



Politechnika Wrocławska

Instytut Fizyki Teoretycznej
Politechniki Wrocławskiej

Rafał A. Bogaczewicz

Rezonansowa fluorescencja emitera kwantowego w ciele stałym z fluktuacjami energii przejścia

Rozprawa doktorska w dziedzinie nauk ścisłych i przyrodniczych
w dyscyplinie nauki fizyczne
ma formę cyklu publikacji naukowych

Promotor:

prof. dr hab. inż. Paweł Machnikowski
Instytut Fizyki Teoretycznej Politechniki Wrocławskiej

Wrocław (styczeń 2026)

Streszczenie

Niniejsza rozprawa doktorska składa się z cyklu trzech powiązanych tematycznie publikacji. Celem pracy jest teoretyczne zbadanie wpływu fluktuacji w półprzewodnikowym ciele stałym na widmo rezonansowej fluorescencji emitera osadzonego w materiale.

RF znalazła liczne zastosowania w badaniu właściwości emiterów na ciele stałym (w szczególności kropek kwantowych) oraz w generowaniu światła o pożądanych właściwościach dla informatyki kwantowej. W szczególności RF jest wykorzystywana w zminiaturyzowanych, scalonych kwantowych układach hybrydowych, w których modulowana akustycznie kropka kwantowa pełni rolę przetwornika między sygnałem akustycznym a optycznym. Niemniej jednak właściwości optyczne emitera – a co za tym idzie jego widmo RF – znajdują się pod niekorzystnym wpływem szumu otoczenia, który jest nieunikniony w układach ciała stałego. Zatem, aby tworzyć wysokiej jakości urządzenia kwantowe, niezbędne jest ilościowe zbadanie tych wpływów na emiter.

W pierwszej kolejności zamodelowano szum telegraficzny oraz biały, obliczając wynikające z nich zmiany w widmie RF oraz intensywności jego poszczególnych linii spektralnych. Następnie model szumu białego rozszerzono na przypadek emitera modulowanego przez powierzchniowe fale akustyczne, co odpowiada warunkom w kwantowych układach hybrydowych. Ilościowo wykazano, jak szum ogranicza efektywną akustyczną kontrolę rozpraszania światła na emiterze, a także zdefiniowano wymagania dotyczące stabilności sygnału akustycznego, niezbędne, aby jego właściwości pozostały możliwe do odczytania w widmie RF. Ostatecznie zamodelowano szum otoczenia jako fonony akustyczne. W tym przypadku w widmie RF odkryto profil Fano, którego istnienie zależy od temperatury otoczenia oraz siły sprzężenia fonon–emiter.

Podsumowując, w niniejszej pracy doktorskiej zamodelowano rozmaite rodzaje szumów, identyfikując charakterystyczne parametry, które mogą służyć do ilościowego opisu wpływu danego rodzaju fluktuacji na kształt widma RF. Otrzymane wyniki będą przydatne w diagnozowaniu rodzajów szumu wpływających na eksperymentalnie badane emiter-y półprzewodnikowe. W przypadku emitera modulowanego akustycznie, niniejsza rozprawa doktorska otwiera drogę do badań nad wpływem szumu na korelacje, w tym korelację drugiego rzędu, między konkretnymi pasmami widmowymi. Z kolei model emitera oddziałującego z fononami akustycznymi może zostać w przyszłości rozszerzony na inne rodzaje fononów, na przykład te występujące w materiałach dwuwymiarowych.

Abstract

This PhD thesis comprises a series of three thematically related publications. The aim of this work is to theoretically investigate the impact of fluctuations in a solid-state semiconductor on the resonance fluorescence (RF) spectrum of an emitter embedded within the material.

RF has found numerous applications in studying the properties of solid-state emitters (particularly quantum dots) and in generating light with desirable properties for quantum information science. Specifically, RF is used in miniaturized, on-chip quantum hybrid systems, in which an acoustically modulated quantum dot acts as a transducer between acoustic and optical signals. Nevertheless, the optical properties of the emitter, and consequently its RF spectrum, are adversely affected by environmental noise, which is inevitable in solid-state systems. Therefore, to develop high-quality quantum devices, it is necessary to quantitatively study these influences on the emitter.

Firstly, telegraph and white noise were modeled, and the resulting changes in the RF spectrum and the intensities of its individual spectral lines were calculated. Subsequently, the white noise model was extended to the situation of an emitter modulated by surface acoustic waves, as is the case in quantum hybrid systems. It has been quantitatively shown how noise limits the effective acoustic control of light scattering on the emitter, and the stability requirements for the acoustical signal to remain resolvable in the RF spectrum have also been defined. Finally, the environmental noise was modeled as acoustic phonons. In this case, a Fano profile was discovered in the RF spectrum, the existence of which depends on the ambient temperature and the strength of the phonon–emitter coupling.

In conclusion, in this PhD thesis, various types of noise have been modeled, identifying characteristic parameters that can be used to quantitatively describe the impact of a given type of fluctuation on the shape of the RF spectrum. The obtained results will be useful in diagnosing the types of noise affecting experimentally-tested semiconductor emitters. In the case of an acoustically modulated emitter, this dissertation paves the way for research on the impact of noise on correlations, including the second-order correlation, between specific spectral bands. In turn, the model of the emitter interacting with acoustic phonons can be extended in the future to other types of phonons, for instance, those occurring in two-dimensional materials.

Podziękowania

W pierwszej kolejności pragnę złożyć najszczerze wyrazy wdzięczności mojemu Promotorowi, który był dla mnie niezastąpionym Mentorem i Przewodnikiem w pracy naukowej. Dziękuję w szczególności za cierpliwość, życzliwość, profesjonalne wsparcie i inspirację do rozwoju intelektualnego, wraz z wprowadzeniem mnie w środowisko naukowe.

Dziękuję również serdecznie za wszelkie wsparcie mojej Rodzinie i Przyjaciołom.

Badania, których wynikiem jest niniejsza rozprawa doktorska, były możliwe dzięki finansowemu wsparciu udzielonemu przez:

1. Fundację Aleksandra von Humboldta (grant pt.: *Light-matter-sound interaction and quantum optomechanical control of nanosystems*).
2. Narodowe Centrum Nauki (grant Maestro o numerze 2023/50/A/ST3/00511 pt.: *Akustooptyka kwantowa nanoukładów hybrydowych*).

Spis treści

Streszczenie	i
Abstract	iii
Podziękowania	v
1 Wstęp	1
2 Oddziaływanie światła z emiterem	3
2.1 Struktura pasmowa półprzewodnika	3
2.2 Optyka półprzewodników	3
2.3 Emitery i układy dwupoziomowe	5
3 Oddziaływanie emitera z otoczeniem	7
3.1 Szum	7
3.1.1 Fonony	7
3.2 Modulacja akustyczna	8
4 Model układu	10
5 Widmo RF – podstawowe fakty	12
6 Ewolucja układu	15
6.1 Wirujący układ odniesienia	16
6.2 Przybliżenie wirującej fali	16
6.3 Polaronowy układ odniesienia	17
7 Kwantowa funkcja autokorelacji	19
8 Teoria fotodetekcji	21
8.1 Operator pola	21
8.2 Filtr	23
8.3 Detektor	23
8.4 Widmo RF	24
9 Najważniejsze wyniki doktoratu	25
9.1 Publikacja [P1]	25
9.2 Publikacja [P2]	26
9.3 Publikacja [P3]	26
10 Wnioski i plany na przyszłość	28
Publikacje tworzące rozprawę doktorską	29
Bibliografia	30

1 Wstęp

Niniejsza rozprawa doktorska pt.: *Rezonansowa fluorescencja emitera kwantowego w ciele stałym z fluktuacjami energii przejścia* jest pracą teoretyczną składającą się z cyklu trzech tematycznie powiązanych publikacji [P1]-[P3]. Opisują one półprzewodnikową, samorośną kropkę kwantową (w [P3] rozszerzono również zagadnienie na centrum defektowe) znajdującą się w ciele stałym, w którym występują fluktuacje. Szum otoczenia wpływa na rozpraszanie światła w materiale, a tym samym na widmo rezonansowej fluorescencji (RF) emitera. Celem rozprawy doktorskiej jest zbadanie i ilościowe opisanie tego wpływu. Tematyka publikacji [P1]-[P3] dotyczy zatem fizyki ciała stałego, optyki kwantowej, teorii układów otwartych oraz procesów stochastycznych.

RF [1, 2] jest rodzajem oddziaływania światła z materią intensywnie wykorzystywanego w badaniu rozmaitych typów układów [3–7]. Ponadto RF umożliwia tworzenie nieklasycznego światła o unikalnych właściwościach koherencji [8, 9] oraz generowanie rozgrupowanych [10] i nierozróżnialnych [11] fotonów, co czyni ją atrakcyjną dla informatyki kwantowej. Ostatnie dwie dekady rozwinęły zastosowania RF do charakterystyki właściwości emiterów w ciele stałym, takich jak pojedyncze molekuly [12], nadprzewodzące kubity [13, 14] czy półprzewodnikowe kropki kwantowe [11, 15, 16]. W przypadku tych ostatnich emiterów RF wykorzystywana jest m. in. do odczytywania stanów spinowych kropki kwantowej [17–19] (wraz z ich dynamiką [20, 21]), splątywania spinu z pojedynczym fotonem [16, 22] oraz generowania pojedynczych [23] czy nierozróżnialnych [11] fotonów.

Modulacja kwantowego emitera zwiększa kontrolę nad procesem rozpraszania światła [24–26]. Z drugiej strony, obserwacja RF z emitera sprzężonego z falowodem [27] pokazuje, że można konstruować źródła pojedynczych fotonów w zminiaturyzowanych układach. Szczególnym zastosowaniem, łączącym modulację kropki kwantowej i miniaturyzację urządzenia, są akustooptyczne kwantowe układy hybrydowe [28–31]. Emiter pełni tam funkcję przetwornika między sygnałem akustycznym i optycznym. Tym pierwszym są fale powierzchniowe modulujące emiter z częstotliwością rzędu GHz i mające długość nawet o 5 rzędów wielkości mniejszą niż dla fali świetlnej [29], co czyni je dobrymi kandydatami na nośnik informacji wewnątrz zminiaturyzowanego, półprzewodnikowego układu scalonego. Drugim sygnałem (służącym do przesyłu informacji na duże odległości) jest widmo RF, z którego kształtu da się odczytać właściwości fal akustycznych [30, 31]. Również tutaj światło jest rozgrupowane [30, 32], co wskazuje na fakt, że kropka kwantowa jest źródłem pojedynczych fotonów [23], które można zastosować do informatyki kwantowej [33]. Mieszając dwa precyzyjnie dobrane mody fal akustycznych, da się kontrolować właściwości rozproszonego fotonu, zarówno w dziedzinie częstotliwości [30], jak i czasu [31]. Opis teoretyczny fal akustycznych można rozszerzyć do poziomu kwantowego, traktując je jako fonony [34, 35], co otwiera perspektywę zaawansowanych zastosowań, takich jak kodowanie w dziedzinie czasu i częstotliwości [36, 37], kwantowa transdukcja akusto-optyczna [38], kwantowe multipleksowanie [39] czy odtwarzanie statystyki fononów na podstawie widma RF [35]. Niemniej jednak, istotnym ograniczeniem kropek kwantowych jest fakt, że zachowują one wspomniane atrakcyjne właściwości światła jedynie dla temperatur bliskich 0 K. Obiecującym rozwiązaniem tego problemu jest inna grupa emiterów, takich jak centra defektowe [40]. Przykładowo, pojedyncze defekty heksagonalnego azotku boru generują światło antyzgrupowane również w temperaturze pokojowej [41–43], a nawet znacznie wyższej (800 K) [44].

To, czy rozważany emiter będzie miał pożądane właściwości optyczne, zależy w dużej

mierze od jego odporności na fluktuacje otoczenia, które zaburzają poziomy energetyczne w układzie. W przypadku RF wiele prac zbadało wpływ fluktuacji amplitudy [45–47], częstości [45, 48, 49] i fazy [45, 48, 50–52] wiązki laserowej. Natomiast mniej uwagi poświęcono szumowi pochodzącemu z ciała stałego, który może być spowodowany fluktuacjami pochodzącymi od ładunku [53, 54], spinu [55] czy drgań sieci krystalicznej (fononów) [56, 57]. Te ostatnie były intensywnie badane, ale w kontekście widm fotoluminescencyjnych [58, 59], absorpcyjnych [60] oraz spektroskopii mieszania czterech fal [61]. Wpływ fononów na widmo RF zaprezentowano w [62], niemniej jednak praca dotyczy pobudzania laserem impulsowym, a w niniejszej rozprawie doktorskiej skupiono się na laserze o pracy ciągłej, który jest wykorzystywany w kwantowych układach hybrydowych [30, 31].

W publikacji [P1] opisano wpływ szumu telegraficznego i białego na kształt widma RF oraz intensywność poszczególnych linii widma. Wyniki dla szumu białego zostały wykorzystane do przypadku emitera modulowanego akustycznie [P2], gdzie określono maksymalne natężenie szumu, dla którego akustyczna kontrola rozpraszania światła jest jeszcze efektywna oraz podano warunek, jak długo sygnał akustyczny musi być stabilny, by można było odczytać jego właściwości z widma RF. Natomiast wpływ fononów na widmo RF zaprezentowano w [P3], gdzie odkryto profil Fano, którego istnienie zależy od temperatury otoczenia i siły sprzężenia fononów z emiterem.

Układ niniejszego opracowania, wprowadzającego w tematykę publikacji [P1] - [P3], jest następujący. W rozdziale 2 przywołano definicję półprzewodnika (z którego zbudowany jest emiter), opisano jego oddziaływanie ze światłem oraz omówiono rodzaje emiterów rozważanych w doktoracie. Ponadto zdefiniowano zjawisko RF przy omawianiu reguł wyboru dla półprzewodnikowego emitera. W rozdziale 3 zaprezentowano dwa podstawowe czynniki otoczenia uwzględnione w publikacjach [P1] - [P3], które wpływają na właściwości optyczne emitera. Są to fluktuacje otoczenia oraz modulacja akustyczna. Następnie przedstawiono model układu (rozdział 4). Podstawowe fakty na temat widma RF, wraz z wpływem modulacji akustycznej i fononów, zostały omówione w rozdziale 5. W kolejnej części opracowania znalazła się teoria niezbędna do wyznaczenia widma RF, tj. ewolucja układu wraz z układem odniesienia oraz przybliżeniami, w jakich jest liczona (rozdział 6), zastosowanie kwantowego twierdzenia Laxa o regresji do wyznaczenia funkcji autokorelacji z otrzymanej ewolucji układu (rozdział 7) oraz teoria fotodetekcji, łączącą funkcję autokorelacji z widmem RF (rozdział 8). Następnie zaprezentowano najważniejsze wyniki otrzymane w publikacjach [P1]-[P3] oraz wnioski z pracy doktorskiej (odpowiednio rozdziały 9 i 10). Ostatecznie podano szczegóły manuskryptów tworzących rozprawę, wraz z opisem wkładu autora rozprawy w każdą z tych prac.

2 Oddziaływanie światła z emitерem

2.1 Struktura pasmowa półprzewodnika

Półprzewodnik to jeden z najważniejszych rodzajów ciała stałego obok metali i izolatorów. Zgodnie z zasadami mechaniki kwantowej, elektrony w materiale mają ściśle określone poziomy energetyczne. Duża liczba takich poziomów o zbliżonych energiach tworzy pasmo, między którymi powstaje przerwa energetyczna [63]. Najistotniejsze jest pasmo walencyjne, dla którego elektrony są związane z jądrami atomowymi materiału oraz pasmo przewodnictwa, zawierające elektrony swobodnie przemieszczające się po ciele stałym, warunkujące właściwości elektryczne ciała stałego.

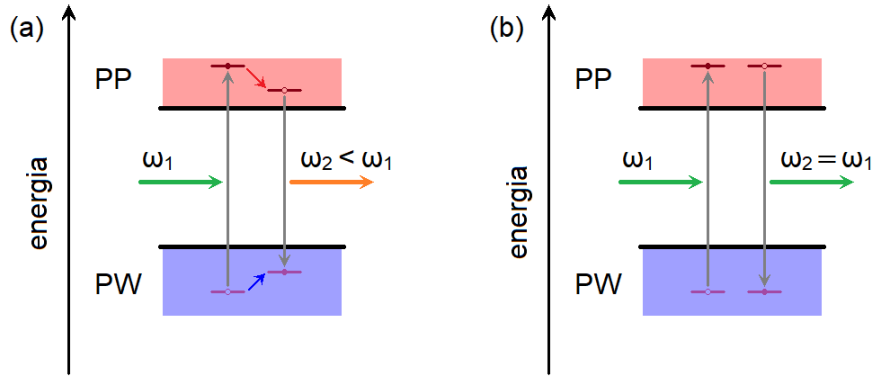
W temperaturze 0 K, półprzewodnikowe pasma walencyjne i przewodnictwa są odpowiednio w całości wypełnione i puste [63]. Wówczas układ znajduje się w stanie podstawowym, o najmniejszej możliwej energii. Niemniej jednak półprzewodnik, w odróżnieniu od izolatora, ma na tyle małą przerwę energetyczną [63], że elektrony mogą zostać łatwo wzbudzone do pasma przewodnictwa pod wpływem czynników zewnętrznych, takich jak np. temperatura, światło czy ciśnienie. Ponadto liczbę elektronów swobodnych (a tym samym ich właściwości elektryczne i optyczne) można precyzyjnie kontrolować za pomocą wspomnianych czynników zewnętrznych [64–66], co czyni te materiały atrakcyjnymi w rozmaitych dziedzinach techniki, m. in. informatyce, elektronice, energetyce czy automatyce.

2.2 Optyka półprzewodników

W przypadku oświetlenia półprzewodnika zachodzi wiele rozmaitych zjawisk. Niemniej jednak, w kontekście niniejszej rozprawy doktorskiej, szczegółowego omówienia wymaga sekwencja absorpcji i emisji oraz rozpraszanie światła.

Absorpcja pojedynczego fotonu może skutkować przekazaniem jego energii elektronowi z pasma walencyjnego, który przechodzi do innego poziomu w paśmie przewodnictwa. Aby to przejście elektronu miało miejsce, różnica energii między poziomami musi być równa energii zaabsorbowanego fotonu. Po wzbudzeniu elektronu do pasma przewodnictwa w paśmie walencyjnym tworzy się puste miejsce. Efekt jest taki, jakby pojawiła się tam dodatnio naładowana cząstka, zwana dziurą [67]. Wówczas powstaje para elektron-dziura oddziałujących ze sobą Coulombowsko nośników ładunku (tzw. ekscyton). Niemniej jednak po pewnym czasie ma miejsce rekombinacja, w wyniku której wzbudzony elektron przechodzi z powrotem do pasma walencyjnego, a tym samym następuje emisja spontaniczna fotonu i anihilacja tego ekscytonu. Wówczas materiał świeci z powodu uprzedniego oświetlenia, stąd zjawisko to nazywa się fotoluminescencją. Rekombinacja zachodzi po czasie życia ekscytonu t_e , zależnym nie tylko od rodzaju półprzewodnika, lecz także od czynników zewnętrznych, takich jak temperatura czy ciśnienie [68]. Ze względu na długość średniego t_e fotoluminescencję historycznie podzielono na fosforescencję, dla której $t_e > 10$ ns i fluorescencję (jest ona przedmiotem niniejszego doktoratu), dla której $t_e < 10$ ns.

W ogólności energie fotonu zaabsorbowanego ($\hbar\omega_1$) i wyemitowanego ($\hbar\omega_2$) przez półprzewodnik nie muszą być równe. W takiej sytuacji (rysunek 2.1a) elektron wzbudzony do pasma przewodnictwa zajmuje tam poziom o niekoniecznie najniższej możliwej energii. Następnie odbywa się proces relaksacji, w którym elektron przechodzi do niższego poziomu w ramach pasma przewodnictwa, oddając część swojej energii do półprzewodnika i generując drgania sieci krystalicznej (mechanizm powstawania fononów w półprzewodniku

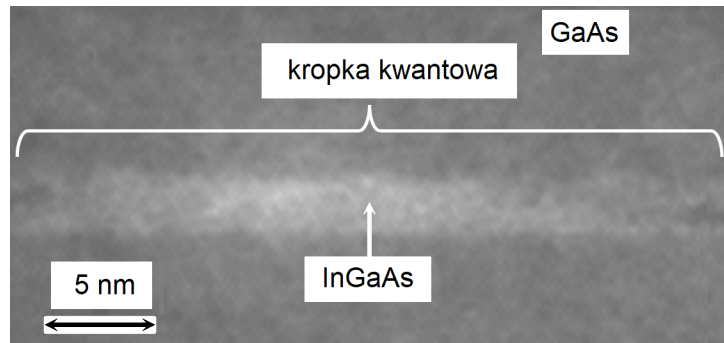


Rysunek 2.1: Półprzewodnik oddziałujący z fotonem o częstotliwości ω_1 . Pasma przewodnictwa i walencyjne oznaczono odpowiednio jako PP i PW. (a) Sytuacja, w której wzбудzony elektron podlega relaksacji (czerwona strzałka) do niższego poziomu. Analogiczny proces zachodzi dla dziury (niebieska strzałka). Wyemitowany foton ma wówczas częstotliwość $\omega_2 < \omega_1$. (b) Sytuacja, w której zaabsorbowany i wyemitowany foton mają identyczne częstotliwości.

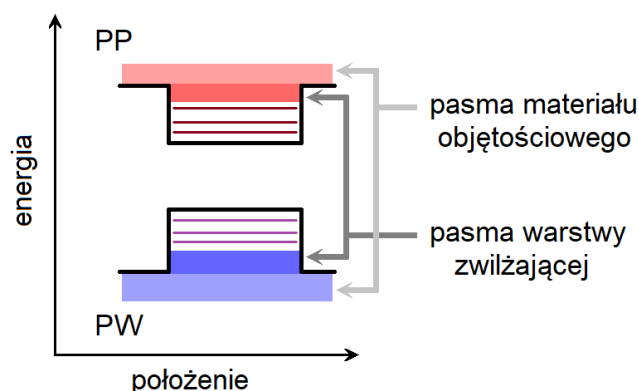
dominuje nad ich absorpcją w reżimie niskich temperatur [63, 69], który jest rozważany w tej rozprawie doktorskiej). Analogiczna sytuacja może mieć miejsce dla dziury w paśmie walencyjnym. Ostatecznie zachodzi rekombinacja ekscytanu, ale wyemitowany foton ma mniejszą częstotliwość niż zaabsorbowany. Może się jednak zdarzyć, że foton zaabsorbowany i wyemitowany będą miały identyczne energie (rysunek 2.1b). Oprócz emisji spontanicznej występuje jeszcze emisja wymuszona. Zachodzi ona pod wpływem fotonu o częstotliwości ω_2 , padającego na wzbudzony elektron. Wówczas wyemitowany foton ma identyczne właściwości i kierunek, co foton wymuszający emisję.

Kolejnym istotnym zjawiskiem towarzyszącym oddziaływaniu światła z materią jest jego rozpraszanie, które na potrzeby rozprawy doktorskiej można rozważyć przy pomocy falowej natury światła. W przeciwieństwie do sekwencji absorpcji i emisji, proces rozpraszania jest procesem natychmiastowym. Ponadto, częstotliwość fali świetlnej padającej na półprzewodnik nie musi odpowiadać różnicy w poziomach energetycznych materiału (w takiej sytuacji zjawisko rozpraszania w języku kwantowym wyjaśnia model stanów wirtualnych). Jeżeli częstotliwości fali rozproszonej i padającej są równe, to ma miejsce rozpraszanie elastyczne. Rozważana wówczas fala elektromagnetyczna, pobudzająca elektrony i jądra atomowe półprzewodnika do drgań w przeciwnych kierunkach, generuje dipole elektryczne, będące źródłem światła rozproszonego. Ponieważ rozmiar emitera jest znacznie mniejszy niż długość fali świetlnej (por. podrozdział 2.3), do opisu tego oddziaływania światła z materią stosuje się model rozpraszania Rayleigha. Światło rozproszone tutaj jest zawsze koherentne (jego właściwości są spójne ze światłem padającym), o ile rozważa się ten proces na pojedynczej cząsteczce. Jeżeli z kolei częstotliwości światła padającego i rozproszonego są różne, ma miejsce rozpraszanie nieelastyczne. Wówczas światło może, choć nie musi, być koherentne. W sytuacji emitera rozważanego w pracy doktorskiej źródłem rozpraszania nieelastycznego jest fakt oddziaływania szumu otoczenia na dipole elektryczne w materiale, co zmienia ich częstotliwość drgań [P1].

W zjawisku RF emitera pobudzanego intensywnym światłem laserowym dominuje mechanizm sekwencji absorpcji i emisji, natomiast dla słabego światła (jak w niniejszej rozprawie doktorskiej) dominuje proces jego rozpraszania.



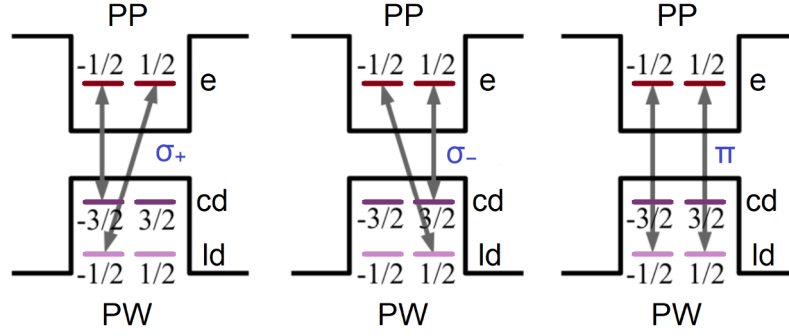
Rysunek 2.2: Obraz kropki kwantowej InGaAs/GaAs wykonany za pomocą skaningowej transmisyjnej mikroskopii elektronowej. Zdjęcie pochodzi z pracy [70] i zostało zaadaptowane na mocy licencji Creative Commons CC BY.



Rysunek 2.3: Struktura pasmowa kropki kwantowej, narysowana w oparciu o [71]. Pasmo przewodnictwa i walencyjne oznaczono tutaj odpowiednio jako PP i PW.

2.3 Emitery i układy dwupoziomowe

Popularnym półprzewodnikowym emiterym w ciele stałym są samorosnące kropki kwantowe [72], których rozmiary są rzędu kilkudziesięciu nanometrów [70, 71]. Można je wytworzyć, nanosząc (np. metodą epitaksji z wiązki molekularnej albo epitaksją z fazy gazowej z użyciem związków metaloorganicznych) na warstwę podłoża pewnego półprzewodnika (np. GaAs) inny materiał, którego przerwa wzbroniona nie wykracza (energetycznie) poza przerwę wzbronioną podłoża (dla GaAs jest to np. InGaAs). Po nałożeniu kilku warstw atomowych nowego półprzewodnika na skutek różnic w rozmiarach stałych sieciowych tych dwóch materiałów tworzą się naprężenia, co prowadzi do podziału nowonaniesionego materiału na warstwę zwilżającą (o jednoatomowej grubości, przylegającą do podłoża) i wykształcającą się na niej samorosnące kropki kwantowe, będące wyspami nowego półprzewodnika (rysunek 2.2, pochodzący z pracy [70]). Jest to tzw. mod wzrostu Stranskiego-Krastanowa. Na koniec na tak powstałe kropki kwantowe nakłada się materiał półprzewodnika stanowiącego podłoże. W obrębie samorosnącej kropki kwantowej na skutek różnicy w przerwie energetycznej materiału emitery i otoczenia tworzy się studnia potencjału, blokująca ruch elektronów i dziur we wszystkich trzech wymiarach. Wewnątrz studni potencjału poziomy energetyczne nośników ładunku są skwantowane, podobnie jak w atomie, natomiast stany energetyczne pochodzące od warstwy zwilżającej oraz otoczenia tworzą pasma (rysunek 2.3). Wówczas elektrony wewnątrz studni potencjału zachowują się podobnie jakby były związane z atomem, stąd kropka kwantowa, będąca strukturą



Rysunek 2.4: Dozwolone przejścia między pasmem walencyjnym (PW) i przewodnictwa (PP) dla polaryzacji prawoskrętnej (σ_+ , spin 1), lewoskrętnej (σ_- , spin -1) i liniowej (π , spin 0). Poziomy dla elektronów oraz dziur lekkich/ciężkich oznaczono literami odpowiednio e oraz ld/cd. Rysunek zaadaptowany z [75], za odpowiednim pozwoleniem.

kwazi-zerowymiarową, nazywana jest sztucznym atomem [72–74].

Nośniki ładunku w materiale oraz fotony posiadają orbitalny i spinowy moment pędu (spin). Struktura pasmowa w półprzewodnikowych kropkach kwantowych skutkuje rozszczepieniem poziomów dla dziur, dzieląc je na ciężkie i lekkie [75, 76]. Zatem foton, aby wzbudzić elektron z kropki kwantowej do poziomów pasma przewodnictwa, musi mieć nie tylko energię równą różnicy poziomów, lecz także zachować całkowity moment pędu układu foton-elektron. Dozwolone przejścia, wraz ze spinami, jakie przyjmują elektrony i dziury, są zdefiniowane przez tzw. reguły wyboru, przedstawione na rysunku 2.4, zaadaptowanym z [75]. Widać zatem, że ograniczenie możliwych przejść w kropce kwantowej do jednego (tj. zredukowanie emitera do układu dwupoziomowego) jest możliwe po użyciu światła monochromatycznego o ustalonej częstotliwości (np. lasera) i polaryzacji kołowej. Różnica energii między stanem podstawowym a wzbudzonym takiego emitera związana jest z tzw. częstością przejścia fundamentalnego. Dla półprzewodnikowych kropek kwantowych energia przejścia jest rzędu 0.1–1 eV, co odpowiada częstości przejścia fundamentalnego rzędu 10^2 – 10^3 THz, czyli światło pobudzające emiter musi być z zakresu bliskiej podczerwieni. Jeżeli częstość tego światła jest równa lub bardzo bliska tej częstości przejścia, ma miejsce zjawisko RF [1, 2]. Przykładowo, w pracach [P1] i [P2] różnice między częstością przejścia a częstością lasera pobudzającego emiter są rzędu GHz. Natomiast w pracy [P3] sięgają rzędu THz, aczkolwiek tutaj częstość przejścia jest przesunięta z powodu polaronów (por. podrozdział 6.3).

Z kolei przykładem centrów defektowych są wakancje (tj. puste przestrzenie w sieci krystalicznej zamiast atomu) oraz domieszki innego atomu niż materiał otoczenia. Wówczas w przerwie energetycznej ciała stałego tworzą się dodatkowe zlokalizowane poziomy energetyczne (zamiast skwantowanych poziomów wewnątrz studni potencjału), pułapujące elektrony z pasma przewodnictwa oraz dziury z pasma walencyjnego. Istnieje wiele sposobów na tworzenie tego typu emiterów. W przypadku wakancji można bombardować próbkę półprzewodnika wysokoenergetycznymi elektronami [77] lub jonami [78], bądź wygrzewać próbkę do bardzo wysokiej temperatury (przykładowo, dla heksagonalnego azotku boru jest to ponad 1100 K [43]). Jeśli z kolei chce się domieszkować półprzewodnik, można to uczynić np. za pomocą implantacji jonów [79].

3 Oddziaływanie emitera z otoczeniem

Na właściwości optyczne emitera znaczący wpływ ma jego interakcja z otoczeniem. Niniejszy doktorat skupia się na temacie występującego w każdym rzeczywistym ciecie stałym szumu, który zaburza energię przejścia emitera. Drugim czynnikiem jest modulacja akustyczna emitera przez fale powierzchniowe, rozchodzące się w sposób kontrolowany po podłożu [28–31].

3.1 Szum

Fluktuacje w półprzewodniku mają rozmaite przyczyny. Jedną z nich są defekty, tworzące dodatkowe poziomy w przerwie energetycznej, pułapujące elektrony z pasma przewodnictwa [53]. Wówczas tak złapany nośnik ładunku jest dodatkowym źródłem pola elektrycznego, które zmienia położenie poziomów energetycznych pobliskiego emitera, a tym samym jego energię przejścia fundamentalnego. Naprzemiennie ładująca się i rozładowująca pułapka ładunkowa przyczynia się zatem do szumu telegraficznego, dla którego częstość przejścia przełącza się między dwiema wartościami. Z kolei dużą liczbę pułapek ładunkowych, szybkoprzełączających się (w porównaniu z czasem życia ekscytonu), można modelować w przybliżeniu jako szum biały. Innym przykładem szumu są fluktuacje spinu, znajdującego się w atomie magnetycznej domieszki wewnątrz emitera [55]. Dzięki oddziaływaniu wymiennemu między spinem a ekscytonem w emiterze, energia pary elektron-dziura może przyjmować kilka dozwolonych wartości, pomiędzy którymi następuje przełączanie wraz z fluktuacjami spinu.

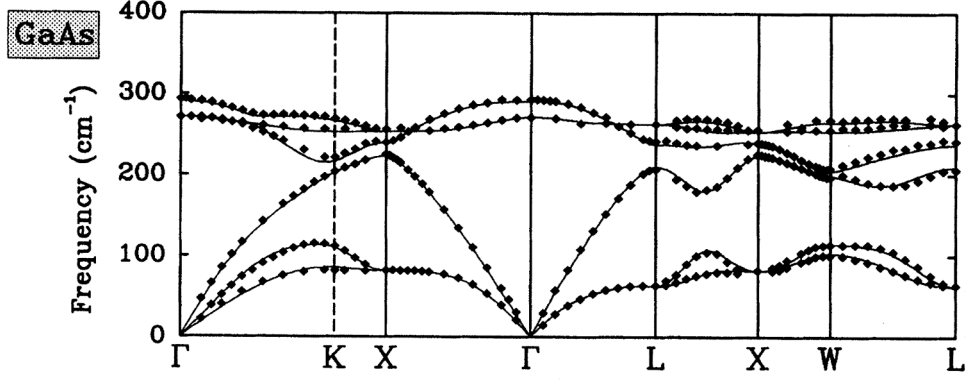
3.1.1 Fonony

Niezerowa temperatura powoduje drgania sieci krystalicznej podłoża zawierającego emiter. Kwanty tych wibracji (fonony), analogicznie do fotonu (kwantu fali elektromagnetycznej), mają zdefiniowany wektor falowy $\mathbf{k}$ [63] (wyznaczający kierunek rozchodzenia się tego zaburzenia w kryształach) oraz długość fali wynoszącą $2\pi/|\mathbf{k}|$.

Rozważmy trójwymiarowy kryształ (bulk) złożony z N komórek elementarnych, w których występuje po r atomów drgających wokół swoich położenia równowagi. Analizując układ równań ruchu dla każdej z cząstek, otrzymuje się $3r$ różnych rozwiązań dla poszczególnych modów fononów, których wektory falowe przyjmują N różnych wartości. Niezależnie od r , dla rozważanego kryształu zawsze wystąpi jeden mody fononów akustycznych podłużnych (gdzie atomy drgają w kierunku zgodnym z rozchodzeniem się zaburzenia) oraz dwa mody poprzeczne (kierunek drgań atomów jest prostopadły do propagacji zaburzenia w sieci krystalicznej) [63]. Te trzy mody opisują fale dźwiękowe rozchodzące się w ciecie stałym, stąd kwanty tych wibracji nazywają się fononami akustycznymi.

Ponadto, jeśli $r \geq 2$ (jak np. dla GaAs), to pojawi się $3(r - 1)$ modów dla fononów optycznych [63], z czego $r - 1$ to mody podłużne, a $2(r - 1)$ to mody poprzeczne. W przeciwieństwie do fononów akustycznych, gdzie wszystkie atomy wykonują drgania w tę samą stronę względem ich położenia równowagi, dla fononów optycznych różne atomy z tej samej bazy drgają w przeciwnych kierunkach [63].

Każdy z $3r$ modów fononów ma nieco inną zależność dyspersyjną, wiążącą częstość z wektorem falowym. Rysunek 3.1 przedstawia tę zależność dla GaAs. W tym przypadku $r = 2$, zatem występują tu po 3 gałęzie spektralne dla fononów akustycznych i optycznych. W przypadku tych pierwszych częstość fononów w pobliżu punktu Γ strefy Brillouina



Rysunek 3.1: Dyspersja energii poszczególnych modów fononów, na przykładzie GaAs, dla określonych $\mathbf{k}$ z I strefy Brillouina. Częstość 1 cm^{-1} odpowiada energii w przybliżeniu 0.125 meV . Wynik teoretyczny (linia ciągła) pochodzi z obliczeń *ab initio* przedstawionych w [80] i udostępnionych za stosownym pozwoleniem, natomiast wynik eksperymentalny (kropki) przedstawiono w [81].

(gdzie $\mathbf{k} \approx 0$) wynosi w przybliżeniu

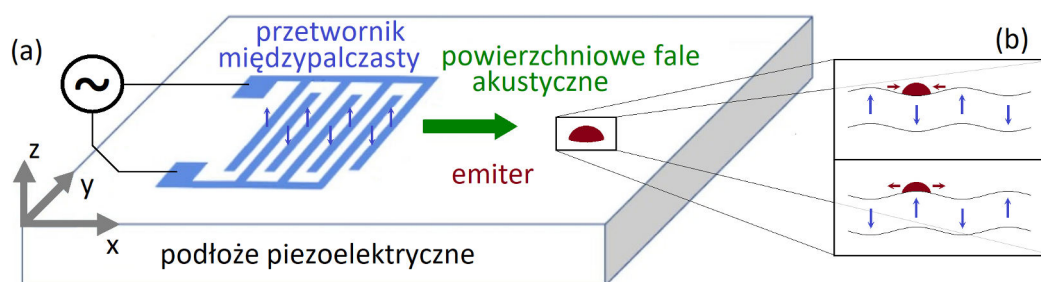
$$\omega_{\lambda,\mathbf{k}} \approx v_{\lambda}|\mathbf{k}|, \quad (3.1)$$

gdzie v_{λ} to prędkość rozchodzenia się w ciele stałym fali mechanicznej odpowiadającej fononowi akustycznemu z modu o gałęzi spektralnej λ . Z kolei fononom optycznym odpowiadają trzy gałęzie spektralne bliskie częstości około 300 cm^{-1} dla punktu Γ (rysunek 3.1).

Emiter na ciele stałym, rozważany w niniejszej pracy doktorskiej, znajduje się w reżimie niskich temperatur (tj. rzędu kilku kelwinów). Wówczas w otoczeniu emitera dominują fonony akustyczne i zakładamy, że tylko one oddziałują z emiterem, a ich częstości osiągają wartość rzędu THz [P3]. Istnieją dwa mechanizmy interakcji tych fononów z emiterem. Pierwszy z nich to sprzężenie potencjału deformacyjnego [71], polegające na tym, że atomy półprzewodnika, odchylone z położenia równowagi za sprawą fononów akustycznych, modyfikują strukturę energetyczną emitera, a tym samym jego częstość przejścia. Drugim mechanizmem jest sprzężenie piezoelektryczne [71], pochodzące od drgań akustycznych, generujących polaryzację materiału piezoelektrycznego (np. GaAs), co skutkuje powstaniem dodatkowego, długozasięgowego pola elektrycznego.

3.2 Modulacja akustyczna

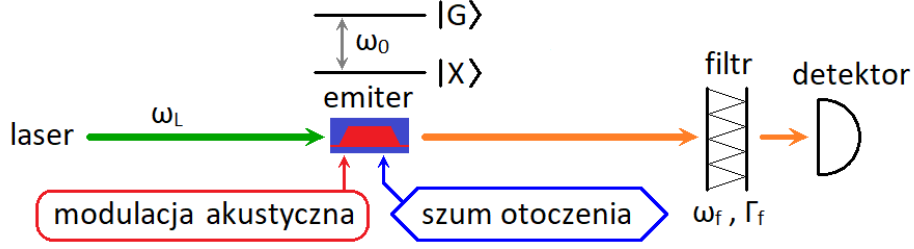
W przypadku modulacji akustycznej emitera podłoże jest pobudzane do drgań przez tzw. przetwornik międzypalczysty. Składa się on z metalowych elektrod naprzemiennie połączonych do jednej z dwóch szyn (rysunek 3.2), które są zasilane napięciem przemienicznym. Półprzewodniki tworzące kwantowy układ hybrydowy często należą do grupy III-V [30, 31]. Mają one zatem właściwości piezoelektryczne, stąd podłoże w obszarze elektrod wykonuje vibracje w kierunku osi OZ (niebieskie strzałki na rysunku 3.2) pod wpływem przyłożonego napięcia elektrycznego (jest to tzw. odwrotny efekt piezoelektryczny). Tak powstałe powierzchniowe fale akustyczne (o długościach rzędu μm , odpowiadających geometrii elektrod) rozchodzą się w kierunku osi OX (zielona strzałka na rysunku 3.2). Dla zwykłego przetwornika międzypalczystego vibracje rozchodzą się zarówno w dodatnim,



Rysunek 3.2: (a) Przetwornik międzypalczasty (niebieski) generuje vibracje podłoża piezoelektrycznego (niebieskie strzałki). Drgania rozchodzą się w kierunku zielonej strzałki. Rysunek układu na podstawie [82], zaadaptowany za stosownym pozwoleniem. (b) Drgania podłoża generują siły ściskające (góra) i rozciągające (dół) emiter.

jak i w ujemnym kierunku osi OX , niemniej jednak w celu zaoszczędzenia energii tworzy się tzw. jednofazowe przetworniki jednokierunkowe, aby wymusić tylko jeden kierunek rozchodzenia się tych fal.

Tak wygenerowane fale akustyczne tworzą naprężenie, które naprzemiennie ściska i rozciąga emiter znajdujący się na wibrującym podłożu (rysunek 3.2b), co skutkuje periodycznymi zmianami położenia poziomów energetycznych emitery, a tym samym jego energii przejścia. W kwantowych układach hybrydowych częstość fal akustycznych mieści się w przedziale od kilkuset MHz do kilku GHz [30].



Rysunek 4.1: Schemat układu emitera modulowanego akustycznie. Szum otoczenia wpływa na rozpraszane światło, które następnie przechodzi przez filtr, a na końcu dochodzi do detektora. W publikacjach [P1]-[P3] analizowane są różne wersje tego układu.

4 Model układu

W pracy doktorskiej opisano emiter słabo pobudzany przez laser o fali ciągłej i częstotliwości ω_L (rysunek 4.1). Światło to jest spolaryzowane kołowo, dzięki czemu emiter można rozważać jako układ dwupoziomowy (por. podrozdział 2.3) o stanach podstawowym $|G\rangle$ i wzbudzonym $|X\rangle$. Różnica energii między tymi stanami emitera wynosi $\hbar\omega_0$, gdzie ω_0 to częstość przejścia fundamentalnego (rysunek 4.1). Dla półprzewodnikowych emiterów, ω_0 jest rzędu $10^2 - 10^3$ THz, natomiast odstrojenie Δ , zdefiniowane jako

$$\Delta = \omega_L - \omega_0, \quad (4.1)$$

jest rzędu maksymalnie THz, a więc dużo mniejsze od ω_0 (por. podrozdział 2.3), spełniając tym samym warunek dla RF. Widma badane w rozprawie doktorskiej obejmują taki sam (lub maksymalnie o jeden rząd większy) zakres częstości wokół ω_L . Następnie światło rozproszone przechodzi przez filtr (może być to np. interferometr Fabry–Perota [30, 83]) o szerokości spektralnej Γ_f , ustawiony na częstość ω_f i ostatecznie jest wykrywany przez detektor, który odtwarza widmo RF.

Przyjmujemy, że energie stanu podstawowego i wzbudzonego wynoszą odpowiednio $E_G = 0$ i $E_X = \hbar\omega_0$, zatem hamiltonian emitera (zdefiniowany w przestrzeni Hilberta $\mathcal{H}_{\text{em}}$ rozpiętej na wektorach bazy $\{|G\rangle, |X\rangle\}$), ma postać

$$H_{\text{em}} = \hbar\omega_0 |X\rangle\langle X|. \quad (4.2)$$

Do opisu oddziaływania światła z emiterem pasuje przybliżenie dipolowe, ponieważ długość fali światła laserowego jest o kilka rzędów wielkości dłuższa niż wielkość emitera (por. podrozdział 2.3). Wówczas hamiltonian tego oddziaływania ma postać energii potencjalnej dipola elektrycznego, tj.

$$H_{\text{int}}(t) = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(t), \quad (4.3)$$

gdzie (hermitowski) operator $\mathbf{d}$ momentu dipolowego jest równy

$$\mathbf{d} = \mathbf{d}_{\text{GG}} |G\rangle\langle G| + \mathbf{d}_{\text{GX}} |G\rangle\langle X| + \mathbf{d}_{\text{XG}} |X\rangle\langle G| + \mathbf{d}_{\text{XX}} |X\rangle\langle X|, \quad (4.4)$$

natomiast wektor pola elektrycznego lasera $\mathbf{E}(t)$ to

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega_L t} + \mathbf{E}_0^* e^{i\omega_L t}. \quad (4.5)$$

Dla uproszczenia rozważań zakładamy symetrię sferyczną emitera, tj. $\mathbf{d}_{\text{GG}} = \mathbf{d}_{\text{XX}} = \mathbf{0}$.

Modulację akustyczną emitera (por. podrozdział 3.2) uwzględniamy, dodając periodyczny w czasie człon $\Delta\omega_{\text{ac}}(t)$ do częstości przejścia ω_0 [30, 31], którego amplituda jest rzędu GHz, a więc znacznie mniejsza od ω_0 . Hamiltonian modulacji (należący również do przestrzeni $\mathcal{H}_{\text{em}}$) ma zatem postać

$$H_{\text{ac}}(t) = \hbar\Delta\omega_{\text{ac}}(t) |X\rangle\langle X|. \quad (4.6)$$

W rozprawie doktorskiej uwzględniamy maksymalnie dwa mody fal akustycznych [P2]

$$\Delta\omega_{\text{ac}}(t) = A\omega_A \cos(\omega_A t) + B\omega_A \cos(2\omega_A t + \varphi), \quad (4.7)$$

gdzie A, B to bezwymiarowe parametry amplitud poszczególnych modów fal, a φ to faza między tymi modami.

Szum zaburzający częstość przejścia emitera (por. podrozdział 3.1) można modelować klasycznie, dodając do ω_0 losowo zmieniający się w czasie człon $\Delta_{\text{ns}}(t)$, tak jak w pracach [P1], [P2]. Wówczas hamiltonian fluktuacji również należy do przestrzeni $\mathcal{H}_{\text{em}}$ i ma postać

$$H_{\text{ns}}(t) = \hbar\Delta\omega_{\text{ns}}(t) |X\rangle\langle X|. \quad (4.8)$$

Z drugiej strony, szum da się zamodelować kwantowo jako fonony (por. podrozdział 3.1.1) i wówczas, konstruując hamiltonian szumu, trzeba rozszerzyć przestrzeń Hilberta układu o $\mathcal{H}_{\text{ph}}$. Ponieważ temperatura układu jest niska (por. podrozdział 3.1.1), energie fononów są dalece niewystarczające, aby wzbudzić elektron ze stanu $|G\rangle$ do $|X\rangle$. Wówczas fonony sprzęgają się z każdym z tych stanów niezależnie, tj. poprzez zmianę energii stanu wzbudzonego względem stanu podstawowego ($|G\rangle$ jest traktowany jako punkt odniesienia) i można zastosować model niezależnych bozonów [84, 85], w którym hamiltonian szumu jest równy

$$H_{\text{ns}}(t) = H_{\text{ph}} + \hbar |X\rangle\langle X| \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \left[g_{\lambda, \mathbf{k}} b_{\lambda, \mathbf{k}}^\dagger + g_{\lambda, \mathbf{k}}^* b_{\lambda, \mathbf{k}} \right], \quad (4.9)$$

gdzie

$$H_{\text{ph}} = \hbar \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \omega_{\lambda, \mathbf{k}} b_{\lambda, \mathbf{k}}^\dagger b_{\lambda, \mathbf{k}}. \quad (4.10)$$

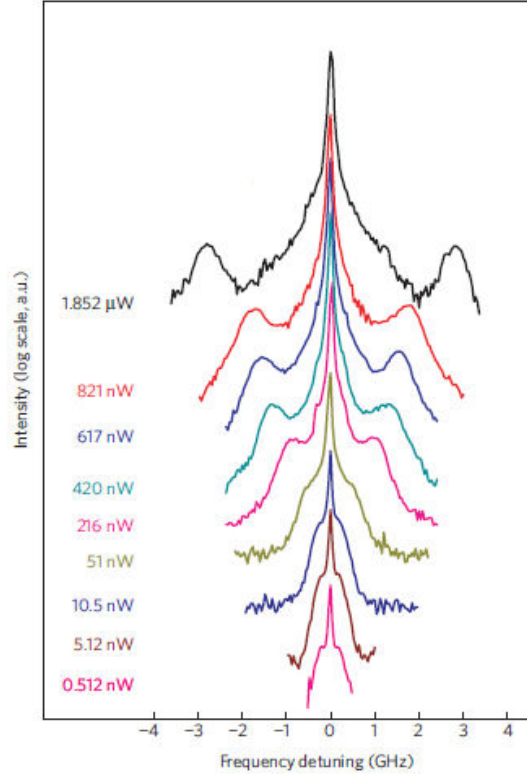
Operatory kreacji i anihilacji fononów akustycznych o wektorze falowym $\mathbf{k}$ z gałęzi spektralnej λ (por. podrozdział 3.1.1) oznaczone są odpowiednio jako $b_{\lambda, \mathbf{k}}^\dagger$ i $b_{\lambda, \mathbf{k}}$. Miarą sprzężenia fononu w danym modzie z emiterym jest współczynnik $g_{\lambda, \mathbf{k}}$, zależny m. in. od rozmiaru emitera oraz prędkości fononu w półprzewodniku. Po zdefiniowaniu gęstości spektralnej

$$J(\omega) = \sum_{\lambda, \mathbf{k}} |g_{\lambda, \mathbf{k}}|^2 \delta(\omega - \omega_{\lambda, \mathbf{k}}), \quad (4.11)$$

można wprowadzić współczynnik Huanga-Rhysa [84]

$$F_{\text{HR}} = \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2}, \quad (4.12)$$

będący parametrem określającym siłę sprzężenia całego rezerwuaru fononowego z emiterym.

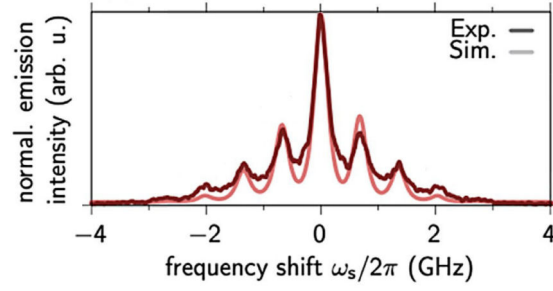


Rysunek 5.1: Widmo RF (w skali logarytmicznej) otrzymane eksperymentalnie dla różnych mocy lasera pobudzającego rezonansowo kropkę kwantową z InAs. Częstość na osi OX jest podana względem lasera. Wynik pochodzi z pracy [19] i został pokazany za stosownym pozwoleniem.

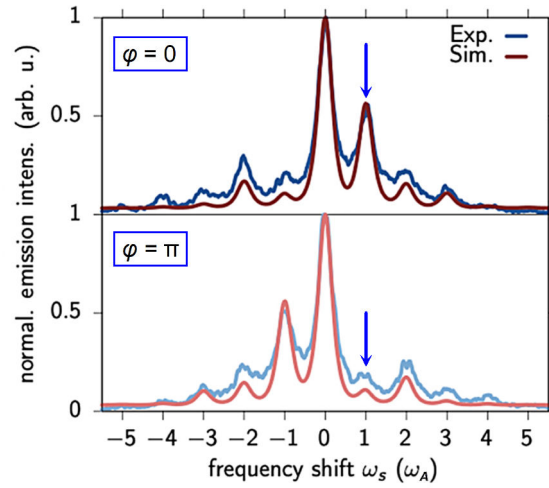
5 Widmo RF – podstawowe fakty

Jeżeli emiter zostanie słabo pobudzony rezonansowo (lub prawie rezonansowo) laserem, dojdzie do rozpraszania elastycznego światła. Widmo RF dla tego emitera zawiera wówczas linię centralną, zlokalizowaną w częstości lasera [1], a nie fundamentalnego przejścia (jak ma to miejsce dla standardowej fotoluminescencji). Ponadto, dla RF linia centralna jest nieposzerzona (poza wkładem od szerokości spektralnej filtra kolekcjonującego sygnał optyczny), a w przypadku fotoluminescencji (gdzie dominuje proces absorpcji i emisji światła nad rozpraszaniem, por. rozdział 2.2) szerokość połówkowa linii centralnej jest odwrotnie proporcjonalna do czasu życia ekscytonu w emiterze.

W przypadku silnego, rezonansowego pobudzania laserem, w widmie RF pojawia się jeszcze kolejna, poszerzona linia centralna (ma to związek z dominacją mechanizmu emisji i absorpcji fotonu nad rozpraszaniem światła, por. rozdział 2.2) oraz dwie linie boczne, zlokalizowane symetrycznie względem częstości lasera, tworząc tzw. tryplet Mollowa [86]. Wyniki teoretyczne z [86] odtworzono w eksperymencie dla kropki kwantowej z InAs [19], gdzie pobudzano ją światłem o różnej intensywności (rysunek 5.1). Ostry pik widoczny dla słabych mocy jest wspomnianą nieposzerzoną linią centralną, pochodzącą z elastycznego rozpraszania światła. Dla lasera o mocy $P \geq 216$ nW w widmie zaczynają się pojawiać pasma boczne. Zgodnie z przewidywaniami teoretycznymi [1, 86], im większa moc lasera pobudzającego, tym linie boczne są położone dalej od siebie. Oprócz [86], reżim silnego pobudzania był intensywnie badany w licznych pracach [3, 45–47, 52, 87–95]. Z drugiej



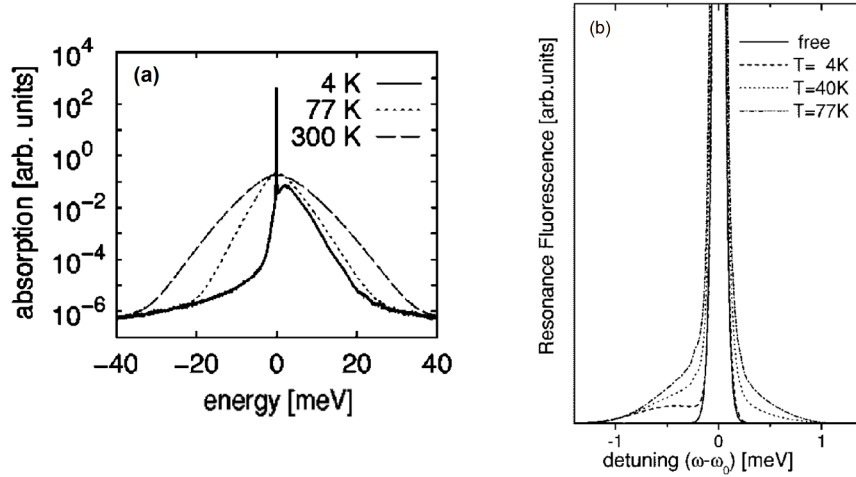
Rysunek 5.2: Uśrednione po czasie i znormalizowane widmo RF dla akustycznie modulowanej (pojedynczym modem) kropki kwantowej z In(Ga)As pobudzonej rezonansowo. Wynik pochodzi z pracy [30]. Częstość na osi poziomej liczona jest względem lasera. Wyniki teoretyczne pokrywają się z eksperymentem. Rysunek został zaadaptowany na podstawie licencji OSA Open Access.



Rysunek 5.3: Uśrednione po czasie i znormalizowane widmo RF dla kropki kwantowej z In(Ga)As, pobudzonej rezonansowo, w przypadku mieszania fal akustycznych, dla różnych faz (zaznaczonych na niebiesko) między modami. Częstość na osi OX została podana względem lasera. Wynik pochodzi z pracy [30] i został zaadaptowany na podstawie licencji OSA Open Access.

strony, mniej pozycji uwzględnia przypadek niskiej intensywności lasera [3, 49, 96–99], co uzasadnia podjęcie pracy doktorskiej w reżimie słabego pobudzania emitery, tym bardziej że występuje on w kwantowych układach hybrydowych [30, 31].

W przypadku modulacji akustycznej słabo pobudzanego emitery linia centralna w widmie RF zostanie powielona o całkowite wielokrotności częstości modulacji względem częstości lasera [30, 32, 100] (rysunek 5.2). Aby dało się rozróżnić poszczególne linie widma (jest to istotne w kwantowych układach hybrydowych), szerokość widmowa filtra musi być wyraźnie mniejsza od częstości modulacji. Wówczas ma miejsce tzw. reżim rozdzielonych pasm bocznych. Pokazano, że fotony rozpraszane na akustycznie modulowanej kropce kwantowej są rozgrupowane [30, 32], co pozwala interpretować intensywności poszczególnych linii widma jako prawdopodobieństwo rozproszenia pojedynczego fotonu z kropki kwantowej do wybranego kanału częstości, odpowiadającego tej linii. Prawdopodobieństwa te ewoluują periodycznie w czasie z okresem powierzchniowych fal akustycznych [31].



Rysunek 5.4: (a) Widmo absorpcyjne i (b) RF dla kropki kwantowej z GaAs pobudzanej rezonansowo impulsem laserowym. W obu sytuacjach widać wąską linię centralną (odpowiadającą rozpraszaniu elastycznemu) i szerokie fononowe pasmo boczne. Rysunki (a) i (b) pochodzą odpowiednio z [60] i [62] oraz zostały przedstawione za stosownym pozwoleniem.

Gdy dodatkowo wygeneruje się drugi mod fal akustycznych, o częstotliwości różnej od pierwszego modu i o ustalonej fazie między nimi, będzie miało miejsce zjawisko tzw. mieszania fal akustycznych. Regulując fazę między modami fal modulujących emiter, można precyzyjnie kontrolować (uśrednione w czasie) intensywności poszczególnych linii widma (niebieskie strzałki na rysunku 5.3). Innymi słowy, mierząc sygnał optyczny (liczbę fotonów o ustalonej częstotliwości padających na detektor), można odczytać informację o fazie między modami [30]. Zjawisko to nosi nazwę akustycznej kontroli rozpraszania fotonów.

Fonony oddziałujące z emiterem w ciele stałym przyczyniają się do powstania pasma bocznego w wielu widmach optycznych, jak np. fotoluminescencji [58, 59] czy spektroskopii mieszania czterech fal [61]. Tzw. fononowe pasmo boczne (jego szerokość odpowiada częstotliwości rzędu THz, tj. o kilka rzędów wielkości więcej niż dla linii centralnej) widać również dla widma absorpcyjnego [60] (rysunek 5.4a), będącego odbiciem widma RF (rysunek 5.4b) względem częstotliwości rezonansowej. Tę zależność widać szczególnie dla niskich temperatur, gdyż wtedy w półprzewodniku dominuje emisja fononów nad ich absorpcją (por. podrozdział 2.2). Wówczas w przypadku pochłaniania fotonów przez układ najczęściej oddają one energię nie tylko na wzbudzenie elektronu, lecz także na wygenerowanie fononu (stąd na rysunku 5.4a pasmo boczne leży po prawej stronie energii przejścia). Z kolei dla widma emisji z rysunku 5.4b pasmo fononowe leży po lewej stronie, ponieważ podczas deekscytacji elektronu część jego energii zostaje najczęściej oddana otoczeniu jako fonony, a tym samym wyemitowany foton ma mniejszą częstotliwość. W miarę wzrostu temperatury intensywność emisji i absorpcji fononów się wyrównuje, stąd obydwa widma z rysunku 5.4 stają się symetryczne. Podsumowując, kształt tego szerokiego pasma silnie zależy od temperatury.

6 Ewolucja układu

Oznaczmy układ jako S. Wówczas jego hamiltonian ma postać

$$H_S(t) = H_{\text{em}} + H_{\text{ac}}(t) + H_{\text{ns}}(t) + H_{\text{int}}(t). \quad (6.1)$$

Należy podkreślić, że układem jest tutaj emiter (w przypadku szumu klasycznego) oraz fonony, jeżeli bierze się pod uwagę szum kwantowy. Układ S jest w ogólności otwarty na otoczenie E, którym jest próżnia elektromagnetyczna (jej przestrzeń Hilberta to $\mathcal{H}_E$). Po zdefiniowaniu $H_S(t)$ należy wyznaczyć ewolucję tego układu. Wówczas hamiltonian całości jest równy

$$H_{\text{tot}}(t) = H_S(t) + H_E(t) + H_{SE}(t), \quad (6.2)$$

gdzie $H_E(t)$ to hamiltonian otoczenia, natomiast $H_{SE}(t)$ to hamiltonian oddziaływania otoczenie-układ [101].

Macierz gęstości całości, $\rho_{\text{tot}}(t)$, ewoluuje według równania Liouville'a–von Neumanna

$$i\hbar \frac{d\rho_{\text{tot}}(t)}{dt} = [H_{\text{tot}}(t), \rho_{\text{tot}}(t)]. \quad (6.3)$$

Dla tak zadanej ewolucji, od chwili t_i do t_f , otrzymujemy

$$\rho_{\text{tot}}(t_f) = U(t_f, t_i) \rho_{\text{tot}}(t_i) U^\dagger(t_f, t_i), \quad (6.4)$$

gdzie

$$U(t_f, t_i) = T_{\rightarrow} \exp \left(-\frac{i}{\hbar} \int_{t_i}^{t_f} ds H_{\text{tot}}(s) \right). \quad (6.5)$$

Symbol $T_{\rightarrow}$ ($T_{\leftarrow}$) oznacza uporządkowanie czasowe hamiltonianów z kolejnych rzędów rozwinięcia eksponenty z (6.5) w kolejności malejących (rosnących) argumentów czasu, idąc od lewej do prawej strony.

Z rozwiązania $\rho_{\text{tot}}(t)$ interesuje nas tylko macierz gęstości układu

$$\rho_S(t) = \text{Tr}_E \rho_{\text{tot}}(t), \quad (6.6)$$

gdzie ślad Tr_E przebiega po stanach z przestrzeni otoczenia. W ogólności wyznaczenie $\rho_{\text{tot}}(t_f)$ jest bardzo trudne, stąd przyjmujemy, że oddziaływanie otoczenia z układem jest słabe (tzw. przybliżenie Borna). Dzięki temu można założyć, że stan początkowy (dobrze znany) jest separowalny, tj. $\rho_{\text{tot}}(t_i) = \rho_S(t_i) \otimes \rho_E(t_i)$, gdzie $\rho_E(t)$ to macierz gęstości otoczenia. Ponadto zakładamy, że otoczenie jest znacznie większe od układu, stąd wraca ono do swojego stanu równowagi bardzo szybko w porównaniu z dynamiką $\rho_S(t)$ [101], która wówczas nie zależy od swoich stanów przeszłych. Jest to treść tzw. przybliżenia Markowa. Wówczas można napisać, że dla każdej chwili czasu macierz gęstości ma postać

$$\rho_{\text{tot}}(t) = \rho_S(t) \otimes \rho_E. \quad (6.7)$$

Trzecim istotnym założeniem jest tzw. przybliżenie wiekowe, polegające na pominięciu wyrazów $\rho_S(t)$ oscylujących znacznie szybciej niż dynamika układu. Pozwoli ono na zachowanie dodatniej określoności macierzy gęstości układu S. Wówczas, równanie ewolucji dla $\rho_S(t)$ ma postać [101]

$$\frac{d\rho_S(t)}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [H_S(t), \rho_S(t)] + L^{(\text{se})}[\rho_S(t)], \quad (6.8)$$

gdzie $L^{(se)}$ to tzw. dyssypator Lindblada, uwzględniający emisję spontaniczną w ewolucji układu. Dla dowolnego operatora O_S z tej samej przestrzeni co $\rho_S(t)$, dyssypator Lindblada jest równy

$$L^{(se)}[O_S(t)] = \gamma \left(|G\rangle\langle X| O_S(t) |X\rangle\langle G| - \frac{1}{2} \{ |X\rangle\langle X|, O_S(t) \} \right), \quad (6.9)$$

gdzie $\gamma = 1/t_e$ to współczynnik zaniku ekscytonu, a $\{A, B\} = AB + BA$.

Ponieważ rozważamy reżim słabego pobudzania emitery, prawą stronę równania (6.8) można podzielić na dwa człony, oznaczające ewolucję swobodną układu i optyczne wzburzenie, traktowane jako zaburzenie. Są one równe odpowiednio

$$L_0 [O_S(t)] = -\frac{i}{\hbar} [H_{em} + H_{ac}(t) + H_{ns}(t), O_S(t)] + L^{(se)}[O_S(t)], \quad (6.10a)$$

$$L_1 [O_S(t)] = -\frac{i}{\hbar} [H_{int}(t), O_S(t)]. \quad (6.10b)$$

Po zapisaniu macierzy gęstości w bazie stanów emitery,

$$\rho_S(t) = \rho_{S,GG}(t) |G\rangle\langle G| + \rho_{S,GX}(t) |G\rangle\langle X| + \rho_{S,XG}(t) |X\rangle\langle G| + \rho_{S,XX}(t) |X\rangle\langle X|, \quad (6.11)$$

równanie (6.8) zamieni się w układ czterech równań dla każdej z części macierzy $\rho_S(t)$.

6.1 Wirujący układ odniesienia

Po wyznaczeniu $\rho_{S,GX}(t)$ i $\rho_{S,XG}(t)$ widać, że największy wkład do zależności czasowej wnosi tam nieistotny fizycznie i komplikujący obliczenia człon z $\hbar\omega_0$. Chcąc się go pozbyć, trzeba przejść w rachunkach równania (6.8) do wirującego (W) układu odniesienia. Wówczas macierz gęstości transformuje się według

$$\rho_S^{(W)}(t) = W(t)\rho_S(t)W^\dagger(t) \quad (6.12)$$

dla

$$W(t) = e^{i|X\rangle\langle X|\omega_L t} = |G\rangle\langle G| + |X\rangle\langle X| e^{i\omega_L t}. \quad (6.13)$$

Oczywiście, równanie ewolucji (6.8) musi być takie samo w obu układach odniesienia, zatem w hamiltonianie emitery trzeba jeszcze odjąć człon $\hbar\omega_L |X\rangle\langle X|$. Wówczas

$$H_{em}^{(W)}(t) = W(t)H_{em}W^\dagger(t) - \hbar\omega_L |X\rangle\langle X| = -\hbar\Delta |X\rangle\langle X|. \quad (6.14)$$

6.2 Przybliżenie wirującej fali

O ile $H_{em}^{(W)}(t)$ wyraża się przez (6.14), $H_{ac}^{(W)}(t) = H_{ac}(t)$ i, niezależnie od tego, czy szum rozważany jest jako klasyczny czy kwantowy, $H_{ns}^{(W)}(t) = H_{ns}(t)$. Z kolei hamiltonian interakcji światła z emitery (o symetrii sferycznej), po skorzystaniu z równań (4.3)-(4.5) i zastosowaniu (6.12), ma w wirującym układzie odniesienia postać

$$H_{int}^{(W)}(t) = -\mathbf{d}_{GX} \cdot (\mathbf{E}_0 e^{-2i\omega_L t} + \mathbf{E}_0^*) |G\rangle\langle X| - \mathbf{d}_{XG} \cdot (\mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_0^* e^{2i\omega_L t}) |X\rangle\langle G|.$$

Tytułowe przybliżenie polega na założeniu, że $\rho_S^{(W)}(t)$ ewoluuje znacznie wolniej niż $\mathbf{E}(t)$. Przyjmuje się zatem, że $\exp(\pm 2i\omega_L t) \approx 0$. Po zdefiniowaniu częstości Rabiego Ω poprzez równanie $\mathbf{d}_{GX} \cdot \mathbf{E}_0^* = \mathbf{d}_{XG} \cdot \mathbf{E}_0 = \hbar\Omega/2$, mamy wówczas, że

$$H_{int}^{(W)}(t) = -\frac{\hbar\Omega}{2} (|G\rangle\langle X| + |X\rangle\langle G|). \quad (6.15)$$

W reżimie słabego pobudzenia hamiltonian optycznego wzbudzenia $H_{\text{int}}^{(W)}(t)$ jest zaburzeniem ewolucji układu, zatem $\rho_S^{(W)}(t)$, wraz z poszczególnymi jej elementami (por. równanie (6.11)), można rozłożyć w szereg względem Ω ,

$$\rho_S^{(W)}(t) = \rho_S^{(0,W)}(t) + \Omega \rho_S^{(1,W)}(t) + \Omega^2 \rho_S^{(2,W)}(t), \quad (6.16)$$

i tym samym wyznaczyć ewolucję macierzy gęstości z dokładnością do Ω^2 .

6.3 Polaronowy układ odniesienia

W przypadku modelu emitery oddziałującego z fononami akustycznymi, interakcja ta odbywa się poprzez mechanizm sprzężenia piezoelektrycznego oraz sprzężenia przez potencjał deformacyjny (por. rozdział 3.1.1). Wówczas nośnik ładunku jest otoczony przez chmurę fononów akustycznych (przemieszczającą się razem z tym nośnikiem) i tak powstały układ wygodnie jest opisać jako pojedynczą fermionową kwaziczastkę, zwaną polaronem akustycznym. Pozwala to na diagonalizację w przestrzeni $\mathcal{H}_{\text{ph}}$ hamiltonianu szumu, a tym samym ułatwia znalezienie ewolucji.

Transformację (unitarną) do polaronowego układu odniesienia dla dowolnego $O_S(t)$ opisuje wzór [85]

$$O_S^{(P)}(t) = T_P O_S(t) T_P^\dagger, \quad (6.17)$$

gdzie

$$T_P = |G\rangle\langle G| + |X\rangle\langle X| D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}. \quad (6.18)$$

Operator przesunięcia (Weyla), $D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}$, jest zdefiniowany jako

$$D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} = \exp \sum_{\lambda,\mathbf{k}} \left(\frac{g_{\lambda,\mathbf{k}}}{\omega_{\lambda,\mathbf{k}}} b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger - \frac{g_{\lambda,\mathbf{k}}^*}{\omega_{\lambda,\mathbf{k}}} b_{\lambda,\mathbf{k}} \right). \quad (6.19)$$

Aby obliczyć $H_{\text{ns}}^{(P,W)}(t)$, korzystamy z faktu, że $H_{\text{ns}}^{(W)}(t) = H_{\text{ns}}(t)$ i wówczas stosujemy równanie (6.17) do hamiltonianu szumu z (4.9), otrzymując

$$\begin{aligned} H_{\text{ns}}^{(P,W)}(t) = & |G\rangle\langle G| H_{\text{ph}} + \hbar |X\rangle\langle X| \sum_{\lambda,\mathbf{k}} \omega_{\lambda,\mathbf{k}} D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger b_{\lambda,\mathbf{k}} D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} \\ & + \hbar |X\rangle\langle X| \sum_{\lambda,\mathbf{k}} \left[g_{\lambda,\mathbf{k}} D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} + g_{\lambda,\mathbf{k}}^* D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} b_{\lambda,\mathbf{k}} D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} \right]. \end{aligned}$$

Następnie, używając reguł komutacji dla bozonowych operatorów kreacji i anihilacji, dostajemy

$$D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} b_{\lambda,\mathbf{k}} D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} = b_{\lambda,\mathbf{k}} - g_{\lambda,\mathbf{k}}/\omega_{\lambda,\mathbf{k}}, \quad (6.20a)$$

$$D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} = b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger - g_{\lambda,\mathbf{k}}^*/\omega_{\lambda,\mathbf{k}}, \quad (6.20b)$$

co po skorzystaniu z faktu, że $D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} = 1$ prowadzi do równania

$$H_{\text{ns}}^{(P,W)}(t) = H_{\text{ph}} - \hbar \Delta_P |X\rangle\langle X|, \quad (6.21)$$

gdzie Δ_P to tzw. przesunięcie polaronowe

$$\Delta_P = \sum_{\lambda,\mathbf{k}} |g_{\lambda,\mathbf{k}}|^2 / \omega_{\lambda,\mathbf{k}}. \quad (6.22)$$

Z równania (6.21) widać, że energia przejścia emitera zostaje zmieniona o $\hbar\Delta_P$. Ma to związek z energią wiązania polaronu. Przesunięcie energii przejścia emitera można interpretować jako skutek zmiany stałej sieciowej półprzewodnika w pobliżu emitera. Wówczas odstrojenie Δ' jest określone względem przesuniętej częstości przejścia, tj.

$$\Delta' = \omega_L - \omega_0 + \Delta_P. \quad (6.23)$$

7 Kwantowa funkcja autokorelacji

Dysponując wyznaczoną ewolucją układu, następnym etapem niezbędnym do otrzymania widma RF jest znalezienie kwantowej funkcji autokorelacji, równej

$$G(t, t + \tau) = \langle \sigma_+(t) \sigma_-(t + \tau) \rangle = \text{Tr}_{\text{tot}} (\sigma_+(t) \sigma_-(t + \tau) \tilde{\rho}_{\text{tot}}). \quad (7.1)$$

Ślad z (7.1), $\text{Tr}_{\text{tot}} = \text{Tr}_S \text{Tr}_E$, przebiega po wszystkich stanach układu S i otoczenia E. Dotychczas rozważania były prowadzone w obrazie Schrödingera, gdzie operatory są stałe w czasie, natomiast macierz gęstości ewoluuje zgodnie z (6.4). Z kolei wielkości w (7.1) zapisane są w obrazie Heisenberga, gdzie macierz gęstości całości (oznaczona symbolem $\sim$, dla odróżnienia od $\rho_{\text{tot}}(t)$ z rozdziału 6) jest stała, a ewolucja czasowa została przeniesiona do operatorów.

Dla dowolnego operatora A_{tot} (z tej samej przestrzeni co $\rho_{\text{tot}}(t)$), zdefiniowanego w obrazie Schrödingera, przejście do obrazu Heisenberga opisuje wzór

$$A_{\text{tot}}^{(\text{H})}(t) = U^\dagger(t, t_i) A_{\text{tot}} U(t, t_i) \quad (7.2)$$

dla początkowej chwili ewolucji t_i . Z kolei macierz gęstości całości (niezmieniająca się w obrazie Heisenberga) jest równa $\tilde{\rho}_{\text{tot}} = \rho_{\text{tot}}(t_i)$. Operatory z (7.1) można zapisać jako

$$\sigma_+(t) = U^\dagger(t, t_i) (\sigma_+ \otimes \mathbb{I}_E) U(t, t_i), \quad (7.3a)$$

$$\sigma_-(t + \tau) = U^\dagger(t + \tau, t_i) (\sigma_- \otimes \mathbb{I}_E) U(t + \tau, t_i), \quad (7.3b)$$

gdzie $\sigma_+ = \sigma_-^\dagger = |X\rangle\langle G|$, natomiast $\mathbb{I}_E$ to operator identycznościowy w przestrzeni otoczenia. Po skorzystaniu z addytywności operatora ewolucji, tj.

$$U(t_3, t_2) U(t_2, t_1) = U(t_3, t_1), \quad (7.4)$$

otrzymujemy, że funkcja autokorelacji jest równa

$$G(t, t + \tau) = \text{Tr}_S \text{Tr}_E (U^\dagger(t, t_i) [\sigma_+ \otimes \mathbb{I}_E] U^\dagger(t + \tau, t) [\sigma_- \otimes \mathbb{I}_E] U(t + \tau, t_i) \rho_{\text{tot}}(t_i)),$$

a po wykorzystaniu cykliczności śladu, addytywności $U(t + \tau, t_i)$ i wzoru (6.4) mamy

$$G(t, t + \tau) = \text{Tr}_S \text{Tr}_E ([\sigma_- \otimes \mathbb{I}_E] U(t + \tau, t) \rho_{\text{tot}}(t) [\sigma_+ \otimes \mathbb{I}_E] U^\dagger(t + \tau, t)). \quad (7.5)$$

Równanie (7.5) pokazuje, że wyznaczenie autokorelacji składa się z dwóch etapów:

I) ewolucji macierzy gęstości ρ_{tot} od chwili początkowej t_i do t ,

II) ewolucji operatora $\rho_{\text{tot}}(t) [\sigma_+ \otimes \mathbb{I}_E]$, od chwili t do $t + \tau$, identycznej jak dla ρ_{tot} .

Oczywiście, interesujące tutaj są wyniki tylko z obrębu przestrzeni Hilberta układu S, zatem wprowadza się superoperator $\mathcal{L}_{t_f, t_i}[O_S(t_i)]$ zwracający, w chwili t_f , wynik ewolucji (zaczynającej się w t_i) dla operatora O_S (z przestrzeni układu S), przebiegającej według (6.8). Wówczas można napisać, że

$$\mathcal{L}_{t_f, t_i}[O_S(t_i)] \otimes \rho_E = U(t_f, t_i) [O_S(t_i) \otimes \rho_E] U^\dagger(t_f, t_i). \quad (7.6)$$

Po skorzystaniu z nowo wprowadzonego symbolu superoperatora, przybliżenia (6.7) i własności iloczynu tensorowego, wielkość pomiędzy operatorami U z (7.5) jest równa

$$\rho_{\text{tot}}(t) [\sigma_+ \otimes \mathbb{I}_E] = \mathcal{L}_{t, t_i}[\rho_S(t_i)] \sigma_+ \otimes \rho_E,$$

a po obłożeniu jej operatorami ewolucji, tak jak w (7.5), otrzymujemy

$$U(t + \tau, t) \rho_{\text{tot}}(t) [\sigma_+ \otimes \mathbb{I}_E] U^\dagger(t + \tau, t) = \mathcal{L}_{t+\tau, t} [\mathcal{L}_{t, t_i} [\rho_S(t_i)] \sigma_+] \otimes \rho_E.$$

Funkcja autokorelacji z (7.5) przyjmuje zatem postać

$$G(t, t + \tau) = \text{Tr}_S \text{Tr}_E (\sigma_- \mathcal{L}_{t+\tau, t} [\mathcal{L}_{t, t_i} [\rho_S(t_i)] \sigma_+] \otimes \rho_E). \quad (7.7)$$

Ostatecznie, po rozdzieleniu śladów, wiedząc, że $\text{Tr}_E \rho_E = 1$, otrzymujemy wzór na funkcję autokorelacji

$$G(t, t + \tau) = \langle \sigma_+(t) \sigma_-(t + \tau) \rangle = \text{Tr} (\sigma_- \mathcal{L}_{t+\tau, t} [\mathcal{L}_{t, t_i} [\rho_S(t_i)] \sigma_+]). \quad (7.8)$$

Wyprowadzając równanie (7.8), milcząco skorzystano z kwantowego twierdzenia Laxa o regresji, które stosuje się do układów z dynamiką Markowską (por. rozdział 6). Według tego twierdzenia, ewolucja całej funkcji korelacji związana z czasem $\tau > 0$ jest identyczna jak dla $\langle \sigma_-(t + \tau) \rangle$ z warunkiem początkowym dla $\tau = 0$ danym przez $\langle \sigma_+(t) \sigma_-(t) \rangle$. Innymi słowy, kwantowe twierdzenie Laxa o regresji głosi, że

$$\frac{d}{d\tau} G(t, t + \tau) = L^{(\text{se})} [G(t, t + \tau)]. \quad (7.9)$$

Ponieważ wszystkie rozważania, począwszy od podrozdziału 6.1, przeprowadzamy w wirującym układzie odniesienia, warto zapisać w nim również funkcję autokorelacji. Przejście zdefiniowane w (6.12) obowiązuje również w obrazie Heisenberga, stąd

$$\sigma_+^{(\text{W})}(t) = e^{i\omega_L t} \sigma_+(t), \quad (7.10a)$$

$$\sigma_-^{(\text{W})}(t + \tau) = e^{-i\omega_L(t+\tau)} \sigma_-(t + \tau) \quad (7.10b)$$

i tym samym funkcja autokorelacji w wirującym układzie odniesienia jest równa

$$G^{(\text{W})}(t, t + \tau) = \langle \sigma_+^{(\text{W})}(t) \sigma_-^{(\text{W})}(t + \tau) \rangle = e^{-i\omega_L \tau} G(t, t + \tau). \quad (7.11)$$

8 Teoria fotodetekcji

W niniejszym rozdziale zostanie wyprowadzona, w oparciu o [1, 83], zależność między widmem RF, $S(\omega)$, a funkcją autokorelacji z rozdziału 7, zarówno w przypadku z modulacją akustyczną emitera, jak i bez niej.

8.1 Operator pola

Najpierw należy opisać światło oddziałujące z emitерem w sposób kwantowy, definiując (w obrazie Heisenberga) operator pola w położeniu $\mathbf{r}$,

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r}, t) = \boldsymbol{\varepsilon}^+(\mathbf{r}, t) + \boldsymbol{\varepsilon}^-(\mathbf{r}, t), \quad (8.1)$$

składający się z części $\boldsymbol{\varepsilon}^{+/-}(\mathbf{r}, t)$ o dodatniej/ujemnej częstotliwości. Są one równe

$$\boldsymbol{\varepsilon}^+(\mathbf{r}, t) = (\boldsymbol{\varepsilon}^-(\mathbf{r}, t))^\dagger = \sum_{\mathbf{K}, \lambda'} \mathbf{e}_{\mathbf{K}, \lambda'} \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\mathbf{K}}}{2\varepsilon_0 V}} a_{\mathbf{K}, \lambda'}(t) e^{i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}}, \quad (8.2)$$

gdzie wielkości $\{\mathbf{K}, \lambda'\}$ charakteryzują fotonowe mody, odpowiadające światłu o częstotliwości $\omega_{\mathbf{K}}$, wektorze falowym $\mathbf{K}$ i polaryzacji λ' . Bezwymiarowy wektor $\mathbf{e}_{\mathbf{K}, \lambda'}$ jest równoległy do kierunku drgań natężenia pola elektrycznego odpowiadającego modu, ε_0 to przenikalność elektryczna próżni, a V to objętość przestrzeni układu fotony–emiter. Operator anihilacji fotonu w modzie $\{\mathbf{K}, \lambda'\}$ dla chwili t został oznaczony jako $a_{\mathbf{K}, \lambda'}(t)$.

Na potrzeby tego modelu kwantowego zdefiniujmy hamiltonian układu emiter–fotony, $H_{\text{em-phot}}$. Przestrzeń Hilberta dla tego układu należy rozszerzyć o $\mathcal{H}_{\text{phot}}$, obejmującą stany fotonów. W przybliżeniu wirującej fali i obrazie Heisenberga, taki hamiltonian wyraża się wzorem

$$\begin{aligned} H_{\text{em-phot}}^{(\text{H})} = & H_{\text{em}}^{(\text{H})} + \hbar \sum_{\mathbf{K}, \lambda'} \omega_{\mathbf{K}} a_{\mathbf{K}, \lambda'}^\dagger(t) a_{\mathbf{K}, \lambda'}(t) \\ & - \mathbf{d}_{XG} \left(\boldsymbol{\varepsilon}^+(\mathbf{r}, t) \sigma_+(t) e^{-i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)} + \boldsymbol{\varepsilon}^-(\mathbf{r}, t) \sigma_-(t) e^{i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)} \right). \end{aligned} \quad (8.3)$$

W równaniu (8.3), oprócz znanego hamiltonianu emitera, występują jeszcze drugi i trzeci człon, opisujący odpowiednio fotony oraz ich interakcję z emitерem.

Ewolucję czasową dla operatora anihilacji fotonów, a tym samym $\boldsymbol{\varepsilon}^+(\mathbf{r}, t)$ z (8.2), opisuje równanie Heisenberga. Dla dowolnego operatora $C^{(\text{H})}$ z przestrzeni Hilberta emitera, fotonów oraz (opcjonalnie) fononów oddziałujących z emitерem, niniejsze równanie ruchu ma postać

$$i\hbar \frac{dC^{(\text{H})}(t)}{dt} = \left[C^{(\text{H})}(t), H_{\text{em-phot}}^{(\text{H})}(t) \right]. \quad (8.4)$$

Po zastosowaniu (8.4) do operatora anihilacji $a_{\mathbf{K}, \lambda'}(t)$, otrzymujemy

$$\frac{da_{\mathbf{K}, \lambda'}(t)}{dt} = -i\omega_{\mathbf{K}} a_{\mathbf{K}, \lambda'}(t) + i \frac{\mathbf{d}_{XG} \cdot \mathbf{e}_{\mathbf{K}, \lambda'}}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\mathbf{K}}}{2\varepsilon_0 V}} \sigma_-(t) e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_0}. \quad (8.5)$$

Z kolei rozwiązaniem (8.5) jest

$$\begin{aligned} a_{\mathbf{K}, \lambda'}(t) = & a_{\mathbf{K}, \lambda'}(t_i) e^{-i\omega_{\mathbf{K}}(t-t_i)} \\ & + i \frac{\mathbf{d}_{XG} \cdot \mathbf{e}_{\mathbf{K}, \lambda'}}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\mathbf{K}}}{2\varepsilon_0 V}} e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_0} \int_{t_i}^t dt' \sigma_-(t') e^{-i\omega_{\mathbf{K}}(t-t')}. \end{aligned} \quad (8.6)$$

Pierwszy człon z (8.6) odpowiada ewolucji swobodnej pola, gdy nie ma interakcji z emitorem. Zatem wyznaczając widmo RF, uwzględniamy tylko drugi człon operatora anihilacji, który po wstawieniu do (8.2) da częstość dodatnią pola rozproszonego, $\epsilon_{\text{sc}}^+(\mathbf{r}, t)$. Korzystając z faktu [1]

$$\sum_{\lambda'} \mathbf{e}_{\mathbf{K}, \lambda'} (\mathbf{d}_{XG} \cdot \mathbf{e}_{\mathbf{K}, \lambda'}) = \mathbf{d}_{XG} - \frac{\mathbf{K} (\mathbf{d}_{XG} \cdot \mathbf{K})}{K^2} \quad (8.7)$$

oraz zamieniając sumę po $\mathbf{K}$ w całkę po trójwymiarowej przestrzeni wektorów $\mathbf{K}$,

$$\sum_{\mathbf{K}} \dots = \frac{V}{8\pi^3} \int d^3K \dots, \quad (8.8)$$

otrzymujemy

$$\epsilon_{\text{sc}}^+(\mathbf{r}, t) = i \int d^3K \frac{\omega_{\mathbf{K}} e^{i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}}{16\pi^3 \epsilon_0} \left(\mathbf{d}_{XG} - \frac{\mathbf{K} (\mathbf{d}_{XG} \cdot \mathbf{K})}{K^2} \right) \int_{t_i}^t dt' \sigma_-(t') e^{-i\omega_{\mathbf{K}}(t-t')}. \quad (8.9)$$

Następnie liczymy całkę po przestrzeni wektorów $\mathbf{K}$ (szczegółowe rachunki znajdują się w [1]) oraz przyjmujemy założenie, że $|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0| \gg 2\pi c / \omega_{\mathbf{K}}$ dla każdego modu (tzw. przybliżenie dalekiego pola). Wówczas operator pola $\epsilon_{\text{sc}}^+(\mathbf{r}, t)$ wynosi

$$\epsilon_{\text{sc}}^+(\mathbf{r}, t) = \frac{c \mathbf{d}_{XG}^\perp}{8\pi^2 \epsilon_0 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \int_0^\infty dK \left(e^{iK|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} - e^{-iK|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \right) K^2 \int_{t_i}^t dt' \sigma_-(t') e^{-i\omega_{\mathbf{K}}(t-t')}, \quad (8.10)$$

gdzie $\mathbf{d}_{XG}^\perp$ to składowa $\mathbf{d}_{XG}$ prostopadła do $\mathbf{r} - \mathbf{r}_0$. Stosując zależność $K = \omega_{\mathbf{K}}/c$, a następnie, zgodnie z teorią Weisskopfa-Wignera, rozszerzając przedział całkowania po $\omega_{\mathbf{K}}$ na ujemne częstości [102], otrzymujemy

$$\begin{aligned} \epsilon_{\text{sc}}^+(\mathbf{r}, t) &= \frac{c \mathbf{d}_{XG}^\perp}{8\pi^2 c^2 \epsilon_0 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \\ &\times \int_{-\infty}^\infty d\omega_{\mathbf{K}} \left(e^{i\omega_{\mathbf{K}} \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c}} - e^{-i\omega_{\mathbf{K}} \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c}} \right) \omega_{\mathbf{K}}^2 \int_{t_i}^t dt' \sigma_-(t') e^{-i\omega_{\mathbf{K}}(t-t')}. \end{aligned} \quad (8.11)$$

Jako funkcje $\omega_{\mathbf{K}}$, eksponenty z $\pm i\omega_{\mathbf{K}}|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|/c$ zmieniają się znacznie szybciej niż $\omega_{\mathbf{K}}^2$, zatem możemy przyjąć, że $\omega_{\mathbf{K}}^2 \approx \omega_0^2 = \text{const}$, i wówczas $\epsilon_{\text{sc}}^+(\mathbf{r}, t)$ wynosi

$$\epsilon_{\text{sc}}^+(\mathbf{r}, t) = \alpha \int_{t_i}^t dt' \sigma_-(t') \left[\delta \left(t - t' - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right) - \delta \left(t - t' + \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right) \right] \quad (8.12)$$

dla stałej multiplikatywnej

$$\alpha = \frac{c \mathbf{d}_{XG}^\perp \omega_0^2}{4\pi c^2 \epsilon_0 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}. \quad (8.13)$$

Po przyjęciu założenia, że $ct \gg |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|$ dostajemy ostatecznie

$$\epsilon_{\text{sc}}^+(t) = \alpha \sigma_-(t), \quad (8.14)$$

opuszczając nieistotne już w notacji położenie $\mathbf{r}$.

8.2 Filtr

Światło rozproszone na emiterze przechodzi przez filtr, którym może być np. interferometr Fabry-Perota [30, 83]. Funkcję spektralną takiego filtra określa formuła Airy’ego [83, 103]

$$\mathcal{F}(\omega) = \frac{(1 - r^2)e^{i\omega d/c}}{1 - r^2 e^{2i\omega d/c}}, \quad (8.15)$$

gdzie c to prędkość wiązki światła we wnętrzu o długości d . Współczynnik odbicia r liczony jest względem natężenia pola elektrycznego wiązki. Dla $r \rightarrow 1$, filtr przepuszcza tylko te częstotliwości światła, które są bliskie całkowitej wielokrotności $\text{FSR} = \pi c/d$ (ang. free spectral range). Regulując zatem położenie jednej z płytek interferometru, można ustawiać częstotliwość środkową filtra $\omega_f = n_0 \cdot \text{FSR}$ (gdzie $n_0 \in \mathbb{N}$). Dla filtra używanego podczas eksperymentu RF, FSR jest rzędu dziesiątek GHz [30], podczas gdy w pracach [P1] i [P2] interesują nas częstotliwości światła ω (a tym samym filtra) znajdujące się w obrębie kilku GHz od częstotliwości lasera ω_L (por. ostatni akapit w rozdziale 2.3). Możemy zatem przyjąć, że częstotliwość światła $\omega \approx \omega_f$, co pozwala zmodyfikować wzór (8.15) do postaci [83]

$$\mathcal{F}(\omega, \omega_f) = \frac{\Gamma e^{in_0\pi}}{\Gamma - i(\omega - \omega_f)}, \quad (8.16)$$

którego szerokość spektralna wynosi $\Gamma = c(1 - r^2)/(2d) \ll \text{FSR}$ (w pracy [P3], gdzie zakres częstotliwości ω jest większy, rozważamy teoretyczny, wyidealizowany przypadek filtra o $\Gamma = 0$).

Po przejściu przez filtr ustawiony na rezonans w ω_f operator pola dla częstotliwości dodatniej jest splotem $\epsilon_{sc}^+(t)$ z transformatą Fouriera funkcji spektralnej filtra [83], tj.

$$\epsilon_{sc,f}^+(t, \omega_f) = \int_{-\infty}^{\infty} dt' F_{\omega_f}(t - t') \epsilon_{sc}^+(t'), \quad (8.17)$$

gdzie

$$F_{\omega_f}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{-i\omega t} \mathcal{F}(\omega, \omega_f) = \Gamma e^{-\Gamma t} e^{-i\omega_f t} e^{in_0\pi} \theta(t) \quad (8.18)$$

dla funkcji Heaviside’a oznaczonej jako $\theta(t)$.

8.3 Detektor

Po przejściu przez filtr ustawiony na częstotliwość ω_f , światło pada na detektor, którego współczynnik zliczeń fotonów w chwili t wynosi [83]

$$C(t, \omega_f) = \langle \epsilon_{sc,f}^-(t, \omega_f) \epsilon_{sc,f}^+(t, \omega_f) \rangle, \quad (8.19)$$

co po wykorzystaniu (8.14) i (8.17) daje

$$C(t, \omega_f) = \alpha^2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 F_{\omega_f}^*(t - t_1) F_{\omega_f}(t - t_2) \langle \sigma_+(t_1) \sigma_-(t_2) \rangle. \quad (8.20)$$

Następnie zastępujemy t_2 przez $\tau = t_2 - t_1$, otrzymując

$$\begin{aligned} C(t, \omega_f) = & \alpha^2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^0 d\tau F_{\omega_f}^*(t - t_1) F_{\omega_f}(t - t_1 - \tau) \langle \sigma_+(t_1) \sigma_-(t_1 + \tau) \rangle \\ & + \alpha^2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_0^{\infty} d\tau F_{\omega_f}^*(t - t_1) F_{\omega_f}(t - t_1 - \tau) \langle \sigma_+(t_1) \sigma_-(t_1 + \tau) \rangle. \end{aligned} \quad (8.21)$$

Teraz, w pierwszej linijce (8.21), zamiast τ wprowadzamy $\tilde{\tau} = -\tau$, a następnie, zamiast t_1 definiujemy $\tilde{t}_1 = t_1 - \tilde{\tau}$. Wówczas, pamiętając o (7.1), dostajemy

$$C(t, \omega_f) = 2\alpha^2 \operatorname{Re} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_0^{\infty} d\tau F_{\omega_f}^*(t - t_1) F_{\omega_f}(t - t_1 - \tau) G(t_1, t_1 + \tau), \quad (8.22)$$

a po użyciu (8.18), wprowadzeniu zmiennej $s = t - t_1 - \tau$ w miejsce t_1 oraz wykorzystaniu faktu, że $\theta(s + \tau)\theta(s) = \theta(s)$ dla $\tau > 0$, otrzymujemy

$$C(t, \omega_f) = 2\Gamma^2 \alpha^2 \operatorname{Re} \int_0^{\infty} ds e^{-2\Gamma s} \int_0^{\infty} d\tau e^{-\Gamma\tau} e^{i\omega_f\tau} G(t - s - \tau, t - s). \quad (8.23)$$

8.4 Widmo RF

Widmo RF, mierzone w chwili t dla częstości filtra ω_f , jest proporcjonalne do współczynnika zliczeń detektora $C(t, \omega_f)$.

W przypadku braku modulacji akustycznej chwila czasu t między włączeniem lasera oświetlającego emiter a pomiarem musi być na tyle duża, by układ osiągnął stan stacjonarny. Wówczas,

$$S(\omega) \sim \operatorname{Re} \int_0^{\infty} ds e^{-2\Gamma s} \int_0^{\infty} d\tau e^{-\Gamma\tau} e^{i\omega\tau} \lim_{t \rightarrow \infty} G(t - s - \tau, t - s). \quad (8.24)$$

Dla stanu stacjonarnego, funkcja autokorelacji $G(t_1, t_2)$ zależy tylko od różnicy $t_1 - t_2$, stąd można napisać, że $G(t_1, t_2) = G(t_1 + t_3, t_2 + t_3)$ dla dowolnego t_3 . Wykorzystując ten fakt i obliczając całkę po s w (8.24) otrzymujemy, że widmo RF, z dokładnością do stałej multiplikatywnej, wynosi

$$S(\omega) = \operatorname{Re} \int_0^{\infty} d\tau e^{-\Gamma\tau} e^{i\omega\tau} \tilde{G}(\tau), \quad (8.25)$$

gdzie

$$\tilde{G}(\tau) = \lim_{t \rightarrow \infty} G(t, t + \tau). \quad (8.26)$$

Z kolei dla przypadku modulacji akustycznej interesuje nas widmo uśrednione po okresie T_A fali akustycznej, modulującej emiter. Wówczas mamy

$$S^{(ac)}(\omega) \sim \frac{1}{T_A} \operatorname{Re} \int_0^{T_A} dt \int_0^{\infty} ds e^{-2\Gamma s} \int_0^{\infty} d\tau e^{-\Gamma\tau} e^{i\omega\tau} G(t - s - \tau, t - s). \quad (8.27)$$

Okazuje się, że jeżeli tylko szum będzie stacjonarny (tak jak w niniejszej pracy doktorskiej), to można napisać, że [P2]

$$\frac{1}{T_A} \int_0^{T_A} dt G(t - s - \tau, t - s) = \frac{1}{T_A} \int_0^{T_A} dt G(t - s - \tau + t_3, t - s + t_3) \quad (8.28)$$

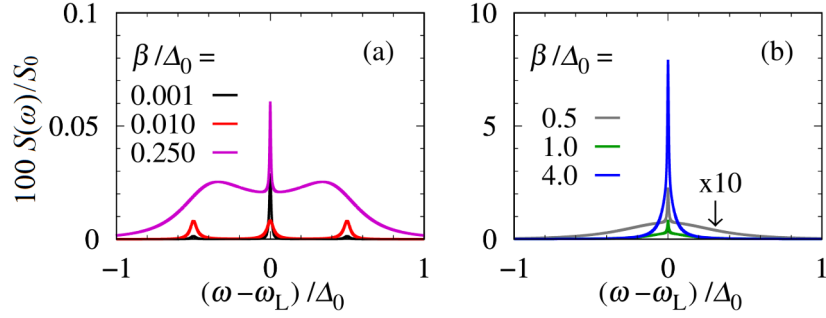
dla dowolnego t_3 , pomimo braku stacjonarności całego stanu układu z powodu modulacji akustycznej. Wówczas widmo RF wynosi, z dokładnością do stałej multiplikatywnej,

$$S^{(ac)}(\omega) = \operatorname{Re} \int_0^{\infty} d\tau e^{-\Gamma\tau} e^{i\omega\tau} \overline{G}(\tau), \quad (8.29)$$

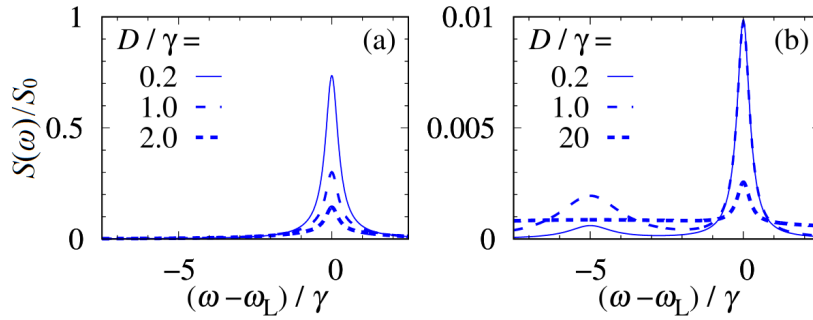
gdzie

$$\overline{G}(\tau) = \frac{1}{T_A} \int_0^{T_A} dt G(t, t + \tau). \quad (8.30)$$

W obu przypadkach, wynik widma dla wirującego układu odniesienia (por. równanie (7.11)) polega na zastąpieniu ω przez $\omega - \omega_L$ odpowiednio w (8.25) i (8.29).



Rysunek 9.1: Widmo RF, przedstawione w [P1], dla rezonansowego pobudzenia emitera ($\omega_L = \omega_0$). Przypadek (a) wolnego i (b) szybkiego szumu telegraficznego. Jednostka $S_0 = \Omega^2/(\gamma^2\Gamma)$ to wartość widma RF przy częstotliwości lasera, bez szumu, dla $\Delta = 0$ [1]. Wyniki obliczono dla $\gamma = 4\Gamma = \Delta_0/50$.



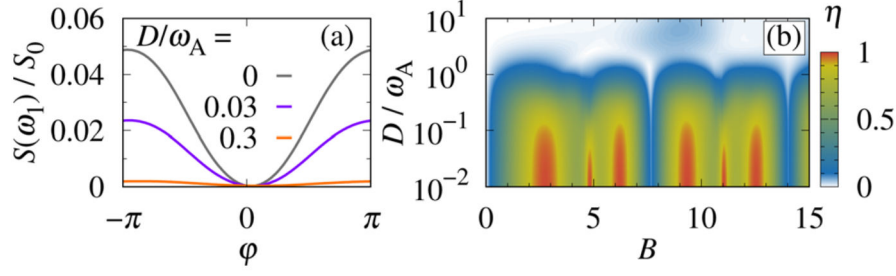
Rysunek 9.2: Widmo RF, zaprezentowane w [P1], w przypadku szumu białego dla pobudzenia (a) rezonansowego i dla (b) $\omega_L = \omega_0 + 5\gamma$. Dla szumu białego miarą jego intensywności jest współczynnik dyfuzji D w dziedzinie częstotliwości. Wyniki obliczono dla $\gamma = 4\Gamma$.

9 Najważniejsze wyniki doktoratu

9.1 Publikacja [P1]

W pracy [P1] rozważono wpływ szumu telegraficznego i białego na widmo RF z emitera bez modulacji akustycznej.

W przypadku szumu telegraficznego częstość przejścia emitera przełącza się między dwiema wartościami, tj. $\Delta\omega_{\text{ns}} \in \{-\Delta_0/2, \Delta_0/2\}$. Zdefiniowano parametr β , określający częstotliwość tego przełączania. Rysunek 9.1 przedstawia sytuacje dla wolnego (a) i szybkiego (b), w porównaniu z czasem życia ekscytynu, przełączania się układu. Pomimo słabego pobudzenia układu, w przypadku uwzględnienia szumu telegraficznego pojawiają się linie boczne, aczkolwiek nie jest to tryplet Mollowa. Lokalizacja dwóch bocznych linii z rysunku 9.1a odpowiada częstotliwościom przejścia, między którymi przełącza się układ (tj. $\omega_0 \pm \Delta_0/2$). Jednak w miarę wzrostu szybkości przełączania linie boczne znajdują się coraz bliżej ω_0 , by ostatecznie zlać się w jedną linię, zlokalizowaną w częstotliwości ω_0 (rysunek 9.1b). Wówczas emiter zachowuje się tak, jakby miał z powrotem jeden poziom, zlokalizowany w $\omega_0 = \omega_L$, co skutkuje znaczącym wzrostem intensywności widma. Poza przytoczonym przypadkiem, w pracy [P1] rozważono sytuację asymetrycznego szumu (różne parametry przełączania się $\Delta\omega_{\text{ns}}(t)$ z $-\Delta_0/2$ do $\Delta_0/2$ i z powrotem), jak i przypadek wielu źródeł szumu telegraficznego.



Rysunek 9.3: (a) Zależność uśrednionego po czasie widma RF $S(\omega_L + \omega_A)$ od fazy φ między dwoma modami (o amplitudach odpowiadających $A = 1$ i $B = 2.76$, por. równanie (4.7)) modulującymi emiter przy różnym współczynniku dyfuzji D szumu białego. Przypadek rezonansowego pobudzenia emitera ($\omega_L = \omega_0$). (b) Mapa kontrastu dla $S(\omega_L + \omega_A)$ przy różnych B oraz D dla $A = 1$. Wszystkie wyniki obliczono dla $\gamma = 2\Gamma = 0.1 \omega_A = 100$ MHz i pochodzą one z pracy [P2].

Z kolei w przypadku szumu białego zdefiniowano współczynnik dyfuzji D dla częstości przejścia. Wówczas

$$\langle \Delta\omega_{\text{ns}}(t) \Delta\omega_{\text{ns}}(t + \tau) \rangle = D\delta(\tau). \quad (9.1)$$

Wyniki przedstawiono na rysunku 9.2, dla rezonansowego (a) i nierezonansowego (b) pobudzenia. Z rysunku 9.2a widać, że szum biały zmniejsza intensywność widma RF. Jest to spowodowane rozmyciem częstości przejścia, co osłabia efektywny rezonans z laserem. Ponadto szum biały jest źródłem nowej linii (której szerokość zależy od D), będącej wynikiem nieelastycznego rozpraszania światła oraz zlokalizowanej przy częstości przejścia ω_0 emitera (rysunek 9.2b).

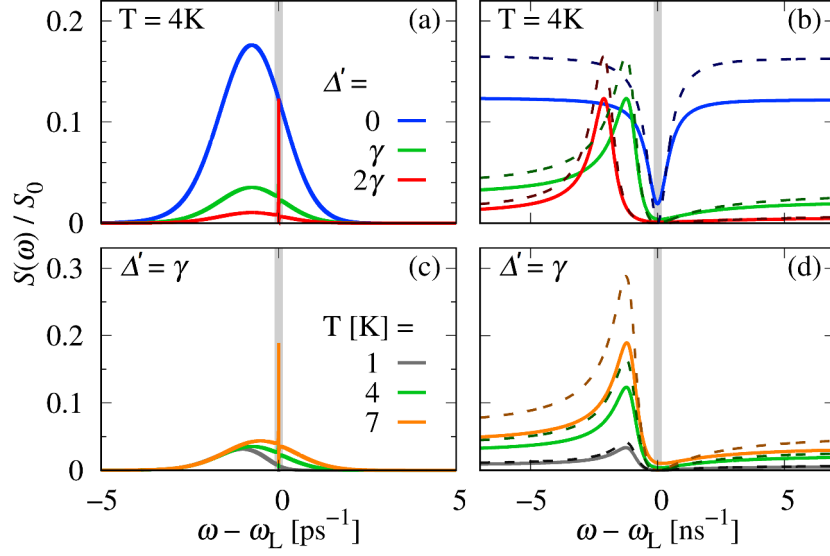
9.2 Publikacja [P2]

Wyniki z pracy [P1] dla szumu białego zostały zastosowane do przypadku modulacji akustycznej emitera [30, 31], a otrzymane rezultaty zaprezentowano w [P2]. Pokazano, że zbyt intensywny szum (a więc zbyt duży wkład nieelastycznego rozpraszania do widma RF) może zniszczyć reżim rozdzielonych pasm bocznych, niezbędny do prawidłowego funkcjonowania kwantowych układów hybrydowych.

Dla przypadku mieszania dwóch modów fal akustycznych (por. równanie (4.7)) zdefiniowano kontrast między maksymalną a minimalną (ze względu na fazę φ) wartością widma RF dla jego pierwszego prawego pasma bocznego $S(\omega_L + \omega_A)$. Im bardziej intensywny szum, tym mniejszy kontrast, co utrudnia odczytanie fazy φ z sygnału optycznego (rysunek 9.3a). Niemniej jednak, regulując amplitudę drugiego modu fali, można zidentyfikować warunki, w których akustyczna kontrola będzie miała miejsce, nawet przy nieznikającym, ale słabym szumie (rysunek 9.3b). Ponadto w pracy [P2] pokazano, że do skutecznej kontroli akustycznej faza φ musi być stabilna przez ok. 10^4 - 10^5 okresu fali modulującej emiter.

9.3 Publikacja [P3]

W ostatniej publikacji [P3] przedstawiono wpływ fononów na widmo RF z emitera bez modulacji akustycznej. W przeciwieństwie do prac [60, 62], emiter był pobudzany laserem



Rysunek 9.4: Widmo RF, pokazane w pracy [P3], dla emitery sprężonego z fononami. Wyniki dla (a,c) szerokiego i (b,d) wąskiego zakresu częstości względem lasera, przy różnych odstrojeniach (a,b) i temperaturach (c,d). Obliczenia wykonano dla $F_{\text{HR}} = 0.1$. Ponieważ w pracy [P3] rozważano filtr idealny ($\Gamma = 0$), jednostką S_0 jest tutaj Ω^2/γ^3 . Szary obszar dla częstości ω_L symbolizuje linię centralną, będącą wówczas deltą Diraca, z kolei linie przerywane prezentują wyniki widma RF dla reżimu słabego sprzężenia fononów.

ciągłym. Niemniej jednak, również w [P3] widmo zawiera linię centralną i szerokie, fononowe pasmo boczne (rysunek 9.4a,c). Ponadto, jeśli przyjmiemy, że gęstość spektralna rezerwuaru fononowego dla małych częstości ma zależność $J(\omega) \sim \omega^3$, to w pobliżu ω_L widmo będzie miało kształt podobny do profilu Fano [104] (rysunek 9.4b,d). W reżimie słabego sprzężenia fononów z emitery (gdzie mają miejsce wyłącznie procesy jednofononowe) sygnał RF jest dokładnym profilem Fano, który rośnie liniowo z temperaturą, lecz jego szerokość pozostaje niezmienna. Pokazano też, że im większy udział w rozpraszaniu światła mają procesy multifononowe (na skutek podwyższonej temperatury lub większego sprzężenia fononów z emitery), tym widmo RF jest mniej podobne do profilu Fano.

10 Wnioski i plany na przyszłość

W niniejszej pracy doktorskiej zamodelowano rozmaite rodzaje szumów zaburzających energię przejścia układu dwupoziomowego, słabo pobudzanego ciągłym światłem z lasera. Dla każdej z fluktuacji z [P1] zdefiniowano charakterystyczne parametry, za pomocą których można opisać ilościowo wpływ danego szumu na kształt widma RF. Niniejsze wyniki mogą być przydatne m. in. w interpretacji eksperymentów z RF na półprzewodnikowych emiterach, gdzie szum otoczenia jest nieunikniony. W przyszłości można uogólnić rozważania na model, w którym światło pobudzające emiter będzie traktowane jako fotony o określonych właściwościach (np. stan splątany czy ścieśniony), co może znaleźć zastosowanie w informatyce kwantowej.

Dla szumu białego uwzględniono dodatkowo proces modulacji akustycznej emitera [P2], co pozwoliło określić dopuszczalną intensywność fluktuacji dla efektywnej akustycznej kontroli w układzie hybrydowym. Dalszym możliwym kierunkiem jest zbadanie wpływu szumu na korelacje, również drugiego rzędu, między poszczególnymi pasmami widma (np. linią centralną i pierwszym pasmem bocznym).

Z kolei model emitera oddziałującego z fononami akustycznymi w półprzewodniku [P3] można rozszerzyć na inne rezerwuary fononowe, które w odmienny sposób wpłyną na kształt widma RF. Szczególnie interesujący wydaje się przypadek emitera na materiale dwuwymiarowym, jak np. grafen czy heksagonalny azotek boru.

Publikacje tworzące rozprawę doktorską

Niniejsza rozprawa doktorska ma formę zbioru trzech tematycznie powiązanych publikacji:

- [P1] Rafał A. Bogaczewicz, Paweł Machnikowski, *Resonance fluorescence of noisy systems*, *New Journal of Physics* **25**, 093057 (2023). DOI: [10.1088/1367-2630/acfb2f](https://doi.org/10.1088/1367-2630/acfb2f)

Wkład doktoranta polegał na sformułowaniu we współpracy z Promotorem koncepcji zagadnienia teoretycznego i sposobu obliczenia widma RF wraz z intensywnościami poszczególnych linii dla zaproponowanego modelu. Poza obliczeniami analitycznymi doktorant opracował i przetestował oryginalny kod komputerowy w języku C++, dostarczający numeryczne wyniki dla wspomnianych wielkości. Ponadto doktorant zrealizował wizualizację otrzymanych wyników, korzystając z programu Gnuplot, przygotował pierwotny szkic manuskryptu, a także brał aktywny udział w realizacji ostatecznej wersji niniejszego artykułu.

- [P2] Rafał A. Bogaczewicz, Paweł Machnikowski, *Precision of the acoustic control of single-photon scattering with semiconductor quantum dots*, *Optics Letters* **50**, 888 (2025). DOI: [10.1364/OL.539414](https://doi.org/10.1364/OL.539414)

Wkład doktoranta polegał na określeniu we współpracy z Promotorem koncepcji i modelu badanego zagadnienia i obliczeniu widma RF oraz kontrastu dla pojedynczej linii widma. W tym celu doktorant zaimplementował program w C++, a otrzymane numeryczne wyniki zwizualizował przy pomocy Gnuplota. Doktorant brał również aktywny udział w stworzeniu pierwszej wersji tej publikacji, jak i kolejnych poprawek, sugerowanych przez Promotora.

- [P3] Rafał Bogaczewicz, Paweł Machnikowski, *Fano profile in the resonance fluorescence spectrum of a solid-state quantum emitter coupled to phonons*, arXiv:2512.19435 (2025), DOI: [2512.19435](https://doi.org/2512.19435)

Wkład doktoranta polegał na sformułowaniu we współpracy z Promotorem koncepcji zagadnienia, jego modelu oraz obliczeniu widma RF i intensywności poszczególnych składowych widma. Oprócz obliczeń analitycznych doktorant opracował i przetestował kod komputerowy w C++ oraz zwizualizował (przy pomocy Gnuplota) otrzymane wyniki numeryczne. Doktorant przygotował pierwotny szkic manuskryptu oraz uczestniczył w jego ostatecznej redakcji.

Ponadto, doktorant składający rozprawę jest współautorem czwartej publikacji, niebędącej jednak elementem studiów doktoranckich ani tym bardziej rozprawy:

- [P4] Rafał A. Bogaczewicz, Ewa Popko, Katarzyna R. Gwóźdź, *Determination of the band structure diagram of semiconductor heterostructures applied in photovoltaics*, *Optica Applicata* **51**, 135 (2021). DOI: [10.37190/oa210111](https://doi.org/10.37190/oa210111)

Bibliografia

- [1] M. O. Scully *et al.*, *Quantum Optics*, Cambridge University Press (1997).
- [2] P. Meystre *et al.*, *Elements of quantum optics*, Springer Berlin, Heidelberg (2007).
- [3] F. Y. Wu *et al.*, *Physical Review Letters* **35**, 1426 (1975).
- [4] D. F. Coope *et al.*, *Physical Review C* **15**, 1977 (1977).
- [5] H. J. Kimble *et al.*, *Physical Review Letters* **39**, 691 (1977).
- [6] F. Diedrich *et al.*, *Physical Review Letters* **58**, 203 (1987).
- [7] R. A. Dunlap, *The Mössbauer Effect*, Morgan & Claypool Publishers (2019).
- [8] J. Dalibard *et al.*, *Journal de Physique* **44**, 1337 (1983).
- [9] G. Nienhuis, *Physical Review A* **47**, 510 (1993).
- [10] X.-J. Wang *et al.*, *Nature Communications* **16**, 6453 (2025).
- [11] E. Schöll *et al.*, *Nano Letters* **19**, 2404 (2019).
- [12] G. Wrigge *et al.*, *Nature Physics* **4**, 60 (2008).
- [13] O. Astafiev *et al.*, *Science* **327**, 840 (2010).
- [14] D. M. Toyli *et al.*, *Physical Review X* **6**, 031004 (2016).
- [15] A. Muller *et al.*, *Physical Review Letters* **99**, 187402 (2007).
- [16] Y. L. Delley *et al.*, *Physical Review B* **96**, 241410(R (2017).
- [17] S. T. Yilmaz *et al.*, *Physical Review Letters* **105**, 033601 (2010).
- [18] C.-Y. Lu *et al.*, *Physical Review B* **81**, 035332 (2010).
- [19] A. N. Vamivakas *et al.*, *Nature Physics* **5**, 198 (2009).
- [20] A. N. Vamivakas *et al.*, *Nature* **467**, 297 (2010).
- [21] A. Delteil *et al.*, *Physical Review Letters* **112**, 116802 (2014).
- [22] W. B. Gao *et al.*, *Nature* **491**, 426 (2012).
- [23] P. Senellart *et al.*, *Nature Nanotechnology* **12**, 1026 (2017).
- [24] R. Trivedi *et al.*, *Physical Review A* **102**, 033707 (2020).
- [25] D. Ilin *et al.*, *Physical Review Letters* **130**, 023601 (2023).
- [26] R. A. DeCrescent *et al.*, *Optica* **11**, 1526 (2024).
- [27] C. Errando-Herranz *et al.*, *ACS Photonics* **8**, 1069 (2021).
- [28] M. Weiß *et al.*, *Journal of Physics D: Applied Physics* **51**, 373001 (2018).

- [29] P. Delsing *et al.*, *Journal of Physics D: Applied Physics* **52**, 353001 (2019).
- [30] M. Weiß *et al.*, *Optica* **8**, 291 (2021).
- [31] D. Wigger *et al.*, *Physical Review Research* **3**, 033197 (2021).
- [32] B. Villa *et al.*, *Applied Physics Letters* **111**, 011103 (2017).
- [33] Y. L. Lim, *Quantum Information Processing with Single Photons*, Ph.D. thesis (2005).
- [34] T. Hahn *et al.*, *AVS Quantum Science* **4**, 011403 (2022).
- [35] D. Groll *et al.*, *Advanced Quantum Technologies* **8**, 2300153 (2025).
- [36] J.-W. Pan *et al.*, *Reviews of Modern Physics* **84**, 777 (2012).
- [37] H.-H. Lu *et al.*, *Optica* **10**, 1655 (2023).
- [38] K. Stannigel *et al.*, *Physical Review Letters* **105**, 220501 (2010).
- [39] N. L. Piparo *et al.*, *Physical Review A* **99**, 022337 (2019).
- [40] R. J. D. Tilley, *Defects in Solids*, Wiley (2008).
- [41] T. T. Tran *et al.*, *Nature Nanotechnology* **11**, 37 (2016).
- [42] L. J. Martínez *et al.*, *Physical Review B* **94**, 121405 (2016).
- [43] N. R. Jungwirth *et al.*, *Nano Letters* **16**, 6052 (2016).
- [44] M. Kianinia *et al.*, *ACS Photonics* **4**, 768 (2017).
- [45] A. I. Burshtein *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **21**, 1907 (1988).
- [46] P. Avan *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **10**, 155 (1977).
- [47] S. Chaturvedi *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **14**, 1119 (1981).
- [48] P. Zoller *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **10**, 3023 (1977).
- [49] A. A. Rangwala *et al.*, *Physical Review A* **42**, 6651 (1990).
- [50] A. T. Georges *et al.*, *Physical Review A* **23**, 2580 (1981).
- [51] J. H. Eberly *et al.*, *Physical Review A* **30**, 2381 (1984).
- [52] A. G. Kofman *et al.*, *Physical Review A* **41**, 6454 (1990).
- [53] C. Matthiesen *et al.*, *Scientific Reports* **4**, 4911 (2014).
- [54] J. A. Preuss *et al.*, *Optica* **9**, 522 (2022).
- [55] J. Kasprzak *et al.*, *ACS Photonics* **9**, 1033 (2022).

- [56] V. M. Axt *et al.*, *Physical Review B* **72**, 125309 (2005).
- [57] J. Iles-Smith *et al.*, *Nature Photonics* **11**, 521 (2017).
- [58] L. Besombes *et al.*, *Physical Review B* **63**, 155307 (2001).
- [59] I. Favero *et al.*, *Physical Review B* **68**, 233301 (2003).
- [60] B. Krummheuer *et al.*, *Physical Review B* **65**, 195313 (2002).
- [61] A. Vagov *et al.*, *Physical Review B* **70**, 201305 (2004).
- [62] K. J. Ahn *et al.*, *Physical Review B* **71**, 153309 (2005).
- [63] C. Kittel, *Kittel's Introduction to Solid State Physics*, Wiley (2018).
- [64] V. K. Khanna, *Extreme-Temperature and Harsh-Environment Electronics*, rozdział 3, IOP Publishing (2023).
- [65] N. V. Morozova *et al.*, *Journal of Applied Physics* **125**, 220901 (2019).
- [66] Z.-X. Tang *et al.*, *Results in Physics* **47**, 106384 (2023).
- [67] W. Shockley, *Electrons and Holes in Semiconductors: With Applications to Transistor Electronics*, D. Van Nostrand Company, Inc. (1950).
- [68] M. Elamathi *et al.*, *Chemical Physics Letters* **770**, 138454 (2021).
- [69] P. Y. Yu *et al.*, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer Heidelberg Dordrecht London New York (2010).
- [70] M. C. Löbl *et al.*, *Communications Physics* **2**, 93 (2019).
- [71] L. Jacak *et al.*, *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics* **22**, 319 (2003).
- [72] L. Jacak *et al.*, *Quantum Dots*, Springer Berlin, Heidelberg (1998).
- [73] M. A. Kastner, *Physics Today* **46**, 24 (1993).
- [74] R. C. Ashoori, *Nature* **379**, 413 (1996).
- [75] P. Machnikowski *et al.*, *Materials Science - Poland* **26**, 851 (2008).
- [76] G. Bester *et al.*, *Physical Review B* **67**, 161306 (2003).
- [77] B. Zhang *et al.*, *Carbon* **218**, 118727 (2024).
- [78] G. Zanelli *et al.*, *Scientific Reports* **15**, 39640 (2025).
- [79] R. Ratajczak *et al.*, *Materials* **16**, 1756 (2023).
- [80] P. Giannozzi *et al.*, *Physical Review B* **43**, 7231 (1991).
- [81] D. Strauch *et al.*, *Journal of Physics: Condensed Matter* **2**, 1457 (1990).
- [82] T. Kadi *et al.*, *Measurement Science and Technology* **31**, 105009 (2020).

- [83] J. H. Eberly *et al.*, *Journal of the Optical Society of America* **67**, 1252 (1977).
- [84] K. Huang *et al.*, *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences* **204**, 406 (1950).
- [85] G. D. Mahan, *Many Particle Physics*, Plenum (2000).
- [86] B. R. Mollow, *Physical Review Journals Archive* **188**, 1969 (1969).
- [87] G. S. Agarwal, *Physical Review Letters* **37**, 1383 (1976).
- [88] J. H. Eberly *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **13**, 217 (1980).
- [89] M. E. Smithers *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **7**, L432 (1974).
- [90] S. Swain, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **8**, L437 (1975).
- [91] P. Zoller, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **10**, L321 (1977).
- [92] H. J. Kimble *et al.*, *Physical Review A* **15**, 689 (1977).
- [93] H. S. Freedhoff *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **8**, L209 (1975).
- [94] J. H. Eberly, *Physical Review Letters* **37**, 1387 (1976).
- [95] P. Zoller, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **11**, 2825 (1978).
- [96] V. Weisskopf, *Annalen der Physik* **401**, 23 (1931).
- [97] A. G. Kofman *et al.*, *Physical Review Letters* **61**, 251 (1988).
- [98] A. Joshi *et al.*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **35**, 1985 (2002).
- [99] P. L. Knight *et al.*, *Physical Review A* **17**, 1547 (1978).
- [100] M. Metcalfe *et al.*, *Physical Review Letters* **105**, 037401 (2010).
- [101] H.-P. Breuer *et al.*, *The Theory of Open Quantum Systems*, Oxford University Press (2007).
- [102] V. Weisskopf *et al.*, *Zeitschrift für Physik* **63**, 54 (1930).
- [103] M. Born *et al.*, *Principles of Optics, Fifth Edition*, Pergamon, Oxford (1975).
- [104] U. Fano, *Physical Review Journals Archive* **124**, 1866 (1961).



PAPER

Resonance fluorescence of noisy systems

Rafał A Bogaczewicz  and Paweł Machnikowski* 

Institute of Theoretical Physics, Wrocław University of Science and Technology, Wybrzeże Wyspiańskiego 27, 50-370 Wrocław, Poland

* Author to whom any correspondence should be addressed.

E-mail: pawel.machnikowski@pwr.edu.pl**Keywords:** resonance fluorescence, line shape, background noise, random telegraph noiseSupplementary material for this article is available [online](#)

RECEIVED

9 June 2023

REVISED

7 September 2023

ACCEPTED FOR PUBLICATION

19 September 2023

PUBLISHED

3 October 2023

Original Content from
this work may be used
under the terms of the
[Creative Commons
Attribution 4.0 licence](#).

Any further distribution
of this work must
maintain attribution to
the author(s) and the title
of the work, journal
citation and DOI.



Abstract

Light scattering from resonantly or nearly resonantly excited systems, known as resonance fluorescence (RF), has been gaining importance as a versatile tool for investigating quantum states of matter and readout of quantum information, recently including also the inherently noisy solid state systems. In this work we develop a general theory of RF in the low excitation limit on systems in which the transition energy is subject to noise for two important classes of noise processes: white noise fluctuations that lead to phase diffusion and an arbitrary stationary Markovian noise process on a finite set of states. We apply the latter to the case of random telegraph noise (TN) and a sum of an arbitrary number of identical random TN contributions. We show that different classes of noise influence the RF spectrum in a characteristic way. Hence, the spectrum carries information on the characteristics of noise present in the physical system.

1. Introduction

Light–matter interaction is one of the main tools for studying various properties of physical systems. In particular, resonant or nearly resonant light scattering, known as resonance fluorescence (RF) [1, 2] has been used for a long time to characterize systems of various kinds [3–7]. More recently, the RF technique has found a variety of applications in condensed matter systems, both in the physical investigation of quantum emitters, as well as in manipulating and reading out the quantum information encoded in solid-state qubits [8, 9]. It has been used to observe spin dynamics in semiconductor quantum dots (QDs) [10, 11], to interface [12] and entangle [13] QD spins with single photons, to generate indistinguishable photons [14], to read out spin states in QDs [10–12, 15, 16] and silicon defects [17] as well as to demonstrate quantum-optical effects in macroscopic superconducting qubits [18, 19]. The recent observation of RF from a waveguide-coupled solid-state emitter [20] opens a perspective of on-chip device integration.

The RF from a single unperturbed quantum emitter shows different properties under weak and strong excitation. In the former case, energy conservation for each single-photon scattering event leads to a single line with the broadening limited by the laser line width [1]. Under strong excitation, the modulation of the system state due to Rabi rotations gives rise to a triplet of broadened lines separated by the Rabi frequency, referred to as the Mollow triplet [1, 21].

No physical system is completely isolated from its environment. The environmental impact is of particular importance in solid-state systems, where the optical properties are to a large extent influenced by the coupling to charge [22, 23] or spin fluctuations (both nuclear [24] and electronic [25]), as well as to lattice vibrations. The latter can be induced in a coherent way, leading to controllable modification of the scattering spectrum [26, 27], but in most cases is a source of noise [28, 29]. When treated as a classical background noise, the environmental fluctuations are often modeled using Gaussian distributions [22, 23]. However, it is generally believed that the underlying physics involves discrete state changes of nearby physical objects, like nuclear or dopant spin flips, or charging and discharging of defects, and such dynamics is indeed observed in certain experiments [25]. Therefore, a more fundamental model for the description of noise needs to be based on telegraph-noise (TN) dynamics.

While numerous studies considered fluctuations in the phase [30–34], amplitude [30, 35, 36], and frequency [30, 32, 37] of the laser beam, much less attention has been devoted to the effect of the environmental noise on RF. The existing studies include the particular case of interaction with phonons [38, 39] and the dynamics of inversion [40], coherence [41], entanglement [42], as well as non-linear wave-mixing response [43] in two-level systems subject to environmental fluctuations. Apart from studying the detrimental effects of noise on the dynamics of quantum systems, the latter can also be used as noise sensors in order to determine the properties of the noise itself. Such noise characterization is crucial for the robustness of quantum systems, hence considerable effort has recently been invested in the development of noise spectroscopy techniques [44–47].

In this work, we generalize the recently proposed description of RF from a deterministically modulated two-level system [26, 27] to systems subject to random fluctuations. We formulate a theory of low-excitation RF (coherent Rayleigh scattering) spectra for a system with the transition energy subject to white noise or an arbitrary Markovian random process that shifts the transition energy between a number of discrete spectral positions. In particular, we consider single-source symmetric and asymmetric TN and multi-source TN.

By relating the scattering spectrum to the formal characteristics of the underlying noise process, we are able to show that the spectrum bears clear fingerprints of the properties of noise: In the white noise (phase diffusion) case, the noise leads to Lorentzian line broadening. In contrast, a slow discrete process on a small set of states results in a multiple of Lorentzian lines that merge into a broad Gaussian feature when the number of process states increases so that they become dense on the energy axis. This picture changes when the process is fast. In this case a motional narrowing effect leads to the appearance of a single Lorentzian line.

The paper is organized as follows. In section 2 we describe the system and define its general model. Section 3 contains the essential definitions and presents the general framework of our theoretical description; here we also present the theory for the simplest case of white noise. Section 4 contains the central formal result of the paper: the theory of the RF spectrum for a Markovian noise process. Section 5 presents the results obtained by applying the theory to selected noise processes. The paper is concluded by section 6.

2. System and model

We consider light scattering on a two-level system which is subject to environmental fluctuations that randomly shift the energy of the excited state. As in the standard model of RF [1], the system is driven by a resonant or nearly resonant monochromatic laser light and undergoes spontaneous emission.

We denote the laser frequency by ω_L and the system states by $|0\rangle$ and $|1\rangle$. Let $\hbar\omega_0(t)$ be the time-dependent (fluctuating) energy difference between these states. The system is then described by the Hamiltonian

$$H(t) = \hbar\omega_0(t)|1\rangle\langle 1| - \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(t),$$

where $\mathbf{E}(t) = (1/2)(\mathbf{E}_0 e^{-i\omega_L t} + \text{c.c.})$ is the laser field (treated classically) with the amplitude $\mathbf{E}_0$ and $\mathbf{d}$ is the dipole moment operator. We assume $\langle 0|\mathbf{d}|0\rangle = \langle 1|\mathbf{d}|1\rangle = \mathbf{0}$. The system relaxation due to spontaneous emission is accounted for by the Lindblad dissipator

$$L[\rho(t)] = \gamma \left(\sigma_- \rho(t) \sigma_+ - \frac{1}{2} \{ \sigma_+ \sigma_-, \rho(t) \} \right),$$

where ρ is the density matrix of the system, $\{A, B\} = AB + BA$, and $\sigma_+ = \sigma_-^\dagger = |1\rangle\langle 0|$. The system state in the rotating frame is defined by

$$\tilde{\rho}(t) = e^{i\omega_L t|1\rangle\langle 1|} \rho(t) e^{-i\omega_L t|1\rangle\langle 1|}. \quad (1)$$

The Hamiltonian in this rotating frame and in the rotating wave approximation is

$$\tilde{H}(t) = -\hbar\Delta(t)|1\rangle\langle 1| - \frac{\hbar\Omega}{2}(\sigma_- + \sigma_+),$$

where we define the detuning $\Delta(t) = \omega_L - \omega_0(t)$ and the Rabi frequency $\Omega = (\mathbf{E}_0^*/\hbar) \cdot \langle 0|\mathbf{d}|1\rangle$ that we assume real. The Master equation describing the evolution of the system state has the form

$$\frac{d\tilde{\rho}(t)}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\tilde{H}(t), \tilde{\rho}(t)] + L[\tilde{\rho}(t)]. \quad (2)$$

The randomly changing detuning $\Delta(t)$, which reflects the environmental fluctuations, is the central feature of our model. Formally, it is described by a stochastic process, the properties of which may depend on

the physical situation. Here we assume that $\Delta(t)$ is a stationary Markov process with a unique stationary probability distribution $p^{(st)}$ reached asymptotically in the long time limit. Two particular examples will be discussed in the following.

3. The RF spectrum of a noisy system

In this section we define the formal quantities relevant to the RF spectrum, present the general framework of the theoretical model and discuss the simplest case of phase diffusion due to white noise.

In the Markov approximation, the detected spectrum of scattered light can be related to the system autocorrelation function $G(t, t + \tau) = \langle \sigma_+(t) \sigma_-(t + \tau) \rangle$ by [1]

$$F(\omega) = \text{Re} \int_0^\infty d\tau e^{i(\omega - \omega_L)\tau} e^{-\Gamma\tau} G(t, t + \tau). \quad (3)$$

Here $\sigma_\pm(t)$ are operators in the Heisenberg picture relative to the rotating-frame evolution as defined by equation (2) and Γ is the (Lorentzian) instrumental broadening accounting for the finite resolution of the detection.

Let us formally denote the solution of equation (2) by $\tilde{\rho}(t) = \mathfrak{L}_{t_0, t}[\tilde{\rho}(t_0)]$, where $\mathfrak{L}_{t_1, t_2}$ is the evolution superoperator. The Lax quantum regression theorem then yields the autocorrelation function in the form [2, 27]

$$G(t, t + \tau) = \text{Tr}(\sigma_- \mathfrak{L}_{t, t+\tau}[\mathfrak{L}_{t_0, t}[\tilde{\rho}(t_0)]\sigma_+]). \quad (4)$$

Here t_0 is the initial moment of the evolution, while $t - t_0$ is a sufficiently long time for the system to reach its steady state.

The total scattering intensity is $I_{\text{tot}} = \int_{-\infty}^\infty F(\omega) d\omega$. In the noise-free limit, the RF spectrum consists of a Dirac delta (broadened by the instrumental resolution) corresponding to elastic light scattering, which survives to various extent in the noisy case. Its intensity will be denoted by I_{el} . The remaining part of the spectrum is due to inelastic scattering induced by the random fluctuations. Its intensity is I_{inel} .

The equations of motion for the elements $\rho_{01}, \rho_{10}, \rho_{11}$ of the density matrix, following from equation (2), have the form $\dot{\rho}_{jl} = a_{jl}\rho_{jl} + i\Omega \sum_{mn} b_{jl, mn} \rho_{mn}$, where $a_{11} = -\gamma$, $a_{01} = a_{10}^* = i\Delta - \gamma/2$, and $b_{11, 10} = -b_{11, 01} = b_{10, 11} = -b_{01, 11} = 1/2$. The same holds for an arbitrary matrix, not necessarily a density matrix. Since equation (2) is trace-preserving, one has $\rho_{00} = c_0 - \rho_{11}$, where c_0 is a constant determined by the initial values ($c_0 = 1$ for a density matrix). In the absence of the laser field ($\Omega = 0$) the equation of motion can be solved trivially to yield the zeroth-order propagation

$$\rho_{jl}^{(0)}(t) = [\mathfrak{L}_{t_0, t}^{(0)} \rho(t_0)]_{jl} = e^{\int_{t_0}^t ds a_{jl}(s)} \rho_{jl}(t_0).$$

In the weak excitation regime, one can then solve equation (2) iteratively in the subsequent orders $r > 0$ in Ω ,

$$\rho_{jl}^{(r)}(t) = [\mathfrak{L}_{t_0, t}^{(r)} \rho(t_0)]_{jl} = i\Omega \int_{t_0}^t ds e^{\int_s^t ds' a_{jl}(s')} \sum_{mn} b_{jl, mn} \rho_{mn}^{(r-1)}(s).$$

These equations fully define the perturbative expansion of the evolution superoperator $\mathfrak{L}_{t_1, t_2}$ in powers of Ω . Substituting this evolution into equation (4) one finds, in the leading order of Ω^2 , the autocorrelation function for an arbitrary time-dependent energy shift $\Delta(t)$ in the form

$$G(t, t + \tau) = \frac{\Omega^2}{4} e^{-\frac{\gamma}{2}\tau} \int_{-\infty}^0 du \left[\int_0^\tau du' e^{\frac{\gamma}{2}(u+u')} \overline{e^{i\Phi(\tau, u') - i\Phi(0, u)}} \right. \\ \left. + \int_{-\infty}^u du' e^{\frac{\gamma}{2}(u+u')} \overline{e^{i\Phi(\tau, 0) - i\Phi(u, u')}} + \int_{-\infty}^u du' e^{\frac{\gamma}{2}(u+u')} \overline{e^{i\Phi(\tau, 0) + i\Phi(u, u')}} \right], \quad (5)$$

where

$$\Phi(t_b, t_a) = \int_{t_a}^{t_b} ds \Delta(s). \quad (6)$$

Here we changed the variables according to $s = t + u$, set $t - t_0 \rightarrow \infty$ (steady-state regime), averaged over the realizations of the noise (denoted by a line above the averaged quantities) and used the fact that the noise is stationary, hence

$$\overline{e^{i\Phi(t_d + s, t_c + s) \pm i\Phi(t_b + s, t_a + s)}} = \overline{e^{i\Phi(t_d, t_c) \pm i\Phi(t_b, t_a)}}.$$

The detailed derivation along with a graphical interpretation of the evolution paths contributing to the RF signal can be found in the supplementary material to [27].

Before developing the theory for an arbitrary Markovian noise process on a discrete state space, we find the explicit form of the correlation function in the case of simple phase diffusion. We assume that

$$\Delta(t) = \Delta_{WN}(t) + \bar{\Delta}, \quad (7)$$

where $\Delta_{WN}(t)$ is a stationary white noise process with $\langle \Delta_{WN}(t) \rangle = 0$ and $\langle \Delta_{WN}(t) \Delta_{WN}(t + \tau) \rangle = D\delta(\tau)$. Then, the phase shift given in equation (6) has a normal distribution with the mean value $\bar{\Delta}(t_b - t_a)$ and variance $D(t_b - t_a)$, hence D is the phase diffusion coefficient. With this Gaussian distribution, equation (5) can easily be evaluated by using the statistical independence of phase shifts over non-overlapping periods of time. This yields

$$G(t, t + \tau) = \frac{\Omega^2 \left(1 + \frac{D}{\gamma} e^{[i\bar{\Delta} - (\gamma + D)/2]\tau} \right)}{(\gamma + D)^2 + 4\bar{\Delta}^2}. \quad (8)$$

The RF spectrum obtained by substituting equation (8) to equation (3) is a sum of elastic and inelastic peaks that are, respectively, given by

$$F_{el}(\omega) = \frac{\Omega^2}{(\gamma + D)^2 + 4\bar{\Delta}^2} \frac{\Gamma}{(\omega - \omega_L)^2 + \Gamma^2} \quad (9)$$

and

$$F_{inel}(\omega) = \frac{\Omega^2}{(\gamma + D)^2 + 4\bar{\Delta}^2} \frac{D}{\gamma} \frac{(\gamma + D)/2 + \Gamma}{(\omega + \bar{\Delta} - \omega_L)^2 + [(\gamma + D)/2 + \Gamma]^2}. \quad (10)$$

Thus, the elastic scattering line is located at the laser frequency, while the inelastic line appears at the average system transition frequency.

By integrating we find the total intensity

$$I_{tot} = I_0 \frac{1 + D/\gamma}{(1 + D/\gamma)^2 + (2\bar{\Delta}/\gamma)^2}, \quad (11)$$

as well as the intensities of the elastic and inelastic components

$$I_{el} = I_0 \frac{1}{(1 + D/\gamma)^2 + (2\bar{\Delta}/\gamma)^2}, \quad I_{inel} = \frac{D}{\gamma} I_{el}. \quad (12)$$

Here and in the following we relate the scattering intensities to the standard RF intensity in weak excitation limit [1], $I_0 = \pi\Omega^2/\gamma^2$.

4. Theory of the RF spectrum for arbitrary Markovian noise

In this section we develop the theory of the RF spectrum for a system subject to noise that can be described by a continuous-time stationary Markov process on a finite set of states $\{\Delta_i\}_{i=1}^k$. This model can also be used as an approximation to more general Markov processes, based on a physically motivated truncation and discretization of the state space of the noise process.

The process is characterized by the transition probabilities $P_{m,n}(\tau) = \mathcal{P}[\Delta(t + \tau) = \Delta_m | \Delta(t) = \Delta_n]$ (with $\mathcal{P}$ denoting the conditional probability) forming the transition matrix $P(\tau) = \exp(C\tau)$, with the generator $C = dP(\tau)/d\tau|_{\tau=0}$. As shown in appendix, for such a process

$$\overline{e^{i\Phi(t_d, t_c)} \pm i\Phi(t_b, t_a)} = \text{Tr} P_\infty e^{B(t_d - t_c)} P_{t_c - t_b} e^{B^{(*)}(t_b - t_a)}, \quad (13)$$

where $B = C + i \text{diag}(\Delta_1, \Delta_2, \dots, \Delta_k)$, $P_\infty = \lim_{\tau \rightarrow \infty} P_\tau = p^{(st)}(1, \dots, 1)$, with $p^{(st)}$ representing the column vector of stationary probabilities, and the conjugation in the last term refers to the ‘-’ sign on the left-hand side.

Substituting equation (13) to equation (5) one gets

$$G(t, t + \tau) = \frac{\Omega^2}{4} \text{Tr} P_\infty \int_0^\tau du' e^{(B - \frac{\gamma}{2})(\tau - u')} P_{u'} \int_{-\infty}^0 du e^{(\frac{\gamma}{2} - B^*)u} + \frac{\Omega^2}{4} \text{Tr} P_\infty e^{(B - \frac{\gamma}{2})\tau} \int_{-\infty}^0 du e^{\frac{\gamma}{2}u} P_{-u} 2 \text{Re} \int_{-\infty}^u du' e^{\frac{\gamma}{2}u' + B(u - u')}. \quad (14)$$

Upon substituting to equation (3), the first term in equation (14) can be factorized by reordering the integrals with respect to τ and u' and then changing the variable according to $\tau = u' + s$. The second term can be evaluated directly. As a result one gets

$$F(\omega) = \frac{\Omega^2}{4} \text{Re Tr} P_\infty \int_0^\infty ds e^{(i(\omega - \omega_L) - \Gamma + B - \frac{\gamma}{2})s} \times \left[\int_0^\infty du e^{(i(\omega - \omega_L) - \Gamma + C)u} \int_0^\infty du' e^{(B^* - \frac{\gamma}{2})u'} + \int_0^\infty du e^{(C - \gamma)u} 2 \text{Re} \int_0^\infty du' e^{(B - \frac{\gamma}{2})u'} \right] = -\frac{\Omega^2}{4} \text{Re Tr} P_\infty \left(i(\omega - \omega_L) - \Gamma + B - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} \times \left[(i(\omega - \omega_L) - \Gamma + C)^{-1} \left(B^* - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} + 2(C - \gamma)^{-1} \text{Re} \left(B - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} \right]. \quad (15)$$

While this closed analytical form may be convenient for evaluating the spectrum in the case of a small state space of the process, much more insight is gained by relating the RF spectrum to the spectral properties of the generator C . To this end, we transform C to the Jordan form (over the field of complex numbers) by the similarity transformation

$$S^{-1}CS = \bigoplus_j C_j,$$

where C_j are Jordan blocks belonging to the respective eigenvalues λ_j of algebraic multiplicity d_j . We then apply the Jordan–Chevalley decomposition $C_j = \lambda_j \mathbb{I}^{(d_j)} + \mathbb{N}_j$, where $\mathbb{N}_j$ is a nilpotent d_j -dimensional matrix, $(\mathbb{N}_j)_{kl} = \delta_{k,l-1}$, and $\mathbb{I}^{(d)}$ is the d -dimensional unit matrix. Let Π_j be the projector on the subspace supporting C_j . Since

$$e^{C_j \tau} = e^{\lambda_j \tau} \sum_{n=0}^{d_j-1} \frac{(\mathbb{N}_j)^n}{n!} \tau^n,$$

one finds

$$P_\tau = e^{C\tau} = \sum_j e^{\lambda_j \tau} \sum_{n=0}^{d_j-1} P_{jn} \tau^n$$

with

$$P_{jn} = S \Pi_j \frac{(\mathbb{N}_j)^n}{n!} \Pi_j S^{-1}.$$

In the case of a diagonalizable matrix C , $d_j = 1$ for all j , the above procedure reduces to simple diagonalization, and λ_j become eigenvalues of C in the most common sense.

Using this result in the first term of equation (14), substituting to equation (3), and performing the integrations one finds

$$F(\omega) = \frac{\Omega^2}{4} \text{Re Tr} P_\infty \left\{ \sum_j \sum_{n=0}^{d_j-1} \frac{d^n}{d\lambda_j^n} (i(\omega - \omega_L) - \Gamma + \lambda_j)^{-1} \left(\frac{\gamma}{2} - B + \lambda_j \right)^{-1} P_{jn} \left(B^* - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} + \left(i(\omega - \omega_L) + B - \Gamma - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} \times \left[\sum_j \sum_{n=0}^{d_j-1} \frac{d^n}{d\lambda_j^n} \left(B - \frac{\gamma}{2} - \lambda_j \right)^{-1} P_{jn} \left(B^* - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} + (C - \gamma)^{-1} 2 \text{Re} \left(\frac{\gamma}{2} - B \right)^{-1} \right] \right\}. \quad (16)$$

The essential factors that describe the form of the spectrum are those depending on the frequency ω .

The first term defines Lorentzian features and more general line shapes in the case of degenerate eigenvalues ($d_j > 1$), as well as the corresponding dispersive contributions, with central frequencies at $\omega_L + \text{Im}\lambda_j$ and broadened by $-\text{Re}\lambda_j$ (here additionally broadened by the instrumental resolution Γ). The existence of a stationary state implies that one of the eigenvalues (say, λ_0) is zero and $P_{00} = P_\infty$. This contribution leads to an unbroadened (apart from the instrumental broadening) elastic scattering peak centered at $\omega = \omega_L$. For λ_0 there is no dispersive function. Each real non-zero eigenvalue leads to a broadened spectral feature at $\omega = \omega_L$.

The second term is a sum of simple Lorentzians and the corresponding dispersive contributions with positions and widths determined by the spectrum of B and further broadened due to spontaneous emission.

The total and elastic scattering intensities, found by integrating equation (16), are respectively

$$I_{\text{tot}} = -\frac{I_0\gamma}{2} \text{Tr} P_\infty \text{Re} \left(B - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} \quad (17)$$

and

$$I_{\text{el}} = \frac{I_0\gamma^2}{4} \text{Re} \text{Tr} P_\infty \left(B - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1} P_\infty \left(B^* - \frac{\gamma}{2} \right)^{-1}. \quad (18)$$

As an application of this formalism, we study in detail the special case of N identical noise sources, each generating TN.

A single noise source has two states that contribute $\Delta = \pm \frac{\Delta_0}{2\sqrt{N}}$ to the system energy shift. The switching rates between the two states of the noise are $\beta_\uparrow$ and $\beta_\downarrow$, leading to stationary probabilities $\beta_\downarrow/(\beta_\uparrow + \beta_\downarrow)$ and $\beta_\uparrow/(\beta_\uparrow + \beta_\downarrow)$ for the two noise states. For N identical and additively contributing noise sources the space of possible noise states is composed of $N + 1$ values of the total system detuning,

$$\Delta_j = \bar{\Delta} - \sqrt{N} \frac{\Delta_0}{2} + \frac{j}{\sqrt{N}} \Delta_0, \quad j = 0, \dots, N, \quad (19)$$

corresponding to j sources in the ‘upper state’. Here $\bar{\Delta}$ is the mean detuning (the laser detuning from the noise-free transition energy) and the renormalization by a factor $1/\sqrt{N}$ assures convergence in the limit of $N \rightarrow \infty$.

For this case the generator C is a $N + 1$ -dimensional tridiagonal matrix, where the non-zero elements are

$$\begin{aligned} C_{j,j} &= (j - N) \beta_\uparrow - j \beta_\downarrow, & j &= 0, \dots, N, \\ C_{j-1,j} &= j \beta_\downarrow, & j &= 1, \dots, N, \\ C_{j,j-1} &= (N + 1 - j) \beta_\uparrow, & j &= 1, \dots, N. \end{aligned} \quad (20)$$

The stationary probability follows the binomial distribution

$$p_j^{(\text{st})} = \binom{N}{j} \frac{\beta_\uparrow^j \beta_\downarrow^{N-j}}{(\beta_\uparrow + \beta_\downarrow)^N}. \quad (21)$$

5. Results

In this section we present the results for the RF spectrum based on the theory developed in sections 3 and 4 for three noise models. For the white noise calculations we set $\Gamma/\gamma = 0.25$. For the discrete process we choose $\gamma = 4\Gamma = 0.02\Delta_0$. As a natural unit for presenting and comparing the RF spectra we will use the maximum value of the spectrum for an unperturbed system under weak resonant excitation [1], $F_0 = \Omega^2/(\gamma^2\Gamma)$, which can be obtained from equation (9) with $D = \bar{\Delta} = 0$ and $\omega = \omega_L$. All the spectra presented in the following will be related to this quantity.

5.1. White noise

We start the discussion with the case of a system affected by white noise. Figure 1 shows the results for this case, calculated from equations (9) to (10), under resonant and detuned excitation in the left and right columns, respectively. In both cases, the RF spectrum is composed of two Lorentzians. In the resonant case they overlap, while for a detuned excitation they are split. As expected, the overall intensity is also lower in the latter case.

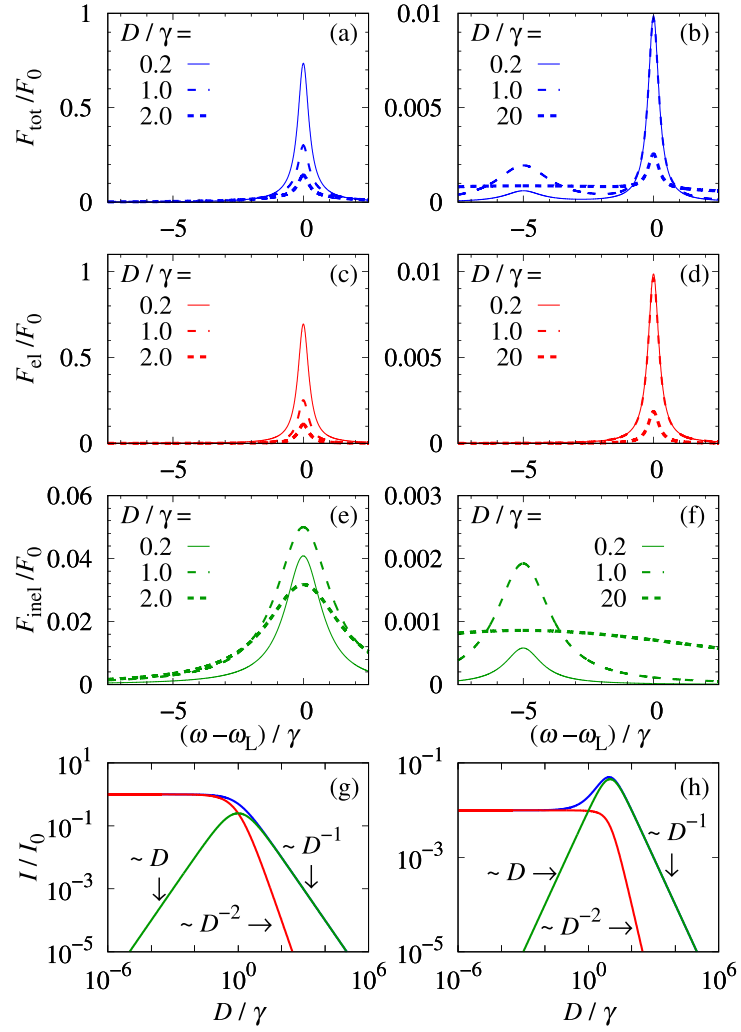


Figure 1. The RF spectra and the scattering intensities for uncorrelated noise under resonant excitation (left column) and detuned excitation with $\bar{\Delta}/\gamma = 5$ (right column). (a), (b) Total spectrum; (c), (d) elastic contribution; (e), (f) inelastic contribution; (g), (h) scattering intensities as a function of the phase diffusion coefficient, with line colors corresponding to (a)–(f).

The total spectrum, shown in figures 1(a) and (b), is decomposed into the elastic and inelastic contributions in figures 1(c)–(f), respectively. While the positions of the spectral features do not change, the evolution of their intensities and of the width of the non-elastic line are clearly visible. The width of the inelastic contribution grows with D . The intensity of the elastic contribution starts to decrease when $D \sim \gamma$, while the intensity of the inelastic one changes non-monotonically with D , reaching a maximum for $D \sim \gamma$. The decrease of the inelastic contribution for weak noise is an obvious consequence of restoring the noise-free limit of purely elastic scattering. For strong noise both components decrease because the increasing spread of the transition energy reduces the effective overlap with the excitation frequency, which affects the excitation intensity. The appearance of an additional broadened spectral line at a spectral position bound to the transition energy in addition to the elastic line at the laser position can be understood by invoking the model of a classical charged harmonic oscillator driven by a periodic force. This analogy is formally validated by the fact that in the leading order in Ω , the whole emitted light is coherent, that is, originating from the transition dipole induced coherently by the laser field. In its steady state, the classical system oscillates periodically with the laser frequency, which gives rise to a sharp line at this spectral position. However, any perturbation of the steady-state evolution leads to the appearance of a damped transient at the eigenfrequency of the system renormalized by damping. Here the noise serves as a perturbation that permanently excites the transient oscillations and simultaneously damps the coherence due to phase diffusion, leading to a broadened line.

A systematic study of the intensities as a function of the noise strength D is presented in figures 1(g) and (h). As can also be seen directly from equation (12), the dependence has asymptotically a power-law character. In the case of resonant excitation, $\bar{\Delta} = 0$, the absence of noise ($D \rightarrow 0$) leads to permanent resonance condition, maximizing the total scattering intensity. For a sufficiently large detuning, $\bar{\Delta} > \gamma/2$, the interplay of the decreasing elastic scattering and non-monotonic inelastic one leads to the appearance of

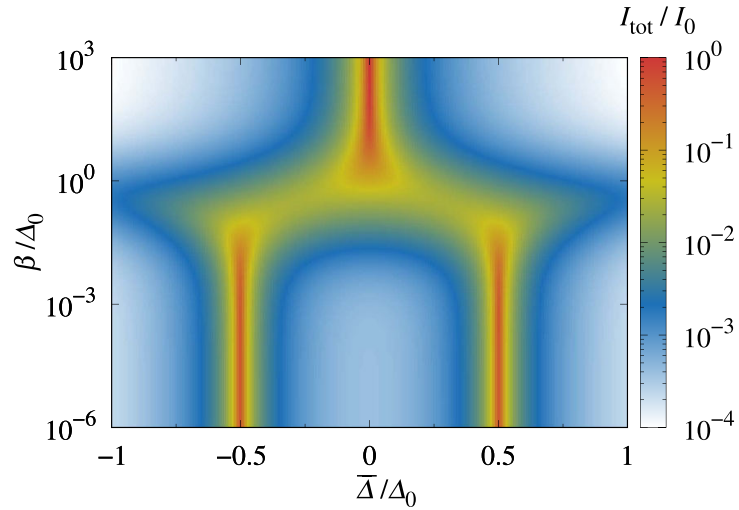


Figure 2. Total intensity dependence on noise parameters: mean detuning $\bar{\Delta}$ and switching rate β .

a maximum of the total scattering intensity at $D = 2\bar{\Delta} - \gamma$. In this case one observes a noise-induced enhancement of scattering: At the maximum, the total intensity is larger than in the noise-free case by a factor of $(\gamma^2 + 4\bar{\Delta}^2)/(4\gamma\bar{\Delta})$.

5.2. Single-source telegraph noise

In this section we discuss the results for the scattering spectra and line intensities for a single source of random TN, depending on the characteristics of the noise dynamics (the switching rates $\beta_{\uparrow, \downarrow}$) and laser detuning $\bar{\Delta}$ from the average transition energy. In this case, the detuning takes randomly two values, hence the set of states of the stochastic process is reduced to $\Delta = \bar{\Delta} \pm \Delta_0/2$. The generator in equation (20) reduces to

$$C = \begin{pmatrix} -\beta_{\uparrow} & \beta_{\downarrow} \\ \beta_{\uparrow} & -\beta_{\downarrow} \end{pmatrix}. \quad (22)$$

Its eigenvalues are $\lambda_0 = 0$ and $\lambda_1 = -(\beta_{\uparrow} + \beta_{\downarrow})$. Both eigenvalues are non-degenerate, hence the spectrum is composed of four simple Lorentzians and, possibly, the corresponding dispersive functions. For the sake of presentation we set $\beta_{\uparrow} = \beta(1 - x)$ and $\beta_{\downarrow} = \beta(1 + x)$, where $x \in [-1, 1]$. We begin with the case of symmetric noise ($x = 0$, that is, $\beta_{\uparrow} = \beta_{\downarrow} = \beta$) and then describe the effects of noise asymmetry.

5.2.1. Symmetric switching

We start our analysis by discussing the total scattering intensity I_{tot} , depending on the spectral position of the laser. The full RF intensity as a function of the laser detuning and noise switching rate in the case of symmetric noise is shown in figure 2, where we plot the total scattering intensity obtained by numerical evaluation of equation (17). At low switching rates (slow noise), the scattering intensity is the largest when the laser is tuned to one of the two randomly alternating spectral positions of the optical transition, while at high switching rates (fast noise) the strongest scattering occurs at the average value of the transition energy.

The slow-noise case is easily understood as the quasi-static limit of the random dynamics: over times much longer than the characteristic time scale of the system evolution, $1/\Delta_0$, the system transition energy remains constant at one of the two spectral positions, hence tuning the laser to one of these energies leads to resonant scattering. The dependence on the detuning in this limiting case can be found by setting $\beta = 0$, i.e. $B = i[\bar{\Delta} + \text{diag}(-\Delta_0/2, \Delta_0/2)]$, which immediately yields

$$I_{\text{tot}}^{(\beta=0)}(\bar{\Delta}) = \frac{1}{2} I_0 \left[\frac{(\gamma/2)^2}{(\bar{\Delta} + \Delta_0/2)^2 + (\gamma/2)^2} + \frac{(\gamma/2)^2}{(\bar{\Delta} - \Delta_0/2)^2 + (\gamma/2)^2} \right]. \quad (23)$$

Thus, in the limit of slow noise the scattering intensity reaches half of the noise-free resonant scattering intensity at each of the two resonant spectral positions.

In the opposite limit of fast noise the random switching takes place many times during the characteristic time $1/\Delta_0$, hence the accumulated dynamical phase slip with respect to the laser light depends only on the

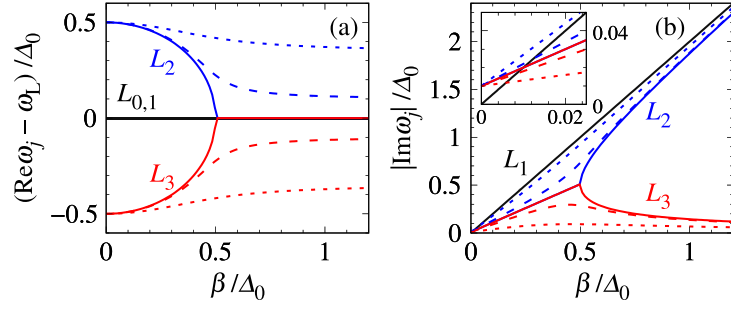


Figure 3. Positions of the spectral lines (a) and their widths (b) as a function of the switching rate in the case of symmetric noise, $x = 0$ (solid lines), as well as for the asymmetric noise with $x = 0.2$ (dashed lines) and 0.7 (dotted lines). Panel (a) corresponds to $\bar{\Delta} = 0$. The inset in (b) shows in detail the line widths at very slow switching ($\beta \rightarrow 0$).

averaged transition energy, leading to the resonance condition at $\bar{\Delta} = 0$. By directly evaluating equation (17) in the limit of $\beta \rightarrow \infty$ one finds in this case

$$I_{\text{tot}}^{(\beta \rightarrow \infty)}(\bar{\Delta}) = I_0 \frac{(\gamma/2)^2}{\bar{\Delta}^2 + (\gamma/2)^2}, \quad (24)$$

hence the full standard intensity is recovered at the average spectral position. For moderate values of β one can neglect γ in equation (17), hence the noise speed at which the transition between the slow and fast regimes takes place can only depend on Δ_0 . Indeed, the scattering intensities at $\bar{\Delta} = \Delta_0/2$ and $\bar{\Delta} = 0$ become equal for $\beta/\Delta_0 = 1/4 + O(\gamma/\Delta_0)$.

The particular form of the RF spectrum at a given spectral position of the laser is determined by the poles of equation (16), which we denote by ω_j , $j = 0, \dots, 3$, with

$$\omega_0 = \omega_L + i\Gamma, \quad (25a)$$

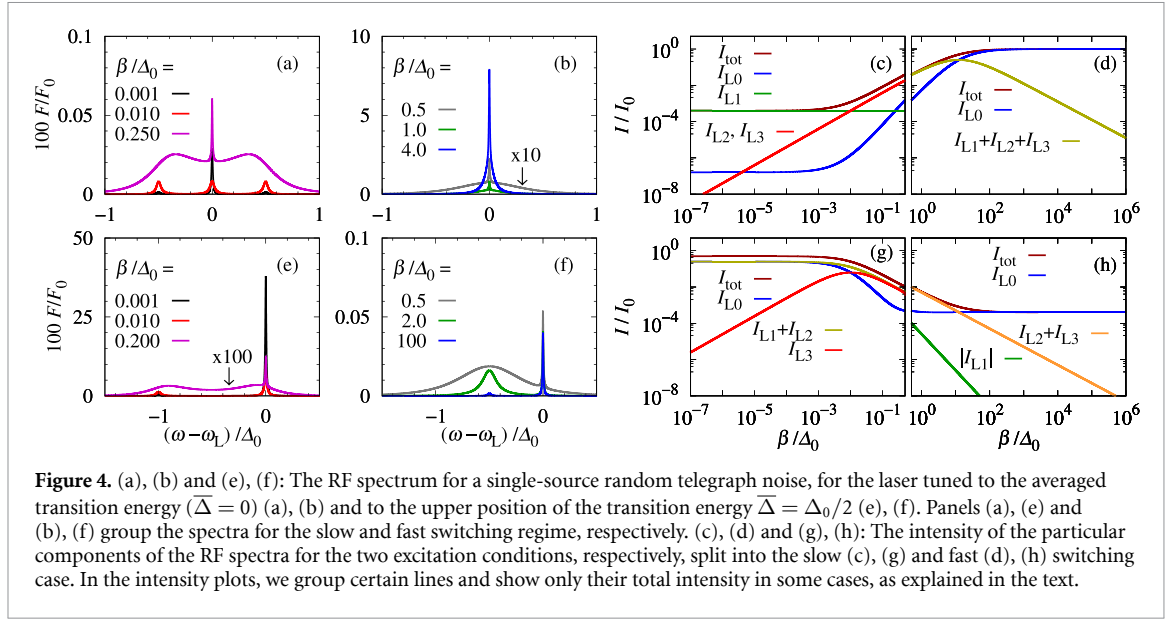
$$\omega_1 = \omega_L + i(\Gamma + 2\beta), \quad (25b)$$

$$\omega_{2/3} = \omega_L - \bar{\Delta} - i\left(\frac{\gamma}{2} + \beta + \Gamma\right) \pm \frac{\Delta_0}{2} \sqrt{1 - \frac{4\beta^2}{\Delta_0^2} + i\frac{4\beta x}{\Delta_0}}. \quad (25c)$$

Correspondingly, the Lorentzian features located at the spectral positions $\text{Re } \omega_j$ will be labeled by $L_0, \dots, L_3$, respectively. Both $\omega_0 - \omega_L$ and $\omega_1 - \omega_L$ are purely imaginary, corresponding to resonant peaks.

The positions of the spectral features ($\text{Re } \omega_j$) as a function of the switching rate β , calculated from equations (25a)–(25c), are shown in figure 3(a) for $\bar{\Delta} = 0$. Currently, we focus on symmetric switching, $x = 0$, represented by solid lines. Apart from the resonant (central) features L_0 and L_1 the system in the slow switching limit shows two side peaks L_2 and L_3 . Their positions evolve from $\omega_L \pm \Delta_0/2$ (the locations of the transition energy) in the quasi-static limit towards ω_L , undergoing a qualitative transition at $\beta = \Delta_0/2$, where the characteristic frequencies collapse to a single value of $\omega = \omega_L$. Hence, at $\beta = \Delta_0/2$ the RF spectrum changes its form from three lines to a single line. This resembles the properties of a damped harmonic system. Here, however, the transition is driven by the switching rate of the noise instead of the damping magnitude, with the cases of slow and fast noise corresponding to the underdamped and overdamped regimes, respectively. According to equations (25a)–(25c), changing the laser detuning does not affect the spectral positions of the lines L_2 and L_3 (with respect to the fixed transition energy), while the lines L_0 and L_1 follow the frequency of the laser. The broadening of the spectral features, $|\text{Im } \omega_j|$, is presented in figure 3(b), where we set the instrumental broadening $\Gamma = 0$, keep the color coding from figure 3(a), and omit the L_0 peak that has zero width. It follows from equations (25a)–(25c) that the widths are independent of the mean detuning $\bar{\Delta}$. As follows directly from equation (25b), the resonant peak is broadened by 2β and becomes unbroadened (corresponding to purely elastic scattering) in the quasi-static limit. The side peaks are symmetric in the slow switching regime, with the broadening decreasing to $\gamma/2$ in the quasi-static limit. In the fast regime, when they take the same spectral location, one of them is narrowing asymptotically as $\gamma/2 + O[(\Delta_0/\beta)^2]$, while the other one is broadening asymptotically as $2\beta + \gamma/2$.

Obviously, the peak positions and widths do not provide the complete information about the spectrum, as long as the intensities are not known. In order to fully analyze the spectra we evaluate $F(\omega)$ from equation (15) and plot the result in figure 4. We start the discussion with the excitation frequency located symmetrically, mid-way between the two positions of the fluctuating transition energy, i.e. $\bar{\Delta} = 0$. The



spectra for this case, for a few selected values of the switching rate β , are shown in figures 4(a) and (b) for slow and fast switching, respectively. As the switching rate grows, the form of the spectrum evolves from a single narrow line, via a triplet of broadened lines that eventually merge into a single line that subsequently narrows down. The quasi-static limit of $\beta \rightarrow 0$ (figure 4(a), black line) corresponds to the standard result for low-excitation RF from a two-level system, where the scattering spectrum consists exclusively of one narrow line at the spectral position of the laser [1]. Since the laser is detuned from both positions of the transition energy, the overall intensity is very weak. The subsequent evolution of the spectrum is consistent with the structure of the poles discussed above. The appearance of a single line in the fast switching regime can be interpreted again in terms of the averaging of the transition energy on time scales shorter than $1/\Delta_0$ and is therefore the counterpart of the effect observed in figure 2. As the averaged energy level is resonant with the laser, the scattering intensity considerably grows. The line width reduction when speeding up the noise dynamics follows from self-averaging of the fluctuations and is an example of the motional narrowing effect, by analogy to the narrowing of the nuclear magnetic resonance line for a particle that travels very fast through regions of spatially inhomogeneous magnetic field [48, 49].

A quantitative understanding of the spectra is possible by combining the information on peak positions and widths, presented in figure 3, with the peak intensities. The latter are extracted directly by evaluating the pre-factors of the Lorentzian terms in equation (16) and are shown, for $\bar{\Delta} = 0$, as a function of the switching rate in figures 4(c) and (d), where we split the result into the slow and fast noise regimes ($\beta < \Delta_0/2$ and $\beta > \Delta_0/2$). Although the spectrum is always positive, its decomposition into individual peaks is to some extent artificial and some of the components defined in this way may have negative amplitudes if the peaks overlap. Therefore, in some cases we group a few lines that have the same position or the same physical nature and show only the sum of their intensities, so that the presented intensities are positive. For $\beta \ll \Delta_0$ the total scattering intensity is dominated by the nominally broadened contribution L_1 . However, as discussed above, in the limit of $\beta \rightarrow 0$ its width decreases to zero, hence the fully elastic scattering is recovered in the static limit. On the other hand, for $\beta \gg \Delta_0$ total intensity reaches the value characteristic of resonant scattering (figure 4(d), purple line) and is dominated by the elastic contribution L_0 (blue line), which is consistent with the resonance with the averaged transition energy, leading again to the situation known from a two level system at resonance [1]. The exact limiting values of the intensities of all the spectral components are collected in table 1.

We now turn to the case when the laser is tuned to one of the two possible transition frequencies, $\bar{\Delta} = \Delta_0/2$. Figures 4(e) and (f) show the RF spectrum in this case for $\beta < \Delta_0/2$ and $\beta \geq \Delta_0/2$, respectively. In the quasi-static regime we again observe a single sharp line at laser frequency, but now the intensity is much larger than for $\bar{\Delta} = 0$ (figure 4(e), black line). As the switching rate grows, this line is accompanied by two broadened lines, that initially appear around the transition energies (one of which now coincides with the laser frequency) and then merge around the central spectral position to disappear again for $\beta \gg \Delta_0$ (figure 4(f), blue line). The position of the broadened features is the same as in the previous case (figures 4(a) and (b)) with respect to the transition energies and the position of the sharp peak follows the laser frequency, while the overall intensity now decreases as the switching rate grows. In this case the laser is tuned to

Table 1. The limiting values of the intensities of the RF spectrum components in the static and ultrafast limit, for two spectral positions of the exciting laser.

	$\overline{\Delta} = 0$		$\overline{\Delta} = \Delta_0/2$	
	$\beta \rightarrow 0$	$\beta \rightarrow \infty$	$\beta \rightarrow 0$	$\beta \rightarrow \infty$
I_{tot}/I_0	$\frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \Delta_0^2}$	1	$\frac{\gamma^2 + 2\Delta_0^2}{\gamma^2 + 4\Delta_0^2}$	$\frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \Delta_0^2}$
I_{L0}/I_0	$\frac{\gamma^4}{(\gamma^2 + \Delta_0^2)^2}$	1	$\frac{\gamma^2 + \Delta_0^2}{\gamma^2 + 4\Delta_0^2}$	$\frac{\gamma^2}{\gamma^2 + \Delta_0^2}$
I_{L1}/I_0	$\frac{\gamma^2 \Delta_0^2}{(\gamma^2 + \Delta_0^2)^2}$	0	$\frac{\Delta_0^2}{\gamma^2 + 4\Delta_0^2}$	0
I_{L2}/I_0	0	0	0	0
I_{L3}/I_0	0	0	0	0

resonance with one of the transition energies, leading to strong scattering in the quasi-static case, which again reproduces the known result for resonant light scattering [1]. On the other hand, in the fast-switching regime, the averaged transition energy is detuned from the laser, hence in this motionally narrowed limit the spectrum corresponds to RF with strongly detuned excitation, showing a weak narrow line at the laser frequency (figure 4(f), blue line).

A quantitative analysis of the intensity of the spectral features contributing to the RF spectrum for $\overline{\Delta} = \Delta_0/2$ is shown in figure 4(g) ($\beta < \Delta_0/2$) and figure 4(h) ($\beta \geq \Delta_0/2$). In the slow switching regime, only the spectral lines at the laser position contribute, with L_2 of negligible intensity (see table 1) and L_1 becoming narrow, as discussed previously. Hence, the elastic scattering fully dominates, as expected for the quasi-static limit. However, the total RF intensity is now lower than the standard resonant scattering intensity I_0 (roughly by half), because the probability that the laser is resonant to the transition is now only 50%. For fast switching the intensities are consistent with the concept of detuned averaged transition energy, with elastic light scattering (I_0 contribution) dominating (figure 4(h), blue line) and low total intensity.

5.2.2. Asymmetric switching

In this section we extend our considerations to the case of asymmetric switching, that is, $\beta_{\uparrow} \neq \beta_{\downarrow}$, or $x \neq 0$. At the beginning we discuss the total scattering intensity I_{tot} , obtained numerically from equation (17) and now depending on the spectral position of the laser and on the degree of noise asymmetry, $x = (\beta_{\downarrow} - \beta_{\uparrow}) / (\beta_{\downarrow} + \beta_{\uparrow})$. Figure 5, analogous to figure 2, shows the impact of the asymmetry of the noise. As the preference for the upper position of the transition energy grows with increasing asymmetry, the spectrum gradually evolves into a single line at this spectral position. For slow noise, this happens via transferring the intensity to the right line, without changing the line positions. For fast noise, the position of the line shifts to the right without changing the intensity. As a complementary view on the same parameter dependence, figure 6 presents I_{tot} as a function of $\overline{\Delta}$ and x for several values of β . At low switching rates (figures 6(a) and (b)), the areas of high RF intensity extend around $\overline{\Delta} = \pm \Delta_0/2$, i.e. when the laser is tuned to one of the two randomly alternating spectral positions of the optical transition. As β increases (figures 6(c)–(e)), high intensity areas merge, forming finally one diagonal line (figure 6(f)). The intensity in the slow switching regime is a consequence of the quasi-static dynamics, with the two spectral positions of the transition occurring with the probabilities $p_{\pm} = (1 \pm x)/2$. Indeed, equation (23) is generalized in this case to

$$I_{\text{tot}}^{(\beta=0)}(\overline{\Delta}) = I_0 \left[p_{-} \frac{(\gamma/2)^2}{(\overline{\Delta} + \Delta_0/2)^2 + (\gamma/2)^2} + p_{+} \frac{(\gamma/2)^2}{(\overline{\Delta} - \Delta_0/2)^2 + (\gamma/2)^2} \right].$$

In the opposite limit of fast noise, the resonance appears at the averaged transition energy, where the average is now weighted by the probabilities $p_{\pm}$, leading to the averaged energy level of $x\Delta_0/2$. The total intensity in this limit is given by

$$I_{\text{tot}}^{(\beta \rightarrow \infty)}(\overline{\Delta}) = I_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\overline{\Delta} - x\Delta_0/2)^2 + (\gamma/2)^2},$$

with I_{tot} reaching its maximum for $\overline{\Delta} = x\Delta_0/2$.

We next analyze how the positions and widths of the spectral features change with noise asymmetry, parametrized by the parameter x . As follows from equations (25a) and (25b), the positions and widths of the two peaks L_0 and L_1 , located at the laser frequency, are independent of the asymmetry. The other two peaks

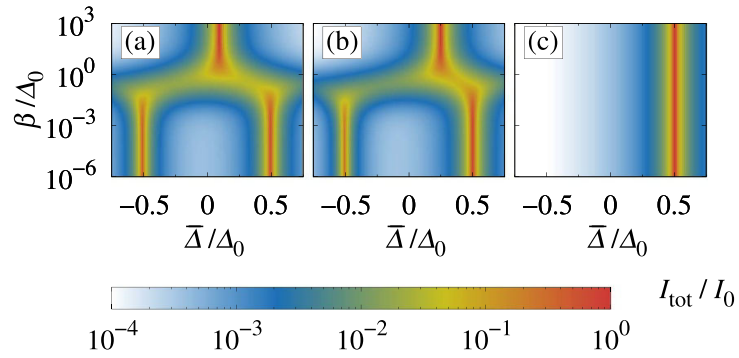


Figure 5. The total fluorescence intensity as a function of the average detuning and switching rate for a range of values of the degree of asymmetry of the noise: $x = 0.2$ (a), 0.5 (b) and 1 (c).

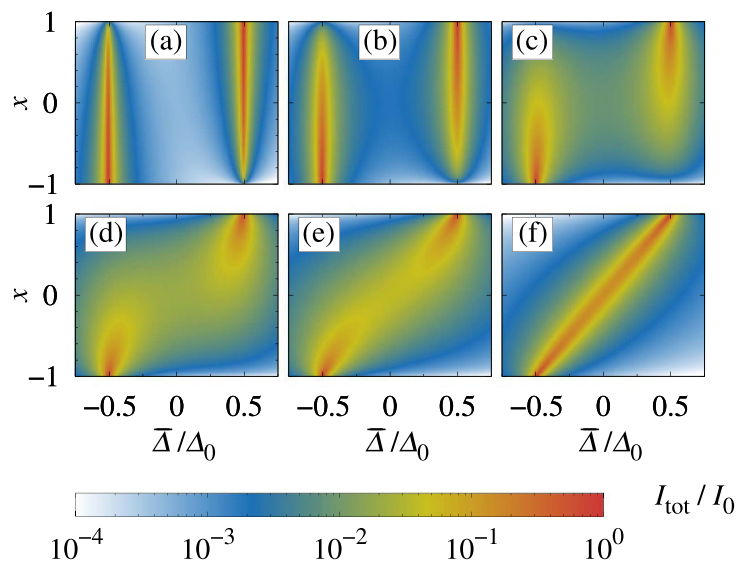


Figure 6. The total fluorescence intensity as a function of the average detuning and the degree of asymmetry of the noise for a range of values of the total switching rate: $\beta/\Delta_0 = 0.001$ (a), 0.02 (b), 0.1 (c), 0.25 (d), 0.5 (e) and 2 (f).

are represented in figure 3 with dashed and dotted lines for two values of the asymmetry parameter x . The spectral positions of these lines (figure 3(a)) are again bound to the actual spectral positions of the transition at slow switching and converge towards the average frequency as the switching rate grows. However, contrary to the case of symmetric switching, they do not overlap completely but remain separated by a splitting proportional to the asymmetry parameter x . Indeed, from equation (25c) one finds for $\beta \gg \Delta_0$ the peak positions $\omega_{2,3} = \omega_L - \bar{\Delta} \pm |x|\Delta_0/2$. The widths of the peaks L_2 and L_3 are shown with dashed and dotted lines in figure 3(b) with $\Gamma = 0$. The asymptotics of the width of the peaks L_2 and L_3 for very slow and very fast noise is the same as in the symmetric case but the behavior at intermediate switching rates is different. For small asymmetry of the noise (dashed lines) the widths evolve with β in a way similar to the symmetric case. As x grows (dotted lines), the picture changes considerably and one of these lines attains the broadening close to 2β , while the other remains narrow in the whole range of β .

Figure 7 presents RF spectra for various values of the laser detuning $\bar{\Delta}$, noise switching rate β , and noise asymmetry x . Each panel corresponds to a certain choice of $\bar{\Delta}$ and β , and compares the spectrum obtained in the presence of symmetric noise (black lines) with spectra at asymmetric noise (green and blue lines), showing how the intensities and positions of the spectral features evolve with asymmetry. In general, as the asymmetry grows to the limiting values of $x = \pm 1$, the static limit is achieved irrespective of the switching rate β , so that the spectrum evolves towards a single narrow line at the spectral position of the laser. Figures 7(a) and (b) show how this happens for the central spectral position of the laser ($\bar{\Delta} = 0$). In this case the spectra are mirror-symmetric under the change of the sign of x , so only the results for $x > 0$ are shown. The initially symmetric first develops an asymmetry in favor of the most frequently visited spectral position, followed by the decay of the side peaks. As discussed previously, for slow noise, figure 7(a), the overall

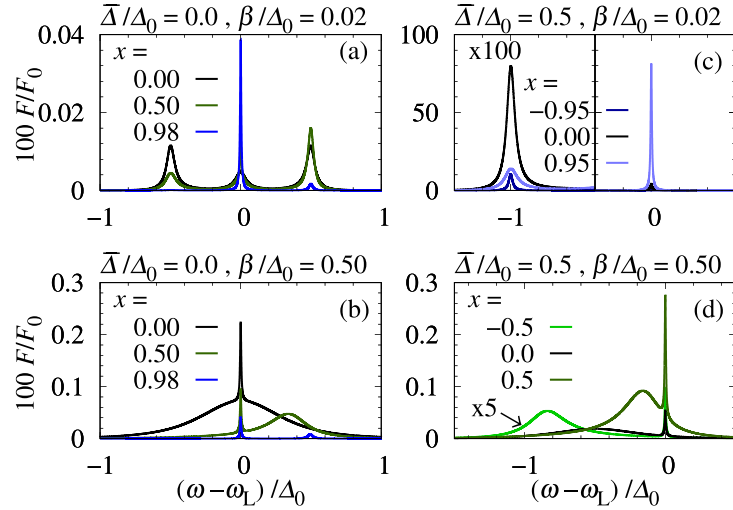


Figure 7. The dependence of the RF spectrum on the asymmetry of the noise. Panels (a) and (b) show the spectra for $\bar{\Delta}/\Delta_0 = 0$ in the case of slow noise, $\beta/\Delta_0 = 0.02$, and moderately fast noise, $\beta/\Delta_0 = 0.5$, respectively. Panels (c) and (d) present the spectra for $\bar{\Delta} = \Delta_0/2$, for the same two noise rates. The lines on each panel correspond to various values of the asymmetry parameter x as shown.

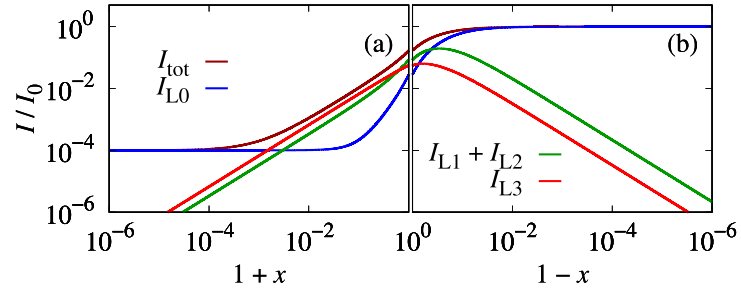


Figure 8. RF intensity dependence on x for $\bar{\Delta} = \Delta_0/2$ and $\beta/\Delta_0 = 0.02$. (a) $x < 0$ ($\beta_{\uparrow} > \beta_{\downarrow}$); (b) $x > 0$ ($\beta_{\uparrow} < \beta_{\downarrow}$).

scattering intensity in the symmetric case is low, as the excitation is detuned from the two spectral positions of the laser, while for faster noise, figure 7(b), the intensity is larger as the role of the averaged spectral position increases. However, in the limit of $x = \pm 1$ the noise rate becomes irrelevant and the spectra must converge to the same limit. Hence, the intensity of the central elastic line increases in the former case and decreases in the latter. In figure 7(c) we show the spectra for the excitation tuned to the upper spectral position of the transition ($\bar{\Delta} = \Delta_0/2$) and for slow noise ($\beta/\Delta_0 = 0.02$). The spectrum is dominated by the spectral line at the position of the laser (composed of the lines L_0 , L_1 and L_2) that gains considerable intensity as x evolves towards $+1$, which means that the excitation becomes resonant with an increasing probability. The other spectral feature (line L_3) is enabled dynamically and is always very weak when the noise dynamics is slow (here we magnify it by a factor of 100). It has to vanish at $x \rightarrow \pm 1$ and reaches a maximum intensity at x near 0. As can be deduced from equation (25c), the position of this line very weakly depends on x when β is small. The scattering spectrum for the same spectral position of the laser but faster noise ($\beta/\Delta_0 = 0.5$) is shown in figure 7(d). Here not only the intensity but also the position of the off-resonant peak changes, in accordance with equation (25c). As follows from figure 6(e), the overall intensity in this case gradually increases as x changes from -1 to 1 , which is reflected in the spectra, both for the resonant and off-resonant peaks. Ultimately, in the static limit of $x \rightarrow 1$ (not shown), the intensity of the resonant lines increases by many orders of magnitude and the spectra in figures 7(c) and (d) reach the same form of a single, narrow, strong resonant line.

In figure 8 we analyze quantitatively the intensities of the individual spectral features as a function of the noise asymmetry parameter $x \in [-1, 1]$. We restrict our discussion to the excitation tuned to the upper spectral position of the transition, i.e. $\bar{\Delta} = \Delta_0/2$. For the sake of clarity of the presentation, we plot the results for $x < 0$ and $x > 0$ in a logarithmic scale in figures 8(a) and (b), respectively, which reveals power-law dependence as a function of $1 - |x|$ as x approaches its limiting values. In the quasi-static limit of $x \rightarrow \pm 1$, elastic light scattering (L_0 spectral line) dominates, as discussed above (blue line in figure 8). Obviously the

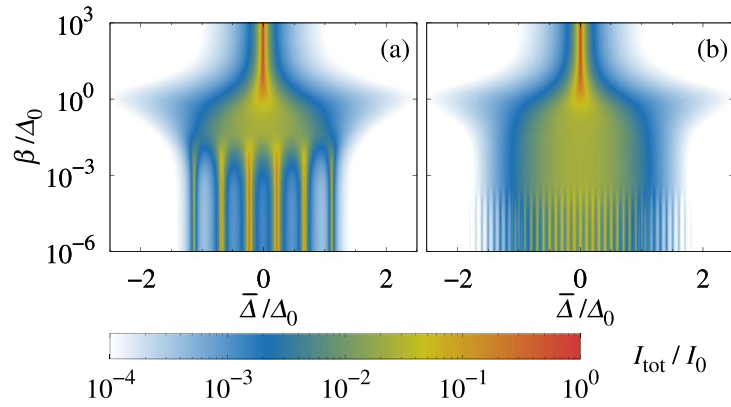


Figure 9. Total RF intensity for N identical noise sources as a function of mean detuning for $\beta_{\uparrow} = \beta_{\downarrow} = \beta$. (a) $N = 5$; (b) $N = 100$.

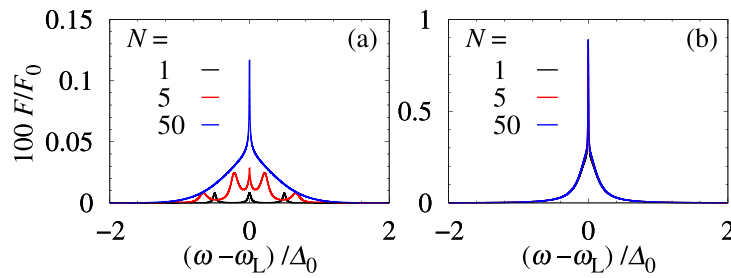


Figure 10. RF spectrum for different numbers of noise sources at $\bar{\Delta} = 0$. (a) $\beta/\Delta_0 = 0.01$; (b) $\beta/\Delta_0 = 1$.

intensity of scattering differs by orders of magnitude in these two limits, as they correspond to strongly detuned and resonant excitation, respectively. In particular, $I_{\text{tot}} \rightarrow I_0$ when $x \rightarrow 1$ (figure 8(b)). In a wide range of intermediate values of noise asymmetry, the noise-induced inelastic scattering dominates (red and green lines in figure 8). The inelastic side line (L_3 , red line in figure 8) has its maximum for a slightly asymmetric noise.

5.3. N -source telegraph noise

In this section we present the results for a system subject to noise originating from N identical additive sources, restricting the discussion to symmetric switching. The total scattering intensity as a function of the spectral position of the laser is shown in figure 9 for $N = 5$ and $N = 100$. These results were calculated by numerical evaluation of equation (17). In the slow-switching regime, when scanning the laser frequency, we observe $N + 1$ resonant frequencies (see figure 9(a)). For large N , these resonances form a broad spectral feature, with the maximum intensity for the laser tuned centrally ($\bar{\Delta} = 0$) (figure 9(b)). As the switching rate grows, the resonances merge into a single motionally narrowed line. The appearance of multiple resonances in the slow-noise regime is obviously related to the $N + 1$ positions of the transition energies in this case. In the quasi-static limit ($\beta \rightarrow 0$), the matrix B becomes diagonal and equation (17) trivially yields a series of Lorentzian features weighted by the probabilities $p^{(\text{st})}$ that follow the binomial distribution according to equation (21). As a result, the envelope of these resonances forms an approximately Gaussian line (by virtue of the standard Gaussian approximation of the binomial distribution) with a width of Δ_0 , which is a consequence of our choice to renormalize the noise amplitudes by $\sqrt{N}$ in equation (19). For $\beta \gg \Delta_0$ the resonances merge, like in the previously discussed case of $N = 1$, forming a single narrow Lorentzian resonance at the average transition energy.

The RF spectrum for different number of noise sources, calculated numerically from equation (15), is shown in figure 10. For slow switching and small N , the RF spectrum has $N + 1$ visible side peaks and the central peak (figure 10(a), black and red line). As N increases, the side peaks start to overlap and form a broad feature centered at the laser frequency (blue line in figure 10(a)). At $N = 50$ the spectrum has reached its asymptotic form and does not change when the number of sources is increased further (which is again due to the normalization of noise amplitudes assumed here). In the fast noise regime, the side peaks are merged into a single feature, as in the previously discussed case of a single source, and there is no visible

dependence on N (figure 10(b)). The central feature corresponds to the first term in equation (16) and is composed of $N + 1$ Lorentzians localized at the laser frequency with widths $2n\beta$, where $n = 0, 1, 2, \dots, N$. In the slow-switching regime, the remaining part of equation (16) yields $N + 1$ Lorentzian side peaks with an approximately Gaussian envelope at small β . As in the single-source case, they can be related to the spectral positions of the transition energy resulting from the states of the noise sources. For $\beta \approx \Delta_0$ the spectrum is restructured and all peaks are localized at the laser frequency.

6. Conclusions

In this paper we have studied RF from a two-level system subject to classical external noise that leads to fluctuations of the transition energy. We have formulated the general theory of the RF spectrum in the low-excitation regime in the presence of noise that can be described as a stationary Markovian random process on a finite state space, which can approximate an even wider class of Markovian processes. We have also described the RF spectrum under uncorrelated noise leading to phase diffusion. Our theory relates the light scattering spectrum to the formal characteristic of the stochastic noise process.

We have applied our theory to the cases of a single two-state noise source (random TN) and an arbitrary number of identical sources, where many characteristics can be extracted in an analytical form. Our results show essential differences not only between the phase diffusion and random-telegraph-like processes but also between the regimes of slow and fast dynamics of the random TN. Most remarkably, the RF spectrum changes its form from multiple spectral features or a broad Gaussian feature (depending on the number of noise sources) to a single motionally narrowed line as the noise dynamics gets faster. In this way, we have demonstrated that light scattering on a two-level system in a noisy environment can yield information on the character of the noise processes experienced by the system.

These findings may be useful in particular for interpreting experiments on the inherently noisy solid-state systems, where RF finds a constantly growing range of applications. In these systems, the typical lifetimes γ^{-1} are in the nanosecond range, setting the limit on the field amplitudes for which our low-excitation theory is valid ($\Omega \ll \gamma$). The noise induced by electrical or spin environment [22, 24, 25], is typically slow compared to the dynamical time scales of the system. On the other hand, a carefully designed optical experiment [23] shows the coexistence of slow (nanosecond time scale) noise with a fast noise component, on picosecond or shorter time scales, which may be due to lattice vibrations. This might open the path to direct verification of our theory. One must note, however, that the transition between the slow and fast regimes in our theory is controlled by the ratio of the noise dynamical rate β and noise amplitude Δ_0 . The former is an inherent feature of the noisy environment, why the latter may only be modified by engineering the coupling between the emitter and the environment. It may therefore turn out that the most straightforward way to validate the theory would be to use artificially generated mechanical noise, taking advantage of the high flexibility of mechanical signal generation and controllability of the acoustic coupling to solid-state emitters [26, 27].

Data availability statement

All data that support the findings of this study are included within the article (and any supplementary files).

Acknowledgments

This work was supported by the Polish National Science Centre (NCN) under Grant No. 2016/23/G/ST3/04324.

Appendix. Averaging over the random process

In this appendix we present the technical details of the averaging in equation (13). We start from the basic formula for averaging an arbitrary function of the process state at a finite set of time instants,

$$\overline{f(\Delta(t_1), \dots, \Delta(t_n))} = \sum_{j_1=1}^k \dots \sum_{j_n=1}^k p_{j_n, j_{n-1}}(t_n - t_{n-1}) p_{j_2, j_1}(t_2 - t_1) p_{j_1}^{(\text{st})} f(\Delta_{j_1}, \dots, \Delta_{j_n}). \quad (\text{A.1})$$

Here we take advantage of the fact that the process is Markovian and stationary, hence the joint probability can be written as a chain of conditional (transition) probabilities with the initial probability distribution assumed to be the stationary probability distribution of the system and the transition probabilities depending only on the time difference.

To find expectation values of exponential terms, $\overline{e^{i\Phi(t_d, t_c) + i\eta\Phi(t_b, t_a)}}$, $\eta = \pm 1$ we divide the time intervals (t_a, t_b) and (t_c, t_d) into N and N' pieces, respectively. Then

$$\overline{e^{i\Phi(t_d, t_c) + i\eta\Phi(t_b, t_a)}} = \lim_{N, N' \rightarrow \infty} \overline{e^{i\delta s' \sum_{l=0}^{N'} \Delta(t'_l) + i\eta \delta s \sum_{j=1}^N \Delta(t_j)}}, \quad (\text{A.2})$$

where $N\delta s = t_b - t_a$, $N'\delta s' = t_d - t_c$, $t_j = t_a + (j - \frac{1}{2})\delta s$, and $t'_l = t_c + (l - \frac{1}{2})\delta s'$. Upon using equation (A.1), one gets

$$\begin{aligned} \overline{e^{i\Phi(t_d, t_c) + i\eta\Phi(t_b, t_a)}} &= \lim_{N \rightarrow \infty} \lim_{N' \rightarrow \infty} \sum_{l_{N'}=1}^k \dots \sum_{l_1=1}^k \sum_{j_N=1}^k \dots \sum_{j_1=1}^k q_{l_{N'}, l_{N'-1}}^{(1)}(\delta s') \dots q_{l_2, l_1}^{(1)}(\delta s') e^{i\delta s' x_{l_1}} \\ &\times p_{l_1, j_N} \left(t_c - t_b + \frac{\delta s}{2} + \frac{\delta s'}{2} \right) q_{j_N, j_{N-1}}^{(\eta)}(\delta s) \dots q_{j_2, j_1}^{(\eta)}(\delta s) e^{i\eta \delta s x_{j_1}} p_{j_1}^{(\text{st})}, \end{aligned}$$

where $q_{l,j}^{(\eta)}(\Delta t) = e^{i\eta x_l \Delta t} p_{l,j}(\Delta t)$. This formula can be rewritten in terms of a product of transition matrices P_τ and $k \times k$ matrices $Q(\tau)$ with matrix elements $q_{l,j}^{(\eta)}(\tau)$,

$$\overline{e^{i\Phi(t_d, t_c) + i\eta\Phi(t_b, t_a)}} = \lim_{N, N' \rightarrow \infty} (1, \dots, 1) [Q(\delta s')]^{N'-1} e^{i\delta s' x_{l_1}} P_{t_c - t_b + \frac{\delta s}{2} + \frac{\delta s'}{2}} [Q^*(\delta s)]^{N-1} e^{i\eta \delta s x_{j_1}} p^{(\text{st})}. \quad (\text{A.3})$$

Keeping in mind that $\delta s \sim 1/N$ and $\delta s' \sim 1/N'$ we have

$$\lim_{N' \rightarrow \infty} e^{i\delta s' x_{l_1}} = \lim_{N' \rightarrow \infty} e^{i\eta \delta s x_{j_1}} = 1, \quad (\text{A.4})$$

and

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \lim_{N' \rightarrow \infty} P_{t_c - t_b + \frac{\delta s}{2} + \frac{\delta s'}{2}} = P_{t_c - t_b}. \quad (\text{A.5})$$

We write $Q(\delta t) = \mathbb{I} + B\delta t + O(\delta t^2)$. Only terms up to the linear order survive in the limit $N, N' \rightarrow \infty$. For $\delta t = t/N$ we then obtain

$$\lim_{N \rightarrow \infty} [Q(\delta t)]^{N-1} = \lim_{N \rightarrow \infty} \left(\mathbb{I} + B \frac{t}{N} \right)^N = e^{Bt}. \quad (\text{A.6})$$

With the use of equations (A.4), (A.5), and equations (A.6), (A.3) takes the form

$$\overline{e^{i\Phi(t_d, t_c) \pm i\Phi(t_b, t_a)}} = (1 \dots 1) e^{B(t_d - t_c)} P_{t_c - t_b} e^{B^{(*)}(t_b - t_a)} p^{(\text{st})},$$

where the conjugation in the last term corresponds to the ‘-’ sign on the left-hand side.

ORCID iDs

Rafał A Bogaczewicz  <https://orcid.org/0000-0001-7148-5250>

Paweł Machnikowski  <https://orcid.org/0000-0003-0349-1725>

References

- [1] Scully M O and Zubairy M S 1997 *Quantum Optics* (Cambridge University Press)
- [2] Meystre P and Sargent M 2007 *Elements of Quantum Optics* (Springer)
- [3] Coope D F, Cannell L E and Brussel M K 1977 *Phys. Rev. C* **15** 1977–86
- [4] Wu F Y, Grove R E and Ezekiel S 1975 *Phys. Rev. Lett.* **35** 1426–9
- [5] Diedrich F and Walther H 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 203–6
- [6] Kimble H J, Dagenais M and Mandel L 1977 *Phys. Rev. Lett.* **39** 691–5
- [7] Dunlap R A 2019 *The Mössbauer Effect* (Morgan & Claypool Publishers)
- [8] Muller A, Flagg E B, Bianucci P, Wang X Y, Deppe D G, Ma W, Zhang J, Salamo G J, Xiao M and Shih C K 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 187402
- [9] Wrigge G, Gerhardt I, Hwang J, Zumofen G and Sandoghdar V 2008 *Nat. Phys.* **4** 60–66
- [10] Vamivakas A N, Lu C Y, Matthiesen C, Zhao Y, Fält S, Badolato A and Atatüre M 2010 *Nature* **467** 297–300
- [11] Delteil A, Gao W-B, Fallahi P, Miguel-Sanchez J and Imamoğlu A 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 116802
- [12] Yılmaz S T, Fallahi P and Imamoğlu A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 33601
- [13] Delley Y L, Kroner M, Faelt S, Wegscheider W and Imamoğlu A 2017 *Phys. Rev. B* **96** 241410
- [14] Schöll E *et al* 2019 *Nano Lett.* **19** 2404–10
- [15] Lu C Y, Zhao Y, Vamivakas A N, Matthiesen C, Fält S, Badolato A and Atatüre M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 035332
- [16] Vamivakas A N, Zhao Y, Lu C Y and Atatüre M 2009 *Nat. Phys.* **5** 198–202

- [17] Broome M A, Watson T F, Keith D, Gorman S K, House M G, Keizer J G, Hile S J, Baker W and Simmons M Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 46802
- [18] Astafiev O, Zagoskin A M, Abdumalikov A A, Pashkin Y A, Yamamoto T, Inomata K, Nakamura Y and Tsai J S 2010 *Science* **327** 840–3
- [19] Toyli D, Eddins A, Boutin S, Puri S, Hover D, Bolkhovsky V, Oliver W, Blais A and Siddiqi I 2016 *Phys. Rev. X* **6** 031004
- [20] Errando-Herranz C *et al* 2021 *ACS Photonics* **8** 1069–76
- [21] Mollow B R 1969 *Phys. Rev.* **188** 1969–75
- [22] Matthiesen C, Stanley M J, Hugues M, Clarke E and Atatüre M 2015 *Sci. Rep.* **4** 4911
- [23] Preuss J A, Groll D, Schmidt R, Hahn T, Machnikowski P, Bratschitsch R, Kuhn T, de Vasconcellos S M and Wigger D 2022 *Optica* **9** 522–31
- [24] Malein R N E, Santana T S, Zajac J M, Dada A C, Gauger E M, Petroff P M, Lim J Y, Song J D and Gerardot B D 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 257401
- [25] Kasprzak J, Wigger D, Hahn T, Jakubczyk T, Zinkiewicz L, Machnikowski P, Kuhn T, Motte J F and Pacuski W 2022 *ACS Photonics* **9** 1033–41
- [26] Wigger D, Weiß M, Lienhart M, Müller K, Finley J J, Kuhn T, Krenner H J and Machnikowski P 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 033197
- [27] Weiß M, Wigger D, Nägele M, Müller K, Finley J J, Kuhn T, Machnikowski P and Krenner H J 2021 *Optica* **8** 291
- [28] Axt V M, Kuhn T, Vagov A and Peeters F M 2005 *Phys. Rev. B* **72** 125309
- [29] Iles-Smith J, McCutcheon D P S, Nazir A and Mørk J 2017 *Nat. Photon.* **11** 521–6
- [30] Burshtein A I, Zharikov A A and Temkin S I 1988 *J. Phys. B* **21** 1907–31
- [31] Kofman A G, Zaibel R, Levine A M and Prior Y 1990 *Phys. Rev. A* **41** 6454–69
- [32] Zoller P and Ehlötzky F 1977 *J. Phys. B* **10** 3023–32
- [33] Georges A T and Dixit S N 1981 *Phys. Rev. A* **23** 2580–93
- [34] Eberly J H, Wódkiewicz K and Shore B W 1984 *Phys. Rev. A* **30** 2381–9
- [35] Avan P and Cohen-Tannoudji C 1977 *J. Phys. B* **10** 155–70
- [36] Chaturvedi S and Gardiner C W 1981 *J. Phys. B* **14** 1119–38
- [37] Rangwala A A, Wódkiewicz K and Su C 1990 *Phys. Rev. A* **42** 6651–9
- [38] Ahn K J, Förstner J and Knorr A 2005 *Phys. Rev. B* **71** 153309
- [39] Flagg E B, Robertson J W, Founta S, Ma W, Xiao M, Salamo G J and Shih C K 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 097402
- [40] Vemuri G 2001 *J. Chem. Phys.* **115** 9912–22
- [41] Cai X 2020 *Sci. Rep.* **10** 88
- [42] Ke S S and Li G X 2005 *J. Mod. Opt.* **52** 2743–58
- [43] Green J C, Kemple M D and Vemuri G 2001 *J. Chem. Phys.* **115** 7364–74
- [44] Sakuldee F, Cywiński L and Vemuri G 2020 *Phys. Rev. A* **101** 012314
- [45] Farfurnik D, Singh H, Luo Z, Bracker A S, Carter S G, Pettit R M and Waks E 2023 *Nano Lett.* **23** 1781–6
- [46] Sung Y *et al* 2021 *Nat. Commun.* **12** 967
- [47] Barr R, Oda Y, Quiroz G, Clader B D and Norris L M 2022 *Phys. Rev. A* **106** 022425
- [48] Bloembergen N, Purcell E M and Pound R V 1948 *Phys. Rev.* **73** 679–712
- [49] Berthelot A, Favero I, Cassaboïs G, Voisin C, Delalande C, Roussignol P, Ferreira R and Gérard J M 2006 *Nat. Phys.* **2** 759–64

Precision of the acoustic control of single-photon scattering with semiconductor quantum dots

RAFAŁ A. BOGACZEWICZ  AND PAWEŁ MACHNIKOWSKI* 

Institute of Theoretical Physics, Wrocław University of Science and Technology, Wrocław 50-370, Poland

*pawel.machnikowski@pwr.edu.pl

Received 18 September 2024; revised 15 November 2024; accepted 15 December 2024; posted 16 December 2024; published 24 January 2025

Acoustic modulation of quantum dots (QDs) allows one to control the scattering of photons. Here we theoretically characterize the degree of this acoustic control in the frequency domain. We formulate the theory of low-intensity resonance fluorescence (RF) in the presence of white noise and show that a high level of control is achievable with a two-tone acoustic field for appropriate settings of modulation amplitudes as long as the noise-induced phase diffusion coefficient remains one order of magnitude smaller than the acoustic frequency. In addition, using a quantitative model of optical signal collection, we determine that the acoustic phase must be stable over 10^4 to 10^5 acoustic periods for efficient control.

Published by Optica Publishing Group under the terms of the [Creative Commons Attribution 4.0 License](#). Further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the published article's title, journal citation, and DOI.

<https://doi.org/10.1364/OL.539414>

Introduction. Resonance fluorescence (RF), which gives rise to non-classical light with special coherence properties [1,2], has recently found applications in solid-state systems [3–6]. Modulation of a quantum emitter offers additional control of the light scattering process [7–9]. In the resolved sideband regime [10,11], the RF spectrum of a weakly optically excited and acoustically modulated semiconductor quantum dot (QD) contains the usual central line, located at the laser frequency [12], and a series of sidebands induced by modulation. The scattered photons are antibunched [11,13], indicating the single-photon nature of the scattering.

Surface acoustic wave (SAW) mixing has been shown to provide precise control over the scattering of photons to a particular frequency channel [13], as well as in the time domain [14]. Two-tone acoustic driving leads to quantum interference of different pathways to a given scattering process that involves the two acoustic harmonics in various combinations. This interference is governed by the relative phase between the two acoustic waves, which allows one to control the probability of photon scattering to a given frequency sideband [13]. A theoretical description has been extended to quantum acoustic modes [15,16], which opens up a perspective for the implementation of frequency- and time-bin encoding [17,18], quantum multiplexing [19], or quantum acousto-optic transduction [20]. Short wavelengths of

acoustic waves in the GHz frequency range make them perfect candidates for miniaturized devices that may lay the ground for on-chip acousto-optic quantum hybrid systems [21,22].

Whether this acoustic control can be exploited in quantum applications depends, to a large extent, on the resilience of the observed coherent acousto-optic features against external noise that leads to random fluctuations of the transition energy. In addition, in view of the finite time required to collect the optical signal originating from a single quantum emitter, phase stability of the control fields becomes crucial.

In this paper, we theoretically analyze the achievable degree of control (DOC) of photon scattering by coherent acoustic modulation of a QD. We develop a model of low-excitation RF of a periodically modulated two-level system in the presence of white noise. This allows us to determine the scattering spectrum and to show that the relative contrast of phase-dependent intensity oscillations at the optimal setting of modulation parameters is weakly affected by noise as long as the strength of the latter remains well below the acoustic frequency. Finally, we set the minimum requirements for the stability of the acoustic frequency in these coherent acousto-optic processes.

Model. We consider a self-assembled semiconductor QD resonantly driven by a weak, monochromatic laser field. The scattered photons are collected and their time-integrated spectrum is determined [13]. The QD transition energy is modulated by a SAW via deformation-potential coupling to crystal strain and is subject to random environmental noise. Our general model can be applied, e.g., to a typical InGaAs QD with several meV separation between the fundamental transition addressed here and excited levels and the exciton lifetime of 1 ns. The doublet of optically active transitions can be resolved by light polarization, leading to an effectively two-level system. Typical acoustic frequencies used in experiments are in the range of hundreds of MHz. In view of the relatively slow acoustic modulation and exciton decay, we assume a Gaussian noise with a negligible correlation time, i.e., white noise. This model corresponds to the short-memory limit of a bath of oscillators with Ohmic spectral density, as well as to a sum of a large number of fast telegraph noise sources, such as charge traps typical for solid-state environments [23,24] (see [Supplement 1](#)). An approximation of such a process could also, in principle, be generated artificially using radio frequency electronics. As a rough measure of typical noise strengths, one could take the fluctuation-induced single-QD linewidths, which are on the order of 10 GHz [25].

We model the QD as a two-level system with energy eigenstates $|0\rangle$ and $|1\rangle$ and transition energy $\hbar\omega_0(t)$, where the time dependence results from SAW modulation and noise:

$$\omega_0(t) = \bar{\omega}_0 + \Delta\omega_{ac}(t) + \Delta\omega_{ns}(t), \quad (1)$$

where $\bar{\omega}_0$ is the unperturbed transition energy, whereas $\Delta\omega_{ac}(t)$ and $\Delta\omega_{ns}(t)$ denote acoustic modulation and noise contributions, respectively, both with zero average. We assume that $\Delta\omega_{ac}(t)$ is periodic with fundamental frequency ω_A . The system undergoes spontaneous emission with the rate γ .

The evolution is found by iteratively solving the Lindblad equation for the density matrix up to the second order in the Rabi frequency, following Refs. [13,14]. The detector response is described by the autocorrelation function $G(t_1, t_2) = \langle \sigma_+(t_1)\sigma_-(t_2) \rangle$, which is calculated using the quantum regression theorem [14,26]. In the leading order in the field amplitude (Ω^2), it reads for $t_2 > t_1$ [13]:

$$G(t_1, t_2) = \frac{\Omega^2}{4} \int_{-\infty}^{\infty} du e^{-(\frac{\gamma}{2} + i\bar{\Delta})u} e^{-i\Phi_{ac}(t_1, t_1 - u)} \times \int_{-\infty}^{\infty} du' e^{-(\frac{\gamma}{2} - i\bar{\Delta})u'} e^{i\Phi_{ac}(t_2, t_2 - u')} \mathcal{D}(u, u', t_2 - t_1), \quad (2)$$

where $\Phi_{ac}(t_2, t_1) = \int_{t_1}^{t_2} \Delta\omega_{ac}(s)ds$ is the deterministic contribution to the accumulated phase, $\bar{\Delta} = \omega_L - \bar{\omega}_0$, with ω_L denoting the laser frequency, and

$$\mathcal{D}(u, u', \tau) = \overline{e^{i\Phi_{ns}(0, -u) - i\Phi_{ns}(\tau, \tau - u')}} \theta(u) \theta(u') \quad (3)$$

encodes the complete information about the noise, which is assumed stationary, with $\Phi_{ns}(t_2, t_1) = \int_{t_1}^{t_2} \Delta\omega_{ns}(s)ds$, $\theta(u)$ denoting the Heaviside step function and the bar representing averaging over noise realizations. Note that $\Phi_{ac}(t_2, t_1)$ is periodic in both arguments.

White noise leads to phase diffusion described by a Gaussian distribution for $\Phi_{ns}(t_2, t_1)$ with variance $2D(t_2 - t_1)$, $t_2 > t_1$, where D is the diffusion coefficient related to the noise strength, $\langle \omega_{ns}(t)\omega_{ns}(t + \tau) \rangle = 2D\delta(\tau)$. For $\tau > 0$, we obtain (see Supplement 1) $D(u, u', \tau) = \mathcal{D}_{el}(u, u', \tau) + \mathcal{D}_{inel}(u, u', \tau)$, where

$$\mathcal{D}_{el}(u, u', \tau) = e^{-D(u+u')\tau} \theta(u) \theta(u') \quad (4)$$

and

$$\mathcal{D}_{inel}(u, u', \tau) = e^{-D\tau} \theta(u) \theta(u' - \tau) \times [e^{-D|u+\tau-u'|} - e^{-D(u+u'-\tau)}]. \quad (5)$$

$\mathcal{D}_{el}$ does not depend on τ , resulting in a periodic autocorrelation function that leads to a series of unbroadened spectral features. We refer to this contribution as elastic because the narrow (laser-limited) lines mean no energy exchange with the environment. $\mathcal{D}_{inel}$ is damped in τ , leading to broadened spectral lines, corresponding to inelastic scattering, in which the scattered photon loses or gains some energy. This contribution vanishes as $D \rightarrow 0$; hence, it is fully due to noise.

Substituting Eqs. (4) and (5) to Eq. (2), one gets the corresponding elastic and inelastic contributions to the autocorrelation function. A function periodic in its two arguments is also periodic in their sum and difference. We can therefore define functions $\phi_n(u)$ through the following expansion:

$$e^{i\Phi_{ac}(t-u', t-u)} = \sum_n \phi_n(u - u') e^{in\omega_A(t - \frac{u+u'}{2})}. \quad (6)$$

For the elastic term, we then immediately find the following:

$$G_{el}(t_1, t_2) = \frac{\Omega^2}{\gamma^2} \sum_{nm} c_n c_m^* e^{i\omega_A(nt_1 - mt_2)}, \quad t_2 > t_1, \quad (7)$$

where

$$c_n = \frac{\gamma}{2} \int_0^\infty du e^{-(\gamma/2 + D + i\bar{\Delta})u} e^{-in\omega_A u/2} \phi_n(u). \quad (8)$$

The inelastic part can be written in the following form (see Supplement 1):

$$G_{inel}(t_1, t_2) = \frac{\Omega^2}{2\gamma^2} e^{-(\gamma/2 + D - i\bar{\Delta})(t_2 - t_1)} \times \sum_{nmk} b_m^* b_{n-k} d_k e^{i\omega_A(nt_1 - mt_2)}, \quad t_2 > t_1, \quad (9)$$

where b_n are the coefficients of the Fourier expansion:

$$e^{-i\Phi_{ac}(t_2, t_1)} = \sum_{nm} b_m^* b_n e^{i\omega_A(nt_1 - mt_2)} \quad (10)$$

and

$$d_n = \frac{2D\gamma}{(\gamma + D + in\omega_A)^2 - D^2} (c_n + c_{-n}^*). \quad (11)$$

Both components of the autocorrelation function, as functions of τ , are sums of purely exponential contributions. Consequently, the time-integrated RF spectrum, defined by

$$S(\omega) = \text{Re} \int_0^\infty d\tau e^{i(\omega - \omega_L)\tau} e^{-\Gamma\tau} \bar{G}(\tau), \quad (12)$$

where

$$\bar{G}(\tau) = \frac{\omega_A}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega_A} dt G(t, t + \tau), \quad (13)$$

has an elastic and inelastic part, both composed of a series of Lorentzians (explicit formulas are given in Supplement 1). The former is only broadened by the finite instrumental resolution Γ , which we have included in the model. The spectral features of the latter are not only broadened by $\gamma/2 + D$ but also shifted by $\bar{\Delta}$, i.e., from the spectral position related to the laser frequency to that bound to the unperturbed transition energy.

Results. We set $\gamma/\omega_A = 2\Gamma/\omega_A = 0.1$. RF spectra will be presented in natural units set by the maximum value of the spectrum for an unperturbed system without modulation under weak resonant excitation $S_0 = \Omega^2/(\gamma^2\Gamma)$ [12]. Similarly, the natural unit for the intensity is $I_0 = \pi\Omega^2/\gamma^2$, corresponding to the standard RF of an unperturbed weakly excited two-level system.

RF spectrum under harmonic modulation and noise. Substituting Eqs. (7) and (9) to Eqs. (13) and (12), we find the spectrum as a sum of Lorentzian contributions as well as dispersive terms in the inelastic component. We start with the case of harmonic modulation $\Delta\omega_{ac}(t) = A\omega_A \cos(\omega_A t)$. Then,

$$b_n^{(1)} = J_n(A), \quad \phi_n^{(1)}(u) = i^n J_n[2A \sin(\omega_A u/2)], \quad (14)$$

where J_n is the Bessel function of the first kind. From this, c_n and d_n are calculated numerically using Eqs. (8) and (11).

Figure 1 presents the RF spectra in this case for resonant (Fig. 1(a)) and slightly detuned (Fig. 1(b)) excitation for $A = 2$. In the absence of noise (blue lines), the spectrum consists of a series of lines separated from the laser frequency by an integer multiple of ω_A [13,14]. Upon including noise (orange and red lines), the intensities of these peaks change. In addition, an inelastic contribution appears at integer multiples of ω_A from

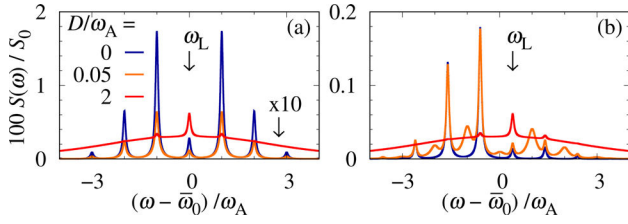


Fig. 1. RF spectrum for acoustically modulated QD with noise. Results for a single-SAW mode in case of (a) resonant excitation and for (b) $\omega_L = \bar{\omega}_0 + 0.4\omega_A$.

the unperturbed *transition* frequency, similar to the case without modulation [26]. This is particularly well visible in Fig. 1(b), where the laser is detuned by a fraction of acoustic frequency and the two line series appear at different frequencies. A similar inelastic contribution appears in the quantum regime, where the spectral jitter is modeled as pure dephasing [16]. While the elastic lines remain narrow, the width of the inelastic ones grows, as discussed above until, for a sufficiently strong noise, they merge into a broad feature that dominates the spectrum (red lines).

The intensity of an elastic line located at $\omega = \omega_L + p\omega_A$ is as follows:

$$I_{\text{el}}^{(p)} = I_0 |c_p|^2, \quad (15)$$

while for an inelastic contribution at $\omega = \bar{\omega}_0 + q\omega_A$, it is as follows:

$$I_{\text{inel}}^{(q)} = I_0 \text{Re} b_q^* \sum_k b_{q-k} d_k / 2. \quad (16)$$

Note that the latter can be interpreted as a line intensity only when $D \ll \omega_A$; otherwise, the lines lose their identity. The intensities of selected contributions are shown as functions of the phase diffusion coefficient D in Fig. 2, where the green lines correspond to the central line at resonant excitation, while the blue lines represent the intensities of the first sideband of the laser frequency and transition frequency for the elastic and inelastic contributions, respectively. Figures 2(a) and 2(b) correspond to the excitation conditions of Figs. 1(a) and 1(b), respectively. One can see that the intensities have a power-law asymptotic dependence on D . In the limit of vanishing noise, the intensities of the elastic lines (solid lines in Fig. 2) reach a finite value, corresponding to the $D \rightarrow 0$ limit of c_n . In this limit, the intensities of the inelastic lines vanish proportionally to D , as follows from Eq. (11), restoring the purely elastic scattering of the noise-free regime [13]. For strong noise ($D \gg \gamma, \omega_A, \bar{\Delta}$), all the intensities decrease with D . From Eq. (8), one finds $c_n \sim D^{-(n+1)}$ (see Supplement 1); hence, $I_{\text{el}}^{(p)} \sim D^{-2(p+1)}$. On the other hand, $d_k \sim D^{-(k+1)}$ and b_n are independent of D ; hence, the sum in Eq. (9) is dominated by the term containing d_0 and $I_{\text{inel}}^{(q)} \sim D^{-1}$

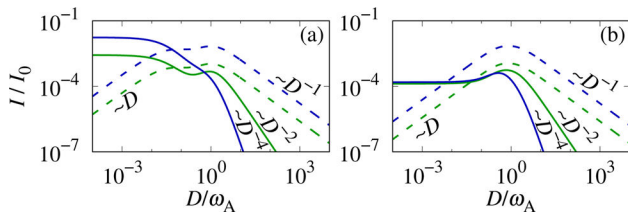


Fig. 2. Intensities of lines from elastic/inelastic series (solid/dashed lines) for $p = q = 0$ (green lines) and $p = q = 1$ (blue lines). (a) Resonant excitation; (b) $\omega_L = \bar{\omega}_0 + 0.4\omega_A$.

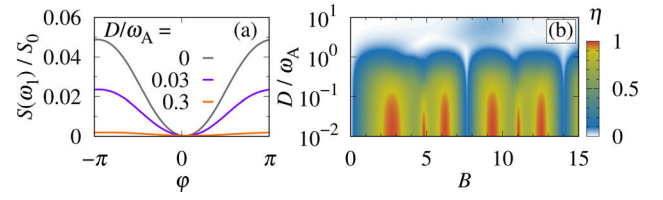


Fig. 3. (a) Scattering intensity at the spectral position of the first acoustic sideband for different noise strengths upon modulation with two commensurate harmonic acoustic waves, as a function of the relative phase between these acoustic harmonics. (b) Contrast of the phase dependence as a function of the amplitude B and the noise strength D . Here the QD is excited resonantly, $A = 1$, and $B = 2.76$ in (a).

for each q ; therefore, inelastic scattering dominates in the strong noise limit.

Two-tone acoustic control of photon scattering. In this section, we study the RF spectra in the presence of the acoustic modulation composed of two harmonics:

$$\Delta\omega_{\text{ac}}(t) = A\omega_A \cos(\omega_A t) + B\omega_A \cos(2\omega_A t + \varphi). \quad (17)$$

In the case of such a two-tone modulation, one finds the following:

$$b_n^{(2)} = \sum_k J_{n-2k}(A) J_k(B/2) e^{ik\varphi}, \quad (18)$$

$$\phi_n^{(2)}(u) = \sum_k i^{n-k} J_{n-2k} \left(2A \sin \frac{\omega_A u}{2} \right) J_k(B \sin \omega_A u) e^{ik\varphi}. \quad (19)$$

We will focus on the first acoustic sideband at $\omega = \omega_L + \omega_A$ under resonant excitation ($\omega_L = \bar{\omega}_0$). We will determine the scattering intensity $S(\omega_L + \omega_A)$, which corresponds directly to the number of detector counts for the spectral filter set at the first sideband.

We calculate the coefficients b_n and c_n numerically and obtain the spectrum from Eq. (12). The amplitude of the first sideband as a function of the relative phase φ is presented in Fig. 3(a) for different noise strengths D . Clearly, noise reduces the amplitude of phase-dependent oscillations of the scattering intensity, which is related to the overall intensity reduction discussed above.

As an intensity-independent figure of merit characterizing the DOC of the scattering intensity, we use the normalized contrast $\eta = (S_{\text{max}} - S_{\text{min}})/(S_{\text{max}} + S_{\text{min}})$, where S_{max} and S_{min} are the maximum and minimum scattering intensities as a function of the phase φ . This is shown in Fig. 3(b) as a function of the amplitude B and the noise strength D . The contrast approaches unity when the intensity for a certain phase is close to zero. Whether this happens depends on the interplay of various Fourier components in Eq. (19). In general, for the intensity to reach zero, at least two of these components must be of comparable order, which occurs at certain values of B , corresponding to the red areas in Fig. 3(b). The striking apparent periodicity of this picture as a function of B follows from the oscillating character of Bessel functions at large values of their argument. The direct dependence on $J_k(B/2)$ is explicit in Eq. (18), while in Eq. (19), it can be shown by appropriately transforming the formula (see Supplement 1). The detrimental effect of noise is stronger whenever high relative contrast is due to a very low value of S_{min} , which makes it more vulnerable to raising inelastic background.

Finally, we discuss the importance of the phase stability of the acoustic modulation for the efficient control of photon scattering. The optical signal from a single quantum emitter has

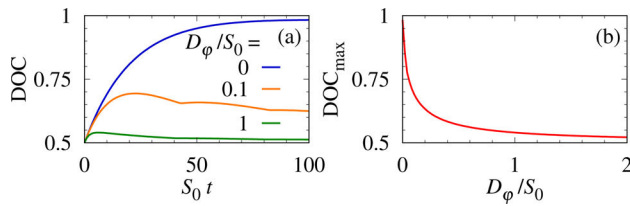


Fig. 4. Impact of the acoustic phase instability on the DOC of the phonon scattering at $B = 2.76$: (a) DOC as a function of the integration time. (b) Maximum achievable DOC.

to be integrated over a finite time to obtain meaningful results, and phase instability on this time scale affects the degree of the acoustic phase control of the scattering. As a figure of merit that captures both the accumulation of the physical signal in time and the phase perturbation, we propose DOC defines as follows, which quantifies the amount of phase information encoded in scattered photons: The phase is randomly set to the value that yields the maximum or minimum scattering rate to the first sideband. This setting is to be determined on the basis of the number of photons scattered during a time period t at the frequency of the first sideband. The DOC is equal to the probability of correctly determining the phase setting, with the value of $1/2$ corresponding to the null information (random guessing). The formal details are discussed in [Supplement 1](#). For simplicity, in this discussion, we assume that the background noise is absent.

In a perfectly phase-stable setup, the DOC increases as the signal is integrated in time, asymptotically reaching the value of the contrast η (blue line in Fig. 4(a)). With phase instability, which we model as a phase diffusion with the diffusion constant D_ϕ , the phase information initially grows as photons are collected but then starts to decay since the phase diffusion blurs the initial phase setting, suppressing the difference in the corresponding scattering rates (orange and green lines in Fig. 4(a)). As a result, the maximum achievable DOC decays very fast (see Fig. 4(b)). To give a rough estimate of the absolute numbers, $\Omega \sim 0.1\gamma$ to ensure weak coupling limit and $\Gamma \sim 0.1\omega_A$ to select the desired sideband. From Fig. 4(b), one can see that the D_ϕ must be one to two orders lower than $S_0 = \Omega^2/(\gamma^2\Gamma)$ for DOC close to 1. Therefore, $D_\phi \lesssim 10^{-4}\omega_A$, i.e., the acoustic phase must be stable over times four to five orders of magnitude longer than the acoustic period (assuming a perfect detector), which highlights the importance of the extremely high stability demonstrated in Ref. [13].

Conclusion. We have developed the theory of light scattering on a single quantum emitter with periodically modulated transition energy in the presence of external noise and phase instability of the modulation. By applying this theory to a semiconductor QD modulated by an acoustic field composed of two harmonics and subject to external white noise, we have shown that the achievable degree of acoustic control of the photon scattering in the spectral domain remains very high for appropriate settings of the modulation amplitudes and for noise amplitudes leading to phase diffusion coefficients well below the acoustic modulation frequency. We have also highlighted the importance of the acoustic phase stability over times four to five orders of magnitude longer than the modulation period.

Our results set the limits for controlling single-photon scattering by classical acoustic waves. In the future, they may offer a starting point for the analysis of quantum information transfer from mechanical to optical qubits in frequency-bin encoding. Natural extensions of our work would be to include noise processes with finite memory, in particular those with super-Ohmic spectral density that precludes a nontrivial short-time limit.

Funding. Narodowe Centrum Nauki (2023/50/A/ST3/00511); Alexander von Humboldt-Stiftung.

Acknowledgment. The authors thank Daniel Groll, Tilmann Kuhn, and Daniel Wigger for their fruitful discussions.

Disclosures. The authors declare no conflicts of interest.

Data availability. No data were generated or analyzed in the presented research.

Supplemental document. See [Supplement 1](#) for supporting content.

REFERENCES

1. J. Dalibard and S. Reynaud, *J. Phys.* **44**, 1337 (1983).
2. G. Nienhuis, *Phys. Rev. A* **47**, 510 (1993).
3. Y. L. Delley, M. Kroner, S. Faelt, *et al.*, *Phys. Rev. B* **96**, 241410 (2017).
4. A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 187402 (2007).
5. G. Wrigge, I. Gerhardt, J. Hwang, *et al.*, *Nat. Phys.* **4**, 60 (2008).
6. E. Schöll, L. Hanschke, L. Schweickert, *et al.*, *Nano Lett.* **19**, 2404 (2019).
7. R. Trivedi, A. White, S. Fan, *et al.*, *Phys. Rev. A* **102**, 033707 (2020).
8. D. Ilin, A. V. Poshakinskiy, A. N. Poddubny, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **130**, 023601 (2023).
9. R. A. DeCrescent, Z. Wang, J. T. Bush, *et al.*, *Optica* **11**, 1526 (2024).
10. M. Metcalfe, S. M. Carr, A. Muller, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 037401 (2010).
11. B. Villa, A. J. Bennett, D. J. P. Ellis, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 011103 (2017).
12. M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum Optics* (Cambridge University Press, 1997).
13. M. Weiß, D. Wigger, M. Nägele, *et al.*, *Optica* **8**, 291 (2021).
14. D. Wigger, M. Weiß, M. Lienhart, *et al.*, *Phys. Rev. Res.* **3**, 033197 (2021).
15. T. Hahn, D. Groll, H. J. Krenner, *et al.*, *AVS Quantum Sci.* **4**, 011403 (2022).
16. D. Groll, F. Paschen, P. Machnikowski, *et al.*, *Adv. Quantum Technol.* **1**, 2300153 (2023).
17. J.-W. Pan, Z.-B. Chen, C.-Y. Lu, *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 777 (2012).
18. H.-H. Lu, M. Liscidini, A. L. Gaeta, *et al.*, *Optica* **10**, 1655 (2023).
19. N. Lo Piparo, W. J. Munro, and K. Nemoto, *Phys. Rev. A* **99**, 022337 (2019).
20. K. Stannigel, P. Rabl, A. S. Sørensen, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 220501 (2010).
21. M. Weiß and H. J. Krenner, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 373001 (2018).
22. P. Delsing, A. N. Cleland, M. J. A. Schuetz, *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52**, 353001 (2019).
23. B. Freeman, J. Schoenfeld, and H. Jiang, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 253108 (2016).
24. A. V. Kuhlmann, J. Houel, A. Ludwig, *et al.*, *Nat. Phys.* **9**, 570 (2013).
25. K. Kuroda, T. Kuroda, K. Watanabe, *et al.*, *J. Lumin.* **130**, 2390 (2010).
26. R. A. Bogaczewicz and P. Machnikowski, *New J. Phys.* **25**, 093057 (2023).

Precision of the acoustic control of single-photon scattering with semiconductor quantum dots: supplement

RAFAŁ A. BOGACZEWICZ  **AND PAWEŁ MACHNIKOWSKI*** 

Institute of Theoretical Physics, Wrocław University of Science and Technology, Wrocław 50-370, Poland

**pawel.machnikowski@pwr.edu.pl*

This supplement published with Optica Publishing Group on 24 January 2025 by The Authors under the terms of the [Creative Commons Attribution 4.0 License](#) in the format provided by the authors and unedited. Further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the published article's title, journal citation, and DOI.

Supplement DOI: <https://doi.org/10.6084/m9.figshare.28121450>

Parent Article DOI: <https://doi.org/10.1364/OL.539414>

Precision of the acoustic control of single photon scattering with semiconductor quantum dots: supplemental document

This is the supplementary material for the article [Link].

CONTENTS

1	White noise as a limit of physical noise processes	1
2	Autocorrelation function	2
3	Noise function for white noise	3
4	Autocorrelation function: inelastic part	4
5	Explicit form of the resonance fluorescence spectrum	5
6	Two-tone and single-tone modulation; asymptotics in the strong-noise limit	5
7	Acoustic phase information in the scattering spectrum	6

1. WHITE NOISE AS A LIMIT OF PHYSICAL NOISE PROCESSES

We present here formal arguments that allow us to understand the white-noise model considered in the main text of the paper as a limiting case of certain noise processes of physical relevance.

Let us first consider the noise originating from a bath of oscillators in the classical limit. The oscillators are labeled by k and couple to our two-level system via coupling constants g_k , so that the random shift of the upper level energy is

$$\hbar\Delta\omega_{\text{ns}}(t) = 2\hbar \sum_k g_k (X_k \cos \omega_k t + Y_k \sin \omega_k t),$$

where the quadrature amplitudes X_k and Y_k are independent Gaussian random variables with zero mean and with the variance given by the equipartition of energy, $\sigma_k^2 = \hbar\omega_k / (2k_B T)$, where k_B is the Boltzmann constant and T is the temperature. The autocorrelation function of the fluctuations is then

$$\langle \Delta\omega_{\text{ns}}(t) \Delta\omega_{\text{ns}}(t') \rangle = \sum_k (2g_k \sigma_k)^2 \cos \omega_k(t - t') = \frac{k_B T}{\hbar} \int_0^\infty \frac{J(\omega)}{\omega} \cos \omega(t - t') = R(t - t'),$$

where we introduce the spectral density

$$J(\omega) = 4 \sum_k g_k^2 \delta(\omega_k - \omega).$$

For a broad and regular spectral density, the autocorrelation function $R(\tau)$ is short-lived. If it decays faster than any relevant dynamical time scales of the system (exciton decay and modulation in our case) then it may be approximated by a Dirac delta, giving rise to white noise with

$$\langle \Delta\omega_{\text{ns}}(t) \Delta\omega_{\text{ns}}(t + \tau) \rangle = 2D\delta(\tau)$$

with

$$D = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau R(\tau) = \pi \frac{k_B T}{\hbar} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{J(\omega)}{\omega}.$$

This is a well-defined limit for an Ohmic reservoir with $J(\omega) \propto \omega$. While such reservoirs are commonly studied and even “paradigmatic” in the theory of open quantum systems, the lattice

(phonon) reservoir in three dimensions is super-Ohmic and therefore remains outside the scope of the present study, even though it is indeed very fast (THz Debye or cut-off frequencies) compared to the time scales relevant here.

As a second, more specific class of noise processes, we consider a cumulative Stark shift due to a large number N of independent charge traps, quickly switching between their two charge states,

$$\Delta\omega_{\text{ns}}(t) = \sum_{k=1}^N f_k X_k,$$

where X_k now represent independent two-state Markovian telegraph processes with zero mean and unit variance, and f_k are coupling constants that may depend, e.g., on the distance between the system and the charge trap. We assume that all telegraph processes have the same switching statistics with $\langle X_k(t)X_k(t+\tau) \rangle = e^{-2\lambda\tau}$. Then

$$\langle \Delta\omega_{\text{ns}}(t)\Delta\omega_{\text{ns}}(t+\tau) \rangle = \sum_k f_k^2 e^{-2\lambda\tau}$$

and the process has a short memory if the switching rate λ is large. The limit of infinite number of processes is reached by the scaling $f_k = \tilde{f}_k/\sqrt{N}$ with fixed $\tilde{f}_k$ (like in the central limit theorem), so that the physically relevant variance of the energy fluctuations, $\sigma_\omega^2 = \langle [\Delta\omega_{\text{ns}}(t)]^2 \rangle = \sum_k f_k^2$ remains finite. The process is Gaussian if, for any finite sequence of real numbers $\{s_l\}$,

$$\left\langle e^{i\sum_l s_l \Delta\omega_{\text{ns}}(t_l)} \right\rangle = e^{-\sum_{lj} s_l \sigma_{lj} s_j},$$

where

$$\sigma_{lj} = \langle \Delta\omega_{\text{ns}}(t_l)\Delta\omega_{\text{ns}}(t_j) \rangle = \sigma_\omega^2 \langle X_k(t_l)X_k(t_j) \rangle$$

are the covariances of the process. For our process, using the independence of the telegraph contributions and expanding in Taylor series, one finds

$$\begin{aligned} \ln \left\langle e^{i\sum_l s_l \Delta\omega_{\text{ns}}(t_l)} \right\rangle &= \sum_k \ln \left[1 - \frac{1}{2N} \tilde{f}_k^2 \sum_{lj} s_l \langle X_k(t_l)X_k(t_j) \rangle s_j + O\left(\frac{1}{N^{3/2}}\right) \right] \\ &= -\frac{1}{2} \sum_{lj} s_l \sigma_{lj} s_j + O\left(\frac{1}{N^{1/2}}\right). \end{aligned}$$

This shows that the process is Gaussian in the limit of a large number of telegraph noise sources, $N \rightarrow \infty$, and can be approximated by white noise in the limit of fast switching.

2. AUTOCORRELATION FUNCTION

In this section we summarize the derivation of the correlation function given by Eq. (2) of the main text.

The Hamiltonian of the system (in the rotating frame and using rotating wave approximation) reads

$$H(t) = \hbar [\omega_0(t) - \omega_L] |1\rangle\langle 1| - \frac{\hbar\Omega}{2} (\sigma_+ + \sigma_-),$$

where Ω is the optical Rabi frequency and $\sigma_+ = \sigma_-^\dagger = |1\rangle\langle 0|$. The system undergoes spontaneous emission with the rate γ , described by the Lindblad superoperator

$$L[\rho] = \gamma \left(\sigma_- \rho \sigma_+ - \frac{1}{2} \{ \sigma_+ \sigma_-, \rho \} \right),$$

where ρ is the density matrix and $\{, \}$ denotes the anticommutator. The Master Equation governing the evolution of the system has the form

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [H(t), \rho(t)] + L[\rho(t)]. \quad (\text{S1})$$

Denote the solution of Eq. (S1) by $\rho(t) = \mathfrak{L}_{t_0,t}[\rho(t_0)]$. The Lax quantum regression theorem then yields the autocorrelation function in the form

$$G(t_1, t_2) = \text{Tr}(\sigma_- \mathfrak{L}_{t_1,t_2}[\mathfrak{L}_{t_0,t_1}[\tilde{\rho}(t_0)]\sigma_+]). \quad (\text{S2})$$

Here t_0 is the initial moment of evolution, while $t_1 - t_0$ is a sufficiently long time for the system to reach its steady state. We find the evolution to the leading order in the Rabi frequency Ω iteratively, following Refs. [1, 2]. Eq. (S1) yields the equations of motion for the elements ρ_{01} , ρ_{10} , ρ_{11} of the density matrix in the form $\dot{\rho}_{jl} = a_{jl}\rho_{jl} + i\Omega \sum_{mn} b_{jl,mn}\rho_{mn}$, where $a_{11} = -\gamma$, $a_{01} = a_{10}^* = i\Delta - \gamma/2$, and $b_{11,10} = -b_{11,01} = b_{10,11} = -b_{01,11} = 1/2$. The same holds for an arbitrary matrix, not necessarily a density matrix. Since Eq. (S1) is trace-preserving, one has $\rho_{00} = c_0 - \rho_{11}$, where c_0 is a constant determined by the initial values ($c_0 = 1$ for a density matrix). In the absence of the laser field ($\Omega = 0$) the equation of motion can be solved trivially to yield the zeroth-order propagation

$$\rho_{jl}^{(0)}(t) = \left[\mathfrak{L}_{t_0,t}^{(0)} \rho(t_0) \right]_{jl} = e^{\int_{t_0}^t ds a_{jl}(s)} \rho_{jl}(t_0).$$

In the subsequent orders $r > 0$ in Ω ,

$$\rho_{jl}^{(r)}(t) = \left[\mathfrak{L}_{t_0,t}^{(r)} \rho(t_0) \right]_{jl} = i\Omega \int_{t_0}^t ds e^{\int_s^t ds' a_{jl}(s')} \sum_{mn} b_{jl,mn} \rho_{mn}^{(r-1)}(s).$$

These equations define the perturbative expansion of the evolution superoperator $\mathfrak{L}_{t_1,t_2}$ in powers of Ω . Substituting this evolution into Eq. (S2) one finds, in the leading order of Ω^2 , the autocorrelation function in the form [1]

$$G(t_1, t_2) = \frac{\Omega^2}{4} \int_0^\infty du e^{-\frac{\gamma}{2}u} e^{-i\Phi(t_1, t_1-u)} \int_0^\infty du' e^{-\frac{\gamma}{2}u'} e^{i\Phi(t_2, t_2-u')}, \quad (\text{S3})$$

where

$$\Phi(t_b, t_a) = \int_{t_a}^{t_b} ds [\omega_L - \omega_0(s)] = \bar{\Delta}(t_b - t_a) - \Phi_{\text{ac}}(t_b, t_a) - \Phi_{\text{ns}}(t_b, t_a). \quad (\text{S4})$$

Here

$$\Phi_{\text{ac}}(t_b, t_a) = \int_{t_a}^{t_b} ds \Delta\omega_{\text{ac}}(s), \quad \Phi_{\text{ns}}(t_b, t_a) = \int_{t_a}^{t_b} ds \Delta\omega_{\text{ns}}(s),$$

we changed the variables according to $s = t + u$ and set $t - t_0 \rightarrow \infty$ (steady-state regime). Substituting the decomposition given by the rightmost form of Eq. (S4) to Eq. (S3) one arrives at Eq. (3) from the main text upon using the fact that the noise is stationary, hence

$$\overline{e^{i\Phi(t_d+s, t_c+s)} \pm i\Phi(t_b+s, t_a+s)} = \overline{e^{i\Phi(t_d, t_c)} \pm i\Phi(t_b, t_a)}.$$

3. NOISE FUNCTION FOR WHITE NOISE

Here we outline the calculations leading to the noise kernel $\mathcal{D}(u, u', \tau)$ in the form of Eq. (4) and Eq. (5) of the main text.

To evaluate the noise kernel given by Eq. (3) of the main text in the case of white noise (phase diffusion), we need to split the two phases Φ_{nc} accumulated over the time intervals $(-u, 0)$ and $(\tau - u', \tau)$ into non-overlapping time intervals that will allow factorization based on the independence of the corresponding increments of the diffusion process. This is done in different ways in each of the areas (a)–(c) in the (u, u') plane shown in the upper part of Fig. S1. We denote the characteristic functions of these areas by $\Theta_i(u, u'; \tau)$, $i = \text{a, b, c}$. In each of the areas, the phases partly cancel in a particular way, which we represent graphically in the lower part of Fig. S1. Here the positive phase is represented by a right-heading arrow above the time axis and the negative phase is shown as a left-heading arrow below, so that each arrow represents an integral of $\Delta\omega_{\text{ns}}$ over the interval from its tail to head. The original phases are shown on the left, while the final form after partial cancellation is on the right. For instance, in area (a), the noise kernel has the form

$$\mathcal{D}_{\text{a}}(u, u', \tau) = \overline{e^{-i\Phi_{\text{ns}}(-u, \tau-u')} e^{-i\Phi_{\text{ns}}(\tau, 0)}}.$$

The phase $\Phi_{\text{ns}}(t, t')$ undergoes normal diffusion from time t' to t induced by the white noise $\Delta\omega_{\text{ns}}$ and is therefore normally distributed with zero mean and variance $2D(t - t')$. Therefore

$$\overline{e^{i\Phi_{\text{ns}}(t, t')}} = e^{-D(t-t')},$$

which leads to

$$\mathcal{D}(u, u', \tau) = \mathcal{D}_{\text{a}}(u, u', \tau) \Theta_{\text{a}}(u, u', \tau) + \mathcal{D}_{\text{b}}(u, u', \tau) \Theta_{\text{b}}(u, u', \tau) + \mathcal{D}_{\text{c}}(u, u', \tau) \Theta_{\text{c}}(u, u', \tau)$$

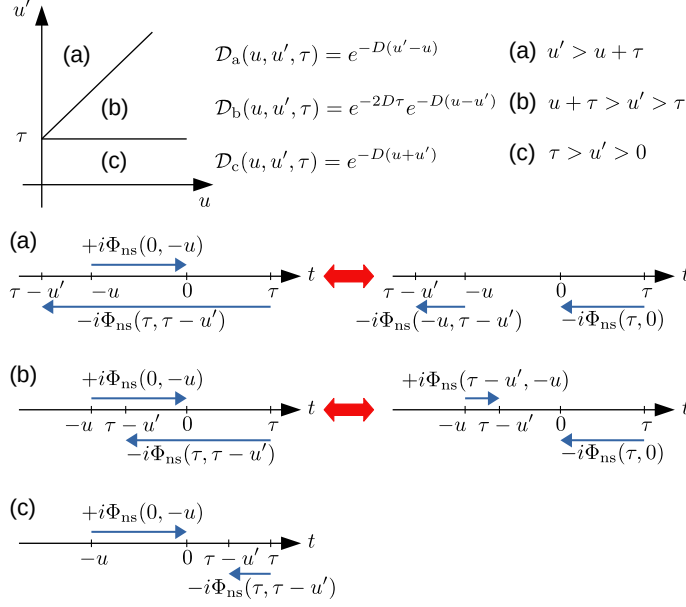


Fig. S1. Upper: division of the (u, u') plane into areas for the calculation of the noise kernel. Lower: Graphical representation of the reduction of the phase evolution intervals into non-overlapping parts.

with

$$\mathcal{D}_a(u, u', \tau) = e^{-D(u'-u)}, \quad \mathcal{D}_b(u, u', \tau) = e^{-2D\tau}e^{-D(u-u')}, \quad \mathcal{D}_c(u, u', \tau) = e^{-D(u+u')}.$$

From this, we can extract a part that is undamped in τ ,

$$\mathcal{D}_{el}(u, u', \tau) = \mathcal{D}_c(u, u', \tau) [\Theta_a(u, u', \tau) + \Theta_b(u, u', \tau) + \Theta_c(u, u', \tau)] = \mathcal{D}_c(u, u', \tau)\theta(u)\theta(u'),$$

which is the contribution given by Eq. (4) of the main text. The remaining part

$$\mathcal{D}_{inel}(u, u', \tau) = [\mathcal{D}_b(u, u', \tau) - \mathcal{D}_c(u, u', \tau)] \Theta_b(u, u', \tau) + [\mathcal{D}_a(u, u', \tau) - \mathcal{D}_c(u, u', \tau)] \Theta_a(u, u', \tau),$$

can be written in the form of Eq. (5) of the main text.

4. AUTOCORRELATION FUNCTION: INELASTIC PART

We present here some details of the derivation of Eq. (9) from the main text of the paper.

Since the phase $\Phi_{ac}(t, t')$ is defined as a definite integral, one can rearrange the phase factors in Eq. (2) of the main text,

$$\Phi_{ac}(t_1, t_1 - u) - \Phi_{ac}(t_2, t_2 - u') = -\Phi_{ac}(t_2, t_1) + \Phi_{ac}(t_2 - u', t_1 - u).$$

Next, performing the change of variables $u = (x + y)/2$, $u' = t_2 - t_1 + (x - y)/2$, $-\infty < x < \infty$, $|y| < x < \infty$, and using the expansion from Eq. (6) in the main text, one can write Eq. (2) in the form

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{inel}(t_1, t_2) = & \frac{\Omega^2}{8} e^{-\left(\frac{\gamma}{2} + D - i\bar{\Delta}\right)(t_2 - t_1)} e^{-i\Phi_{ac}(t_2, t_1)} \sum_k e^{ik\omega_\Lambda t_1} \int_{-\infty}^{\infty} dy \phi_k(y) e^{-i\bar{\Delta}y} \\ & \times \int_{|y|}^{\infty} dx e^{-\frac{\gamma + ik\omega_\Lambda}{2}x} \left[e^{-D|y|} - e^{-Dx} \right]. \end{aligned} \quad (S5)$$

Performing trivial integration over x , then employing Eq. (8) for the integration over y and using Eq. (10) one finds the result in the form of Eq. (9) in the main text.

5. EXPLICIT FORM OF THE RESONANCE FLUORESCENCE SPECTRUM

The spectrum follows in a straightforward way from the exponential τ -dependence in Eq. (7). We present the formulas here for completeness.

Substituting $t_1 = t$, $t_2 = t + \tau$ to Eq. (7), integrating over t according to Eq. (13) and then substituting to Eq. (12) immediately yields the elastic part of the spectrum in the form

$$S_{\text{el}}(\omega) = F_0 \text{Re} \sum_n \frac{\Gamma |c_n|^2}{\Gamma - i(\omega - \omega_L - n\omega_A)}. \quad (\text{S6})$$

In the same way, using Eq. (9) we get the inelastic contribution to the spectrum,

$$S_{\text{inel}}(\omega) = \frac{F_0}{2} \text{Re} \sum_{n,k} \frac{\Gamma b_n^* b_{n-k} d_k}{\Gamma + \frac{\gamma}{2} + D - i(\omega - \bar{\omega}_0 - n\omega_A)}. \quad (\text{S7})$$

6. TWO-TONE AND SINGLE-TONE MODULATION; ASYMPTOTICS IN THE STRONG-NOISE LIMIT

In this section we derive Eqs. (14), (18) and (19) from the main text. Then we explain how the power-law exponents discussed in the final part of Sec. 3A can be derived.

For a two-tone modulation as in Eq. (16) of the main text, we write the phase in the form

$$\begin{aligned} i\Phi_{\text{ac}}(t - u', t - u) = & 2iA \sin \left[\frac{\omega_A(u - u')}{2} \right] \cos \left[\omega_A t - \frac{\omega_A(u + u')}{2} \right] \\ & + iB \sin [\omega_A(u - u')] \cos [2\omega_A t - \omega_A(u + u') + \varphi]. \end{aligned}$$

Using Jacobi-Anger expansion with respect to the cos terms, while treating the sin terms as coefficients, leads to the expansion in Eq. (6) with the functions ϕ_n given by Eq. (19). The expansion in Eq. (10) with the coefficients given by Eq. (18) is obtained by writing the definite integral $\Phi_{\text{ac}}(t_2, t_1)$ as a difference of originals at the final and initial points and directly applying the Jacobi-Anger expansion. The results for a single-tone harmonic modulation are retrieved by setting $B = 0$.

Functions $\phi_n(u)$ can be written in an alternative form. Let us focus on the factor dependent on B in Eq. (19) (the argument is the same for the other factor). The Bessel function can be written in terms of the defining integral

$$J_k(B \sin \omega_A u) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{ikt} e^{-iB \sin \omega_A u \sin t}.$$

We write $B \sin \omega_A u \sin t = B[\cos(\omega_A u - t) + \cos(\omega_A u + t)]/2$, apply the Jacobi-Anger expansion twice, and perform the resulting trivial integration over t . The result is

$$J_k(B \sin \omega_A u) = i^{-k} \sum_m J_{m+k}(B/2) J_m(B/2) e^{i(2m+k)\omega_A u}.$$

For moderate modulation amplitudes, only a few Bessel functions contribute. All of them oscillate with the same period when B is sufficiently large. Hence, $J_k(B \sin \omega_A u)$ also oscillates in B and so does $\phi_n(u)$. Upon substituting this expression, along with the analogous expression for $J_{n-2k}(2A \sin \omega_A u/2)$, to Eq. (19) and then to Eq. (8), the integration can be performed analytically and one obtains a summation formula that can be evaluated numerically much faster than the original integral.

To obtain the asymptotic behavior of the scattering intensities for the single-tone modulation in the limit of strong noise, as shown in Fig. 2 of the main text and discussed in Sec. 3A, we need to extract the asymptotics of the coefficients c_n and d_n as $D \rightarrow \infty$ (note that b_n does not depend on D). Substituting $\phi_n^{(1)}(u)$ from Eq. (14) to Eq. (8) and changing the variable to $x = uD$ we obtain

$$c_n^{(1)} = \frac{\gamma i^n}{2D} \int_0^\infty dx e^{-\frac{\gamma+2D}{2D}x} e^{-i\frac{\bar{\Delta}+n\omega_A/2}{D}x} J_n \left[2A \sin \left(\frac{\omega_A}{2D} x \right) \right] \approx \frac{\gamma i^n}{2D} \int_0^\infty dx e^{-x} J_n \left(\frac{A\omega_A}{D} x \right),$$

where we assumed $D \gg \gamma, \omega_A, \bar{\Delta}$ in the final expression. Substituting the leading term for the Jacobi function, $J_n(z) \approx z^n / (2^n n!)$, $z \ll 1$, we get

$$c_n^{(1)} \approx \frac{\gamma}{2D} \left(\frac{iA\omega_A}{2D} \right)^n \sim D^{-(n+1)}.$$

Then, from Eq. (11), also $d_n \sim D^{-(n+1)}$.

7. ACOUSTIC PHASE INFORMATION IN THE SCATTERING SPECTRUM

We want to develop a quantitative measure of the degree of control (DOC) of light scattering by the relative phase between two harmonic components of acoustic modulation. Scattering is efficiently controlled by this acoustic phase if the scattering intensity depends on the phase setting, which means that the phase information is encoded in the scattering spectrum. We therefore propose to quantify the DOC in terms of a single-shot attempt to determine the acoustic phase from the accumulated scattering data. We choose the simplest scheme in which the detector is spectrally tuned to the first spectral sideband and the phase is randomly set with equal probabilities to one of the values φ_1 or φ_2 , corresponding, respectively, to the maximum and minimum of the scattering intensity at this spectral position (see Fig. 3 of the main text). Roughly speaking, the scattering is controlled by the acoustic phase if the detection counts accumulated over a certain period of time allow one to determine whether the scattering intensity is “high” or “low” and thus correctly infer the initial setting of the phase with a high probability. More precisely, the signal is integrated over a period of time T and one opts for φ_1 if the number of counts N is above a threshold value ν . The probability of wrong inference is then given by

$$\begin{aligned} P_e &= p(N \leq \nu | \varphi = \varphi_1) p(\varphi = \varphi_1) + p(N > \nu | \varphi = \varphi_2) p(\varphi = \varphi_2) \\ &= \frac{1}{2} [p(N < \nu | \varphi = \varphi_1) + p(N > \nu | \varphi = \varphi_2)]. \end{aligned} \quad (S8)$$

The degree of phase control is defined as the probability of correctly determining the phase for an optimal choice of ν .

$$\text{DOC} = \sup_{\nu} (1 - P_e).$$

For the sake of our discussion it is convenient to treat the measurement time as a parameter over which the procedure needs to be optimized in the final step.

With absolutely stable acoustic phase, $p(N = n | \varphi = \varphi_i)$, $i = 1, 2$, are given by Poisson distribution with the distribution parameter (mean count number) $\lambda_i(T) = w_i T$, where w_i are the scattering rates for the two phase settings, proportional to the scattering intensities $I_1 = I_{\max}$ and $I_2 = I_{\min}$. With phase instability, the phase diffuses so that at a time t it is distributed according to the probability density $f_i(\varphi, t)$, $f_i(\varphi, t = 0) = \delta(\varphi - \varphi_i)$. Here we will assume normal diffusion with the diffusion constant D_φ ,

$$f_i(\varphi, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi D_\varphi t}} e^{-\frac{(\varphi - \varphi_i)^2}{2D_\varphi t}}.$$

As a result, while the count distribution remains Poissonian, the scattering rate becomes time-dependent,

$$w_i(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\varphi w(\varphi) f_i(\varphi, t), \quad \lambda_i(T) = \int_0^T d\tau w_i(\tau),$$

where $w(\varphi)$ is the scattering rate for the phase set to φ .

From Eq. (S8) one has

$$P_e = \frac{1}{2} e^{-\lambda_1} \sum_{n=0}^{\lfloor \nu \rfloor} \frac{\lambda_1^n}{n!} + \frac{1}{2} e^{-\lambda_2} \sum_{n=\lfloor \nu \rfloor + 1}^{\infty} \frac{\lambda_2^n}{n!},$$

where $\lfloor \nu \rfloor$ denotes the largest integer not greater than ν . This has a minimum with respect to ν when the two distributions are equal,

$$e^{-\lambda_1} \frac{\lambda_1^n}{n!} = e^{-\lambda_2} \frac{\lambda_2^n}{n!} \text{ for } n = \nu.$$

which yields

$$\nu = 2\lambda\eta \left(\ln \frac{1+\eta}{1-\eta} \right)^{-1}, \quad \lambda = \frac{\lambda_1 + \lambda_2}{2}, \quad \eta = \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{\lambda_1 + \lambda_2}.$$

The resulting DOC is

$$\text{DOC} = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} e^{-\lambda} (1 - \eta^2)^{\nu/2} \sum_{n=\lfloor \nu \rfloor + 1}^{\infty} \frac{\lambda^n}{n!} [(1 + \eta)^{n-\nu} - (1 - \eta)^{n-\nu}],$$

which depends on the measurement time via the quantities λ and η .

REFERENCES

1. M. Weiß, D. Wigger, M. Nägele, *et al.*, “Optomechanical wave mixing by a single quantum dot,” *Optica* **8**, 291 (2021).
2. R. A. Bogaczewicz and P. Machnikowski, “Resonance fluorescence of noisy systems,” *New J. Phys.* **25**, 093057 (2023).

Fano profile in the resonance fluorescence spectrum of a solid-state quantum emitter coupled to phonons

Rafał A. Bogaczewicz and Paweł Machnikowski

*Institute of Theoretical Physics, Wrocław University of Science and Technology,
Wybrzeże Wyspiańskiego 27, 50-370 Wrocław, Poland*

(Dated: December 23, 2025)

We present a theory of resonance fluorescence (RF) of a solid-state quantum emitter in the regime of weak optical excitation. The emitter is coupled to phonon modes of the surrounding bulk semiconductor, described by a super-Ohmic spectral density. We show that the RF spectrum of this system consists of a central elastic line, a broad phonon sideband known from other linear and non-linear spectra of such systems, as well as a narrow inelastic contribution, which is characteristic of scattering spectra and stems from noise-induced transient dynamics. At moderate phonon couplings or low temperatures, the interplay between the broad sideband and the inelastic feature leads to a Fano-like profile near the resonant energy with the Fano parameter determined by laser detuning. In the weak-coupling limit (where only single-phonon processes are included), the spectrum becomes an exact Fano shape and resonant light scattering is entirely suppressed. The amplitude of this spectral feature grows linearly with temperature, while its width depends solely on the spontaneous emission rate of the emitter. We relate the quantum character of the reservoir to the non-commutativity of noise observables and show that Fano resonance persists in the classical limit. We also discuss how the redistribution of optical coupling efficiency between the central line and the sidebands affects the total scattering rate under various excitation conditions.

I. INTRODUCTION

Resonance fluorescence (RF) of a single quantum emitter [1, 2] has found numerous applications in quantum optics and quantum information processing due to the nontrivial properties of the scattered light. Within the RF scheme, it is possible, for instance, to generate non-classical states of photons with unique coherence properties [3, 4] and create indistinguishable [5] or anti-bunched [6] photons. The last decades have witnessed a rapid development of RF as a tool to characterize the quantum properties not only of atomic and molecular systems [7], but also of various kinds of solid-state „artificial atoms” [8–10].

In RF, semiconductor self-assembled quantum dots (QDs) have been used as emitters for years. They allow one to observe spin dynamics [11, 12], interface [13], and entangle [14] QD spins with single photons or read out spin states from the RF [15, 16]. Recently, QD emitters have been used in acousto-optic quantum hybrid systems as transducers between acoustical and optical signals [17–21]. These QDs generate antibunched light [19], making them perfect candidates for a single-photon source [22], which opens the door to advanced applications in quantum information processing, such as quantum multiplexing [23], time and frequency bin encoding [24, 25], or quantum acousto-optic transduction [26]. A QD can also be used as a quantum sensor for an acoustic cavity, with the fluorescence signal carrying sufficient information to retrieve the phonon number statistics [27]. Another important family of solid-state quantum emitters in the optical domain, which overcomes the low-temperature limitations of QDs, is that of defect centers in various material systems. These have been shown to exhibit photon antibunching up to room temperature [28–30] or far

above [31], making them a valuable complement of QDs as emitters used in quantum information processing.

In a solid-state matrix, phonons are one of the main sources of environmental noise that perturbs the transition energy of the emitter, even though they cannot induce transitions because of substantial energy mismatch. This noise may be detrimental to applications in quantum technologies. A common signature of carrier-phonon interactions in the spectra of solid-state quantum emitters are the broad phonon sidebands surrounding the central (“zero-phonon”) line: the exchange of acoustic phonons accompanying an optical process modifies the energy of the absorbed or emitted photon, leading to spectral features on the high or low energy side of the central line. Such features are observed in QD luminescence [32, 33] and four-wave-mixing spectroscopy [34] and have been predicted in absorption [35]. As the range of efficiently coupled phonon wavelengths in QDs is limited from below by the QD size, the spectral width of the resulting sidebands reaches a few meV. The coupling strength between phonons and exciton is represented by a Huang-Rhys factor [36], which reflects the spectral weight accumulated in the phonon sidebands at null temperature. This experimentally accessible parameter may have a wide range of values depending on the shape and size of the emitter, the properties of the surrounding material, or the coupling mechanism. For InAs/GaAs self-assembled QDs, the Huang-Rhys factor is on the order of 0.1 [33–35]. Defect centers show similar phonon sidebands, but they are much wider due to the presumably point-like nature of the defect, with the Huang-Rhys parameter one order of magnitude larger in the case of defects in hBN [30, 37, 38]. The spectral weight of this phonon feature increases with temperature.

Absorption or emission of an acoustic phonon can also

take place during scattering of a photon, leading to various effects under strong excitation or induced by optical phonons [39–41]. In the case of a weakly excited system coupled to acoustic phonons, as studied here, correlation expansion modeling under pulsed excitation has shown that sidebands indeed appear in the resonance fluorescence spectra [42], alongside the narrow central line corresponding to elastic scattering, which is centered at the laser frequency, as predicted by the standard, unperturbed model [1, 2]. On the other hand, classical noise under cw excitation gives rise to inelastic scattering, manifested by a line at the QD transition frequency, with its width dependent on the noise strength [43, 44].

In this work, we study theoretically RF of a single weakly excited emitter coupled to phonons in a bulk material. We develop a general description of the weak-excitation RF that includes phonon effects exactly to all orders. We apply this method to a two-level system coupled to bulk acoustic phonons, analyzing both the scattering spectra at resonant or nearly resonant excitation, and the total scattering intensity as a function of excitation frequency. For definiteness, we focus on a self-assembled QD, but we cover both weak and strong phonon coupling regimes to ensure a general scope of the theory. We show that, in addition to a broad phonon sideband, the inelastic scattering spectrum shows a narrow Fano feature with temperature-dependent intensity but fixed width. Remarkably, in the independent-boson model studied here, this feature appears in scattering although it is known to be absent in absorption [35], unlike in the more widely studied Fano-Anderson models [45, 46]. In contrast to some previous works concerning Fano resonances involving phonons, where a discrete phonon mode couples to electronic continuum [47–53] or to phonon bath [54], in our model the sharp resonance pertains to electronic excitation, while the wide background stems from mechanical degrees of freedom.

The paper is structured as follows. In Sec. II we define the model of the system. Next, we present the theory describing the evolution of the system (Sec. III A), the system steady state (Sec. III B) the quantum autocorrelation function (Sec. III C) and the RF spectrum (Sec. III D). Sec. IV discusses the RF spectra and scattering intensities under various conditions. The paper is concluded in Sec. V.

II. SYSTEM AND MODEL

We consider an atomic-like solid-state quantum emitter, weakly excited by a continuous-wave (cw) laser, tuned resonantly or near resonantly to the emitter’s fundamental transition frequency. To facilitate presentation, we will think of a self-assembled semiconductor QD [19, 22], in which the optically induced excitation is a bound exciton (electron-hole pair). However, the presented approach does not depend on this physical picture and is also valid for strong phonon coupling, so it can be

used, e.g., for defect centers [30, 55]. The lifetime of the fundamental excitation of the system is limited as a result of spontaneous emission (radiative recombination). We assume that the frequency and polarization selectivity of the exciting beam allow us to focus on a single transition. The scattered light is spectrally resolved and integrated in time, leading to the RF spectrum.

The exciton in the system interacts with the lattice degrees of freedom, that is, with the phonon modes of the bulk host material, which are assumed to be in a thermal state. We assume that phonons have a typical super-Ohmic spectral density with dependence $\propto \omega^3$ at low frequencies, which is typical for bulk solid-state environments [56, 57]. The phonon high-frequency cut-off, which may be related to the Debye frequency or to mesoscopic system size [55, 58], is the largest frequency scale of the problem; hence, the time span of the phonon reservoir memory is short compared to typical time scales of the problem. For a QD, this cut-off is at several ps^{-1} , which is indeed much larger than the exciton decay rate or optical Rabi frequency in the weak excitation regime ($\sim \text{ns}^{-1}$).

The emitter is modeled as a two-level system driven by a classical laser beam with the bosonic reservoir coupled via an independent-boson Hamiltonian [36, 59]. The ground and excited system states are denoted $|G\rangle$ and $|X\rangle$, respectively, and the bare transition energy between them is $\hbar\omega_0$. Phonon modes are labeled by their spectral branch λ and wave vector $\mathbf{k}$ and described by the creation and annihilation operators $b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger$, $b_{\lambda,\mathbf{k}}$, with the corresponding frequencies $\omega_{\lambda,\mathbf{k}}$. The Hamiltonian of the system is

$$H = H_0 + H_{\text{int}},$$

where H_0 describes the system, the free phonon subsystem and the system-phonon interaction, while H_{int} accounts for the optical driving.

In the frame rotating with the laser frequency ω_L , the first part is

$$H_0 = \hbar[\omega_0 - \omega_L] |X\rangle\langle X| + H_{\text{ph}} + \hbar|X\rangle\langle X| \sum_{\lambda,\mathbf{k}} \left(g_{\lambda,\mathbf{k}} b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger + g_{\lambda,\mathbf{k}}^* b_{\lambda,\mathbf{k}} \right), \quad (1)$$

where $g_{\lambda,\mathbf{k}}$ denotes the coupling constant between the emitter and a phonon mode and

$$H_{\text{ph}} = \sum_{\lambda,\mathbf{k}} \hbar\omega_{\lambda,\mathbf{k}} b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger b_{\lambda,\mathbf{k}} \quad (2)$$

is the free-phonon Hamiltonian. The coupling to the phonon reservoir is characterized by the spectral density,

$$J(\omega) = \sum_{\lambda,\mathbf{k}} |g_{\lambda,\mathbf{k}}|^2 \delta(\omega - \omega_{\lambda,\mathbf{k}}), \quad (3)$$

or by the memory function

$$\begin{aligned}\phi(t) &= \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2} (e^{-i\omega t} [n(\omega) + 1] + e^{i\omega t} n(\omega)) \quad (4) \\ &= \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \left| \frac{g_{\lambda, \mathbf{k}}}{\omega_{\lambda, \mathbf{k}}} \right|^2 (e^{-i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} t} [n_{\lambda, \mathbf{k}} + 1] + e^{i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} t} n_{\lambda, \mathbf{k}}),\end{aligned}$$

where $n(\omega)$ is the Bose distribution and $n_{\lambda, \mathbf{k}} = n(\omega_{\lambda, \mathbf{k}})$ is the number of phonons in the mode $(\lambda, \mathbf{k})$.

The overall strength of the carrier-phonon coupling is quantified by the Huang-Rhys parameter [36]

$$F_{\text{HR}} = \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2} = \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \left| \frac{g_{\lambda, \mathbf{k}}}{\omega_{\lambda, \mathbf{k}}} \right|^2.$$

The second contribution to the Hamiltonian describes the interaction between laser light and the emitter, where the optical driving strength is characterized by the Rabi frequency Ω . In the rotating frame and rotating wave approximation, this reads

$$H_{\text{int}} = -\frac{\hbar\Omega}{2} (|G\rangle\langle X| + |X\rangle\langle G|). \quad (5)$$

In addition, spontaneous emission is described by the standard Lindblad dissipator,

$$L^{(\text{se})}[O] = \gamma \left(|G\rangle\langle X| O |X\rangle\langle G| - \frac{1}{2} \{ |X\rangle\langle X|, O \} \right),$$

where γ is the emission rate, $\{A, B\} = AB + BA$, and O denotes an arbitrary operator.

The system evolves according to the master equation

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = L_0[\rho(t)] + L_1[\rho(t)], \quad (6)$$

where

$$L_0[O] = -\frac{i}{\hbar} [H_0, O] + L^{(\text{se})}[O] \quad (7)$$

represents the unperturbed (free) evolution of the system and

$$L_1[O] = -\frac{i}{\hbar} [H_{\text{int}}, O]$$

accounts for the optical excitation and will be treated as a perturbation in the weak excitation regime of interest.

The optical spectrum is given by

$$S(\omega) = \text{Re} \int_0^\infty d\tau e^{i(\omega - \omega_L)\tau} G(\tau) \quad (8)$$

with the steady-state first-order autocorrelation function

$$G(\tau) = \langle \sigma_+(0) \sigma_-(\tau) \rangle, \quad (9)$$

where we use the fact that the system is stationary and introduce the standard transition operators $\sigma_+ = \sigma_-^\dagger = |X\rangle\langle G|$ which are written here in the Heisenberg picture and in the rotating frame. The total scattering intensity is

$$I_{\text{tot}} = \int_{-\infty}^\infty d\omega S(\omega) = \pi G(0). \quad (10)$$

III. THEORY OF THE RF RESPONSE WITH PHONONS

In this section, we present a method for calculating the RF spectrum of a quantum emitter coupled to phonons to the second order in the laser driving. Prior to this, we introduce some formal definitions.

We denote the formal solution of Eq. (6) as

$$\rho(t + \tau) = \mathcal{L}_\tau[\rho(t)],$$

which, together with Eq. (6), defines the propagator $\mathcal{L}_\tau$ generated by $L_0 + L_1$. The propagator depends only on the time interval because the system is stationary. Although primarily defined for the density matrix, the equation of motion, as well as the propagator, can be extended to the entire Liouville space of operators on the system (emitter and phonons) Hilbert space, which we will exploit in the following. As is customary, we refer to propagators and generators, that is, operators acting on the Liouville space, as superoperators.

We will also use the decomposition of operators in the emitter basis,

$$O = \sum_{i,j=G,X} |i\rangle\langle j| O_{ij}, \quad (11)$$

where O_{ij} are operators on the Hilbert space of the phonon subsystem.

A. System evolution and autocorrelation function in the polaron picture

By applying the quantum regression theorem, Eq. (9) can then be written in the form

$$\begin{aligned}G(\tau) &= \text{Tr}(|G\rangle\langle X| \mathcal{L}_\tau [\rho^S |X\rangle\langle G|]) \\ &= \text{Tr}_{\text{ph}} \langle X | \mathcal{L}_\tau [\rho^S |X\rangle\langle G|] |G\rangle, \quad (12)\end{aligned}$$

where ρ^S is the steady state of the system. In the final step, we have split the total trace in Eq. (12) into partial traces over the emitter and phonon degrees of freedom, $\text{Tr} = \text{Tr}_S \text{Tr}_{\text{ph}}$, and explicitly taken the former. It should be noted that the regression theorem is applied only with respect to the optical reservoir (spontaneous emission process) for which the Markovian approximation works perfectly, while the phonon reservoir is treated exactly.

To evaluate the autocorrelation function to order Ω^2 , the propagator is expressed as a second-order Born expansion

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_{t_f - t_i} &= \mathcal{L}_{t_f - t_i}^{(0)} + \int_{t_i}^{t_f} dt_1 \mathcal{L}_{t_f - t_1}^{(0)} L_1 \mathcal{L}_{t_1 - t_i}^{(0)} \\ &\quad + \int_{t_i}^{t_f} dt_1 \int_{t_i}^{t_1} dt_2 \mathcal{L}_{t_f - t_1}^{(0)} L_1 \mathcal{L}_{t_1 - t_2}^{(0)} L_1 \mathcal{L}_{t_2 - t_i}^{(0)} + \dots\end{aligned} \quad (13)$$

where the terms correspond to successive orders of Ω . Here, $\mathcal{L}_\tau^{(0)}$ denotes the propagator of the unperturbed evolution, generated by L_0 , that is,

$$\frac{d}{dt}\mathcal{L}_t^{(0)}O = L_0\mathcal{L}_t^{(0)}O. \quad (14)$$

Here and in the following, we adopt the convention that all superoperators act on all terms to their right, so we can omit brackets.

The emitter-phonon coupling in the Hamiltonian of Eq. (1) is removed by the unitary transformation [59]

$$T_P = |G\rangle\langle G| + |X\rangle\langle X|D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}, \quad (15)$$

which defines the *polaron frame of reference* in which the excited state of the emitter is dressed with a lattice deformation restoring the lowest-energy configuration in the presence of interaction. Here D is the displacement (Weyl) operator, with $\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}$ representing the full set of coupling constants,

$$D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\} = \exp \sum_{\lambda,\mathbf{k}} \left(\frac{g_{\lambda,\mathbf{k}}}{\omega_{\lambda,\mathbf{k}}} b_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger - \frac{g_{\lambda,\mathbf{k}}^*}{\omega_{\lambda,\mathbf{k}}} b_{\lambda,\mathbf{k}} \right).$$

In addition, it is convenient to perform the calculations in the interaction picture with respect to free phonon Hamiltonian, defined by the usual transformation

$$V(t) = \exp(iH_{\text{ph}}t/\hbar). \quad (16)$$

For an operator $O(t)$, the transformed operator is

$$\tilde{O}(t) = V(t)T_P O(t)T_P^\dagger V^\dagger(t). \quad (17)$$

The corresponding superoperator $\tilde{\mathcal{L}}_{t_f, t_i}$ that propagates the state from t_i to t_f is, consistently, defined by

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{L}}_{t_f, t_i} \tilde{O} = \\ V(t_f)T_P \left(\mathcal{L}_{t_f - t_i} T_P^\dagger V^\dagger(t_i) \tilde{O} V(t_i) T_P \right) T_P^\dagger V^\dagger(t_f). \end{aligned} \quad (18)$$

The transformed free propagator is defined in the same way,

$$\tilde{\mathcal{L}}_{t_f, t_i}^{(0)} \tilde{O} = V(t_f)T_P \left(\mathcal{L}_{t_f - t_i}^{(0)} T_P^\dagger V^\dagger(t_i) \tilde{O} V(t_i) T_P \right) T_P^\dagger V^\dagger(t_f).$$

By direct differentiation and using Eq. (15), Eq. (16), and Eq. (7) one finds

$$\frac{d}{dt}\tilde{\mathcal{L}}_{t, t'}^{(0)}O = \tilde{L}_0\tilde{\mathcal{L}}_{t, t'}^{(0)}O \quad (19)$$

with the generator

$$\tilde{L}_0O = -\frac{i}{\hbar} [\tilde{H}_0, O] + \tilde{L}^{(\text{se})}O, \quad (20)$$

where $\tilde{H}_0 = -\hbar\Delta|X\rangle\langle X|$ and

$$\begin{aligned} \tilde{L}^{(\text{se})}O = -\frac{\gamma}{2} \{|X\rangle\langle X|, O\} \\ + \gamma|G\rangle\langle G|D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t)\}O_{XX}D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t)\}. \end{aligned} \quad (21)$$

Here

$$D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t)\} = V(t)D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}V^\dagger(t), \quad (22)$$

with $g_{\lambda,\mathbf{k}}(t) = g_{\lambda,\mathbf{k}}e^{i\omega_{\lambda,\mathbf{k}}t}$, and $\Delta = \omega_L - (\omega_0 - \Delta_{\text{PS}})$ is the detuning between the laser frequency and the polaron-shifted transition frequency $\tilde{\omega}_0 = \omega_0 - \Delta_{\text{PS}}$, with the polaron shift $\Delta_{\text{PS}} = \sum_{\lambda,\mathbf{k}} |g_{\lambda,\mathbf{k}}|^2 / \omega_{\lambda,\mathbf{k}}$.

Note that $\tilde{H}_0$ has become trivial, with the coupling and free-phonon contribution removed by the polaron transformation and interaction picture, respectively. The price one pays for this simplification is, on the one hand, a trivial time dependence in the displacement operator and, on the other hand, a much more involved modification of the dissipator. The latter is indeed reminiscent of the Franck-Condon principle: spontaneous emission leaves the lattice in a state adapted to the excited electronic state (polaronic dressing), which is a displaced state with respect to the lattice ground state in the absence of charge excitation.

Eqs. (19)–(21) yield simple closed equations for three components of an operator,

$$\tilde{\mathcal{L}}_{t, t'}|X\rangle\langle G|O = e^{(i\Delta - \frac{\gamma}{2})(t-t')}|X\rangle\langle G|O, \quad (23a)$$

$$\tilde{\mathcal{L}}_{t, t'}|G\rangle\langle X|O = e^{(-i\Delta - \frac{\gamma}{2})(t-t')}|G\rangle\langle X|O, \quad (23b)$$

$$\tilde{\mathcal{L}}_{t, t'}|G\rangle\langle G|O = |G\rangle\langle G|O. \quad (23c)$$

The fourth equation is more involved

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{L}}_{t, t'}|X\rangle\langle X|O = e^{-\gamma(t-t')}|X\rangle\langle X|O \\ + \gamma|G\rangle\langle G|\int_{t'}^t d\tau D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(\tau)\}O_{XX}D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(\tau)\}. \end{aligned} \quad (23d)$$

However, the last term does not contribute to the autocorrelation function.

At the same time, the generator of the optical coupling is transformed as

$$\begin{aligned} \tilde{L}_1(t)\tilde{O}(t) = V(t_f)T_P \left(L_1(t)T_P^\dagger V^\dagger(t_i)\tilde{O}V(t_i)T_P \right) T_P^\dagger V^\dagger(t_f) \\ = -\frac{i}{\hbar} \left[\tilde{H}_{\text{int}}(t), \tilde{O}(t) \right], \end{aligned} \quad (24)$$

with

$$\tilde{H}_{\text{int}}(t) = -\frac{\hbar\Omega}{2} (|G\rangle\langle X|D^\dagger\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t)\} + \text{h.c.}). \quad (25)$$

These transformations preserve the form of the Born expansion, Eq. (13),

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{L}}_{t_f, t_i} \approx \tilde{\mathcal{L}}_{t_f, t_i}^{(0)} + \int_{t_i}^{t_f} dt_1 \tilde{\mathcal{L}}_{t_f, t_1}^{(0)} \tilde{L}_1(t_1) \tilde{\mathcal{L}}_{t_1, t_i}^{(0)} \\ + \int_{t_i}^{t_f} dt_1 \int_{t_i}^{t_1} dt_2 \tilde{\mathcal{L}}_{t_f, t_1}^{(0)} \tilde{L}_1(t_1) \tilde{\mathcal{L}}_{t_1, t_2}^{(0)} \tilde{L}_1(t_2) \tilde{\mathcal{L}}_{t_2, t_i}^{(0)} + \dots \end{aligned} \quad (26)$$

Finally, inverting the definition in Eq. (18), we express $\mathcal{L}_\tau$ by $\tilde{\mathcal{L}}_{\tau, 0}$ in Eq. (12) and write the autocorrelation func-

tion in terms of transformed quantities,

$$\begin{aligned} G(\tau) &= \text{Tr}_{\text{ph}} \left\langle X \left| T_{\text{P}}^{\dagger} V^{\dagger}(\tau) \right. \right. \\ &\quad \times \left(\tilde{A}^{(\text{I})}(\tau) + \tilde{A}^{(\text{II})}(\tau) \right) V(\tau) T_{\text{P}} \left| G \right\rangle \\ &= \text{Tr}_{\text{ph}} \left[D^{\dagger} \{g_{\mathbf{k}}(\tau)\} \left(\tilde{A}_{XG}^{(\text{I})}(\tau) + \tilde{A}_{XG}^{(\text{II})}(\tau) \right) \right], \end{aligned} \quad (27)$$

where we define two contributions for further reference,

$$\tilde{A}^{(\text{I})}(\tau) = \tilde{\mathcal{L}}_{\tau,0} |X\rangle \langle G| \tilde{\rho}_{XX}^{\text{S}}(0) D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}, \quad (28a)$$

$$\tilde{A}^{(\text{II})}(\tau) = \tilde{\mathcal{L}}_{\tau,0} |G\rangle \langle G| \tilde{\rho}_{GX}^{\text{S}}(0) D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}. \quad (28b)$$

In the last step of Eq. (27) we use the explicit form of the unitary operators T_{P} and V given by Eqs. (15) and (16), respectively, apply the identity $D^{\dagger}\{g_{\lambda,\mathbf{k}}\}V^{\dagger}(\tau) = V^{\dagger}(\tau)D^{\dagger}\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(\tau)\}$, following directly from Eq. (22), and then take advantage of the cyclic property of the trace. Note that, at this point, the autocorrelation function is expressed in terms of phonon operators only.

B. Steady state in the polaron picture

The next step is to find the relevant XX and GX components of the steady state density matrix $\tilde{\rho}^{\text{S}}$, which appear in Eqs. (28). We find the steady state by formally propagating the initial state of the system from the far past. This is done up to the required second order in Ω using the Born expansion given by Eq. (26). Note that terms off-diagonal in the emitter basis (emitter coherences) appear only in odd orders, while the diagonal ones (emitter occupations) contribute only in even orders.

In zeroth order, i.e., without optical driving, the steady state of the system is the emitter ground state and the thermal equilibrium state of the phonon reservoir,

$$\tilde{\rho}^{(\text{S},0)}(t) = |G\rangle \langle G| \rho_{\text{T}}.$$

This state is obviously invariant under the unperturbed evolution $\tilde{\mathcal{L}}^{(0)}$.

We write first order contribution, using the relevant term of Eq. (26), in the form

$$\tilde{\rho}^{(\text{S},1)}(t) = \int_{-\infty}^t dt_1 \tilde{\mathcal{L}}_{t,t_1}^{(0)} \tilde{L}_1(t_1) \tilde{\rho}^{(\text{S},0)}(t_1).$$

Then, we explicitly apply Eq. (24), Eq. (23a), and Eq. (23b), which yields

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{GX}^{(\text{S},1)}(t) &= \tilde{\rho}_{XG}^{(\text{S},1)*}(t) \\ &= -\frac{i\Omega}{2} \int_{-\infty}^t dt_1 e^{-(\frac{\gamma}{2}+i\Delta)(t-t_1)} \rho_{\text{T}} D^{\dagger} \{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_1)\}, \end{aligned} \quad (29)$$

while $\tilde{\rho}_{GG}^{(\text{S},1)}(t) = \tilde{\rho}_{XX}^{(\text{S},1)}(t) = 0$.

The second-order term from Eq. (26), is

$$\tilde{\rho}^{(\text{S},2)}(t) = \int_{-\infty}^t dt_2 \tilde{\mathcal{L}}_{t,t_2}^{(0)} \tilde{L}_1(t_2) \tilde{\rho}^{(\text{S},1)}(t_2).$$

Again, we apply Eq. (24) explicitly, which leads to terms proportional to $|G\rangle \langle G|$ and $|X\rangle \langle X|$. According to Eq. (28a), only $\tilde{\rho}_{XX}^{\text{S}}$ is needed for the correlation function up to the second order. This is given by Eq. (23d), where only the simple first term contributes. Altogether, we get

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{XX}^{(\text{S},2)}(t) &= \frac{\Omega^2}{4} \int_{-\infty}^t dt_1 e^{-\gamma(t-t_1)} \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 e^{-(\frac{\gamma}{2}+i\Delta)(t_1-t_2)} \\ &\quad \times D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_1)\} \rho_{\text{T}} D^{\dagger} \{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_2)\} + \text{h.c.}, \end{aligned}$$

which, after interchanging the variables in the ‘‘h.c.’’ term, can be reduced to

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{XX}^{(\text{S},2)}(t) &= \frac{\Omega^2}{4} \int_{-\infty}^t dt_1 e^{-(\frac{\gamma}{2}-i\Delta)(t-t_1)} \int_{-\infty}^t dt_2 e^{-(\frac{\gamma}{2}+i\Delta)(t-t_2)} \\ &\quad \times D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_1)\} \rho_{\text{T}} D^{\dagger} \{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_2)\}. \end{aligned} \quad (30)$$

C. Autocorrelation function

The following evaluation of Eq. (27) proceeds in two steps: First, we calculate the quantities $\tilde{A}_{XG}^{(\text{I,II})}$ to the second order in Ω , and then we average over the phonon reservoir.

In Eq. (28a), $\tilde{\rho}_{XX}^{\text{S}}$ is already in the second order, so $\tilde{\mathcal{L}}_{\tau,0}$ must be taken in the zeroth order. This is given again by Eq. (23a), which immediately yields

$$\begin{aligned} \tilde{A}_{XG}^{(\text{I})}(\tau) &= \frac{\Omega^2}{4} \int_{-\infty}^0 dt_1 e^{-(\frac{\gamma}{2}-i\Delta)(\tau-t_1)} \int_{-\infty}^0 dt_2 e^{(\frac{\gamma}{2}+i\Delta)t_2} \\ &\quad \times D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_1)\} \rho_{\text{T}} D^{\dagger} \{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_2)\} D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(0)\}. \end{aligned} \quad (31)$$

Eq. (28b) contains $\tilde{\rho}_{GX}^{\text{S}}$, which is of the first order in Ω . Further evolution must, therefore, be evaluated to the first order. Since the operator proportional to $|G\rangle \langle G|$ is invariant under $\tilde{\mathcal{L}}^{(0)}$ [see Eq. (23c)], applying the first-order term from Eq. (26) again amounts to explicitly applying L_1 and propagating the resulting off-diagonal terms via Eq. (23a). This yields

$$\begin{aligned} \tilde{A}_{XG}^{(\text{II})}(\tau) &= \frac{\Omega^2}{4} \int_0^{\tau} dt_1 e^{-(\frac{\gamma}{2}-i\Delta)(\tau-t_1)} \int_{-\infty}^0 dt_2 e^{(\frac{\gamma}{2}+i\Delta)t_2} \\ &\quad \times D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_1)\} \rho_{\text{T}} D^{\dagger} \{g_{\lambda,\mathbf{k}}(t_2)\} D\{g_{\lambda,\mathbf{k}}(0)\}. \end{aligned} \quad (32)$$

Eqs. (31) and (32) differ only by the integration limits and can easily be combined. Substitution into Eq. (27) yields

$$\begin{aligned} G(\tau) &= \frac{\Omega^2}{4} \int_0^{\infty} du \int_0^{\infty} du' e^{-\frac{\gamma}{2}(u+u')+i\Delta(u-u')} \\ &\quad \times C(\tau, u, u'), \end{aligned} \quad (33)$$

where we introduced new variables $u = \tau - t_1$, $u' = -t_2$ and defined a phonon correlation function

$$C(\tau, u, u') = \langle D^\dagger \{g_{\lambda, \mathbf{k}}(-u')\} D \{g_{\lambda, \mathbf{k}}(0)\} D^\dagger \{g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau)\} D \{g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau - u)\} \rangle, \quad (34)$$

with angular brackets denoting the thermal average, $\langle O \rangle = \text{Tr}_{\text{ph}} \rho_{\text{T}} O$.

To calculate the correlation function $C(\tau, u, u')$ we first iterate twice the Baker-Campbell-Hausdorff formula

$$e^A e^B = e^{A+B} e^{\frac{1}{2}[A, B]} \text{ for } [A, B] = c\mathbb{I}, \quad c \in \mathbb{C}$$

to pairs of displacement operators in Eq. (34), which yields

$$C(\tau, u, u') = \langle D \{ -g_{\lambda, \mathbf{k}}(-u') + g_{\lambda, \mathbf{k}}(0) - g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau) + g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau - u) \} \rangle \times \exp \left\{ i \text{Im} \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \left| \frac{g_{\lambda, \mathbf{k}}}{\omega_{\lambda, \mathbf{k}}} \right|^2 \left[e^{i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} u'} + e^{-i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} u} + e^{i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} \tau} (1 - e^{i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} u'}) (1 - e^{-i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} u}) \right] \right\}. \quad (35)$$

The average is then calculated according to the relation [59]

$$\langle D(G_{\lambda, \mathbf{k}}) \rangle = e^{\sum_{\lambda, \mathbf{k}} (n_{\lambda, \mathbf{k}} + \frac{1}{2}) \left| \frac{G_{\lambda, \mathbf{k}}}{\omega_{\lambda, \mathbf{k}}} \right|^2},$$

which for $G_{\lambda, \mathbf{k}} = -g_{\lambda, \mathbf{k}}(-u') + g_{\lambda, \mathbf{k}}(0) - g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau) + g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau - u)$, as in Eq. (35), yields

$$\langle D \{ -g_{\lambda, \mathbf{k}}(-u') + g_{\lambda, \mathbf{k}}(0) - g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau) + g_{\lambda, \mathbf{k}}(\tau - u) \} \rangle = \exp \left[- \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \left(n_{\lambda, \mathbf{k}} + \frac{1}{2} \right) \left| \frac{g_{\lambda, \mathbf{k}}}{\omega_{\lambda, \mathbf{k}}} \right|^2 \times \left| 1 - e^{-i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} u'} - e^{i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} \tau} + e^{i\omega_{\lambda, \mathbf{k}} (\tau - u)} \right|^2 \right]. \quad (36)$$

By rearranging terms and invoking Eq. (4), Eq. (34) finally takes the form

$$C(\tau, u, u') = \exp \left[-2\phi(0) + \phi(-u') - \phi(-\tau - u') + \phi(u - \tau - u') + \phi(-\tau) - \phi(u - \tau) + \phi(u) \right]. \quad (37)$$

As expected, the optical properties of a system interacting with the phonon bath in a thermal state (which is Gaussian) are fully characterized by the bath spectral density or, equivalently, its memory function.

It is interesting to note that the imaginary parts of the memory functions in Eq. (37) stem from the phase factor in Eq. (35), which is a consequence of the non-commutativity of the phonon operators in the BCH formula. This means that we have captured the *quantumness* of the noise originating from the bosonic reservoir in the most fundamental sense. The corresponding classical

model would be defined by the Hamiltonian in Eq. (1) in the interaction picture with respect to phonons and with $b_{\lambda, \mathbf{k}}, b_{\lambda, \mathbf{k}}^\dagger$ being a conjugate pair of complex random variables. The same can be written in a more intuitive manner by defining quadrature amplitudes

$$X_{1, \lambda, \mathbf{k}} = \frac{1}{2} \left(b_{\lambda, \mathbf{k}} e^{-i\theta_{\lambda, \mathbf{k}}} + b_{\lambda, \mathbf{k}}^\dagger e^{i\theta_{\lambda, \mathbf{k}}} \right), \quad (38a)$$

$$X_{2, \lambda, \mathbf{k}} = \frac{1}{2i} \left(b_{\lambda, \mathbf{k}} e^{-i\theta_{\lambda, \mathbf{k}}} - b_{\lambda, \mathbf{k}}^\dagger e^{i\theta_{\lambda, \mathbf{k}}} \right), \quad (38b)$$

where we have decomposed $g_{\lambda, \mathbf{k}} = |g_{\lambda, \mathbf{k}}| e^{i\theta_{\lambda, \mathbf{k}}}$. Then the Hamiltonian with classical noise is

$$H'_0 = \hbar [\omega_0 - \omega_L] |X\rangle \langle X| + \hbar \Delta\omega(t) |X\rangle \langle X|, \quad (39)$$

where

$$\Delta\omega(t) = \sum_{\lambda, \mathbf{k}} 2 |g_{\lambda, \mathbf{k}}| [X_{1, \lambda, \mathbf{k}} \cos(\omega_{\lambda, \mathbf{k}} t) + X_{2, \lambda, \mathbf{k}} \sin(\omega_{\lambda, \mathbf{k}} t)]$$

describes classical random fluctuations of the energy which are due to the coupling to the environment. For the classical model to be equivalent to the quantum one, we need to require that $X_{1, \lambda, \mathbf{k}}, X_{2, \lambda, \mathbf{k}}$ are independent, equally distributed Gaussian random variables with zero mean and with variances

$$\langle X_{1, \lambda, \mathbf{k}}^2 \rangle = \langle X_{2, \lambda, \mathbf{k}}^2 \rangle = \frac{1}{4} (2n_{\lambda, \mathbf{k}} + 1),$$

matching those of the quantum quadrature operators in the thermal state. These variances are somewhat artificial as they do not follow from the most obvious physical model of classical oscillators, which would result in classical statistics and energy equipartition. We opt for this definition because we want to separate the consequences of the fundamental non-commutativity of quantum noise operators from the differences between the quantum and classical statistics, which are, of course, also fundamental but much more obvious. With this choice, the classical memory function $\phi'(t)$ is consistent with the quantum one, with the non-commutativity-related imaginary part discarded, i.e., $\phi'(t) = \text{Re} \phi(t)$.

The result for the classical (commutative) case can alternatively be obtained by directly computing the autocorrelation function from the evolution driven by the parametrically time-dependent Hamiltonian in Eq. (39) and then averaging over the random variables $X_{1, \lambda, \mathbf{k}}, X_{2, \lambda, \mathbf{k}}$, which yields

$$C(\tau, u, u') = \left\langle e^{i\Phi(0, -u') - i\Phi(\tau, \tau - u)} \right\rangle,$$

where

$$\Phi(t_1, t_2) = \int_{t_1}^{t_2} dt \Delta\omega(t).$$

This links the present result to our previous studies of systems subjected to classical noise [43], where the noise affects the optical response via the phase accumulated due to random fluctuations of the transition energy.

D. RF spectrum

The structure of the RF spectrum becomes clear if we split the four-time correlation function from Eq. (37) into three parts, $C(\tau, u, u') = C_{\text{el}}(u, u') + C_{\text{psb}}(\tau, u, u') + C_{\text{lf}}(\tau, u, u')$, where

$$C_{\text{el}}(u, u') = e^{-2\phi(0) + \phi(-u') + \phi(u)}, \quad (40a)$$

$$C_{\text{psb}}(\tau, u, u') = e^{-2\phi(0) + \phi(-u') + \phi(u)} \left[e^{\phi(-\tau)} - 1 \right], \quad (40b)$$

$$C_{\text{lf}}(\tau, u, u') = e^{-2\phi(0) + \phi(-u') + \phi(u) + \phi(-\tau)} \times \left[e^{\phi(u-\tau-u') - \phi(u-\tau) - \phi(-\tau-u')} - 1 \right]. \quad (40c)$$

These contributions lead to the corresponding decomposition of the autocorrelation function and the RF spectrum, following Eq. (33) and Eq. (8), respectively.

The first component, $C_{\text{el}}(u, u')$, is τ -independent and is responsible for an unbroadened central line in the spectrum, $S_{\text{el}}(\omega)$, located at the laser frequency (which is zero frequency in our rotating frame). This line corresponds to elastic scattering of photons, reproducing a standard result for a weakly excited system [1]. The intensity of this line is obtained by substituting $C_{\text{el}}(u, u')$ into Eq. (33) and then to Eq. (10),

$$I_{\text{el}} = \frac{\pi\Omega^2}{4} |\xi|^2 e^{-2\phi(0)}, \quad (41)$$

where

$$\xi = \int_0^\infty ds e^{-(\gamma/2 - i\Delta)s + \phi(s)}. \quad (42)$$

The contribution $C_{\text{psb}}(\tau, u, u')$, Eq. (40b), is short-lived as a function of τ , because $\phi(-\tau) \rightarrow 0$ as $\tau \gg 1/\omega_c$, which is a picosecond time scale for a QD and even shorter for atomically localized defects. Therefore, it gives rise to a broad spectral feature $S_{\text{psb}}(\omega)$, which is the phonon sideband predicted for RF in the pulsed-excitation regime [42] and also known from other types of spectroscopy on zero-dimensional structures. Here, the low-frequency part corresponds to energy loss at photon scattering, which means phonon emission, while the high-frequency side reflects energy gain or phonon absorption. Using $C_{\text{psb}}(\tau, u, u')$ in Eq. (33) and substituting this into Eq. (8), we get

$$S_{\text{psb}}(\omega) = \frac{I_{\text{el}}}{2\pi} \int_{-\infty}^\infty d\tau e^{-i(\omega - \omega_L)\tau} \left[e^{\phi(\tau)} - 1 \right], \quad (43)$$

where we used the symmetry $\phi^*(\tau) = \phi(-\tau)$. The intensity is, from Eq. (10),

$$I_{\text{psb}} = I_{\text{el}} \left(e^{\phi(0)} - 1 \right). \quad (44)$$

Note that the shape of the phonon sideband is the same as in the absorption spectrum [35]. The total weight of the sideband is also in the same relation to the intensity of the central line. However, in the present case

both these features attain a scaling factor that reflects the dependence of the total scattering intensity on the spectral position of the laser with respect to the fundamental transition and phonon sideband, contained in the factor $|\xi|^2$.

To study the properties of the last contribution, Eq. (40c), we focus on the expression in the final square bracket for $\tau \gg 1/\omega_c$ and $u, u' > 0$ (cf. the limits of integration in Eq. (33)). Then $\phi(-\tau - u') \ll 1$ but the first two memory functions in the exponent have non-zero values for arbitrary τ , along the lines $u = \tau$ and $u = \tau + u'$. This term is therefore long-lived, up to the exponential cutoff at $\tau \sim 1/\gamma$. Thus, it will lead to a narrow spectral feature of width $\Delta\omega \sim \gamma$. Such a feature does not appear in absorption or emission and is therefore unique for light scattering spectroscopy. It has not been predicted in the previous works on resonance fluorescence of systems coupled to phonons [42], which we attribute to the inherently low spectral resolution in that study, where pulsed excitation was assumed. The narrow feature is the quantum counterpart of the inelastic scattering line that emerges in the scattering spectrum for a system perturbed by classical noise [43, 44].

To gain more detailed insight into the low-frequency part of the spectrum, we first note that the broad sideband does not vary much in the relevant very narrow range of frequencies and provides an essentially constant background (“pedestal”), which can be approximated by

$$S_{\text{psb}}(\omega) \approx S_{\text{psb}}(0) = \frac{\Omega^2}{8} |\xi|^2 e^{-2\phi(0)} \int_{-\infty}^\infty d\tau \left[e^{\phi(\tau)} - 1 \right]. \quad (45)$$

On this background, the narrow spectral feature described by Eq. (40c) develops. Here, the expression in square brackets is nonzero only in narrow ranges of u around τ and $\tau + u'$ because the memory function is short-lived compared to the effective span of the integral over u , which is $1/\gamma$. Moreover, except for a negligibly narrow range of u' near 0, these two parameter areas are disjoint so that they contribute additively, and one may write

$$e^{\phi(u-\tau-u') - \phi(u-\tau) - \phi(-\tau-u')} - 1 \approx (A + B)\delta(u - \tau - u') - (A - B)\delta(u - \tau),$$

where

$$A = \int_{-\infty}^\infty ds \sinh \phi(s), \quad B = \int_{-\infty}^\infty ds [\cosh \phi(s) - 1]. \quad (46)$$

We neglect also the remaining memory functions in Eq. (40c), which are non-zero only in a very narrow range around zero time and therefore yield only a minor correction to the overall value of the spectral function at low frequencies. The integrations in Eqs. (33) and (8) then become trivial. Including the PSB “pedestal”, the result

is

$$S_{\text{If}}(\omega) + S_{\text{psb}}(0) = \quad (47)$$

$$\frac{I_{\text{el}}}{2\pi} \left\{ A \frac{(\omega - \omega_L)^2}{(\gamma/2)^2 + (\omega - \tilde{\omega}_0)^2} + B \left[2 + \frac{\gamma^2/2 - (\omega - \omega_L)^2}{(\gamma/2)^2 + (\omega - \tilde{\omega}_0)^2} \right] \right\},$$

where we have approximated $|\xi|^2 \approx 1/[(\gamma/2)^2 + \Delta^2]$, consistent with the above approximations. Note that the width of these spectral features is always determined by the lifetime of the excited state and depends neither on the strength of the phonon couplings nor on the temperature.

In the leading order in the phonon coupling ($\sim |g_{\lambda, \mathbf{k}}|^2$ or linear in $\phi(t)$), one has $B = 0$ and

$$A = \int_{-\infty}^{\infty} ds \phi(s) = \frac{2\pi k_B T}{\hbar} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{J(\omega)}{\omega^3}, \quad (48)$$

which is non-zero and finite for the actual carrier-phonon spectral density. Simultaneously, the neglected memory functions in the exponents of Eq. (40c) lead to higher-order corrections, hence Eq. (47) becomes the rigorous lowest-order result. The form of the spectrum in this limit therefore has a Fano shape,

$$S_{\text{If}}(\omega) + S_{\text{psb}}(0) \propto \frac{(q\gamma/2 + \omega - \tilde{\omega}_0)^2}{(\gamma/2)^2 + (\omega - \tilde{\omega}_0)^2}, \quad (49)$$

with the Fano factor $q = -\Delta/(\gamma/2)$. It follows that for weak phonon coupling the inelastic scattering is completely suppressed at the laser frequency. In this regime, the magnitude of the spectrum in the low-frequency range scales linearly with temperature. This limit corresponds to the single-phonon scattering regime.

For arbitrary phonon couplings, one finds the low-temperature asymptotics of A again given by Eq. (48), up to corrections on the order of T^3 and higher, while

$$B = \pi\eta \left(\frac{k_B T}{\hbar} \right)^3 \left[\lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{J(\omega)}{\omega^3} \right]^2,$$

up to corrections $\propto T^5$, where $\eta = 2\pi^2/3$, which means that at sufficiently low temperatures the spectrum is dominated by the Fano component. At high temperatures, the integrands in Eq. (46) are dominated by the largest values of $\phi(t) \gg 1$, when $\sinh \phi(t) \approx \cosh \phi(t) \approx \exp[\phi(t)]/2$, so that $A \approx B$ and Eq. (47) yields a simple Lorentzian on a flat “pedestal”. The coincidence of the low-temperature asymptotics with the single-phonon limit allows us to interpret the low-temperature Fano-like spectrum as resulting predominantly from single-phonon processes, while the transition to the Lorentzian shape is due to the growing contribution from multiple-phonon scattering.

The intensity of the inelastic part of the RF spectrum stemming from the contribution in Eq. (40c) is again obtained directly from Eq. (10),

$$I_{\text{If}} = I_{\text{el}} e^{\phi(0)} \left(\frac{2 \text{Re} \xi}{\gamma |\xi|^2} - 1 \right). \quad (50)$$

In general, this includes not only the narrow feature discussed above but also a broad correction to the phonon sideband, which becomes important at strong phonon coupling.

The total intensity of the scattered light, I_{tot} , is therefore

$$I_{\text{tot}} = I_{\text{el}} + I_{\text{psb}} + I_{\text{If}} = \frac{\pi \Omega^2}{2\gamma} e^{-\phi(0)} \text{Re} \xi. \quad (51)$$

The parameter ξ , defined in Eq. (42), governs not only the total scattering intensity, but also the intensities of the three components that we have separated in our analysis, via I_{el} . This crucial parameter can be decomposed into two parts, $\xi = \xi' + \xi''$, with

$$\xi'(\Delta) = \int_0^\infty ds e^{-(\gamma/2 - i\Delta)s} = \frac{1}{\gamma/2 - i\Delta} \quad (52)$$

and

$$\xi''(\Delta) = \int_0^\infty ds e^{-(\gamma/2 - i\Delta)s} \left(e^{\phi(s)} - 1 \right). \quad (53)$$

The first component yields

$$\text{Re} \xi' = \frac{\gamma/2}{(\gamma/2)^2 + \Delta^2} = \frac{\gamma}{2} |\xi'|^2.$$

This Lorentzian dependence on detuning is known from the standard theory of resonance fluorescence and accounts for the excitation via the central line (fundamental transition). The second contribution gives rise to

$$\text{Re} \xi'' \approx \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} ds e^{i\Delta s} \left(e^{\phi(s)} - 1 \right) \propto S_{\text{psb}}(\omega_L - \Delta),$$

where we omitted the damping with the rate $\gamma/2$ in view of the very strong localization of the integrand in the range $s \ll 1/\gamma$. Thus, this part reproduces the phonon-sideband, but inverted with respect to the laser frequency, i.e., absorption-like. It accounts for the phonon scattering via phonon-assisted excitation.

IV. NUMERICAL RESULTS AND DISCUSSION

In this section, we present the results of numerical calculations of the RF spectrum and discuss its properties. For simplicity, we assume the phonon spectral density in the form

$$J(\omega) = \frac{F_{\text{HR}}}{\omega_c^2} \omega^3 e^{-\omega^2/(2\omega_c^2)}, \quad (54)$$

which accounts for the dependence $\propto \omega^3$ at low frequencies and a high-frequency cutoff at $\omega = \omega_c$, while disregarding structural details irrelevant to the discussed phenomena. In the simulations, we set $\gamma = 1 \text{ ns}^{-1}$ and $\omega_c = 1 \text{ ps}^{-1}$. We will present the spectra relative to the characteristic magnitude of $S_0 = \Omega^2/(\gamma^2 \omega_c)$ and the intensities related to $I_0 = \Omega^2/\gamma^2$.

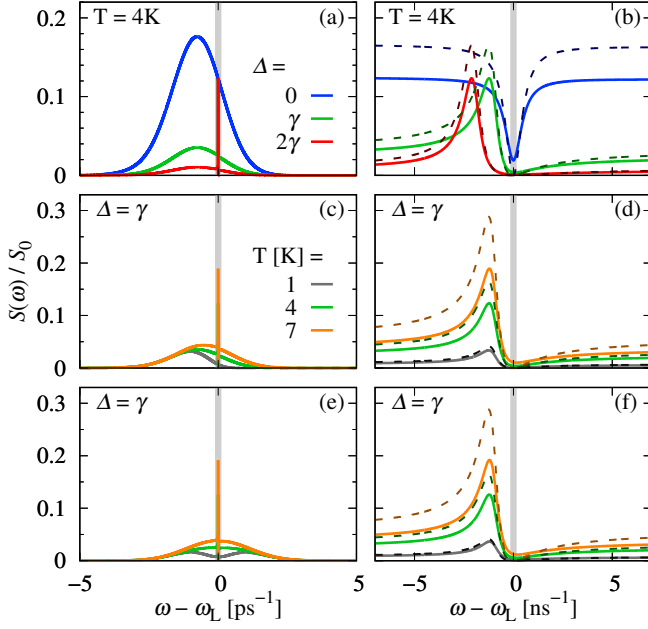


FIG. 1. RF spectrum at weak phonon coupling ($F_{\text{HR}} = 0.1$), in a broad (left) and narrow (right) spectral ranges around the resonance (notice the different units on the frequency axes). (a,b) Spectra at various detunings, as shown, at a fixed temperature $T = 4$ K. (c,d) Spectra at various temperatures, as shown in (c), for a fixed laser detuning $\Delta = \gamma$. Vertical gray belts schematically show the position of the central elastic-scattering line. Dashed lines with colors corresponding to the respective solid lines present the RF spectra in the weak coupling limit for the same parameters of temperature and detuning. (e,f) As in (c,d) but for classical noise.

A. Moderate phonon coupling

Fig. 1 shows the RF spectra for a moderate phonon coupling, where we set $F_{\text{HR}} = 0.1$. Figs. 1a,b present the results at a fixed temperature $T = 4$ K. In Fig. 1a we see the interplay between the broad PSB, the narrow inelastic feature, and the central elastic-scattering line (marked here and elsewhere as a vertical grey bar). Fig. 1b zooms in on the narrow spectral range around the resonance, where the PSB is essentially flat and together with the narrow feature creates a Fano-like feature as predicted in Sec. III D: As the detuning decreases, the RF spectrum evolves from a mostly absorptive shape (red line), through dispersive (green line), to a spectral dip (inverted Lorentzian) around the laser frequency (blue line) for resonant excitation. At the same time, the overall intensity drops down as the excitation gets increasingly detuned, which is simply due to reduced excitation efficiency, governed by the prefactor in Eq. (47). In the weak coupling limit (dashed lines), the RF spectrum shows exact Fano form with entirely suppressed scattering at the laser frequency ($\omega = \omega_L$).

Figs. 1c,d present the temperature dependence of the RF spectra at slightly detuned excitation ($\Delta = \gamma$), in

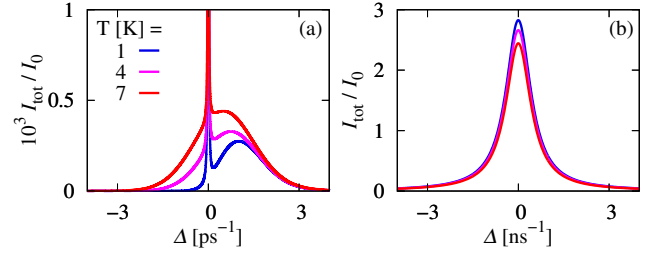


FIG. 2. Total scattering intensity as a function of the excitation detuning from the fundamental transition for broad (a) and narrow (b) detuning ranges, for a weak phonon coupling ($F_{\text{HR}} = 0.1$) at different temperatures. Dashed lines correspond to the weak coupling limit.

a broad and narrow spectral range, respectively. As the temperature increases, the PSB grows and becomes more symmetric due to enhanced phonon absorption, as is known e.g. in absorption spectroscopy [35]. The growth of scattering in the low-frequency sector (Fig. 1d) is approximately linear in temperature, in accordance with Eq. (47) and Eq. (48). As predicted by our general theory, the width of the inelastic profile remains constant.

Figs. 1e,f present the RF spectrum for classical Gaussian noise, for the same parameters as in Figs. 1c,d. Classical noise generates a symmetric broad sideband, since the difference between phonon absorption and emission is not applicable in this case. Alternatively, one can say that classical noise is a (renormalized) high-temperature limit of the quantum case, where the sideband becomes symmetric. Comparing Fig. 1f with Fig. 1d, one can see that the inelastic feature is the same in the quantum and classical regimes, showing Fano behavior in both these cases. Fano resonances are known to be generic for systems in which a discrete transition is located on a broad background and hence also to appear in purely classical systems [46, 60–68] that may be as simple as coupled damped oscillators [68–72]. The present result demonstrates this feature for an inherently quantum two-level system in which the spectral background originates from environmental noise, the classical and quantum regimes of which can be treated on equal footing, showing no difference in the spectral properties between these two cases.

Fig. 2 presents the total scattering intensity as a function of the detuning of the laser frequency from the polaron-shifted fundamental transition. At small detunings, Fig. 2a, a Lorentzian profile appears, in accordance with Eq. (51) and Eq. (52). In a wider range of detunings (Fig. 2b), the inverted broad phonon sideband is reproduced, as predicted by Eq. (53). Note that the intensity of this phonon-assisted scattering is three orders of magnitude weaker than that at direct excitation. The scattering intensities shown in Fig. 2 show temperature dependence that reflects the transfer of spectral weight from the central line to phonon sidebands: the scattering intensity at nearly-resonant excitation decreases, while

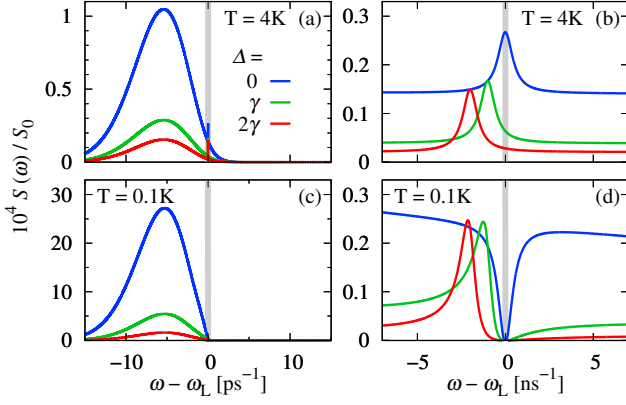


FIG. 3. RF spectrum for a strong phonon coupling ($F_{\text{HR}} = 5$), in a broad (left) and narrow (right) spectral range around the resonance. Results are shown at fixed temperatures T . Vertical gray belts denote again the elastic-scattering, central line.

at phonon-assisted excitation it increases as the temperature grows. In addition, the increasing intensity at red-detuned excitation reflects the growing contribution from phonon absorption processes.

B. Strong phonon coupling

Fig. 3a,b shows the RF spectrum for a strong phonon coupling ($F_{\text{HR}} = 5$) at two different temperatures. In the broad spectral range (Fig. 3a,c) the RF spectrum again consists of a central, unbroadened line, a broad PSB, and a narrow inelastic scattering feature, the structure of which is better visible in the narrow spectral range in Fig. 3b,d. Compared to the weak coupling case (Fig. 1), the overall amplitude of the RF spectrum is reduced by several orders of magnitude (see also Fig. 5, discussed below). This is a consequence of the strongly reduced efficiency of nearly-resonant exciton due to transfer of spectral weight from the fundamental to phonon-assisted transitions. For strong coupling, this exponential effect dominates over the relative enhancement of the phonon sidebands. Moreover, there is a greater contribution of multiphonon processes, which results in a broadening of PSB. The most striking difference between the weak- and strong-coupling cases is the disappearance of the Fano profile, which is replaced by a Lorentzian at $T = 4$ K (Fig. 3b). Indeed, at this temperature and for the selected value of the H-R factor, the parameters A and B in Eq. (46) become nearly equal, hence Eq. (47) yields a Lorentzian, as discussed in Sec. III D. As follows from that discussion, at low temperatures single-phonon processes dominate even for strong coupling and the Fano line profile should be recovered, which is indeed the case, as shown in Fig. 3d. One feature of the spectra in Figs. 3a,c that may seem surprising is the increase of the phonon sidebands with decreasing temperature. This is

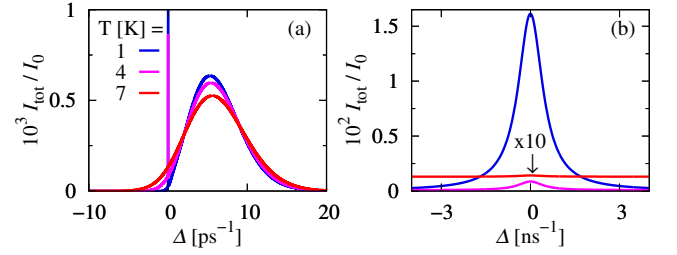


FIG. 4. Total scattering intensity for a strong coupling ($F_{\text{HR}} = 5$) as a function of the detuning Δ in broad (a) and narrow (b) spectral ranges.

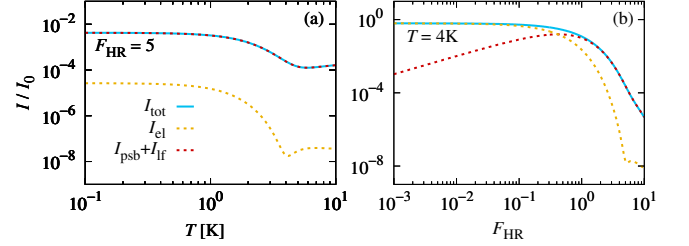


FIG. 5. Total intensity of the RF spectrum (I_{tot}), as well as intensity of the elastic (I_{el}) and inelastic ($I_{\text{psb}} + I_{\text{if}}$) parts at nearly-resonant excitation ($\Delta = \gamma$). (a) Dependence on temperature for a fixed $F_{\text{HR}} = 5$. (b) Dependence on the Huang-Rhys factor for a fixed temperature $T = 4$ K.

due to the double effect of the temperature-induced redistribution of spectral weight between the central line and the sidebands: On the one hand, the sidebands are relatively weaker at lower temperatures, while on the other hand, exactly for this reason, the excitation via the central line becomes more efficient. The latter turns out to dominate at strong phonon couplings. As we will see below, the relative intensity of phonon-assisted scattering decreases at lower temperatures, as expected. Finally, we note that for a strong phonon coupling, the width of the inelastic feature is again temperature-independent and equal to $\gamma/2$.

The total scattering intensity at $F_{\text{HR}} = 5$ is presented in Fig. 4. The intensity at nearly resonant excitation, corresponding to excitation via central line, is much lower than for a weak coupling, as most of the spectral weight is transferred to sidebands. Strong temperature dependence leads to suppression of scattering under such excitation conditions already at $T = 7$ K. Excitation via phonon sidebands leads to similar peak scattering intensity as for weak coupling, although the maximum is shifted to higher detunings and the range of detunings leading to efficient scattering is considerably extended due to multi-phonon processes. The slight decrease of the scattering intensity at growing temperatures may be attributed to redistribution of the spectral weight over a growing range of frequencies enabled by multiphonon processes at higher temperatures.

Fig. 5a shows the decomposition of the scattering in-

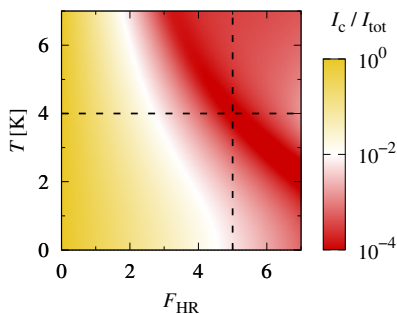


FIG. 6. Map of the relative contribution of I_c to I_{tot} for different Huang-Rhys factors and temperatures. Results for $\Delta = \gamma$. Dashed vertical and horizontal black lines at correspond to the situations from Fig. 5 (a) and (b), respectively.

tensity into elastic and inelastic (phonon-induced) components, the latter comprising both the low-frequency feature and the broad phonon sideband, as a function of temperature at a nearly resonant excitation for strong phonon-coupling. These results confirm that, at such strong phonon couplings, the scattering is dominated by the inelastic component and that the total intensity of the RF spectrum drops with growing temperature in the sub-Kelvin to few Kelvin range. The growth of the scattering intensity at higher temperatures is due to the increasing efficiency of phonon-assisted excitation, which become the dominating excitation channel even in this nearly-resonant regime. The cross-over between the regimes of dominant elastic and inelastic scattering around $F_{\text{HR}} = 1$ is visible in Fig. 5b, where we show the same decomposition at a fixed temperature as a function of the phonon coupling strength.

Fig. 6 presents the intensity of the elastic line relative to the total scattering intensity as a function of temperature and H-R factor at nearly resonant excitation. As expected, the transition to the regime where the scattering to phonon sidebands strongly dominates over the elastic contribution ($I_c \lesssim 0.01 I_{\text{tot}}$, red area) shifts to lower phonon couplings as the temperature grows, although this change is not very strong.

V. CONCLUSIONS

We have shown that the low-excitation RF spectrum of a two-level system coupled to a bosonic bath (e.g. phonons) with a super-Ohmic spectral density shows a Fano-like profile of inelastic scattering intensity near the resonant energy for moderately strong phonon couplings.

The Fano profile in the independent-boson model describing this system is characteristic of the resonance fluorescence and does not appear in other types of linear or nonlinear spectroscopy, where phonon effects are manifested only by broad phonon sidebands, which exist also in fluorescence. The amplitude of the Fano feature grows linearly with temperature. However, because of the super-Ohmic character of the phonon reservoir, its width depends solely on the exciton life time. In the weak-coupling limit (single-phonon processes), the spectral profile becomes an exact Fano shape, where resonant light scattering is totally suppressed. For strong phonon couplings, the Fano profile disappears due to the growing role of multi-phonon processes, unless the temperature is very low.

Phonon effects are manifested also in the dependence of the total scattering intensity on the excitation frequency, where broad sidebands appear due to phonon-assisted excitation. The total scattering intensity, as well as its distribution into elastic and inelastic (phonon-assisted) components, reflects the impact of phonons on both excitation and scattering efficiency, leading to different behaviors in different spectral ranges and for different coupling strengths. However, in general, the contribution of phonon-assisted scattering grows with both the coupling strength and the temperature, as expected.

We have also formally captured the quantumness of the phonon noise by tracing it back to the non-commutativity of noise observables. We have shown that the Fano feature persists in the classical (commutative) limit of classical Gaussian noise with an appropriate spectral density.

On the fundamental level, our results indicate the presence of a characteristic feature that appears only in the particular type of spectroscopy of a solid-state quantum emitter. The formalism itself relies on the description of the reservoir via its spectral density and can easily be applied to any system described by the independent boson model. From the perspective of applications, in view of the growing role of resonance fluorescence in characterizing and exploiting the quantum properties of solid-state emitters of light, the presented study may be important for designing and optimizing quantum light sources.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank D. Groll for discussions during the early stages of this work. This project was supported by the Polish National Science Centre (Narodowe Centrum Nauki, NCN) under grant no. 2023/50/A/ST3/00511 and by the German Federal Ministry of Education and Research via the Research Group Linkage Program of the Alexander von Humboldt Foundation.

[1] M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum Optics* (Cambridge University Press, 1997).

[2] P. Meystre and M. Sargent, *Elements of quantum optics*

- (Springer Berlin Heidelberg, 2007).
- [3] J. Dalibard and S. Reynaud, *Journal de Physique* **44**, 1337–1343 (1983).
 - [4] G. Nienhuis, *Phys. Rev. A* **47**, 510 (1993).
 - [5] E. Schöll, L. Hanschke, L. Schweickert, K. D. Zeuner, M. Reindl, S. F. Covre da Silva, T. Lettner, R. Trotta, J. J. Finley, K. Müller, A. Rastelli, V. Zwiller, and K. D. Jöns, *Nano Lett.* **19**, 2404 (2019).
 - [6] X.-J. Wang, G. Huang, M.-Y. Li, Y.-Z. Wang, L. Liu, B. Wu, H. Liu, H. Ni, Z. Niu, W. Ji, R. Jiao, H.-L. Yin, and Z. Yuan, *Nature Communications* **16**, 6453 (2025).
 - [7] G. Wrigge, I. Gerhardt, J. Hwang, G. Zumofen, and V. Sandoghdar, *Nature Phys.* **4**, 60 (2008).
 - [8] A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao, and C. K. Shih, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 187402 (2007).
 - [9] O. Astafiev, A. M. Zagorskin, A. A. Abdumalikov, Y. A. Pashkin, T. Yamamoto, K. Inomata, Y. Nakamura, and J. S. Tsai, *Science* **327**, 840 (2010).
 - [10] D. M. Toyli, A. W. Eddins, S. Boutin, S. Puri, D. Hover, V. Bolkhovsky, W. D. Oliver, A. Blais, and I. Siddiqi, *Phys. Rev. X* **6**, 031004 (2016).
 - [11] A. N. Vamivakas, C.-Y. Lu, C. Matthiesen, Y. Zhao, S. Fält, A. Badolato, and M. Atatüre, *Nature* **467**, 297 (2010).
 - [12] A. Delteil, W.-b. Gao, P. Fallahi, J. Miguel-Sanchez, and A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 116802 (2014).
 - [13] S. T. Yilmaz, P. Fallahi, and A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 33601 (2010).
 - [14] Y. L. Delley, M. Kroner, S. Faelt, W. Wegscheider, and A. Imamoglu, *Phys. Rev. B* **96**, 241410 (2017).
 - [15] C.-Y. Lu, Y. Zhao, A. N. Vamivakas, C. Matthiesen, S. Fält, A. Badolato, and M. Atatüre, *Phys. Rev. B* **81**, 035332 (2010).
 - [16] A. Nick Vamivakas, Y. Zhao, C.-Y. Lu, and M. Atatüre, *Nature Physics* **5**, 198 (2009).
 - [17] M. Weiß and H. J. Krenner, *Journal of Physics D: Applied Physics* **51**, 373001 (2018).
 - [18] P. Delsing, A. N. Cleland, M. J. A. Schuetz, J. Knörzer, G. Giedke, J. I. Cirac, K. Srinivasan, M. Wu, K. C. Balram, C. Bäuerle, T. Meunier, C. J. B. Ford, P. V. Santos, E. Cerda-Méndez, H. Wang, H. J. Krenner, E. D. S. Nysten, M. Weiß, G. R. Nash, L. Thevenard, C. Gourdon, P. Rovillain, M. Marangolo, J.-Y. Duquesne, G. Fischer-auger, W. Ruile, A. Reiner, B. Paschke, D. Denysenko, D. Volkmer, A. Wixforth, H. Bruus, M. Wiklund, J. Reboud, J. M. Cooper, Y. Fu, M. S. Brugger, F. Rehfeldt, and C. Westerhausen, *Journal of Physics D: Applied Physics* **52**, 353001 (2019).
 - [19] M. Weiß, D. Wigger, M. Nägele, K. Müller, J. J. Finley, T. Kuhn, P. Machnikowski, and H. J. Krenner, *Optica* **8**, 291 (2021).
 - [20] D. Wigger, M. Weiß, M. Lienhart, K. Müller, J. J. Finley, T. Kuhn, H. J. Krenner, and P. Machnikowski, *Phys. Rev. Res.* **3**, 033197 (2021).
 - [21] M. Metcalfe, S. M. Carr, A. Muller, G. S. Solomon, and J. Lawall, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 037401 (2010).
 - [22] P. Senellart, G. Solomon, and A. White, *Nature Nanotechnology* **12**, 1026 (2017).
 - [23] N. Lo Piparo, W. J. Munro, and K. Nemoto, *Phys. Rev. A* **99**, 022337 (2019).
 - [24] H.-H. Lu, M. Liscidini, A. L. Gaeta, A. M. Weiner, and J. M. Lukens, *Optica* **10**, 1655 (2023).
 - [25] J.-W. Pan, Z.-B. Chen, C.-Y. Lu, H. Weinfurter, A. Zeilinger, and M. Żukowski, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 777 (2012).
 - [26] K. Stannigel, P. Rabl, A. S. Sørensen, P. Zoller, and M. D. Lukin, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 220501 (2010).
 - [27] D. Groll, F. Paschen, P. Machnikowski, O. Hess, D. Wigger, and T. Kuhn, *Advanced Quantum Technologies* **8**, 2300153 (2025).
 - [28] T. T. Tran, K. Bray, M. J. Ford, M. Toth, and I. Aharonovich, *Nature Nanotechnology* **11**, 37 (2016).
 - [29] L. J. Martínez, T. Pelini, V. Waselowski, J. R. Maze, B. Gil, G. Cassabo, and V. Jacques, *Phys. Rev. B* **94**, 121405 (2016).
 - [30] N. R. Jungwirth, B. Calderon, Y. Ji, M. G. Spencer, M. E. Flatté, and G. D. Fuchs, *Nano Letters* **16**, 6052 (2016).
 - [31] M. Kianinia, B. Regan, S. A. Tawfik, T. T. Tran, M. J. Ford, I. Aharonovich, and M. Toth, *ACS Photonics* **4**, 768 (2017).
 - [32] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette, *Phys. Rev. B* **63**, 155307 (2001).
 - [33] I. Favero, G. Cassabo, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, P. Roussignol, and J. M. Gérard, *Phys. Rev. B* **68**, 233301 (2003).
 - [34] A. Vagov, V. M. Axt, T. Kuhn, W. Langbein, P. Borri, and U. Woggon, *Phys. Rev. B* **70**, 201305(R) (2004).
 - [35] B. Krummheuer, V. M. Axt, and T. Kuhn, *Phys. Rev. B* **65**, 195313 (2002).
 - [36] K. Huang and A. Rhys, *Proc. R. Soc. Lond.* **204**, 406 (1950).
 - [37] D. Wigger, R. Schmidt, O. Del Pozo-Zamudio, J. A. Preuß, P. Tonndorf, R. Schneider, P. Steeger, J. Kern, Y. Khodaei, J. Sperling, S. M. de Vasconcellos, R. Bratschitsch, and T. Kuhn, *2D Materials* **6**, 035006 (2019).
 - [38] J. A. Preuss, D. Groll, R. Schmidt, T. Hahn, P. Machnikowski, R. Bratschitsch, T. Kuhn, S. M. de Vasconcellos, and D. Wigger, *Optica* **9**, 522 (2022).
 - [39] J. Kabuss, S. Werner, A. Hoffmann, P. Hildebrandt, A. Knorr, and M. Richter, *Phys. Rev. B* **81**, 075314 (2010).
 - [40] J. Kabuss and M. Richter, *Photonics Nanostructures - Fundam. Appl.* **9**, 296 (2011).
 - [41] D. P. S. McCutcheon and A. Nazir, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 217401 (2013).
 - [42] K. J. Ahn, J. Förstner, and A. Knorr, *Phys. Rev. B* **71**, 153309 (2005).
 - [43] R. A. Bogaczewicz and P. Machnikowski, *New Journal of Physics* **25**, 093057 (2023).
 - [44] R. A. Bogaczewicz and P. Machnikowski, *Opt. Lett.* **50**, 888 (2025).
 - [45] U. Fano, *Phys. Rev.* **124**, 1866 (1961).
 - [46] D. M. Riffe, *Phys. Rev. B* **84**, 064308 (2011).
 - [47] J. D. Lee, J. Inoue, and M. Hase, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 157405 (2006).
 - [48] O. V. Misochko and M. V. Lebedev, *J. Exp. Theor. Phys.* **120**, 651 (2015).
 - [49] S. Yoshino, G. Oohata, and K. Mizoguchi, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 157402 (2015).
 - [50] Y. Watanabe, K.-i. Hino, M. Hase, and N. Maeshima, *Phys. Rev. B* **95**, 014301 (2017).
 - [51] M. Vinod, G. Raghavan, and V. Sivasubramanian, *Sci Rep* **8**, 17706 (2018).
 - [52] Y. Watanabe, K.-i. Hino, N. Maeshima, H. Petek, and M. Hase, *Phys. Rev. B* **99**, 174304 (2019).
 - [53] T. Vasileiadis, H. Zhang, H. Wang, M. Bonn, G. Fytas,

- and B. Graczykowski, *Sci. Adv.* **6**, eabd4540 (2020).
- [54] J. M. Kitzman, J. R. Lane, C. Undershute, N. R. Bey-sengulov, C. A. Mikolas, K. W. Murch, and J. Pollanen, *Phys. Rev. A* **108**, L010601 (2023).
 - [55] P. Khatri, I. J. Luxmoore, and A. J. Ramsay, *Phys. Rev. B* **100**, 125305 (2019).
 - [56] U. Weiss, *Quantum Dissipative Systems.*, 2nd ed. (World Scientific Publishing Company, Singapore, 1998).
 - [57] D. E. Reiter, T. Kuhn, and V. M. Axt, *Advances in Physics: X* **4**, 1655478 (2019).
 - [58] S. Lüker, T. Kuhn, and D. E. Reiter, *Phys. Rev. B* **96**, 245306 (2017).
 - [59] G. D. Mahan, *Many Particle Physics, Third Edition* (Plenum, New York, 2000).
 - [60] A. M. Jayich, J. C. Sankey, K. Børkje, D. Lee, C. Yang, M. Underwood, L. Childress, A. Petrenko, S. M. Girvin, and J. G. E. Harris, *New J. Phys.* **14**, 115018 (2012).
 - [61] C. Timberlake, M. Toroš, D. Hempston, G. Winstone, M. Rashid, and H. Ulbricht, *Applied Physics Letters* **114**, 023104 (2019).
 - [62] M. I. Tribelsky, S. Flach, A. E. Miroshnichenko, A. V. Gorbach, and Y. S. Kivshar, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 043903 (2008).
 - [63] N. Liu, L. Langguth, T. Weiss, J. Kästel, M. Fleischhauer, T. Pfau, and H. Giessen, *Nature Materials* **8**, 758 (2009).
 - [64] F. Hao, Y. Sonnefraud, P. V. Dorpe, S. A. Maier, N. J. Halas, and P. Nordlander, *Nano Letters* **8**, 3983 (2008).
 - [65] N. Verellen, Y. Sonnefraud, H. Sobhani, F. Hao, V. V. Moshchalkov, P. V. Dorpe, P. Nordlander, and S. A. Maier, *Nano Letters* **9**, 1663 (2009).
 - [66] B.-B. Li, Y.-F. Xiao, C.-L. Zou, Y.-C. Liu, X.-F. Jiang, Y.-L. Chen, Y. Li, and Q. Gong, *Applied Physics Letters* **98**, 021116 (2011).
 - [67] H.-T. Lee and A. W. Poon, *Opt. Lett.* **29**, 5 (2004).
 - [68] M. Iizawa, S. Kosugi, F. Koike, and Y. Azuma, *Phys. Scr.* **96**, 055401 (2021).
 - [69] C. L. Garrido Alzar, M. A. G. Martinez, and P. Nussen-zweig, *American Journal of Physics* **70**, 37 (2002).
 - [70] Y. S. Joe, A. M. Satanin, and C. S. Kim, *Physica Scripta* **74**, 259 (2006).
 - [71] S. Satpathy, A. Roy, and A. Mohapatra, *European Journal of Physics* **33**, 863 (2012).
 - [72] S. Stassi, A. Chiadò, G. Calafiore, G. Palmara, S. Cabrini, and C. Ricciardi, *Scientific Reports* **7**, 1065 (2017).