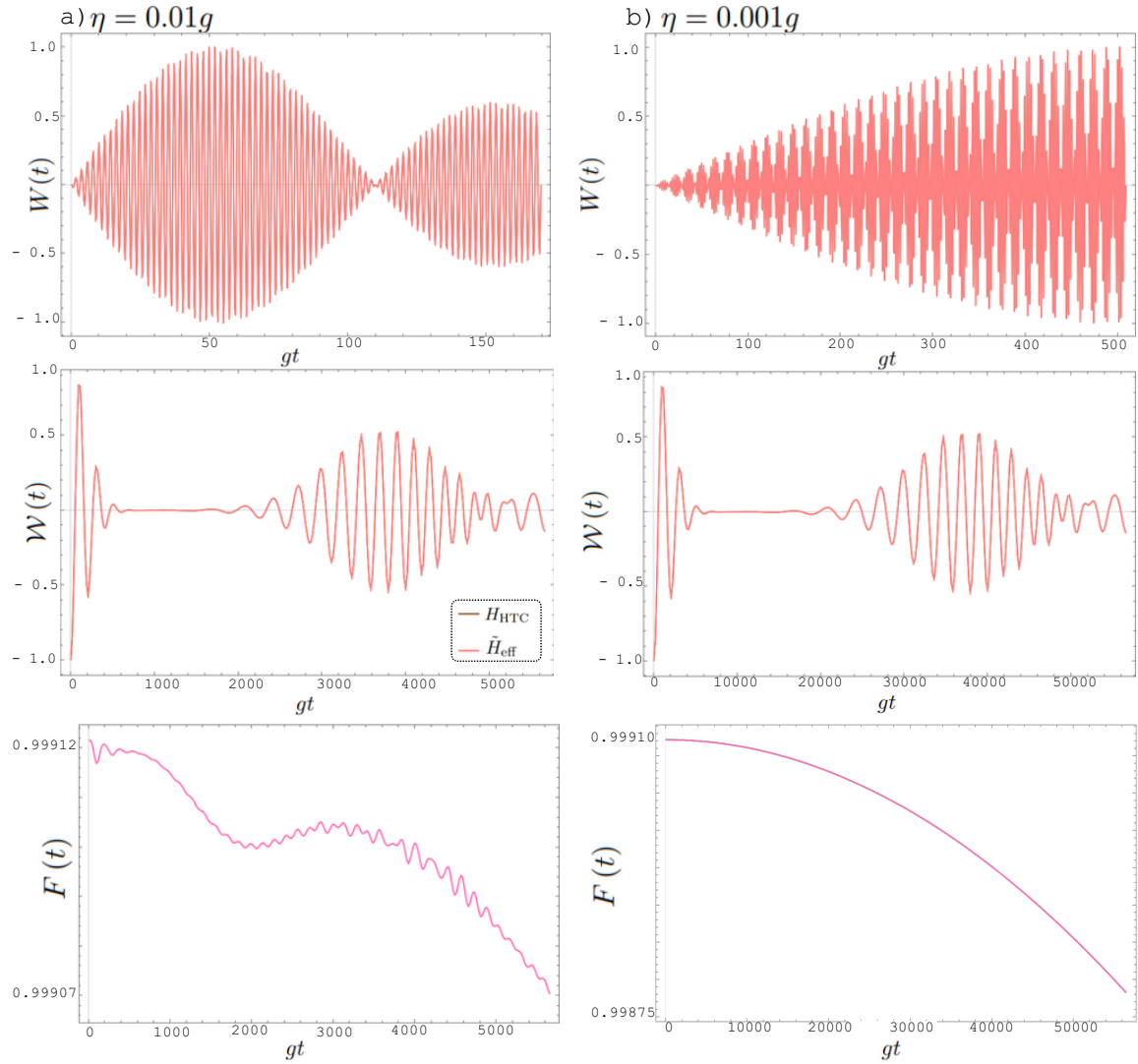


Figura 5.5: **a)** mostramos las variables  $W(t)$ ,  $\mathcal{W}(t)$  y  $F(t)$  para  $\eta = 0.01g$  en un bloque polaritónico  $n = 9$  para un caso resonante con estado inicial fonónico coherente **b)** se muestran las mismas variables esta vez para una frecuencia de acoplamiento a  $\eta = 0.001g$

### 5.3.4 Estados coherentes fotónico y fonónico

Eligiendo la distribución inicial del estado fonónico como en la figura 5.4, y una distribución fotónica coherente con parámetro  $\alpha = 3$ , en producto con el estado inicial  $|\phi\rangle$ , generamos un estado polaritónico como en (5.1.1) para un valor particular de  $\eta = 0.02g$ . Mostramos dos ejemplos de estos estados obtenidos para diferentes condiciones iniciales en la fig.5.6. Los resultados de las mediciones de las variables dinámicas para ambos escenarios

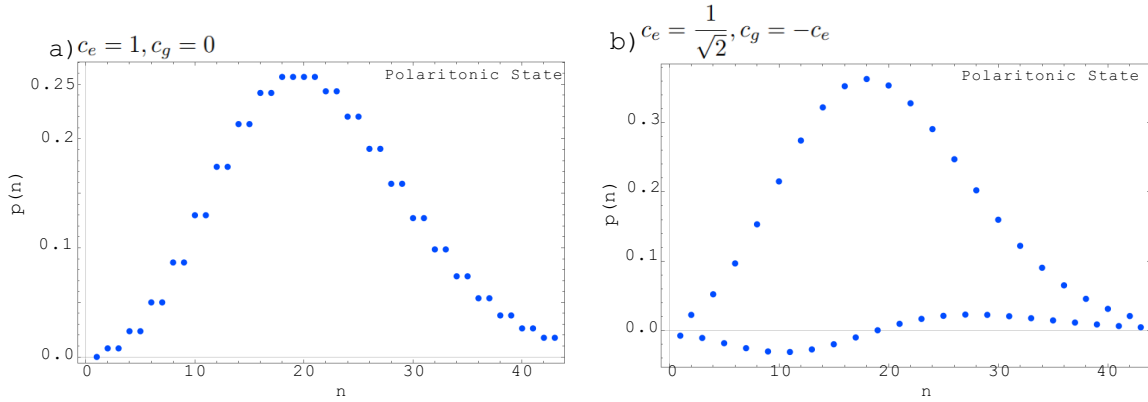


Figura 5.6: **a)** Estado polaritónico producto de la hibridización entre un estado coherente fotónico y un estado inicial electrónico excitado. En este caso, observamos que la contribución de los polaritones  $|n, +\rangle$  y  $|n, -\rangle$  es igual. **b)** Estado polaritónico producto de un estado coherente con  $\alpha = 3$  y una superposición de estados electrónicos. En este caso, la contribución del polaritón  $|n, +\rangle$  se mantiene alrededor de 0, siendo  $|n, -\rangle$  el término dominante.

se muestran en 5.7. En la figura 5.7 a), observamos que, en el caso de  $W(t)$ , se obtiene una oscilación que colapsa y resurge, tal como sucedería en un modelo de Jaynes-Cummings resonante bajo los mismos parámetros  $g$ ,  $\omega$  y  $\Omega$ , pero en el caso del HTC no permite el colapso completo de la cantidad, induciendo una oscilación en la superposición. Al fijarnos en  $\mathcal{W}(t)$ , la dinámica de oscilación contiene más ruido, además de que se encuentra fuera de resonancia debido a las interacciones de los fonones con otros bloques polaritónicos, tenemos entonces dos diferentes colapsos y resurgimientos dados a tiempos distintos, el primero siguiendo a (3.2.14), mientras el modo fonónico siguiendo a (5.3.4). En cuanto a la fidelidad se mantiene válida a tiempos cortos. Sin embargo, la dinámica para 5.7 b) es muy diferente. Al comenzar en una superposición, el sistema se mantiene oscilando alrededor de 0. Esto sucede porque el estado hibridizado inicial, al elegir  $c_e = -c_g$ , suprime la contribución del polaritón  $|n, +\rangle$ . Como resultado, la dinámica es aproximadamente la misma que la que se obtendría al evolucionar un eigenestado en un bloque fijo, con la oscilación inducida por

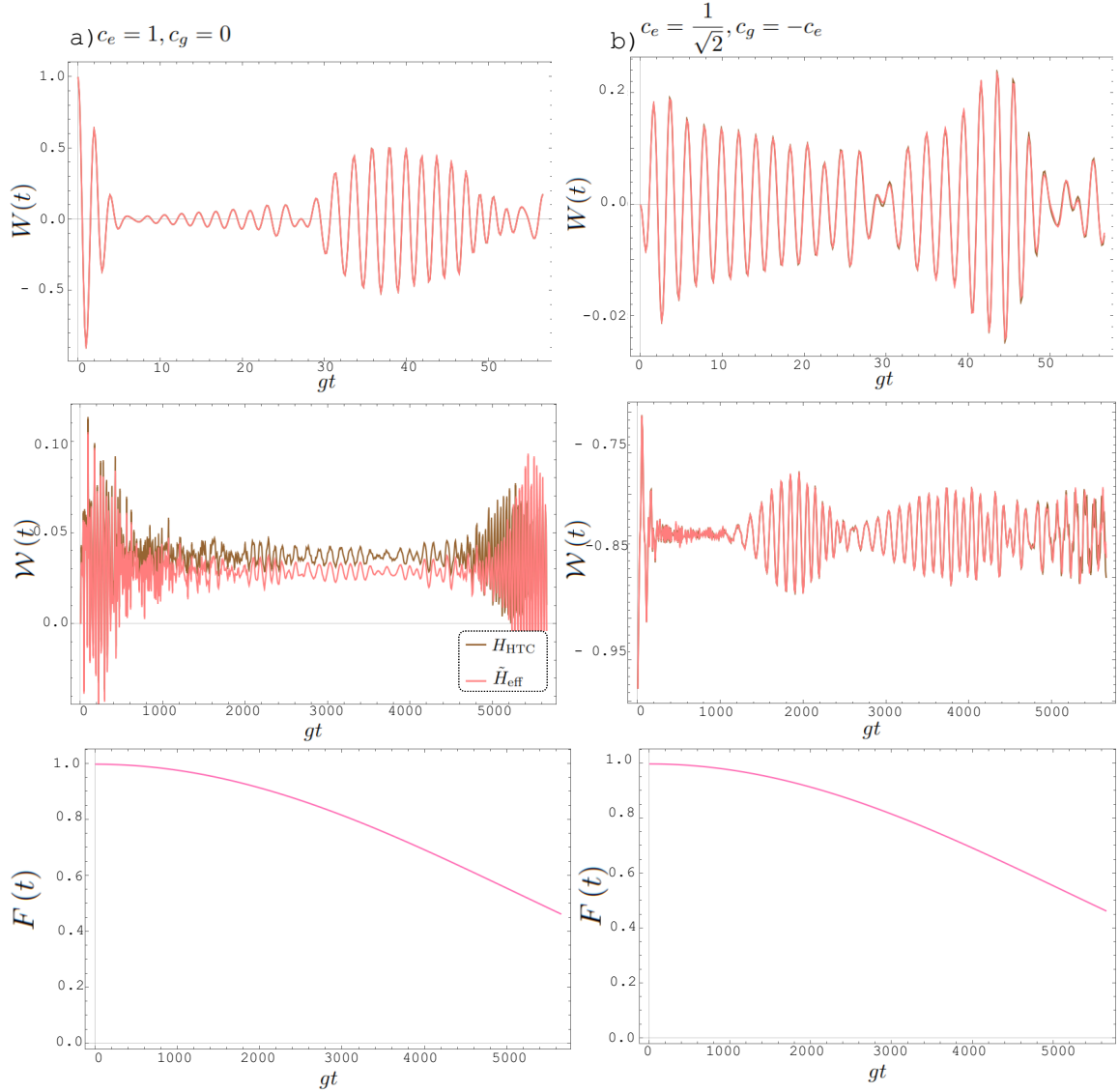


Figura 5.7: **a)** Se muestran las variables  $W(t)$ ,  $\mathcal{W}(t)$  y  $F(t)$  para  $\eta = 0.02g$  en un estado polaritónico producto de un estado coherente fotónico con  $\alpha = 3$  y un estado electrónico excitado. Notamos la dinámica de colapso y resurgimiento entre estados electrónicos en un tiempo análogo al fenómeno observado en un modelo de Jaynes-Cummings (JC). Además, esta dinámica también se replica en la oscilación entre estados polaritónicos al tiempo calculado con (5.3.4). **b)** Se muestran las mismas variables, pero para el caso del producto de un estado fotónico coherente con una superposición electrónica inicial. El polaritón  $|n, -\rangle$  es el que aporta en su mayoría a la dinámica. Al ser un eigenvector de  $\tilde{H}_{eff}$ , el fenómeno de colapso y resurgimiento se manifiesta en  $\mathcal{W}(t)$ , es decir, entre modos polaritónicos.

el ruido generado por los acoplamientos en otros bloques, como se observa en 5.5 b). Esto facilita el acoplamiento correcto entre el modo hibridizado y el modo fonónico, generando colapso y resurgimiento en  $\mathcal{W}(t)$  pero fuera de resonancia debido a los fotones fuera del modo resonante, subiendo en este caso al polaritón  $|n, +\rangle$ .

### 5.3.5 Función $Q$ del modo óptico

Dado que la función  $Q$  se encuentra en el espacio de las componentes reales e imaginarias del parámetro  $\alpha$ , este solo puede ser medido para el estado coherente óptico. Generamos las mediciones para los casos de la figura 5.7, en 5.8 para el caso a) y 5.9 para el caso b).

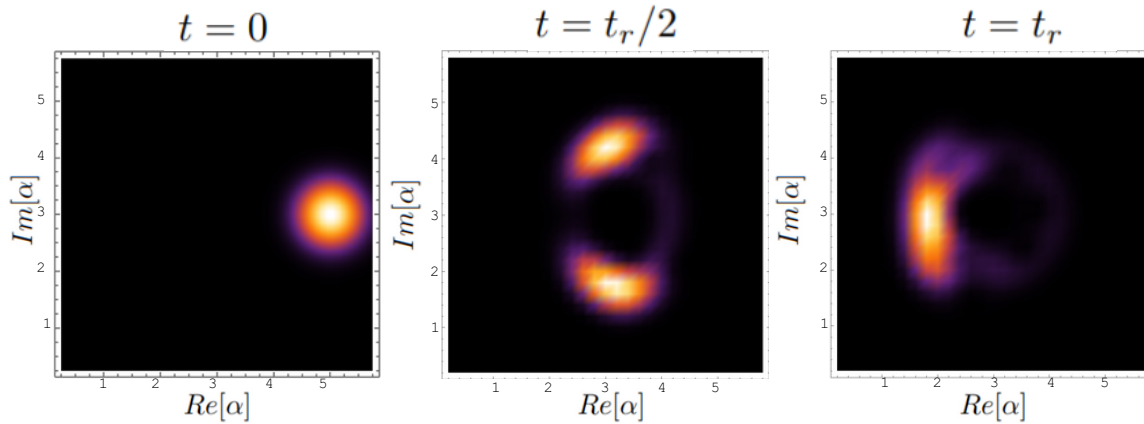


Figura 5.8: Función  $Q$  del estado preparado con condiciones iniciales electrónicas  $c_e = 1$ ,  $c_g = 0$  y un estado coherente fotónico. Al evolucionar el estado coherente se divide en dos componentes que viajan a través del espacio fase y se fusionan en el tiempo de resurgimiento  $t_r$ , dejando un rastro a su paso.

En el caso con estado inicial electrónico excitado, mostrado en la figura 5.8, observamos el comportamiento esperado para un modelo de Jaynes-Cummings. Sin embargo, la razón por la cual la oscilación no colapsa por completo en 5.7a) es que la vibración deja un rastro en el movimiento de la componente que persiste en el tiempo, lo que resulta diferente al modelo JC en el que ambas componentes se separan y viajan de forma cohesionada hasta el tiempo de resurgimiento como se puede comparar con la figura 3.2. En ambos casos las componentes se vuelven a mezclar en el tiempo de resurgimiento óptico dado por (3.2.14).

Mientras que, comenzando en una superposición electrónica con  $c_e = -c_g$ , el fenómeno es completamente distinto. Observamos en la figura 5.9 que la gaussiana no

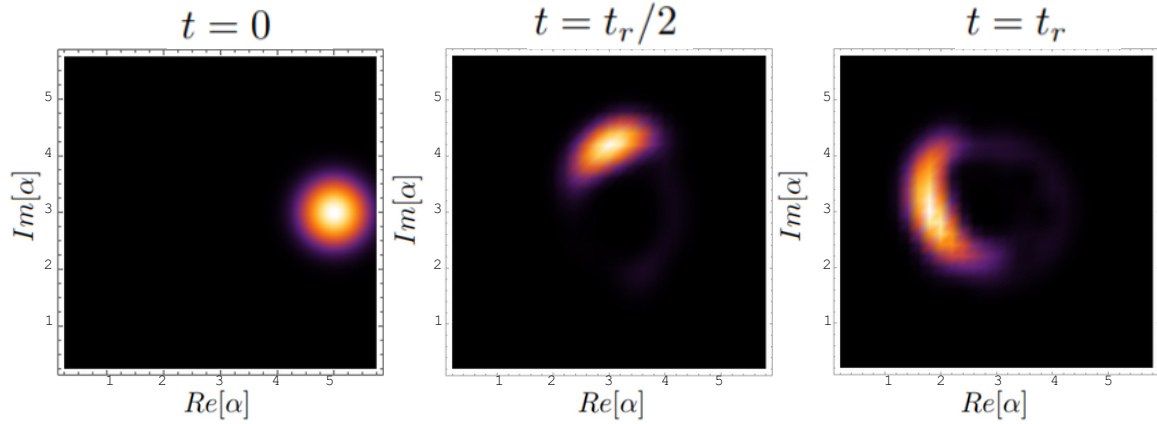


Figura 5.9: Función  $Q$  del estado preparado con condiciones iniciales electrónicas  $c_e = -c_g$  y un estado coherente fotónico. Al contrario que en la fig. 5.8, no se dividen los componentes y viaja como una única componente a través del espacio fase, sin embargo deja un rastro tras de sí.

se divide en dos componentes, sino que comienza a desplazarse a través del espacio de la función  $Q$  en trayectoria circular, deformándose en el proceso. Sin embargo, deja un rastro que persiste en el tiempo, que también atribuimos al acoplamiento con el modo fonónico.

## 5.4 Entrelazamiento

El entrelazamiento es un fenómeno en el que dos o más componentes de un sistema se encuentran en un estado cuántico tal que las propiedades de una no pueden ser descritas de manera independiente de las propiedades de las otras, experimentando una correlación [33]. Para un sistema multipartita si un estado se encuentra entrelazado el vector de estado que lo describe no podrá ser expresado como un producto de sus componentes, es decir

$$|\Psi_{AB\dots}\rangle \neq |\psi_A\rangle \otimes |\psi_B\rangle \otimes \dots$$

### 5.4.1 Pureza como medida de entrelazamiento

Una herramienta muy útil para conocer el grado de entrelazamiento bipartita de estados puros es la propiedad de **pureza** de la matriz de densidad reducida que para un estado de un sistema bipartita  $|\Psi(t)\rangle$  con componentes  $A$  y  $B$  se obtiene de la matriz de densidad reducida  $\rho_A = \text{Tr}_B(\rho)$ , la pureza de este se define como:

$$P(\rho_A) = \text{Tr}\{\rho_A^2\}, \quad (5.4.1)$$

recordando del capítulo dos que  $\rho$  es la matriz de densidad. La pureza cuando se tiene un estado puro alcanza su valor máximo de 1, mientras que su valor mínimo está determinado por el número de componentes  $\ell$  del sistema tratado con la relación es:

$$\frac{1}{\ell} \leq P(\rho_A) \leq 1 \quad (5.4.2)$$

El sistema que estamos tratando consta de 3 componentes, pero como hemos visto en la ecuación (5.1.4), podemos separar una de estas, mientras las otras dos quedan hibridizadas. Por lo tanto, (5.1.4) no es la única posibilidad; si separamos la componente fotónica, conseguiríamos un estado de la forma

$$|\tilde{\Psi}(t)\rangle = \sum_n |\xi_n\rangle |n\rangle, \quad (5.4.3)$$

o, aislando la componente fonónica, se expresaría como

$$|\tilde{\Psi}(t)\rangle = \sum_m |\zeta_m\rangle |m\rangle. \quad (5.4.4)$$

Con lo que vemos que, incluso si son 3 componentes, el sistema es bipartita al hibridizar dos de ellas y separar la restante.

Para estudiar la pureza de los subsistemas individuales, se calcula la matriz de densidad reducida mediante la traza parcial. En este trabajo, nos enfocaremos en estudiar la pureza de los estados electrónicos, generando a la matriz de densidad reducida desde el estado de la expresión (5.1.4) con lo que se obtiene:

$$\rho_{\text{fot-fon}} = |\chi_g(t)\rangle\langle\chi_g(t)| + |\chi_e(t)\rangle\langle\chi_e(t)|.$$

Aplicando la definición (5.4.1), al subsistema electrónico de  $\rho_{\text{fot-fon}}$ :

$$P_{\text{elec}}(\rho_{\text{fot-fon}}) = \text{Tr}\{\rho_{\text{fot-fon}}^2\}$$

genera la función de pureza:

$$P_{\text{elec}}(\rho) = |\langle\chi_g(t)|\chi_g(t)\rangle|^2 + |\langle\chi_e(t)|\chi_e(t)\rangle|^2 + 2|\langle\chi_g(t)|\chi_e(t)\rangle|^2. \quad (5.4.5)$$

A continuación presentamos las gráficas de pureza de los diferentes casos de interés de la sección 5.3.

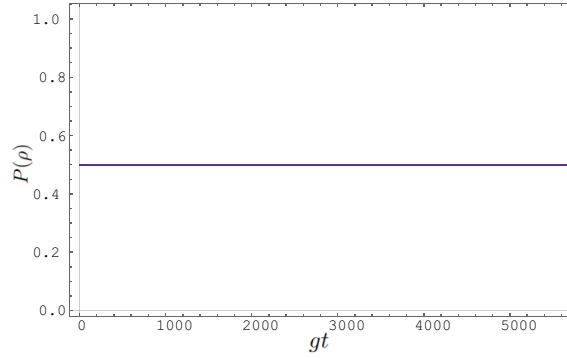


Figura 5.10: Pureza de un eigenvector de  $\tilde{H}_{eff}$ , este mantiene una pureza mínima a lo largo de su evolución y por tanto entrelazamiento máximo.

### Un fonon en un bloque polaritónico

Calculando (5.4.5) para la función  $|\tilde{\Psi}(t)\rangle$  de las condiciones impuestas en las figuras 5.2 y 5.3 se obtiene la figura 5.10. El motivo por el cual mantiene un valor mínimo de pureza es porque inicialmente es un eigenvector del modelo JC y no cambia al evolucionar, con lo que a todo momento tiene máximo entrelazamiento entre sus componentes.

### Estado coherente fonónico en un bloque polaritónico

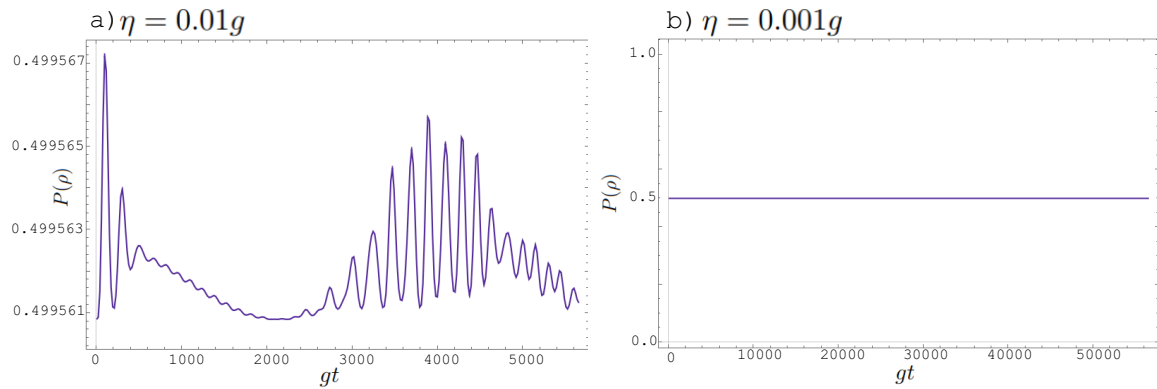


Figura 5.11: Valores de la pureza para los estados de la figura 5.5, ambos tienden al valor mínimo de 0.5.

En el caso de la figura 5.5 a) la pureza varía con la dinámica de la oscilación, pero manteniéndose muy cerca del valor mínimo de pureza, para el caso b) al ser tan pequeño el valor de  $\eta$  se pierde la complejidad de la estructura para el cálculo numérico, razón por la

que el programa arroja un valor constante a 0.5, pero se esperaría que hiciera algo similar al caso a) con menor amplitud.

### Estados coherentes óptico y fonónico

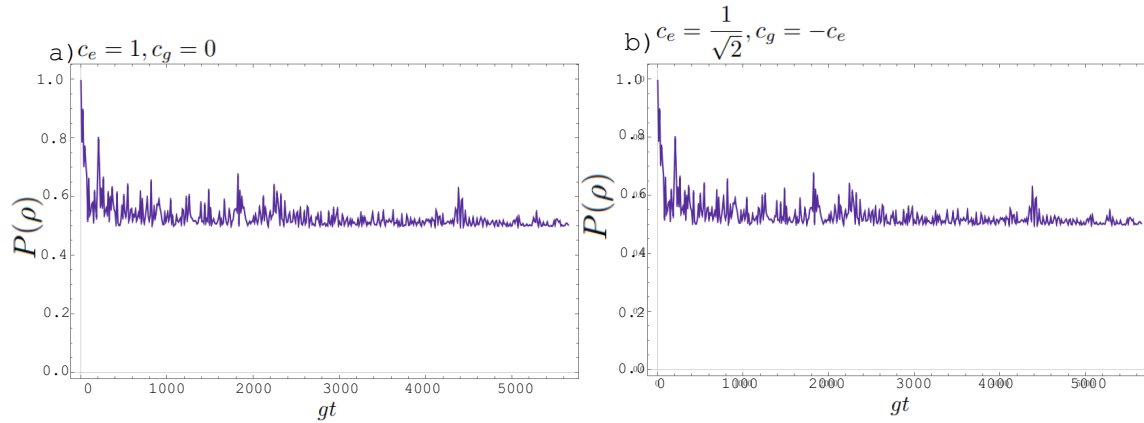


Figura 5.12: La pureza de las figuras 5.7 decae rápidamente al mínimo, alcanzando el valor de entrelazamiento máximo por momentos.

Para el último escenario analizado, que es el de la preparación de estados iniciales en estados coherentes, llama la atención que, en resonancia, aún sigue decayendo rápidamente a valores mínimos de pureza, sin importar si el sistema está acoplado al modo óptico de la cavidad o a los estados polaritónicos con el modo fonónico. Sin embargo, en esta ocasión sí existe una variación en la función, gracias a los fotones y fonones que están fuera de la condición de resonancia.

#### 5.4.2 Entrelazamiento tripartita y estados GHZ

Los estados Greenberger–Horne–Zeilinger (GHZ) son estados entrelazados que involucran 3 subsistemas con dos estados posibles cada uno; tienen propiedades muy interesantes y es que estos estados tienen entrelazamiento máximo tripartita (y por tanto alcanzan el valor mínimo de pureza) y este entrelazamiento se pierde si se descompone a pares[65]. Hemos encontrado que, cuando se cumple la condición de resonancia  $\nu = g\sqrt{n}$ , los eigenvectores del modelo de HTC corresponden a estados GHZ. Primero, mostramos que uno de

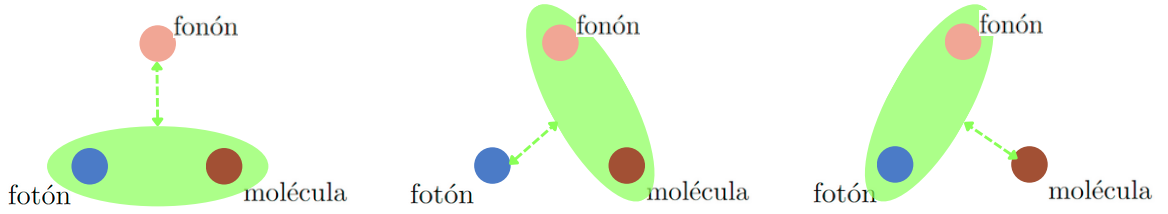


Figura 5.13: Máximo entrelazamiento entre dos subsistemas con el tercero

los eigenvectores (4.4.4), cuando  $\delta_n = 0$ , se reduce a:

$$|E_{n,m}^+\rangle = \frac{|m-1, n, +\rangle + |m, n, -\rangle}{\sqrt{2}},$$

que, al reagrupar en la base electrónica, es:

$$|E_{n,m}^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|\phi_m^+\rangle |n-1\rangle |e\rangle + |\phi_m^-\rangle |n\rangle |g\rangle],$$

donde  $|\phi_m^\pm\rangle = \frac{|m-1\rangle \pm |m\rangle}{\sqrt{2}}$ .

Esto prueba que el estado tiene máximo entrelazamiento al calcular su pureza mediante su matriz de densidad reducida, en este caso tomamos desde la bipartición fonón-fotón pero lo mismo ocurrirá si se toman cualquiera de las otras biparticiones, como vemos en la figura 5.13; la matriz de densidad reducida de esta bipartición es:

$$\rho_{\text{fon-fot}} = \frac{1}{2} (|\phi_m^+, n-1\rangle \langle \phi_m^+, n-1| + |\phi_m^-, n\rangle \langle \phi_m^-, n|).$$

La pureza, al realizar las operaciones, obtiene el valor:

$$P(\rho_{\text{fon-fot}}) = \frac{1}{2},$$

que es el valor mínimo de pureza para un sistema bipartito. para el eigenvector  $|E_{n,m}^-\rangle$  el proceso es análogo.

### Generando estados GHZ

Otro escenario que cumple con las condiciones de estado GHZ es un polaritón evolucionado:

$$e^{\frac{-i\tilde{H}_{\text{eff}}t}{\hbar}} |m, n, +\rangle = C |m-1, n, +\rangle - iS |m, n, -\rangle.$$

Cada que el argumento de  $C$  y  $S$  toma el valor  $\frac{k\pi}{4}$ , para toda  $k$  natural se reduce a:

$$\frac{|m-1, n, +\rangle - i|m, n, -\rangle}{\sqrt{2}},$$

Esto también sucede a todo tiempo si se encuentra en resonancia  $\delta_n = 0$ . Regresando nuevamente a la base electrónica se tiene:

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \left[ \frac{|m-1\rangle - i|m\rangle}{\sqrt{2}} |n-1\rangle |e\rangle + \frac{|m\rangle + i|m\rangle}{\sqrt{2}} |n\rangle |g\rangle \right],$$

Nuevamente estados ortogonales entre sí y por tanto GHZ, con mínima pureza y máximo entrelazamiento. Como hemos visto en secciones anteriores de este capítulo, los cálculos numéricos respaldan esta afirmación, como lo son los casos 5.2 y 5.7b).

En la figura 5.13 se ejemplifica como para nuestro sistema de molécula dentro de cavidad, las 3 componentes, fonón, fotón y molécula están entrelazadas entre sí sin importar desde cuál de ellas se mida, pero este entrelazamiento se pierde si se mide de manera independiente entre dos subsistemas, cumpliendo los criterios para ser considerado un estado GHZ.

## Capítulo 6

# Conclusiones

El estudio de la interacción de la luz con la materia sigue avanzando, e incluir moléculas en cavidades ópticas resulta de gran relevancia, ya que estos sistemas permiten explorar interacciones cuánticas fundamentales más allá de los átomos confinados. Las moléculas, al contar con grados de libertad vibracionales adicionales y mayor tamaño, introducen una complejidad que abre nuevas posibilidades para diseñar protocolos cuánticos y estudiar fenómenos dinámicos como el colapso y resurgimiento de oscilaciones de Rabi, haciéndolas una extensión al modelo de Jaynes-Cummings.

En esta investigación, exploramos el modelo de Holstein-Tavis-Cummings para describir la interacción entre moléculas, modos vibracionales y campos electromagnéticos en cavidades ópticas, para el cual logramos encontrar una aproximación a un hamiltoniano efectivo a bloques del tipo Rabi cuántico que conserva la dinámica del sistema, al que hemos podido solucionar analíticamente y determinar las relaciones entre parámetros que permiten una simplificación a bloques del tipo Jaynes-Cummings.

En particular, mostramos que, bajo condiciones de resonancia, el modelo HTC es capaz de reproducir dinámicas cuánticas características, como las oscilaciones de Rabi, que ahora incluyen efectos adicionales derivados de las interacciones vibracionales; el parámetro de resonancia del modelo HTC es distinto al del modelo de Jaynes-Cummings, obedeciendo ahora una relación entre la frecuencia fonónica y la frecuencia de acoplamiento entre la cavidad y la molécula modulada por la raíz del número de fotones dentro de esta.

Encontramos que dos tipos de oscilaciones son posibles para este sistema, la primera midiendo desde el modo óptico a los estados electrónicos y otra desde el modo fonónico relacionando a los estados hibridizados propios de los sistemas de tipo Jaynes-

Cummings con la vibración de la molécula, encontrando además una expresión analítica de los tiempos de resurgimiento para estos dos tipos de fenómenos de colapso y resurgimiento. Cuando las oscilaciones de Rabi se presentan en  $\mathcal{W}(t)$  se muestra la efectividad del modelo de JC ayudándonos a predecir los parámetros en los que nuestra aproximación es fiel a la función original.

Estudiamos también cómo la preparación de estados iniciales específicos afecta la evolución temporal del sistema. En el caso de superposiciones electrónicas ( $c_e = -c_g$ ), identificamos trayectorias deformadas en el espacio de fases de la función  $Q$ , destacando la persistencia de un rastro dinámico y la falta de división en componentes, en contraste con otro tipo de configuraciones, donde la división de componentes en el espacio fase si se manifiesta. Estos resultados subrayan la importancia de la elección de estados iniciales para el diseño de protocolos cuánticos y operaciones de entrelazamiento.

Por otra parte, se destacó la relevancia de los estados polaritónicos, que, bajo ciertas condiciones, se comportan como sistemas de tres qubits entrelazados, conocidos en la literatura como estados GHZ, fenómeno que sugiere aplicaciones potenciales en computación y criptografía cuánticas.

En cuanto al ámbito experimental, actualmente no existe la tecnología para llevar a cabo protocolos de control cuántico con este tipo de sistemas pero si podría ser utilizado para calcular espectros de emisión.

# Bibliografía

- [1] R. P. Feynman, Quantum Electrodynamics, CRC Press (1998).
- [2] S. Haroche, A Short History of Cavity Quantum Electrodynamics, in Conference on Coherence and Quantum Optics (2007).
- [3] W. P. Schleich , Jaynes-Cummings-Paul Model: Dynamics, in Quantum Optics in Phase Space, Chapter 15, pp. 413-434, John Wiley & Sons, Ltd (2001).
- [4] R. P. Feynman, The Strange Theory of Light and Matter, 1st ed., pp. 4-6 (1988).
- [5] S. S. Schweber, QED and the Men Who Made It: Dyson, Feynman, Schwinger and Tomonaga, Princeton University Press, Princeton (1994).
- [6] B. W. Shore and P. L. Knight, The Jaynes-Cummings Model, *Journal of Modern Optics*, **40**(7), 1195-1238 (1993).
- [7] E. T. Jaynes and F. Cummings, Comparison of Quantum and Semiclassical Radiation Theories with Application to the Beam Maser, *Proceedings of the IEEE*, **51**(1), 89-109 (1963).
- [8] J. H. Eberly, N. B. Narozhny, and J. J. Sanchez-Mondragon, Periodic Spontaneous Collapse and Revival in a Simple Quantum Model, *Physical Review Letters*, **44**(20), 1323–1326 (1980).
- [9] J. I. Cirac and P. Zoller, Quantum Computations with Cold Trapped Ions, *Physical Review Letters*, **74**(20), 4091-4094 (1995).
- [10] M. Kjaergaard, M. E. Schwartz, J. Braumüller, P. Krantz, J. I. J. Wang, S. Gustavsson, and W. D. Oliver, Superconducting Qubits: Current State of Play, *Annual Review of Condensed Matter Physics*, **11**, 369-395 (2020).

- [11] C. C. Gerry and P. Knight, *Introductory Quantum Optics*, (2004).
- [12] O. De Los Santos-Sánchez, C. González-Gutiérrez, and J. Récamier, Nonlinear Jaynes–Cummings Model for Two Interacting Two-Level Atoms, *Journal of Physics B*, **49**(16), 165503 (2016).
- [13] J. M. Torres, E. Sadurní, and T. H. Seligman, Two Interacting Atoms in a Cavity: Exact Solutions, Entanglement and Decoherence, *Journal of Physics A*, **43**(19), 192002 (2010).
- [14] M. T. Tavis and F. Cummings, Exact Solution for an N-Molecule—Radiation-Field Hamiltonian, *Physical Review*, **170**(2), 379-384 (1968).
- [15] J. M. Torres, J. Z. Bernád, and G. Alber, Quantum Teleportation and Entanglement Swapping of Matter Qubits with Coherent Multiphoton States, *Physical Review A*, **90**(1) (2014).
- [16] J. Z. Bernád, J. M. Torres, L. Kunz, and G. Alber, Multiphoton-State-Assisted Entanglement Purification of Material Qubits, *Physical Review A*, **93**(3) (2016).
- [17] D. Wang, H. Kelkar, D. Martín-Cano, D. Rattenbacher, A. Shkarin, T. Utikal, S. Götzinger, and V. Sandoghdar, Turning a Molecule into a Coherent Two-Level Quantum System, *Nature Physics*, **15**(5), 483-489 (2019).
- [18] M. Reitz, C. Sommer, and C. Genes, Langevin Approach to Quantum Optics with Molecules, *Physical Review Letters*, **122**(20) (2019).
- [19] T. Holstein, Studies of Polaron Motion, *Annals of Physics*, **8**(3), 325-342 (1959).
- [20] M. A. Zeb, P. Kirton, and J. Keeling, Exact States and Spectra of Vibrationally Dressed Polaritons, *ACS Photonics*, **5**(1), 249-257 (2017).
- [21] D. Wang, H. Kelkar, D. Martín-Cano, D. Rattenbacher, A. Shkarin, T. Utikal, S. Götzinger, and V. Sandoghdar, Turning a Molecule into a Coherent Two-Level Quantum System, *Nature Physics*, **15**, 483-489 (2019).
- [22] M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum Optics*, Cambridge University Press (1997).
- [23] I. I. Rabi, Space Quantization in a Gyating Magnetic Field, *Physical Review*, **51**(8), 652 (1937).

- 
- [24] B. W. Shore, *The Theory of Coherent Atomic Excitation*, Wiley, New York (1990).
- [25] U. Schleich, *Quantum Optics*, Springer (2001).
- [26] J. Sakurai and J. Napolitano, *Modern Quantum Mechanics*, 2nd ed., Cambridge University Press (2017).
- [27] W. Vogel and D. Welsch, *Quantum Optics*, John Wiley & Sons (2006).
- [28] H. Walther, Single Atom Experiments in Cavities and Traps, *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **454**(1975), 431-451 (1998).
- [29] P. Maunz, T. Puppe, I. Schuster, N. Syassen, P. W. H. Pinkse, and G. Rempe, Strong Coupling of a Single Atom to a Cavity Mode, *Nature*, **428**, 50-52 (2004).
- [30] Y. Huang, F. Wu, and L. Yu, Rabi Oscillation Study of Strong Coupling in a Plasmonic Nanocavity, *New Journal of Physics*, **22**(6), 063053 (2020).
- [31] J. I. Cirac, A. S. Parkins, R. Blatt, and P. Zoller, Nonclassical States of Motion in Ion Traps, *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, **37**, 237-296 (1996).
- [32] C. A. González-Gutiérrez and J. M. Torres, Atomic Bell Measurement via Two-Photon Interactions, *Physical Review A*, **99**(2), 023844 (2018).
- [33] M. A. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information*, Cambridge University Press (2000).
- [34] L. R. Liu, J. D. Hood, Y. Yu, J. Zhang, and C. Chin, Building One Molecule from a Reservoir of Two Atoms, *Science*, **360**, 900-903 (2018).
- [35] D. G. Lidzey, D. D. C. Bradley, M. S. Skolnick, T. Virgili, S. Walker, and D. M. Whittaker, *Nature*, **395**, 53-55 (1998).
- [36] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, Observation of the Coupled Exciton-Photon Mode Splitting in a Semiconductor Quantum Microcavity, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 3314-3317 (1992).

- [37] R. Houdre, R. P. Stanley, U. Oesterle, M. Ilegems, and C. Weisbuch, Room-Temperature Cavity Polaritons in a Semiconductor Microcavity, *Phys. Rev. B*, **49**, 16761-16764 (1994).
- [38] J. Grüner, A. Fujii, M. Ozaki, and K. Yoshino, Optical-Mode Structure in a Single-Layer Polymer Microcavity, *Synth. Met.*, **76**, 137-140 (1995).
- [39] D. G. Lidzey, D. D. C. Bradley, T. Virgili, A. Armitage, M. S. Skolnick, and S. Walker, Control of Photoluminescence Emission from a Conjugated Polymer Using an Optimised Microcavity Structure, *Chem. Phys. Lett.*, **263**, 655-660 (1996).
- [40] T. Nakayama and A. Kakuta, Organic Luminescent Devices with a Multiplex Cavity Structure, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, L1234-L1236 (1995).
- [41] R. F. Aroca, Plasmon Enhanced Spectroscopy, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **15**, 5355-5363 (2013).
- [42] T. Itoh, Y. S. Yamamoto, and Y. Ozaki, Plasmon-Enhanced Spectroscopy of Absorption and Spontaneous Emissions Explained Using Cavity Quantum Optics, *Chem. Soc. Rev.*, **46**, 3904-3921 (2017).
- [43] X. Zhong, T. Chervy, S. Wang, J. George, A. Thomas, J. A. Hutchison, E. Devaux, C. Genet, J. Moran, and T. W. Ebbesen, Non-Radiative Energy Transfer Mediated by Hybrid Light-Matter States, *Angewandte Chemie International Edition*, **56**, 9039-9043 (2017).
- [44] R. Chikkaraddy, B. de Nijs, F. Benz, S. J. Barrow, O. A. Scherman, E. Rosta, A. Demetriadou, P. Fox, O. Hess, and J. J. Baumberg, Single-Molecule Strong Coupling at Room Temperature in Plasmonic Nanocavities, *Nature*, **535**, 127-130 (2016).
- [45] E. Orgiu, J. George, J. A. Hutchison, E. Devaux, J. F. Dayen, B. Doudin, F. Stellacci, C. Genet, P. Samori, and T. W. Ebbesen, Conductivity in Organic Semiconductors Hybridized with the Vacuum Field, *Nat. Mater.*, **14**, 1123-1129 (2015).
- [46] J. Feist and F. J. Garcia-Vidal, Extraordinary Exciton Conductance Induced by Strong Coupling, *Phys. Rev. Lett.*, **114**, 196402 (2015).

- [47] Z. Zhang and S. Mukamel, Fluorescence Spectroscopy of Vibronic Polaritons of Molecular Aggregates in Optical Microcavities, *Chem. Phys. Lett.*, **683**, 653-657 (2017). Note: Ahmed Zewail (1946–2016) Commemoration Issue of Chemical Physics Letters.
- [48] K. Bennett, M. Kowalewski, and S. Mukamel, Novel Photochemistry of Molecular Polaritons in Optical Cavities, *Faraday Discuss.*, **194**, 259-282 (2016).
- [49] J. Flick, M. Ruggenthaler, H. Appel, and A. Rubio, Atoms and Molecules in Cavities, from Weak to Strong Coupling in Quantum-Electrodynamics (QED) Chemistry, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **114**, 3026-3034 (2017).
- [50] M. A. Zeb, P. Kirton, and J. Keeling, Exact States and Spectra of Vibrationally Dressed Polaritons, *ACS Photonics*, **5**(1), 249-257 (2017).
- [51] F. Herrera and F. C. Spano, Theory of Nanoscale Organic Cavities: The Essential Role of Vibration-Polariton Coupling, *ACS Photonics*, **5**, 65-74 (2018).
- [52] J. del Pino, F. A. Y. N. Schröder, A. W. Chin, J. Feist, and F. J. Garcia-Vidal, Tensor Network Simulation of Non-Markovian Dynamics in Organic Polaritons, *Phys. Rev. Lett.*, **121**, 227401 (2018).
- [53] T. Neuman and J. Aizpurua, Origin of the Asymmetric Light Emission from Molecular Exciton–Polaritons, *Optica*, **5**(10), 1247-1255 (2018).
- [54] T. Schwartz, J. A. Hutchison, J. Léonard, C. Genet, S. Haacke, and T. W. Ebbesen, Polariton Dynamics under Strong Light–Molecule Coupling, *ChemPhysChem*, **14**, 125-135 (2013).
- [55] F. Herrera and F. C. Spano, Cavity-Controlled Chemistry in Molecular Ensembles, *Phys. Rev. Lett.*, **116**, 238301 (2016).
- [56] V. May and O. Kühn, Charge and Energy Transfer Dynamics in Molecular Systems, 3rd ed., Wiley-VCH, Weinheim, Germany (2008).
- [57] J. Klaers, J. Schmitt, F. Vewinger, and M. Weitz, Bose-Einstein Condensation of Photons in an Optical Microcavity, *Nature*, **468**, 545-548 (2010).

- 
- [58] A. Zeb, P. Kirton, and J. Keeling, Exact States and Spectra of Vibrationally Dressed Polaritons, *ACS Photonics*, (2017).
- [59] F. Herrera and F. C. Spano, Absorption and Photoluminescence in Organic Cavity QED, *Physical Review A*, **95**(5), 053867 (2017).
- [60] Q. Zhang and K. Zhang, Collective Effects of Organic Molecules Based on Holstein-Tavis-Cummings Model, *arXiv*, 2105.08775v1 [quant-ph] (2021).
- [61] W. H. Miller, N. C. Handy, and J. E. Adams, Reaction Path Hamiltonian for Polyatomic Molecules, *Journal of Chemical Physics*, **72**, 99-112 (1980).
- [62] F. A. Carey and R. J. Sundberg, *Advanced Organic Chemistry: Part A: Structure and Mechanisms*, 5th ed., Springer, New York (2007).
- [63] A. Zeb, P. Kirton, and J. Keeling, Exact States and Spectra of Vibrationally Dressed Polaritons, *ACS Photonics*, **5**(1), 249-257 (2018).
- [64] J. Calvo, D. Zueco, and L. Martin-Moreno, Ultrastrong Coupling Effects in Molecular Cavity QED, *Nanophotonics*, **9**(2), 277-289 (2020).
- [65] D. M. Greenberger, M. A. Horne, and A. Zeilinger, Going beyond Bell's Theorem, en *Bell's Theorem, Quantum Theory and Conceptions of the Universe*, M. Kafatos (ed.), Dordrecht: Kluwer, p. 69 (1989).
- [66] J.J. Sakurai, *Modern Quantum Mechanics*, Supplement 1, Addison-Wesley (1994), p. 476.
- [67] E. Wigner, *On the Quantum Correction for Thermodynamic Equilibrium*, Princeton University (1932).
- [68] A. Yariv, *Quantum Electronics*, 3rd ed., John Wiley & Sons, Inc., (1989).