# ESPECTRO DE EMISIÓN DE UN PUNTO CUÁNTICO EN UNA MICROCAVIDAD EN EL RÉGIMEN BIEXCITÓNICO: PERSPECTIVA DE LA TEORÍA DE LAS FUNCIONES DE GREEN

# EMISSION SPECTRUM OF A QUANTUM DOT IN A MICROCAVITY IN THE BIEXCITONIC REGIME: A PERSPECTIVE FROM GREEN'S FUNCTIONS THEORY

#### José D. Hernández-Rivero, Herbert Vinck-Posada

Grupo de Óptica e Información Cuántica, Universidad Nacional de Colombia

(Recibido: 10/2013. Aceptado: 11/2013)

#### Resumen

Encontramos una expresión cerrada para las funciones de correlación del sistema punto cuántico modelado como un átomo de cuatro niveles acoplado a un modo de luz con dos grados de libertad de polarización, a través de un cálculo basado en la teoría de funciones de Green, como alternativa del teorema de regresión cuántico. A partir de estas funciones encontramos el espectro de emisión y con él recuperamos ciertos fenómenos del régimen del acople fuerte y de fotoluminiscencia como el anticruce de los modos de emisión del sistema, y las llamadas transiciones a dos fotones.

**Palabras clave:** Punto cuántico, Microcavidad, Modelo de Jaynes-Cummings, Acople fuerte, Biexcitón, funciones de Green, Espectro de emisión.

José D. Hernández-Rivero: jodhernandezri@unal.edu.co

### Abstract

We found a closed expression for the correlation functions for the solid state system: a quantum dot modeled as a four-level atom coupled with a light-mode of two polarization degrees of freedom, through a calculation based on Greens functions theory, as an alternative from quantum regression theorem. From these functions we found the emission spectrum and then we recovered certain strong coupling and photoluminiscence phenomena like the anticrossing of the emission modes of the system and the so called two-photon transitions.

**Keywords:** Quantum Dot, Microcavity, Jaynes-Cummings model, Strong Coupling, Biexciton, Green's function, Emission spectrum.

# Introducción

Un punto cuántico (QD) en una microcavidad es un importante sistema del estado sólido [1, 2] que a lo largo de las últimas dos décadas ha permitido avances en la computación e información cuántica [3] y el estudio del entrelazamiento en sistemas cuánticos abiertos [4], a través de ciertas técnicas experimentales que han facilitado el acople fuerte entre la radiación y la materia [5, 6]. El QD es usualmente considerado como un átomo de dos niveles forzado por un modo de campo electromagnético, y el modelo de Jaynes-Cummings describe la interacción entre estos dos subsistemas [7]. Cuando el QD es excitado por el campo de la cavidad, un electrón de la banda de valencia realiza una transición a la banda de conducción, formándose una cuasipartícula llamada excitón a través de la interacción coulombiana entre el electrón y el hueco que deja éste en la banda de valencia. El spin del excitón se acopla a un modo dado de polarización de luz de tal manera que en un QD pueden formarse dos excitones con spin opuesto, los cuales interaccionan entre sí dando lugar a un estado ligado llamado biexcitón, el cual tiene propiedades físicas interesantes, entre ellas la emisión de pares de fotones enredados [8] como veremos más adelante.

La base en la que escribimos el sistema es

$$\{|Gm_1m_2\rangle, |X_1m_1 - 1m_2\rangle, |X_2m_1m_2 - 1\rangle, |Bm_1 - 1m_2 - 1\rangle\},\$$

donde G es el estado base del QD,  $X_1, X_2$  son los excitones de cada valor de spin, B es el estado de biexcitón, y  $m_1, m_2$  son el número de fotones en cada grado de libertad de polarización. De esta manera, podemos escribir el hamiltoniano del sistema [9, 10]:

$$H = \omega_c (a_1^{\dagger} a_1 + a_2^{\dagger} a_2) + (2\omega_c + \Delta 1 + \Delta 2) |B\rangle \langle B| + (\omega_c + \Delta 1) \\ \times (|X_1\rangle \langle X_1| + |X_2\rangle \langle X_2|) + g(\sigma_1 a_1^{\dagger} + \sigma_2 a_2^{\dagger} + \text{h.c.})$$
(1)

Aquí,  $\omega_c$  es la energía de la cavidad,  $\Delta_1, \Delta_2$  son las desintonías del excitón y el biexcitón con respecto al modo de la cavidad,  $a_i, a_i^{\dagger}$  los operadores bosónicos de aniquilación y creación de partículas del *i*-ésimo modo de luz, y g la constante de acople radiación-materia.  $\sigma_1 = |G\rangle \langle X_1| + |X_2\rangle \langle B|, \sigma_2 = |G\rangle \langle X_2| + |X_1\rangle \langle B|$  son operadores de escalera fermiónicos. El contacto de este sistema con el ambiente proporciona una cantidad infinita de grados de libertad, y al realizar una traza parcial sobre ellos, puede obtenerse la dinámica de la matriz densidad regida por la ecuación maestra [4, 11]:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = i[\rho, H] + \frac{\kappa}{2} (\mathcal{L}_{a_1}(\rho) + \mathcal{L}_{a_2}(\rho)) + \frac{P}{2} (\mathcal{L}_{\sigma_1^{\dagger}}(\rho) + \mathcal{L}_{\sigma_2^{\dagger}}(\rho)), \quad (2)$$

donde se han supuesto los procesos disipativos de fuga  $\kappa$  de fotones de la cavidad y bombeo incoherente de excitones P, y se han introducido los superoperadores de Lindblad  $\mathcal{L}_c(\rho) = 2c\rho c^{\dagger} - \{\rho, c^{\dagger}c\}.$ 

#### Escalera de estados y emisión de dos fotones

De acuerdo a su energía, los estados del sistema pueden arreglarse de la manera mostrada en la Fig. 1. Los procesos disipativos como  $\kappa$  llevan un estado de n + 1 fotones a un estado de n fotones, mientras que las líneas correspondientes al proceso P llevan el estado base al estado  $X_i$ , y lleva estos estados al biexcitón.

Según la configuración de las desintonías, pueden presentarse los llamados fenómenos de *emisión de un sólo foton* o *emisión de pares* 



FIGURA 1. (Figura a color) Escalera de estados desde el estado base  $|G00\rangle$ hasta el estado de biexcitón  $|B00\rangle$ . Con líneas rojas sólidas simbolizamos los procesos g que preservan el número de excitaciones en el sistema, y con líneas discontinuas azules (ver figura izquierda) simbolizamos los procesos de pérdida de fotones  $\kappa$ . Con línea discontinua naranja (parte derecha) simbolizamos los procesos de bombeo incoherente de excitaciones en la materia



FIGURA 2. (Figura a color) Escalera de estados con las diferentes transiciones involucradas en la dinámica del sistema. A la izquierda, los procesos de emisión de un sólo fotón para  $\Delta_1 = 0$ , y a la derecha el proceso de emisión de dos fotones para  $\Delta_2 = -\Delta_1$ 

de fotones enredados. Por ejemplo, si  $\Delta_1 = 0$  (ver Fig. 2, izq.), entonces el excitón entra en resonancia con la cavidad, facilitando las transiciones  $B00 \rightarrow X_101$  y  $X_100 \rightarrow G10$  mediadas por g, y los fotones pueden ser emitidos a través del decaimiento  $\kappa$ . Como estos procesos en general no suceden de manera simultánea, entonces decimos que en cada decaimiento hay emisión de de un sólo fotón. Por otro lado, si  $\Delta_2 = -\Delta_1$  (ver Fig. 2, der.), entonces la energía del biexcitón entra en resonancia con el doble de la energía de un fotón de la cavidad, favoreciendo entonces la transición  $B00 \rightarrow G11$  también mediada por g, y luego un doble decaimiento de fotones de la cavidad hasta el estado base. Este proceso no se puede descomponer en otros más simples [8, 9], y produce pares de fotones altamente correlacionados, razón por la cual a este proceso se le conoce como emisión de dos fotones.

#### El espectro de emisión

El espectro de emisión se define según el teorema de Wiener-Khintchine [12] como la transformada de Fourier

$$S(\omega) = \mathcal{R} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i\omega\tau} (K_1(\tau) + K_2(\tau))$$
$$= \mathcal{R} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i\omega\tau} (\left\langle a_1^{\dagger}(\tau)a_1(0) \right\rangle + \left\langle a_2^{\dagger}(\tau)a_2(0) \right\rangle), \quad (3)$$

donde  $K_1(\tau), K_2(\tau)$  son las funciones de correlación (o funciones de Green) para cada modo de polarización. Usualmente se emplea el teorema de regresión cuántico (QRT) para encontrar la evolución temporal de dichas funciones [7, 13], primero encontrando un conjunto de operadores que cierran el sistema que describe la dinámica de  $\langle a_i(t) \rangle$ , y luego asociar esa misma dinámica a  $\langle a_i^{\dagger}(\tau)a_i(0) \rangle$  pero con unas condiciones iniciales muy específicas. Este procedimiento se convierte en una tarea complicada a medida que el número de grados de libertad aumenta, razón por la cual implementamos la teoría de funciones de Green para obtener las funciones de correlación [14], las cuales calculamos según la definición formal de valor esperado:

$$K_1(\tau) = \left\langle a_1^{\dagger}(t+\tau)a_1 \right\rangle = \operatorname{Tr}_{S\otimes R}[\chi(0)U^{\dagger}(\tau)a_1^{\dagger}U(\tau)a_1], \quad (4)$$

es decir, a través de la traza sobre los estados del sistema S más el reservorio R, en términos del operador unitario de evolución temporal  $U(\tau)$  y la matriz densidad total  $\chi(0)$  en el estado estacionario. Asumimos que en dicho estado estacionario, la matriz densidad puede factorizarse de la forma  $\chi(0) = R_0 \otimes \rho(0)$ , donde  $R_0, \rho(0)$  son las matrices densidad reducidas del R y S respectivamente. Adicionalmente asumimos que  $\rho(0)$  tiene forma diagonal; esto se justifica debido a que las coherencias de la matriz densidad reducida de *S* decaen al entrar en contacto con un reservorio y desaparecen en el estado estacionario. Teniendo en cuenta las anteriores suposiciones, podemos llegar a una expresión para la función de correlación (aquí presentamos sólo para el modo 1):

$$K_{1}(\tau) = \sum_{\alpha=G}^{B} \sum_{l_{1}, l_{2}=0}^{\infty} \sqrt{l_{1}+1} \left\langle \alpha l_{1} l_{2} \right| G_{1}(\tau) \left| \alpha l_{1}+1 l_{2} \right\rangle, \qquad (5)$$

La cual puede entenderse como una suma ponderada sobre los elementos del operador función de Green, cuya forma explícita se encuentra en el Anexo 1. Este operador consta de dieciséis términos conformados por un producto externo que lleva de una variedad de excitación a la anterior, multiplicado por un término diagonal de la matriz densidad reducida  $\rho(0)$ , el cual actúa como condición inicial al hacer  $\tau = 0$  en los operadores unitarios (en el estado estacionario se asume que  $\rho$  ha evolucionado desde  $\tau = -\infty$  hasta  $\tau = 0$ ). Como los operadores de evolución temporal entran de la misma forma en (5) que en la matriz densidad:

$$\rho(t) = \operatorname{Tr}_R\{U(t)\chi U^{\dagger}(t)\}\tag{6}$$

entonces podemos asociar las componentes del operador función de Green con los elementos de  $\rho(\tau)$ , de esta manera, tenemos que la dinámica del operador de Green también se rige por la ecuación maestra, completando nuestra descripción de las funciones de correlación. El conjunto de estas forma un sistema lineal de ecuaciones diferenciales, el cual se puede resolver a través de una transformada de Laplace con argumento imaginario, obteniendo directamente el espectro de emisión.

### Resultados y discusión

En el régimen de acople fuerte aparecen fenómenos como el antricuce de modos de emisión [15], al variar el parámetro de desintonía  $\Delta_2$  manteniendo constantes los demás parámetros del sistema, y de esta manera, extraer conclusiones físicas del

comportamiento de los modos y de sus respectivas intensidades. Partiendo de los parámetros  $\omega_c/g = 1000, g = 1, \kappa/g = 0.02, P/g = 0.04, \Delta_1/g = 5$ , mostramos el anticruce de los modos fotónico, excitónico y biexcitónico en la Fig. 3. Inicialmente el modo biexcitónico se ubica en  $\Delta_2 = -10$  y luego, al aproximarse a  $\Delta_2 = -\Delta_1$  vemos que la intensidad de dicho modo desaparece, mientras que el modo de dos fotones (2ph) aumenta de intensidad y se sintoniza con la frecuencia de la cavidad  $\omega_c$ : de esta manera se estimula la emisión de pares de fotones enredados.

Cuando  $\Delta_2$  se aproxima a 0, podemos observar anticruce entre los modos del excitón y de la cavidad. El anticruce es una manifestación del entrelazamiento entre la radiación y la materia, en donde los dos modos se repelen al acercarse a la resonancia, y luego de haber ocurrido la resonancia, el modo de materia adquiere comportamiento de luz mientras que el modo de luz asume comportamiento de materia. Ahora, el correspondiente modo biexcitónico se aproxima con  $\Delta_2 = 5$  al modo del excitón, y aquí encontramos un cruce entre estos.



FIGURA 3. (Color) Secuencia de espectros en función del parámetro  $\Delta_2/g$ , donde se puede apreciar el anticruce de los modos de emisión, y el comportamiento en la intensidad de los mismos.



FIGURA 4. (Color) A la izquierda, secuencia de espectros en escala logarítmica para diferentes valores de P/g. A la derecha, comportamiento en escala logarítmica de la intensidad de los modos de biexcitón, dos fotones, cavidad y excitón en función de P/g.

Ahora, podemos variar otro parámetro controlable del sistema: la potencia del bombeo de excitones P. Con esto, usualmente se puede diferenciar el modo excitónico del biexcitónico, ya que el comportamiento de la intensidad de la emisión biexcitónica en función P, es proporcional al cuadrado de la excitónica [16], en el conocido régimen de *fotoluminiscencia* (PL), ver Fig. 4. Aquí, se fija el valor de  $\Delta_2/g = -7$ , con los parámetros del sistema anteriormente mencionados.

#### Conclusiones

Analizamos la emisión de un punto cuántico en una microcavidad en el régimen de formación de biexcitones a través del formalismo de las funciones de Green. Las expresiones para el operador de Green y las funciones de correlación se obtuvieron en términos de las componentes no diagonales de la matriz densidad, en una forma apropiada para realizar cálculos numéricos, y para un truncamiento arbitrario en la variedad de excitación. Resultados importantes, como la emisión de dos fotones y el crecimiento de las intensidades de los modos de excitón y biexcitón se recuperan en este cálculo, mostrando concordar con la teoría, y ser un tratamiento equivalente al teorema de regresión cuántico para la producción teórica de espectros de emisión.

# Agradecimientos

Este trabajo ha sido financiado por Colciencias dentro del proyecto con código 110156933525, contrato número 026-2013 y código HERMES 17432. Por otra parte, reconocemos el apoyo técnico y computacional del Grupo de Óptica e Información Cuántica de la Universidad Nacional de Colombia, Sede Bogotá.

## Anexo 1

En este anexo escribimos de manera explícita el operador función de Green para el primer modo de polarización:

```
G_{1}(\tau) = \operatorname{Tr}_{R}\{U(\tau)R_{0}[\sqrt{m_{1}+1}\left|Gm_{1}m_{2}\right\rangle\left\langle Gm_{1}+1m_{2}\right|\rho_{Gm_{1}+1m_{2},Gm_{1}+1m_{2}}+\right.
                         \sqrt{m_1+1} |Gm_1m_2\rangle \langle X_1m_1m_2| \rho_{Gm_1+1m_2,X_1m_1m_2} +
                         \sqrt{m_{1}+1}\left|Gm_{1}m_{2}\right\rangle \left\langle X_{2}m_{1}+1m_{2}-1\right|\rho_{Gm_{1}+1m_{2},X_{2}m_{1}+1m_{2}-1}+
                         \sqrt{m_1+1} \left| Gm_1m_2 \right\rangle \left\langle Bm_1m_2 - 1 \right| \rho_{Gm_1+1m_2,Bm_1m_2-1} +
                         \sqrt{m_1} |X_1m_1 - 1m_2\rangle \langle Gm_1 + 1m_2 | \rho_{X_1m_1m_2,Gm_1+1m_2} +
                         \sqrt{m_1} |X_1m_1 - 1m_2\rangle \langle X_1m_1m_2 | \rho_{X_1m_1m_2,X_1m_1m_2} +
                         \sqrt{m_1} \left| X_1 m_1 - 1 m_2 \right\rangle \left\langle X_2 m_1 + 1 m_2 - 1 \right| \rho_{X_1 m_1 m_2, X_2 m_1 + 1 m_2 - 1} +
                         \sqrt{m_1} |X_1m_1 - 1m_2\rangle \langle Bm_1m_2 - 1| \rho_{X_1m_1m_2, Bm_1m_2 - 1} +
                         \sqrt{m_1+1} \left| X_2 m_1 m_2 - 1 \right\rangle \left\langle G m_1 + 1 m_2 \right| \rho_{X_2 m_1 + 1 m_2 - 1, G m_1 + 1 m_2} + \right.
                         \sqrt{m_{1}+1}\left|X_{2}m_{1}m_{2}-1\right\rangle\left\langle X_{1}m_{1}m_{2}\right|\rho_{X_{2}m_{1}+1}m_{2}-1,X_{1}m_{1}m_{2}+
                         \sqrt{m_{1}+1}\left|X_{2}m_{1}m_{2}-1\right\rangle\left\langle X_{2}m_{1}+1m_{2}-1\right|\rho_{X_{2}m_{1}+1m_{2}-1,X_{2}m_{1}+1m_{2}-1}+
                         \sqrt{m_1+1} |X_2m_1m_2-1\rangle \langle Bm_1m_2-1| \rho_{X_2m_1+1m_2-1,Bm_1m_2-1}+
                         \sqrt{m_1} |Bm_1 - 1m_2 - 1\rangle \langle Gm_1 + 1m_2 | \rho_{Bm_1m_2-1,Gm_1+1m_2} +
                         \sqrt{m_1} |Bm_1 - 1m_2 - 1\rangle \langle X_1m_1m_2 | \rho_{Bm_1m_2-1,X_1m_1m_2} +
                         \sqrt{m_1} |Bm_1 - 1m_2 - 1\rangle \langle X_2m_1 + 1m_2 - 1| \rho_{Bm_1m_2-1, X_2m_1+1m_2-1} +
                         \sqrt{m_1} |Bm_1 - 1m_2 - 1\rangle \langle Bm_1m_2 - 1| \rho_{Bm_1m_2-1,Bm_1m_2-1} |U^{\dagger}(\tau) \rangle
```

### Referencias

- A. V. Kakovin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and F. P. Laussy, *Microcavities*, edited by R. J. Nicholas and H. Kamimura (Oxford University Press, 2007).
- [2] K. J. Vahala, Nature 424, 839 (2003), 10.1038/nature01939.
- [3] E. Knill, R. Laflamme, and G. J. Milburn, Nature 409, 46 (2001).
- [4] H. Carmichael, An open systems approach to Quantum Optics (Springer-Verlag, 1993).

- [5] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Loffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel, Nature 432, 197 (2004).
- [6] M. S. Skolnick and T. A. Fisher, Semicond. Sci. Tech. 13, 645 (1998).
- [7] E. del Valle, F. P. Laussy, and C. Tejedor, Phys. Rev. B 79, 235326 (2009).
- [8] E. del Valle, A. Gonzalez-Tudela, E. Cancellieri, F. P. Laussy, and C. Tejedor, N. J. Phys. 13, 113014 (2011).
- [9] F. Troianib, J. I. Perea, and C. Tejedor, Phys. Rev. B 74, 235310 (2006).
- [10] G. Cipagauta, D. G. Suárez-Forero, and H. Vinck-Posada, Rev. Col. Fís. 44, 47 (2012).
- [11] G. Cipagauta, D. G. Suárez-Forero, and H. Vinck-Posada, Rev. Col. Fís. 44, 53 (2012).
- [12] J. H. Eberly and K. Wodkiewicz, J. Opt. Soc. Am. 67, 1252 (1977).
- [13] J. I. Perea, D. Porras, and C. Tejedor, Phys. Rev. B 70, 115304 (2004).
- [14] T. Quang, G. S. Agarwal, J. Bergou, M. O. Scully, H. Walther, and K. Vogel, Phys. Rev. A 48, 803 (1993).
- [15] S. J. Boyle, A. J. Ramsay, A. M. Fox, M. S. Skolnick, A. P. Heberle, and M. Hopkinson, Phys. Rev. Lett. **102**, 207401 (2009).
- [16] H. Ichida and M. Nakayama, Phys. Rev. B 63, 195316 (2001).