

Dynamik und Korrelationen eines Bose-Einstein-Kondensats aus Licht

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von

Julian Schmitt

aus

Andernach

Bonn 2015

Angefertigt mit Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

1. Gutachter: Prof. Dr. Martin Weitz
2. Gutachter: Prof. Dr. Dieter Meschede

Tag der Promotion: 21. Dezember 2015

Erscheinungsjahr: 2016

Zusammenfassung

Einer der bemerkenswertesten Aspekte der Bose-Einstein-Kondensation ist die natürliche Ausprägung von Korrelationen und langreichweitiger Ordnung in einem System, welches sich im thermischen Gleichgewicht befindet. Insbesondere gilt dies auch für das ideale Bose-Gas, in welchem sich im kondensierten Bereich bei Messung der Phase - beispielsweise in einem Interferenzexperiment - Kohärenz ohne jegliche Wechselwirkung zwischen den Gasteilchen ausbreitet. Dies steht im Gegensatz zu den meisten anderen Phasenübergängen, die ihrerseits eine Wechselwirkung zwischen den Teilchen verlangen, wie z.B. beim Übergang zum Ferromagnetismus. Das Auftreten der makroskopischen Phase des Bose-Einstein-Kondensats lässt mit dem Begriff der spontanen Symmetriebrechung erklären, einem Phänomen, das seinerseits keine Wechselwirkung erfordert. Viele experimentell untersuchte Bose-Gase, auch atomare Gase, sind jedoch aufgrund ihrer endlichen Wechselwirkung weit vom Szenario des idealen Gases entfernt. Zur Realisierung von Bose-Einstein-Kondensaten in verdünnten, atomaren Gasen werden daher aufwendige Kühlverfahren eingesetzt, die die Temperatur bis in den Nanokelvin-Bereich absenken.

Das vielleicht allgegenwärtigste ideale Bose-Gas im thermischen Gleichgewicht ist die Schwarzkörperstrahlung. Die Strahlungsleistung hängt hier jedoch von der Temperatur des Hohlraums ab, und das Photonengas verschwindet beim Abkühlen und keine Bose-Einstein-Kondensation findet statt. Mögliche teilchenzahlerhaltende Thermalisierungsprozesse für Photonen sind durch Photon-Photon-Stöße in einem nichtlinearen Medium denkbar, andere Experimente basieren auf der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Licht-Materie-Quasiteilchen, sogenannten Exziton-Polaritonen.

Gegenstand der vorliegenden Arbeit sind Untersuchungen der Dynamik und zeitlichen Intensitäts- und Phasenkorrelationen eines Bose-Einstein-kondensierten zweidimensionalen Photonengases in einem optischen Farbstoff-Mikroresonator. Die Thermalisierung der Photonen erfolgt in gewissem Sinne ähnlich zur Schwarzkörperstrahlung: Absorptions- und Reemissionsprozesse stellen eine thermische Kopplung des Lichts an ein Wärmebad und Teilchenreservoir bestehend aus Farbstoffmolekülen bei Raumtemperatur her. Anders als beim Schwarzkörperstrahler ist die Dynamik der Photonen im Mikroresonator jedoch auf ihre transversalen Freiheitsgrade beschränkt, sodass die Photonenenergien im optischen Spektralbereich thermisch über die transversale Modenstruktur des Resonators verteilt werden. Die Energie-Impuls-

Relation der Photonen zeigt zudem eine formale Analogie mit der Dispersionsrelation eines zweidimensionalen massiven Bose-Gases, das in einem harmonischen Fallpotential eingesperrt ist. Im Farbstoff-Mikroresonator lassen sich Temperatur und chemisches Potential des zweidimensionalen Photonengases unabhängig voneinander einstellen. Oberhalb einer kritischen Photonenzahl kommt es zur Bose-Einstein-Kondensation mit einer makroskopischen Besetzung des Grundzustands.

In einem ersten Schritt wurde die Thermalisierungsdynamik der Photonen an dem molekularen Wärmebad durch zeitaufgelöste Messungen der optischen Frequenzverteilung im Mikroresonator, sowie einer räumlichen Relaxierung der Photonen ins Fallenzentrum nachgewiesen. Ist der thermische Kontakt zu den Farbstoffmolekülen hinreichend stark, formiert sich das Photonengas innerhalb seiner Lebensdauer im Resonator zu einer thermischen Verteilung (Bose-Einstein-Verteilung). Oberhalb einer kritischen optischen Leistung kann auf diese Weise die Thermalisierung eines zunächst laserartigen, nicht-stationären Wellenpakets fernab des Gleichgewichts hin zu einem Bose-Einstein-Kondensat im energetisch niedrigsten Eigenzustand des harmonischen Potentials im Fallenzentrum festgestellt werden.

Zentrales Thema der vorliegenden Arbeit sind Messungen zur Physik der Teilchenzahlfluktuationen und der Phasenkohärenz eines Bose-Einstein-Kondensats aus Licht im großkanonischen statistischen Ensemble. Die Kopplung des Photonengases an das Reservoir aus Farbstoffmolekülen lässt neben dem Austausch von Energie auch effektiven Teilchenaustausch zu, was durch das großkanonische Ensemble beschrieben werden kann. Damit verbunden ist eine erwartete Änderung der Teilchenzahlstatistik des Kondensats. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte die Kopplung an das Teilchenreservoir experimentell bestätigt werden und erstmals eine Bose-Einstein-Kondensation im großkanonischen statistischen Ensemble beobachtet werden. Dazu wurden die zeitlichen Intensitätskorrelationen des Bose-Einstein-kondensierten Grundzustandes in einem Hanbury Brown-Twiss-Aufbau studiert, und die zugehörigen statistischen Fluktuationen direkt nachgewiesen. Weiterhin konnte die zeitliche Kohärenz der Kondensatphase durch Heterodyn-Interferometrie mit einem lokalen Laseroszillator verifiziert werden. Im großkanonischen Bereich offenbaren sich diskrete Phasensprünge in der Wellenfunktion, anhand derer die spontane Symmetriebrechung bei der Kondensation *in situ* verfolgt werden konnte. Die zufällige Verteilung der Phasenwinkel demonstriert die volle $U(1)$ -Symmetrie des Hamilton-Operators. Die Evidenzen für Thermalisierung und Phasenkohärenz lassen den Schluss zu, dass es sich bei der Bose-Einstein-Kondensation von Licht um einen Gleichgewichtsphasenübergang eines idealen Bose-Gases handelt, bei welchem die Symmetrie des Systems spontan gebrochen wird. Die Resultate verdeutlichen, dass Bose-Einstein-Kondensation - im Gegensatz zum konventionell definierten Laser - keine Kohärenz zweiter Ordnung impliziert.

Publikationen

Im Rahmen dieser Doktorarbeit sind folgende Veröffentlichungen entstanden:

- J. Klärs, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger, M. Weitz, Bose-Einstein-Kondensat aus Licht, *Physik in unserer Zeit* **42**, 58–59 (2011)
- J. Klärs, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger, M. Weitz, Bose-Einstein condensation of paraxial light, *Applied Physics B* **105**, 17–33 (2011)
- J. Klärs, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger, M. Weitz, Statistical physics of Bose-Einstein-condensed light in a dye microcavity, *Physical Review Letters* **108**, 075019 (2012)
- J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klärs, Thermalization of a two-dimensional photon gas in a polymeric host matrix, *New Journal of Physics* **14**, 075019 (2012)
- J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, J. Klärs und M. Weitz, Observation of Grand-Canonical Number Statistics in a Photon Bose-Einstein Condensate, *Physical Review Letters* **112**, 030401 (2014)
Siehe dazu auch:
 - C. Ciuti, Viewpoint: Statistical flickers in a Bose-Einstein Condensate of Photons, *Physics* **7**, 7 (2014)
 - A. Pelster, Flimmerndes Kondensat, *Physik Journal* **13**, Nr. 3 (2014)
- J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, J. Klärs und M. Weitz, Thermalization Kinetics of Light: From Laser Dynamics to Equilibrium Bose-Einstein Condensation of Photons, *Physical Review A* **92**, 011602(R) (2015)
- J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, C. Wahl, F. Vewinger, J. Klärs und M. Weitz, Spontaneous symmetry breaking and phase coherence of a photon Bose-Einstein condensate coupled to a reservoir, *Physical Review Letters*, im Druck (2016)
- T. Damm, J. Schmitt, Q. Liang, D. Dung, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klärs, Calorimetry of a Bose-Einstein condensed photon gas, *Nature Communications*, zur Veröffentlichung eingereicht (2016)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Ideales Bose-Gas	3
1.1.1	Bose-Einstein-Kondensation	4
1.1.2	Thermische Photonen	5
1.2	Korrelationen und Kohärenz	8
1.2.1	Phasen- und Dichtekorrelationen im Bose-Gas	9
1.2.2	Optische Fluktuationen und Kohärenz	12
1.2.3	Spontane Symmetriebrechung	16
1.3	Statistische Ensembles	17
1.3.1	Dichtefluktuationen im großkanonischen Ensemble	19
1.4	Experimentelles Umfeld	20
1.5	Photonen im Farbstoff-Mikroresonator	22
2	Bose-Einstein-Kondensation von Licht	27
2.1	Fluoreszenzinduzierte Thermalisierung	27
2.1.1	Kennard-Stepanov-Relation der Farbstoffmoleküle	28
2.2	Dispersionsrelation im Mikroresonator	32
2.3	Statistische Physik des Photonengases	36
3	Dynamik & Kohärenz von kondensierten Photonen	41
3.1	Ratengleichungsmodell	41
3.2	Thermalisierungsdynamik	43
3.3	Photonenzahl-Statistik	49
3.4	Phasenkohärenz	60
4	Experimente zur Thermalisierungsdynamik	67
4.1	Apparativer Aufbau	67

4.2	Spektrale Thermalisierungsdynamik	72
4.3	Dynamik der Bose-Einstein-Kondensation	77
4.4	Messung der räumlichen Photonenkinetik	80
5	Experimente zur Statistik kondensierter Photonen	83
5.1	Apparativer Aufbau	83
5.2	Zeitaufgelöste Photonenkorrelationen	87
5.3	Bose-Einstein-Kondensate für variable Reservoirgrößen	90
5.4	Intensitätsfluktuationen und Photonenstatistik	92
6	Experimente zur zeitlichen Phasenkohärenz	95
6.1	Apparativer Aufbau	95
6.1.1	Modulation der Kondensatfrequenz	99
6.1.2	Algorithmus zur Phasensprungdetektion	102
6.2	Phasenevolution des Bose-Einstein-Kondensats	103
6.3	Korrelationszeiten erster und zweiter Ordnung	105
6.4	Phasenstabilität im thermodynamischen Limes	107
6.5	Photonisches Bose-Einstein-Kondensat & Laser	110
7	Ausblick	113
	Anhang	117
A.1	Numerische Simulation der Photonendynamik	117

Kapitel 1

Einleitung

Licht bildet eine Schnittstelle bei der Wechselwirkung von Materie und stellt mit dem Photon, dem Quant des Lichtfeldes, als Informationsübermittler in vielerlei Hinsicht ein allgegenwärtiges physikalisches Teilchen im Alltag des Menschen dar. Das Photon ist überdies als bosonisches Elementarteilchen des Standardmodells ein fundamentaler Baustein für unser heutiges Verständnis der Natur [1].

Ein Gas aus Photonen kann aufgrund der (nahezu) verschwindenden Photon-Photon-Wechselwirkung als ideales Bose-Gas aufgefasst werden. Im thermodynamischen Gleichgewicht unterhalb einer kritischen Temperatur führt die Quantennatur der Teilchen im idealen massiven Bose-Gas dazu, dass das Gas einen Phasenübergang zu einem Bose-Einstein-Kondensat vollzieht [2–4]. Eine effektive, von Null verschiedene Masse für ein Gas aus Licht kann durch Einschluss in einen Mikroresonator erreicht werden. Ein makroskopischer Anteil der Gasteilchen akkumuliert dann im Grundzustand des Systems, womit sie durch ein- und dieselbe Wellenfunktion beschrieben werden und ihre ursprüngliche Individualität verlieren. Die Uniformität des Bose-Einstein-Kondensats manifestiert sich in der langreichweitigen Ordnung des Systems, d.h. es kommt zur Ausprägung von Phasenkohärenz in Raum und Zeit [5]. Die Interferenzfähigkeit ist eng mit einer spontanen Symmetriebrechung verknüpft, die sich beim Phasenübergang für ein nicht perfekt von der Umgebung abgeschirmtes Bose-Gas ereignet [6, 7]: bei der Bose-Einstein-Kondensation wird die Phase der Wellenfunktion des Kondensats trotz der Invarianz des Hamilton-Operators (bzw. der Energie) unter Eichtransformationen der Wellenfunktion spontan festgelegt.

Die zeitlichen und räumlichen Korrelationen in der Dichte bzw. Intensität des Kondensats werden maßgeblich durch das statistische Ensemble beeinflusst, in dem sich das Bose-Gas befindet [4]. Die Berechnung der mittleren spektralen Besetzungszahlen des Bose-Einstein-kondensierten Gases basiert üblicherweise auf dem großkanonischen Ensemble, in dem das Bose-Gas an ein Wärmebad und Teilchenreservoir koppelt. Ersteres reguliert die Temperatur, letzteres stellt das chemische Potential des Quantengases ein und resultiert in starken, statistischen Fluktuationen der

Teilchenzahl jedes Eigenzustandes. Für das makroskopisch besetzte Bose-Einstein-Kondensat werden die Schwankungen absolut gesehen besonders groß und führen zur „Großkanonischen Fluktuationkatastrophe“ des Gesamtsystems [8, 9]. Demgegenüber weist das kanonische Ensemble mit festgelegter Teilchenzahl die Dämpfung von Teilchenzahlfluktuationen auf, welches im Bose-Einstein-Kondensat die Ausbildung von Kohärenz zweiter Ordnung bewirkt.

Die erste experimentelle Beobachtung einer Bose-Einstein-Kondensation wurde in Quantengasen aus Alkaliatomen realisiert, nachdem sie mit aufwendigen Kühltechniken bis zu Temperaturen im Nanokelvin-Bereich abgekühlt worden waren [10–14]. In weiteren Arbeiten wurden Bose-Einstein-Kondensate von Mischzuständen aus Licht und Materie, sogenannten Exziton-Polaritonen, in Halbleiter-Mikroresonatoren beobachtet [15–18]. Interessanterweise zeigen Photonen der Schwarzkörperstrahlung keine Bose-Einstein-Kondensation, da Photonen bei tiefen Temperaturen in den Wänden des Hohlraums verschwinden [19]. Experimentell gelang es dennoch im Rahmen einer früheren Dissertation (Jan Klärs) [20], ein Bose-Einstein-Kondensat von Photonen in einem mit einer Farbstofflösung gefüllten, optischen Mikroresonator zu beobachten [21–23].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit gelang es zunächst, die Thermalisierungsdynamik des Photonengases im Farbstoff-Mikroresonator-System zeitaufgelöst zu verfolgen. Dadurch konnte nachgewiesen werden, dass der Thermalisierungsmechanismus des Lichts über die Kopplung an das molekulare Wärmebad erfolgt und das Photonengas bereits nach etwa einem Absorptions-Reemissions-Zyklus thermisch verteilt ist. Darüber hinaus erlaubte die Messung der Photonenkinetik die Beobachtung eines Übergangs von laserartiger Dynamik, bei der Photonen den Resonator aufgrund von Verlusten in einem nicht-thermischen Zustand verlassen, bis hin zu einem Bose-Einstein-Kondensat für den Fall, dass die Photonen hinreichend lange im Resonator gespeichert sind, dass sie eine thermische Gleichgewichtsverteilung annehmen. Den Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit bilden Messungen der Teilchenzahlfluktuationen und Phasenkohärenz von Lichtkondensaten. Hierbei gelang der erstmalige Nachweis eines Bose-Einstein-Kondensats im großkanonischen statistischen Ensemble. Er erfolgte über eine Studie der Intensitätskorrelationen eines an ein Teilchenreservoir gekoppelten Bose-Einstein-Kondensats, welche von den Korrelationen eines Bose-Einstein-Kondensats im üblichen (mikro-)kanonischen Ensemble abweichen. Auch konnte die makroskopische Phasenkohärenz für ein solches, an ein Teilchenreservoir gekoppeltes Bose-Einstein-Kondensat nachgewiesen werden.

Die folgenden Teile der Einleitung dieser Arbeit führen in die Grundlagen der Bose-Einstein-Kondensation und der Phasen- und Dichtekorrelationen im idealen Bose-Gas ein. Weiterhin werden die Begriffe der spontanen Symmetriebrechung und der großkanonischen Teilchenzahlfluktuationen näher erläutert. In Kapitel 2 erfolgt eine theoretische Einführung in die statistische Physik der Bose-Einstein-Kondensation von Licht im Farbstoff-gefüllten Mikroresonator, während in Kapitel 3 die erwartete

Dynamik, Photonenstatistik und Phasenkohärenz des Photonenkondensats theoretisch untersucht werden. Die Experimente zur Thermalisierungsdynamik des Photongases werden in Kapitel 4 beschrieben, während Kapitel 5 die Messungen zu den Intensitätskorrelationen, und Kapitel 6 zu der Phasenkohärenz des Bose-Einstein-Kondensats behandeln. Die Arbeit schließt mit einem Ausblick zu möglichen, weiterführenden Untersuchungen der in dieser Arbeit gewonnenen Resultate.

1.1 Ideales Bose-Gas

Die mikroskopische statistische Beschreibung von Quantengasen unterscheidet fundamental zwischen zwei Klassen von Teilchen: Bosonen und Fermionen. Bosonische Teilchen besitzen einen ganzzahligen Spin und die Vielteilchen-Wellenfunktion eines bosonischen Systems verhält sich symmetrisch unter der Vertauschung zweier beliebiger ununterscheidbarer Bosonen [4]. Fermionen hingegen kennzeichnen sich durch einen halbzahligen Spin, und die Vertauschung der Koordinaten zweier Teilchen führt hier zu einem Vorzeichenwechsel der Vielteilchen-Wellenfunktion des fermionischen Systems. Dieses antisymmetrische Verhalten der Wellenfunktion begründet das Pauli'sche Ausschlussprinzip [24], welches die Mehrfachbesetzung eines Zustandes durch identische Fermionen verbietet. Im Gegensatz dazu dürfen sich gleichartige Bosonen zur gleichen Zeit im selben Zustand befinden. Im Falle der Bose-Einstein-Kondensation erlaubt dies eine makroskopischen Besetzung des Ein-Teilchen-Grundzustandes, d.h. ein Großteil aller Teilchen des Bose-Gases befindet sich zur gleichen Zeit im gleichen Zustand [2, 3].

Für das ideale (wechselwirkungsfreie) Bose-Gas im thermischen Gleichgewicht ergibt sich die mittlere Besetzungszahl \bar{n} eines Ein-Teilchen-Zustands der Energie ϵ aus dem Produkt der Entartung des jeweiligen Energieniveaus $g(\epsilon)$ mit der Bose-Einstein-Verteilung

$$\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) = \frac{g(\epsilon)}{e^{(\epsilon-\mu)/k_B T} - 1}, \quad (1.1)$$

wobei k_B die Boltzmann-Konstante bezeichnet. Da die mittlere Anzahl der Teilchen im Gas erhalten sein soll, wird in Gl. (1.1) das chemische Potential μ eingeführt. Es wird durch die Temperatur T und die mittlere Gesamtteilchenzahl \bar{N} so festgelegt, dass die Randbedingung

$$\bar{N} = \sum_{\epsilon} \bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \quad (1.2)$$

erfüllt ist. Liegt der Grundzustand des Systems bei der Energie ϵ_0 , wird aus Gl. (1.1) schnell ersichtlich, dass $\mu \leq \epsilon_0$ gelten muss, damit die physikalische Bedingung $\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \geq 0$ gewährleistet ist. Für hohe Temperaturen gilt $\mu(\bar{N}, T) \ll -k_B T$ und die Effekte der Quantenstatistik können vernachlässigt werden. Gl. (1.1) ist dann näherungsweise durch die Boltzmann-Verteilung gegeben:

$$\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \simeq g(\epsilon) e^{-(\epsilon-\mu)/k_B T} \quad (1.3)$$

In diesem klassischen Grenzfall liegt das chemische Potential weit unterhalb der Energie des Grundzustandes $\mu \ll \epsilon_0$ und die mittleren Besetzungszahlen der Ein-Teilchen-Zustände sind deshalb sehr viel kleiner als die Gesamtteilchenzahl \bar{N} .

1.1.1 Bose-Einstein-Kondensation

Im Fall tiefer Temperaturen bestimmt die Quantenstatistik aus Gl. (1.1) die mittleren Besetzungszahlen der Energiezustände. Verringert man die Temperatur bei konstant gehaltener Teilchenzahl, so wächst das chemische Potential so lange an, bis es aus oben genannten Gründen seinen Maximalwert $\mu = 0$ erreicht hat. Folglich ist die mittlere Teilchenzahl in den angeregten Zuständen mit Energie ϵ durch den Wert $g(\epsilon)/\{\exp[\epsilon/k_B T] - 1\}$ begrenzt. Ist die Gesamtzahl der Teilchen in angeregten Zuständen kleiner als \bar{N} , sammeln sich alle weiteren Bosonen im Ein-Teilchen-Grundzustand an, dessen Besetzung beliebig groß werden kann. Das System vollzieht einen Phasenübergang zu einem Bose-Einstein-Kondensat [2, 4, 25, 26].

Die kritische Temperatur T_c , bei der die makroskopische Besetzung des Grundzustandes einsetzt, lässt sich durch Summation über die mittleren Besetzungszahlen aller angeregten Ein-Teilchen-Energieniveaus $\bar{N}_{\text{ex}} = \sum_{\epsilon > 0} \bar{n}_{T_c, \mu=0}(\epsilon)$ bestimmen. Wie es bei der Berechnung thermodynamischer Eigenschaften von Gasen üblich ist, wird hierzu die Summation über die Zustände unter Verwendung einer effektiven Zustandsdichte $\tilde{g}(\epsilon)$ durch eine Integration ersetzt, d.h. $\sum_{\epsilon} g(\epsilon) \rightarrow \int \tilde{g}(\epsilon) d\epsilon$. Die Energieabhängigkeit der Zustandsdichte hängt sowohl von der Dimensionalität des Systems als auch von der Art des verwendeten Fallenpotentials ab und sie spielt eine zentrale Rolle dabei, ob sich ein Bose-Einstein-Kondensat bei endlicher Temperatur $T_c > 0$ ausbilden kann [25, 27]. Im freien, homogenen System in drei Dimensionen ergibt sich für Teilchen der Masse m im Volumen V eine Zustandsdichte $\tilde{g}(\epsilon) = Vm/(\pi^2 \hbar^3) \sqrt{m\epsilon/2}$, wobei \hbar das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum bezeichnet. Die kritische Temperatur T_c ist implizit durch die Bedingung bestimmt, dass sich die Gesamtanzahl aller Teilchen vollständig über angeregte Zustände verteilen lässt

$$\begin{aligned} \bar{N} &= \bar{N}_{\text{ex}}(T_c, \mu = 0) \\ &\simeq \int_0^\infty \frac{Vm}{\pi^2 \hbar^3} \frac{\sqrt{m\epsilon/2}}{\exp[\epsilon/k_B T_c] - 1} d\epsilon \\ &= \frac{\zeta(3/2)V}{\hbar^3} \left(\frac{mk_B T_c}{2\pi} \right)^{3/2}. \end{aligned} \quad (1.4)$$

Hierbei ist der Koeffizient $\zeta(3/2) \simeq 2.612$ durch die Riemann'sche Zeta Funktion $\zeta(\alpha)$ bestimmt. Durch Auflösen von Gl. (1.4) ergibt sich die kritische Temperatur für den Fall konstant gehaltener Teilchenzahl

$$T_c = \frac{2\pi}{k_B m} \left(\frac{\hbar^3 \bar{N}}{\zeta(3/2) V} \right)^{2/3} \quad (3d, \text{ homogen}) \quad (1.5)$$

Umgekehrt lässt sich Gl. (1.4) als kritische Teilchenzahl bei konstanter Temperatur interpretieren. Um aus thermodynamischer Sicht von einem Phasenübergang sprechen zu können, muss die Kondensation bei derselben, endlichen Temperatur T_c im thermodynamischen Limes Bestand haben. Anhand von Gl. (1.5) sieht man, dass dies im unendlich großen System mit $\bar{N}, V \rightarrow \infty$ erfüllt ist, da die kritische Temperatur selbst nur von der Relativgröße beider Parameter, der Teilchendichte $n = \bar{N}/V$, abhängt und im thermodynamischen Grenzfall unverändert bleibt.

Um den Grad der Quantenentartung im dreidimensionalen idealen Bose-Gas zu bestimmen, ist es hilfreich, den Kondensatanteil einzuführen. Bei einer Temperatur T unterhalb der kritischen Temperatur ist die Anzahl von Teilchen in angeregten Zuständen $\bar{N}_{\text{ex}}(T)$ durch Gl. (1.4) bestimmt. Unter Verwendung des Ausdrucks für die kritische Temperatur in Gl. (1.5) und mit der Anzahl von Teilchen im Kondensat $\bar{n}_0(T) = \bar{N} - \bar{N}_{\text{ex}}(T)$ erhält man schließlich den Kondensatanteil als Funktion der reduzierten Temperatur T/T_c

$$\frac{\bar{n}_0}{\bar{N}} = 1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^{3/2}. \quad (1.6)$$

Ebenso wie die kritische Temperatur, hängt auch das Temperaturverhalten des Kondensatanteils wesentlich von der Zustandsdichte und der damit verbundenen Dimensionalität sowie den Fallenparametern des Systems ab. Das homogene, zweidimensionale Bose-Gas zeigt demnach keine Bose-Einstein-Kondensation bei endlichen Temperaturen. Die Zustandsdichte ist hier unabhängig von der Energie $\tilde{g}(\epsilon) = Am/2\pi\hbar^2$, wobei A die Fläche des Systems bezeichnet, sodass die kritische Teilchenzahl divergiert

$$N_c = \int_0^\infty \frac{Am/2\pi\hbar^2}{\exp(\epsilon/k_B T) - 1} d\epsilon \rightarrow \infty \quad (2d, \text{homogen}) \quad (1.7)$$

In der Anwesenheit eines Fallenpotentials ändert sich die Situation aber: Die zweidimensionale Zustandsdichte skaliert hier linear mit der Energie ϵ und das Integral in Gl. (1.7) wird wieder endlich [25, 27]. In Kapitel 2 wird die statistische Physik für das im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchte zweidimensionale, harmonisch gefangene Bose-Gas aus Licht im Detail diskutiert.

1.1.2 Thermische Photonen

In der vorliegenden Arbeit werden die statistischen und dynamischen Eigenschaften eines Bose-Einstein-kondensierten Photonengases in einem Mikroresonator untersucht. Neben verdünnten, schwach-wechselwirkenden atomaren Gasen stellen Photonen im thermischen Gleichgewicht eine Klasse von Bosonen dar, welche grundsätzlich besonders gut zur Beobachtung des Phasenübergangs geeignet sein sollten. Dies liegt u.a. an der technisch einfachen Zugänglichkeit und Manipulierbarkeit von Licht, sowie der quasi-wechselwirkungsfreien Eigenschaft und (verschwindenden) Masse der

Photonen, die zu einer hohen kritischen Temperatur führt. Im Folgenden wird für das wohl am besten bekannte Beispiel für thermisches Licht - die Schwarzkörperstrahlung - diskutiert, warum Photonen in diesem System trotz ihres bosonischen Charakters keine Bose-Einstein-Kondensation vollziehen.

Schwarzkörperstrahlung

Die Schwarzkörperstrahlung bezeichnet elektromagnetische Strahlung, die im thermischen Gleichgewicht mit einem einhüllenden Hohlraum bei der Temperatur T steht [3, 19]. Einerseits kann hierin Wärme durch Emission von Photonen in Strahlungsenergie umgewandelt werden, andererseits bewirkt die Absorption von Photonen in den Wänden des Resonators einen Anstieg der Wärmeenergie. Die Gesamtzahl der Photonen unterliegt daher keiner Randbedingung zur Teilchenzahlerhaltung wie in Gl. (1.2), entsprechend verschwindet das chemische Potential $\mu = 0$ aus der mittleren Besetzungszahl der Strahlungsmoden, vgl. Gl. (1.1). Für einen kubischen Hohlraumresonator ergibt sich unter Berücksichtigung der zweifachen Polarisationsart die spektrale Modendichte pro Volumen $\tilde{g}(\omega) = \omega^2/(\pi^2 c^3)$, mit der Frequenz $\omega = \epsilon/\hbar$ und der Lichtgeschwindigkeit c . In Analogie zu Gl. (1.1) lautet die mittlere spektrale Besetzungszahl pro Volumeneinheit

$$\bar{n}(\omega, T) = \frac{\omega^2/(\pi^2 c^3)}{\exp[\hbar\omega/k_B T - 1]}. \quad (1.8)$$

Durch Integration von Gl. (1.8) über alle Frequenzen lässt sich das Temperaturverhalten der Photonendichte herleiten

$$n = \frac{\bar{N}}{V} = \int_0^\infty \frac{\omega^2/(\pi^2 c^3)}{\exp[\hbar\omega/k_B T - 1]} d\omega = \frac{2\zeta(3)k_B}{\pi^2(\hbar c)^3} T^3 \rightarrow 0 \quad (T \rightarrow 0). \quad (1.9)$$

Gleichung (1.9) verdeutlicht die Nichterhaltung der Photonendichte bei Variation der Temperatur. Bei tiefen Temperaturen nimmt deshalb auch die Photonendichte im System ab und es tritt keine Bose-Einstein-Kondensation von Photonen der Schwarzkörperstrahlung in dem Grundmoden des Hohlraumes auf.

Einstein'sches Ratengleichungsmodell

Während atomare Ensembles durch Stöße zwischen den Teilchen des Gases ins thermodynamische Gleichgewicht relaxieren, ist die Kontaktwechselwirkung zwischen Photonen im Vakuum vernachlässigbar gering. Eine Betrachtung der zeitlichen Dynamik der Photonenzahl in den Hohlraummoden gibt Aufschluss über den Mechanismus, der die Photonen der Schwarzkörperstrahlung ins thermische Gleichgewicht überführt. Die Photonenzahl ändert sich im Laufe der Zeit aufgrund von Absorption und Emission von Photonen durch (z.B. atomare oder molekulare) Oszillatoren in den Wänden des Hohlraumresonators, welche sich ihrerseits im thermischen Gleichgewicht befinden. An einem von Einstein entwickelten, phänomenologischen Modell lässt sich der Thermalisierungsprozess veranschaulichen [28].

Dazu betrachten wir N identische Zwei-Niveau-Systeme mit gebundenen, nicht-entarteten Energiezuständen E_g , E_a und $\hbar\omega = E_a - E_g$ in den Wänden des Hohlraumresonators bei der Temperatur T . Die Atome können durch spontane und stimulierte Übergänge Strahlung der Frequenz ω mit dem Hohlraum austauschen. Für die zeitliche Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeiten von Grund- und angeregtem Zustand, $p_g(t) \equiv p_g$ bzw. $p_a(t) \equiv p_a$, gilt

$$\frac{dp_g}{dt} = (A + \hat{B}n)p_a - \hat{B}n p_g \quad (1.10)$$

$$\frac{dp_a}{dt} = -\frac{dp_g}{dt}, \quad (1.11)$$

wobei $n \equiv n(\omega, T)$ die spektrale Photonendichte bezeichnet. Die Rate für spontane Emission A , sowie die Raten für stimulierte Absorption und Emission $\hat{B}n = \hbar\omega Bn$ sind durch die gewöhnlichen Einstein-Koeffizienten A bzw. B bestimmt. Im stationären Fall gleichen sich die Raten für Absorption und Emission gerade aus, d.h. $dp_g/dt \stackrel{!}{=} 0$ (bzw. $dp_a/dt \stackrel{!}{=} 0$) und folglich gilt

$$(A + \hat{B}\bar{n})p_a = \hat{B}\bar{n}p_g. \quad (1.12)$$

Für ein atomares Ensemble im thermischen Gleichgewicht,

$$\frac{p_a}{p_g} = \exp[-\hbar\omega/k_B T], \quad (1.13)$$

erhält man aus Gl. (1.12) die Photonendichte im stationären Fall

$$\bar{n} = \frac{A}{\hat{B}} \frac{1}{\exp[\hbar\omega/k_B T] - 1}. \quad (1.14)$$

Da das Verhältnis A/\hat{B} gerade die Zustandsdichte $\omega^2/(\pi^2 c^3)$ enthält, entspricht Gl. (1.14) der mittlere Photonendichte, die man auch aus statistischen Betrachtungen erhält, siehe Gl. (1.8). Das verschwindende chemische Potential in Gl. (1.14) resultiert aus der thermischen Gleichgewichtsbedingung Gl. (1.13), welche besagt, dass der Anregungsgrad des atomaren Mediums ausschließlich durch thermische Energie vorgegeben wird. Die Gln. (1.10), (1.11) und (1.12) behalten ihre Gültigkeit jedoch auch für andersartige Licht-Materie-Wechselwirkungsprozesse, wie etwa Fluoreszenz. Bei Fluoreszenzprozessen ist die Energie des elektronischen Übergangs ($\Delta E \simeq 2$ eV) typischerweise deutlich größer als die thermische Energie ($k_B T \simeq 1/40$ eV bei Raumtemperatur $T = 300$ K), sodass die Anregung eines fluoreszierenden Moleküls praktisch kaum durch thermische Energie erfolgen kann ($\sim \exp(-\Delta E/k_B T) \approx 10^{-35}$), sondern ein (optisches) Photon erfordert. Durch externes, optisches Pumpen lässt sich daher der Anregungsgrad eines molekularen Ensembles gezielt einstellen und die resultierende Photonendichte unabhängig von der Temperatur verändern. Die Erhaltung der Gesamtphotonenzahl wird dann durch ein nicht-verschwindendes che-

misches Potential in Gl. (1.13) und in der stationären Verteilung aus Gl. (1.14) garantiert. Die Prozesse, die zur Thermalisierung eines Photonengases bei Ankopplung an ein Molekülreservoir führen, werden in späteren Kapiteln näher diskutiert.

1.2 Korrelationen und Kohärenz

Bose-Einstein-Kondensate kennzeichnen sich durch die makroskopische Besetzung eines Ein-Teilchen-Zustandes, eine Bedingung, die dem Penrose-Onsager-Kriterium $\lim_{\bar{N} \rightarrow \infty} \bar{n}_0/\bar{N} > 0$ zufolge als hinreichend für langreichweitige Ordnung im System herangezogen werden kann [5]. Durch den experimentellen Fortschritt in der Manipulierbarkeit von Bose-Einstein-Kondensaten in atomaren Gasen konnten verschiedene Interferenzexperimente diese langreichweitige Ordnung [29, 30], sowie die Kohärenz in höherer Ordnung verifizieren [31–34]. Diese Beobachtungen legen nahe, dass sich Bose-Einstein-Kondensate in vielerlei Hinsicht wie ein materielles Analogon zu kohärenten optischen, d.h. laserartigen, Strahlungsfeldern verhalten. Die Theorie zur optischen Kohärenz lässt sich somit unter Verwendung von Korrelationsfunktionen auf die Beschreibung des idealen Bose-Gases anwenden [35].

Korrelationsfunktionen und Kohärenzgrad

Wir betrachten ein quantisiertes Feld $\hat{\Psi}(r)$ mit $r \equiv (\vec{r}, t)$, welches die bosonischen Vertauschungsregeln $[\hat{\Psi}(r), \hat{\Psi}^\dagger(r')] = \delta(r - r')$ und $[\hat{\Psi}(r), \hat{\Psi}(r')] = 0$ für Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $\hat{\Psi}^\dagger, \hat{\Psi}$ befolgt. Die physikalischen Eigenschaften des Gases, d.h. die Erwartungswerte der Feldoperatoren, lassen sich durch Korrelationsfunktionen n -ten Grades ausdrücken

$$\langle \hat{\Psi}^\dagger(r_1) \dots \hat{\Psi}^\dagger(r_n) \hat{\Psi}(r'_n) \dots \hat{\Psi}(r'_1) \rangle. \quad (1.15)$$

Für die niedrigsten zwei Ordnungen definiert man:

$$G^{(1)}(r, r') = \langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}(r') \rangle \quad (1.16)$$

$$G^{(2)}(r, r') = \langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}^\dagger(r') \hat{\Psi}(r') \hat{\Psi}(r) \rangle, \quad (1.17)$$

wobei die Korrelationsfunktion 1. Ordnung in Gl. (1.16) Informationen über die Phasenkohärenz enthält. Die Korrelationsfunktion 2. Ordnung aus Gl. (1.17) drückt hingegen die kombinierte Wahrscheinlichkeit aus, zwei Teilchen an den Orten und zu den Zeiten r und r' zu finden, und ist daher ein Maß für Teilchenzahlfuktuationen im Gas, $\langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}(r) \hat{\Psi}^\dagger(r') \hat{\Psi}(r') \rangle = G^{(2)}(r, r') + G^{(1)}(r, r) \delta(r - r')$, wobei $\hat{\Psi}(r)^\dagger \hat{\Psi}(r)$ den Teilchenzahloperator am Ort r bezeichnet.

Da jedes reale Bose-Gas tatsächlich nur eine endliche Kohärenz aufweist, ist es vorteilhaft, durch Normierung der Korrelationsfunktionen den konventionellen Grad für

Kohärenz erster und zweiter Ordnung einzuführen:

$$g^{(1)}(r, r') = \frac{G^{(1)}(r, r')}{\sqrt{G^{(1)}(r, r)}\sqrt{G^{(1)}(r', r')}}, \quad (1.18)$$

$$g^{(2)}(r, r') = \frac{G^{(2)}(r, r')}{G^{(1)}(r, r)G^{(1)}(r', r')} \quad (1.19)$$

Erneut charakterisiert Gl. (1.18) räumliche und zeitliche Fluktuationen in der Phase des bosonischen Feldes, und Gl. (1.19) bezieht sich auf Fluktuationen im Betragsquadrat der Wellenfunktion, d.h. in der Teilchenzahl. Für perfekte Kohärenz erster und zweiter Ordnung erwartet man entsprechend $g^{(1)}(r, r') = g^{(2)}(r, r') = 1$ für alle r, r' , eine Situation die für atomare Bose-Einstein-Kondensate und Laserquellen üblicherweise nahezu erfüllt ist. Eine theoretische sowie experimentelle Studie der Kohärenzeigenschaften des im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchten Bose-Einstein-Kondensats von Photonen erfolgt in späteren Kapiteln.

1.2.1 Phasen- und Dichtekorrelationen im Bose-Gas

Im Folgenden werden die Korrelationsfunktionen für das dreidimensionale, ideale Bose-Gas im thermischen Gleichgewicht in der Gegenwart eines externen Fallenpotentials $V(r)$ diskutiert. Analog zu einer thermischen Lichtquelle zeigt sich dabei eine Kopplung von Phasen- und Dichtefluktuationen im nicht-kondensierten Bereich.

Klassischer Bereich ($T > T_c$). Zunächst wird das klassische Gas bei Temperaturen oberhalb der kritischen Temperatur betrachtet. Die Ein-Teilchen-Eigenzustände des Fallenpotentials mit zugehörigen Wellenfunktionen $\phi_{\mathbf{k}}(r)$ sind im großkanonischen Ensemble unabhängig voneinander statistisch besetzt. Die Korrelationsfunktion erster Ordnung für das thermische Gas lautet dann

$$G_{\text{th}}^{(1)}(r, r') = \sum_{\mathbf{k}} \phi_{\mathbf{k}}^*(r) \phi_{\mathbf{k}}(r') \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle = \langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}(r') \rangle, \quad (1.20)$$

wobei $\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger$ und $\hat{a}_{\mathbf{k}}$ Operatoren sind, die Bosonen im Eigenzustand mit Quantenzahl \mathbf{k} erzeugen bzw. vernichten. Die mittlere Besetzungszahl $\bar{n}_{\mathbf{k}}$ jedes Zustands ist gerade durch den Erwartungswert $\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle$ in Gl. (1.20) gegeben. Für die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung folgt

$$\begin{aligned} G_{\text{th}}^{(2)}(r, r') &= \langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}(r) \rangle \langle \hat{\Psi}^\dagger(r') \hat{\Psi}(r') \rangle + |\langle \hat{\Psi}^\dagger(r') \hat{\Psi}(r) \rangle|^2 \\ &+ \sum_{\mathbf{k}} |\phi_{\mathbf{k}}(r)|^2 |\phi_{\mathbf{k}}(r')|^2 \left(\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle - 2 \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle \right) \end{aligned} \quad (1.21)$$

Dazu wurde die Faktorisierungsregel $\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{l}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{m}} \hat{a}_{\mathbf{n}} \rangle = \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{l}} \rangle \langle \hat{a}_{\mathbf{m}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{n}} \rangle + \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{m}} \rangle \langle \hat{a}_{\mathbf{l}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{n}} \rangle$ verwendet [36, 37]. Im großkanonischen Ensemble zeigen die Besetzungszahlen jedes

Energiezustandes für sich gesehen starke Fluktuationen

$$(\Delta n_{\mathbf{k}})^2 = \overline{n_{\mathbf{k}}^2} - \bar{n}_{\mathbf{k}}^2 \stackrel{\text{großkanonisch}}{=} \bar{n}_{\mathbf{k}}^2 + \bar{n}_{\mathbf{k}}, \quad (1.22)$$

wie in Abschnitt 1.3.1 ausführlicher diskutiert wird, siehe Gl. (1.57). Dies führt zum Verschwinden des Klammerterms in Gl. (1.21), wie man unter Beachtung der Kommutatorrelationen anhand der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung für den Ein-Teilchen-Zustand \mathbf{k} mit $\hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} = \hat{n}_{\mathbf{k}}$ sieht:

$$g_{\text{th}}^{(2)}(r, r) = \frac{\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle}{\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle} = \frac{\langle \hat{n}_{\mathbf{k}}(\hat{n}_{\mathbf{k}} - 1) \rangle}{\langle \hat{n}_{\mathbf{k}} \rangle^2} = 1 + \frac{(\Delta n_{\mathbf{k}})^2 - \bar{n}_{\mathbf{k}}}{\bar{n}_{\mathbf{k}}^2} \stackrel{(1.22)}{=} 2 \quad (1.23)$$

Damit folgt aus Gln. (1.19) und (1.21) für den Kohärenzgrad zweiter Ordnung

$$g_{\text{th}}^{(2)}(r, r') = 1 + |g_{\text{th}}^{(1)}(r, r')|^2 \quad (1.24)$$

Der zweite Term ist ein quantenstatistischer Austauschterm, welcher die Eigenschaft der Bosonen beschreibt, vermehrt bei kleinen Ort- und Zeitabständen (*engl.: bunching*) aufzutreten, siehe Abbildung 1.1(a). Im klassischen Bereich oberhalb von T_c ist es also ausreichend, den Kohärenzgrad erster Ordnung zu bestimmen. Für eine Boltzmann-verteilte Besetzung der Energieniveaus des Fallenpotentials zerfallen die Phasenkorrelationen zwischen Orten im Abstand r mit $g_{\text{th}}^{(1)}(r) = \exp(-\pi r^2/\lambda_{\text{T}}^2)$, wobei $\lambda_{\text{T}} = h/\sqrt{2\pi m k_{\text{B}} T}$ die thermische De-Broglie-Wellenlänge bezeichnet [35]. Im nicht-kondensierten Bereich ist die Korrelationslänge durch λ_{T} bestimmt und die Grenzwerte der Korrelationsfunktionen erfüllen

$$g_{\text{th}}^{(1)}(r, r) = 1, \quad \lim_{|r-r'| \rightarrow \infty} g_{\text{th}}^{(1)}(r, r') = 0, \quad (1.25)$$

$$g_{\text{th}}^{(2)}(r, r) = 2, \quad \lim_{|r-r'| \rightarrow \infty} g_{\text{th}}^{(2)}(r, r') = 1. \quad (1.26)$$

Quantenentarteter Bereich ($T \leq T_c$). Im Bose-Einstein-kondensierten Bereich werden die Korrelationsfunktionen durch die langreichweitige Kohärenz des Kondensats modifiziert. Die Korrelationsfunktion erster Ordnung setzt sich, wie in Abbildung 1.1(b) dargestellt, aus dem Anteil der kondensierten und dem der nicht-kondensierten Teilchen zusammen

$$G^{(1)}(r, r') = \psi_0^*(r) \psi_0(r') + G_{\text{th}}^{(1)}(r, r'), \quad (1.27)$$

mit der Wellenfunktion des Bose-Einstein-Kondensats $\psi_0(r)$ und der oben diskutierten thermischen Korrelationsfunktion $G_{\text{th}}^{(1)}$. Die Grenzwerte des Kohärenzgrades erster Ordnung,

$$g^{(1)}(r, r) = 1, \quad \lim_{|r-r'| \rightarrow \infty} g^{(1)}(r, r') = \frac{\psi_0^*(r) \psi_0(r')}{\sqrt{G^{(1)}(r, r)} \sqrt{G^{(1)}(r', r')}} \quad (1.28)$$

unterscheiden sich vom unkondensierten Gas in Gl. (1.25) durch langreichweitige

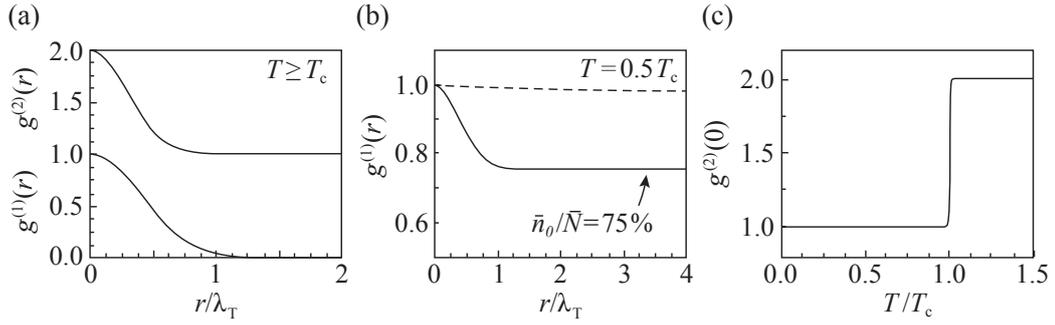


Abbildung 1.1: (a) Kohärenzgrad erster und zweiter Ordnung für das ideale Bose-Gas in einer harmonischen Falle ($T \geq T_c$), (b) Langreichweitige Kohärenz erster Ordnung im kondensierten Bereich ($T < T_c$, durchgezogene Linie). Die gestrichelte Linie zeigt die Kohärenz des Bose-Einstein-Kondensats ohne thermische Moden, (c) Das abrupte Stufenverhalten der Autokorrelation $g^{(2)}(0)$ bei der Übergangstemperatur im thermodynamischen Grenzfall zeigt die Dämpfung der relativen Teilchenzahlfuktuationen $\Delta n_0/\bar{n}_0 = \sqrt{g^{(2)}(0) - 1}$ beim Übergang in den kondensierten Bereich [35].

Ordnung. Die Korrelationslänge übersteigt die De-Broglie-Wellenlänge λ_T und erstreckt sich im räumlich homogenen Fall über das gesamte System. Bei großen Abständen ist der Kohärenzgrad durch den lokalen Kondensatanteil gegeben. Interessanterweise hängen die Korrelationen zweiter Ordnung $G^{(2)}(r, r')$ im kondensierten Bereich empfindlich vom verwendeten statistischen Ensemble ab. Für atomare Quantengase, die üblicherweise eine nahezu konstante Gesamtteilchenzahl besitzen, berechnet man die Korrelationsfunktion im kanonischen Ensemble (Energieaustausch mit Wärmebad) mit Poisson'schen Teilchenzahlfuktuationen

$$(\Delta n_0)^2 \stackrel{\text{kanonisch}}{=} \bar{n}_0. \quad (1.29)$$

Dies liefert im Gegensatz zu großkanonischen Bedingungen (Energie- und Teilchenaustausch mit Wärme- sowie Teilchenreservoir, siehe Gl. (1.22)) mit Gl. (1.23)

$$\langle \hat{a}_0^\dagger \hat{a}_0^\dagger \hat{a}_0 \hat{a}_0 \rangle = \langle \hat{a}_0^\dagger \hat{a}_0 \rangle \langle \hat{a}_0^\dagger \hat{a}_0 \rangle. \quad (1.30)$$

Die Berechnung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung erfolgt gemäß Gl. (1.21). Während unkondensierte, relativ schwach besetzte Moden weiterhin großkanonisch behandelt werden können, setzt man für den Bose-Einstein-kondensierten Grundzustand $\psi_0(r) = \sqrt{\langle \hat{a}_0^\dagger \hat{a}_0 \rangle} \phi(r)$ und erhält aus Gl. (1.21) mit Hilfe von Gl. (1.30)

$$g^{(2)}(r, r') = 1 + |g_{\text{th}}^{(1)}(r, r')|^2 - \frac{|\psi_0(r)|^2 |\psi_0(r')|^2}{G^{(1)}(r, r) G^{(1)}(r', r')}. \quad (1.31)$$

Für große Abstände erhält man auch hier $\lim_{|r-r'| \rightarrow \infty} g^{(2)}(r, r') = 1$. Anders als im thermischen Gas, siehe Gl. (1.27), verringert sich nun jedoch die Wahrscheinlichkeit,

zwei Teilchen am gleichen Ort zu finden:

$$g^{(2)}(r, r) = 2 - \left(\frac{|\psi_0(r)|^2}{G^{(1)}(r, r)} \right)^2 \quad (1.32)$$

Der zweite Term beschreibt das Verhältnis der Kondensatdichte zur Gesamtdichte. Für perfekte Kohärenz zweiter Ordnung, d.h. gedämpfte Dichtefluktuationen am Ort r , muss die Kondensatdichte verhältnismäßig groß sein. Nahe des Zentrums eines harmonischen Fallenpotentials ist dies typischerweise gut erfüllt, weiter außerhalb verschwindet die Kondensatdichte jedoch, $\psi_0(r) = 0$, und die Kohärenzeigenschaften unterscheiden sich dort praktisch nicht vom thermischen Gas. Durch numerische Volumenintegration von Gl. (1.32) lässt sich zeigen, dass die Dichtekorrelation bei gleichen Orten im harmonischen Fallenpotential bei der kritischen Temperatur einen scharfen Sprung vollzieht, wie auch in Abbildung 1.1(c) erkennbar wird:

$$g^{(2)}(0) = 2 - \frac{\int |\psi_0(r)|^4 dr}{\int G^{(1)}(r, r)^2 dr} = 1 + O(1/\sqrt{N}) \quad (T \leq T_c) \quad (1.33)$$

Der abrupte Übergang in Gl. (1.33) begründet sich durch die Divergenz der maximalen Dichte des harmonisch gefangenen Bose-Einstein-Kondensats im thermodynamischen Limes, während der thermische Untergrund bei einem endlichen Wert sättigt. In Kapitel 3 wird das Verhalten von $g^{(2)}(0)$ bei Variation der (reduzierten) Temperatur für ein Bose-Einstein-Kondensat von Photonen genauer theoretisch diskutiert, und Kapitel 5 diskutiert die entsprechenden experimentellen Resultate.

1.2.2 Optische Fluktuationen und Kohärenz

Die Charakterisierung von Ordnung in physikalischen Feldern (in Raum und Zeit) mittels Korrelationen stellt ein wichtiges, universell anwendbares Konzept dar. Neben den im vorherigen Abschnitt behandelten, atomaren Feldern, lassen sich auch optische Felder gemäß ihrer Kohärenzeigenschaften in chaotische (thermische), kohärente und - unter Berücksichtigung der Quantennatur der Photonen - nicht-klassische Lichtfelder kategorisieren [37–39]. Da in der vorliegenden Arbeit die Intensitätsfluktuationen und Phasendynamik photonischer Bose-Einstein-Kondensate anhand von Interferenzexperimenten untersucht werden, gibt dieser Abschnitt einen Überblick über die klassische Theorie der optischen Fluktuationen und Kohärenz.

Unsere Kohärenzbetrachtungen erfolgen am Modell einer aus N individuellen Emittenten bestehenden, thermischen Lichtquelle. In diesem Beispiel nehmen wir ein druckverbreitertes Gas von identischen Atomen an. Die Atome emittieren optische Wellenzüge der Frequenz ω_0 , bis sie nach einer mittleren Zeit τ mit einem weiteren Atom des Ensembles kollidieren. Während der im Vergleich zur optischen Periode kurzen Zeit der interatomaren Annäherung, verschieben sich die Energieniveaus des Übergangs und die Emission des Wellenzugs wird unterbrochen. Nach dem Stoß emittiert das Atom erneut bei seiner Eigenfrequenz, aber das elektrische Feld be-

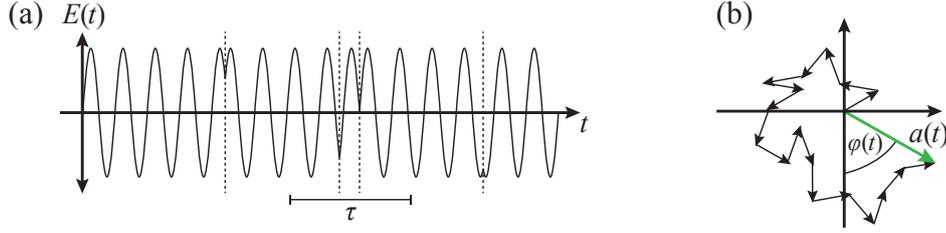


Abbildung 1.2: (a) Zeitverlauf des von einem Atom emittierten Wellenzuges $E(t)$, der statistisch verteilt im Mittel nach der Zeit τ Phasensprünge durch Kollisionen mit Nachbaratomen erleidet. (b) Argand-Diagramm zeigt den *random walk* des Gesamtfeldstärke-Phasors mit Amplitude $a(t)$ und Phasenwinkel $\varphi(t)$, der aus den Emissionsprozessen von 16 Atomen mit zufällig verteilten Phasenwinkeln resultiert.

sitzt eine neue, zufällig gewählte Phase (Abbildung 1.2(a)). Emittieren die Atome des Ensembles Strahlung konstanter Feldstärke E_0 , aber individueller Phasen $\varphi_i(t)$ in denselben Moden, folgt für das resultierende Feld

$$E(t) = E_0 \exp(-i\omega_0 t) \sum_{i=0}^N \exp[i\varphi_i(t)] = E_0 \exp(-i\omega_0 t) a(t) \exp[i\varphi(t)]. \quad (1.34)$$

Aufgrund der Zufallsverteilung der φ_i führt der Gesamtphasor $a(t) \exp[i\varphi(t)]$ eine Zufallsbewegung (*engl.: random walk*) in der komplexen Ebene aus (siehe Abbildung 1.2(b)). Die Zeitentwicklung der Intensität ist ebenfalls durch die zufällige Amplitudenmodulation $a(t)$ vorgegeben:

$$I(t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c |E(t)|^2 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c E_0^2 a(t)^2 \quad (1.35)$$

Die mittlere Phasensprungzeit (hier: inverse Stoßrate $1/\gamma = \tau$), definiert die Kohärenzzeit τ_c und die damit verknüpfte Kohärenzlänge $\lambda_c = c\tau_c$.

Kohärenzgrad erster Ordnung

Zugang zu Raum- und Zeitkorrelationen von Licht bieten Interferometrie-Experimente, bei denen das zu analysierende Lichtfeld entweder mit sich selbst bei gleicher Relativfrequenz (homodyn) oder mit einem Referenzsignal einer anderen Frequenz (heterodyn) auf einem orts- oder zeitsensitiven Photodetektor überlagert wird. Die erforderliche Aufspaltung und Überlagerung des Lichts erfolgt experimentell mit Hilfe von Strahlteilern in verschiedensten Konfigurationen [37, 40, 41]. Wir beschränken unsere Betrachtung auf das Mach-Zehnder-Interferometer (Abbildung 1.3). Nach Durchlaufen der optischen Pfade der Länge z_1 bzw. z_2 beträgt das elektrische Feld zur Zeit t am Interferometer-Ausgang

$$E_a(t) = \frac{1}{2} [E(t_1) + E(t_2)], \quad \text{mit } t_i = t - (z_i/c), \quad i = 1, 2. \quad (1.36)$$

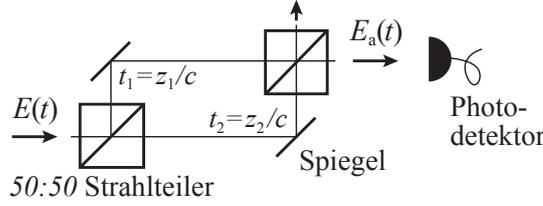


Abbildung 1.3: Schema des Mach-Zehnder-Interferometers. Das eingestrahlte Licht wird am ersten Strahlteiler unabhängig von der Polarisation in gleichem Amplitudenverhältnis reflektiert und transmittiert. Nach einer relativen Laufzeitverzögerung $\tau = t_2 - t_1$ werden die Teilstrahlen mit einem zweiten Strahlteiler rekombiniert und die Ausgangsintensität detektiert.

Daraus folgt mit Gl. (1.35) die mittlere Intensität

$$\langle I(t) \rangle = \frac{1}{8} \varepsilon_0 c \left\{ \langle |E(t_1)|^2 \rangle + \langle |E(t_2)|^2 \rangle + 2 \operatorname{Re} \langle E^*(t_1) E(t_2) \rangle \right\}. \quad (1.37)$$

wobei $\operatorname{Re}[\dots]$ den Realteil der gemischten Felder bezeichnet. Die Intensität wurde hier über eine Zeitdauer T integriert (spitze Klammern). Die ersten zwei Terme in Gl. (1.37) geben die mittlere Intensität in beiden Pfaden bei Abwesenheit des anderen Strahls. Der dritte Term führt zu Interferenzeffekten, welche, mit dem relativen Laufzeitunterschied zwischen beiden Pfaden $\tau = t_2 - t_1$, eine Messung der Korrelation erster Ordnung analog zu Gl. (1.16) erlauben:

$$\langle E^*(t) E(t + \tau) \rangle = \frac{1}{T} \int_T E^*(t) E(t + \tau) dt. \quad (1.38)$$

Die Diskussion der Kohärenz beschränkt sich aufgrund der Nähe zu den später beschriebenen Experimenten auf die Zeitkoordinate des elektrischen Feldes und geht von Licht in einem isolierten Moden aus. Die Untersuchung räumlicher Kohärenz erfolgt analog [38, 42]. Wie in den vorherigen Betrachtungen des Bose-Gases, siehe Gl. (1.18), erhält man den Kohärenzgrad erster Ordnung durch Normierung,

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t) E(t + \tau) \rangle}{\sqrt{\langle E^*(t) E(t) \rangle} \sqrt{\langle E^*(t + \tau) E(t + \tau) \rangle}}. \quad (1.39)$$

mit den Grenzfällen $g^{(1)}(0) = 1$ und $g^{(1)}(\tau) \rightarrow 0$ für $\tau \gg \tau_c$. Mit Gl. (1.34) folgt für die oben eingeführte, thermische Lichtquelle

$$\begin{aligned} \langle E^*(t) E(t + \tau) \rangle &= E_0^2 \exp(-i\omega_0 \tau) \left\langle \sum_{i,j=0}^N \exp[i\{\varphi_i(t + \tau) - \varphi_j(t)\}] \right\rangle \\ &= N \langle E_i^*(t) E_i(t + \tau) \rangle, \end{aligned} \quad (1.40)$$

wobei die unkorreliert fluktuierenden Phasen von Emitter-Paaren mit $i \neq j$ im Mittel keinen Beitrag zur Gesamtkorrelation liefern. Die Einzelkorrelationen sind proportio-

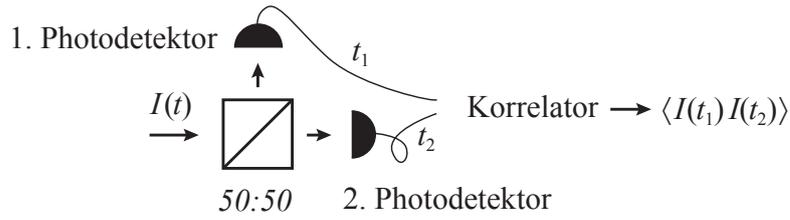


Abbildung 1.4: Hanbury Brown-Twiss-Interferometer. Ein abgeschwächter, einfallender Lichtstrahl der Intensität $I(t)$ wird von einem nichtpolarisierenden Strahlteiler in gleichem Verhältnis auf zwei gleich weit entfernte Einzelphotonendetektoren aufgeteilt, welche zu den Detektionszeiten t_1 bzw. t_2 elektronische Pulse an einen Korrelator übertragen. Mit fortschreitender Messzeit wird ein Histogramm von Koinzidenzen aufintegriert, welches schließlich auf die mittleren Intensitäten an jedem Detektor $\langle I(t_1) \rangle$ bzw. $\langle I(t_2) \rangle$ normiert den Kohärenzgrad $g^{(2)}(t_1, t_2)$ liefert.

nal zur Wahrscheinlichkeit, dass in einer Zeit länger als τ kein Phasensprung auftritt. Für ein stoßverbreitetes Gas folgt $\langle E_i^*(t)E_i(t + \tau) \rangle = E_0^2 \exp[-i\omega_0\tau - (\tau/\tau_c)]$ [37]. Nach Gl. (1.39) lautet der Kohärenzgrad erster Ordnung somit

$$g^{(1)}(\tau) = \exp[-i\omega_0\tau - (\tau/\tau_c)]. \quad (1.41)$$

Chaotisches Licht unterscheidet sich somit von dem durch eine phasenstabile Welle beschriebenen, kohärenten Laserlicht, $E(z, t) = \exp(ikz - i\omega_0t + i\varphi)$, dessen Korrelationsfunktion eine konstante Amplitude zeigt, $\langle E^*(t)E(t + \tau) \rangle = E_0^2 \exp(-i\omega_0\tau)$.

Intensitätsfluktuationen von thermischem Licht

Im atomaren Gas lassen sich Schwankungen in der Teilchenzahl bzw. Dichte an zwei verschiedenen Orten in Raum und Zeit durch die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung charakterisieren, siehe Gln. (1.18) bzw. (1.19). Entsprechend ist es möglich, die Photonenzahl- bzw. Intensitätsfluktuationen von Licht durch die Korrelation zweiter Ordnung des zugehörigen optischen Feldes zu bestimmen. Aufgrund der Relevanz für die in dieser Arbeit dargestellten Experimente zu den Teilchenzahlkorrelationen in einem Bose-Einstein-Kondensat aus Photonen, beschränken wir unsere Betrachtungen erneut auf die Zeitpunkte t_1 und $t_2 = t_1 + \tau$ in einem isolierten Strahlungsmoden mit selektierter Polarisation. Experimentell lässt sich der Kohärenzgrad zweiter Ordnung für Licht mit einem Hanbury Brown-Twiss-Interferometer messen [43, 44]. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 1.4 dargestellt und beschrieben. Einen Vorteil des Zwei-Detektor-Verfahrens stellt die Messbarkeit von Koinzidenz-Ereignissen bei sehr kurzen Zeitabständen dar, welche bei Ein-Detektor-Verfahren wegen der Totzeit des Photodetektors nicht auflösbar sind. Man definiert den (klassischen) zeitlichen

Kohärenzgrad zweiter Ordnung

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle}{\langle E^*(t)E(t) \rangle \langle E^*(t+\tau)E(t+\tau) \rangle} = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle \langle I(t+\tau) \rangle}. \quad (1.42)$$

Im Grenzfall vieler Emitter, $N \gg 1$, folgt für die thermische Lichtquelle [37]

$$\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle = N^2 \{ \langle E_i^*(t)E_i(t) \rangle^2 + |\langle E_i^*(t)E_i(t+\tau) \rangle|^2 \}, \quad (1.43)$$

sodass man den Zusammenhang zwischen Kohärenzgrad 1. und 2. Ordnung erhält

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2, \quad (1.44)$$

der auch für Bose-Gas oberhalb der kritischen Temperatur gilt, siehe Gl. (1.24). Für die Grenzwerte gilt entsprechend

$$g^{(2)}(0) = 2, \quad g^{(2)}(\tau) \rightarrow 1 \quad \text{für } \tau \gg \tau_c. \quad (1.45)$$

Dieses asymptotische Verhalten ist für alle Arten von chaotischem bzw. thermischem Licht mit geringer Phasenraumdichte erfüllt. Für laserartiges Licht mit stabiler Amplitude und Phase hingegen gilt die Relation $g^{(2)}(\tau) = 1$ für alle τ . Die experimentelle Untersuchung der Korrelationszeiten erster und zweiter Ordnung für ein Bose-Einstein-Kondensat von Photonen wird in den Kapiteln 5 und 6 diskutiert.

1.2.3 Spontane Symmetriebrechung

In Rahmen der vorliegenden Arbeit wird die zeitliche Phasenentwicklung eines Bose-Einstein-Kondensats von Photonen untersucht. Die experimentelle Methode basiert auf einer Interferenzmessung, bei welcher der kondensierte Grundzustand mit einem unabhängigen, frequenz- und phasenstabilen Referenzlaser überlagert wird. Analog zu Experimenten mit atomaren Gasen [29, 30, 32], beobachtet man beim Phasenübergang vom klassischen Bose-Gas zum quantenentarteten Bose-Einstein-Kondensat die Herausbildung von langreichweitiger Ordnung, d.h. Kohärenz erster Ordnung

$$\frac{\langle \psi_0^*(r)\psi_0(r') \rangle}{\sqrt{\langle |\psi_0(r)|^2 \rangle \langle |\psi_0(r')|^2 \rangle}} \stackrel{!}{=} 1. \quad (1.46)$$

Formal wird dies durch eine makroskopische Wellenfunktion mit einer zufällig gewählten, in Raum und Zeit festgelegten Phase ϕ garantiert:

$$\psi_0(r) = \sqrt{n_0} \exp(i\phi) \quad (1.47)$$

Am Phasenübergang kondensiert das System somit in einen Zustand, der nicht mehr der $U(1)$ -Symmetrie des Hamilton-Operators unterliegt. Die Symmetrie resultiert aus dem ausschließlichen Auftreten der bosonischen Feldoperatoren in Form einer Dichte im Hamilton-Operator, $\langle \hat{\Psi}^\dagger \hat{\Psi} \rangle = \bar{n}_0$, d.h. eine Eichtransformation $\psi_0 \rightarrow \psi_0 e^{i\xi}$ mit beliebiger Phase ξ ändert die Energie des Systems nicht. Der Übergang vom

unendlich-entarteten Zustand zum Kondensat mit stationärer Phase wird als spontane Symmetriebrechung bezeichnet [6, 7, 45, 46]. Sie stellt ein universelles Konzept dar, das in vielen Teilbereichen der Physik zur Beschreibung von Phänomenen wie z.B. der Suprafluidität und Supraleitung [47], dem Higgs-Mechanismus [48] oder dem Ferromagnetismus [49] herangezogen wird.

Die konzeptionelle Analogie wird zwischen Bose-Einstein-Kondensat und Ferromagnet besonders deutlich: ein magnetisches Material wird durch das Heisenberg-Modell (dreidimensionale Spins auf zweidimensionalem Gitter, siehe [49]) beschrieben und der Hamilton-Operator ist invariant unter der gleichzeitigen Rotation aller Spins. Aus Symmetriegründen sollte das System im Mittel also keine Magnetisierung $\langle \vec{S} \rangle = 0$ aufweisen (analog zum Ordnungsparameter $\langle \psi_0 \rangle$ beim Bose-Gas). Für ein ferromagnetisches Material unterhalb der Curie-Temperatur wird $\langle \vec{S} \rangle$ dennoch makroskopisch und die Ausrichtung der Magnetisierung festgelegt. Für das Bose-Gas bei $T < T_c$ wird $\langle \psi_0 \rangle$ makroskopisch und unter der Voraussetzung, dass die Umgebung eine Messung der Phase bewirkt, die Phase ausgefroren. Die Analogie lässt sich noch weiter ausführen, wenn man die z -Projektion des Gesamtspins S_z und den Winkel $\theta = \tan^{-1}(S_y/S_x)$ in der xy -Ebene mit der Kondensatgröße \hat{n}_0 und der Phase ϕ identifiziert. Der Leiter-Operator $\hat{S}^\dagger = \hat{S}_x + i\hat{S}_y$ erfüllt dann die Kommutatorrelation

$$\left[\hat{S}_z, \hat{S}^\dagger \right] = \hat{S}^\dagger \quad \overset{\text{analog}}{\Leftrightarrow} \quad \left[\hat{n}_0, \hat{\Psi}^\dagger \right] = \hat{\Psi}^\dagger, \quad (1.48)$$

wobei \hat{S}_z Rotationen von θ , und \hat{n}_0 von ϕ , generiert. Die resultierenden nicht-kommutierenden Operatorrelationen $[\hat{S}_z, \theta] = i$ bzw. $[\hat{n}_0, \phi] = -i$ implizieren im Sinne der Heisenberg'schen Unschärfe eine Diffusion der Phase von Bose-Einstein-Kondensaten bei endlich großen Teilchenzahlen [50–52], die experimentell bisher noch nicht beobachtet werden konnte. Die Phasendiffusion eines Bose-Einstein-Kondensats aus Photonen wurde von de Leeuw et al. theoretisch untersucht [53].

1.3 Statistische Ensembles

Die statistische Physik basiert auf dem Konzept von Zustandssummen, die probabilistisch unter der Vorgabe von externen Parametern (z.B. Teilchenzahl N , Volumen V und innere Energie U) den mikroskopischen Gleichgewichtszustand eines Systems bestimmen. Für verschiedene, physikalische Situationen ist es hilfreich, diesen Satz an externen Parametern zu tauschen. So lässt sich beispielsweise die Thermodynamik eines Systems untersuchen, welches an ein Wärmebad mit vorgegebener Temperatur koppelt. Man unterscheidet zwischen drei statistischen Ensembles [4].

Mikrokanonisches Ensemble

Betrachtet wird ein abgeschlossenes System im thermischen Gleichgewicht, wobei die Energie, das Volumen und die Teilchenzahl vorgegeben sind. Die mikrokanonische

Zustandssumme

$$\Omega(U, V, N) = \sum_{i: U - \delta U \leq E_i(V, N) \leq U} 1 \quad (1.49)$$

bestimmt die gleichverteilte Wahrscheinlichkeit $P_i = 1/\Omega(U, V, N)$, einen Mikrozustand i mit Energie E_i zu finden. Der Zusammenhang mit der Thermodynamik wird durch die Relation für die Entropie $S(U, V, N) = k_B \ln \Omega(U, V, N)$ hergestellt.

Kanonisches Ensemble

Das System befindet sich im Gleichgewicht mit einem makroskopischen Wärmebad, welches die Temperatur T vorgibt. Die relative Wahrscheinlichkeit, das System bei dieser Temperatur im Zustand i zu finden, ist durch den Boltzmann-Faktor mit $\beta = (k_B T)^{-1}$ bestimmt zu

$$P_i(T, V, N) = \frac{1}{Z} \exp[-\beta E_i(V, N)], \quad (1.50)$$

und aus $\sum_i P_i = 1$ folgt die kanonische Zustandssumme

$$Z(T, V, N) = \sum_i \exp[-\beta E_i(V, N)]. \quad (1.51)$$

Die mittlere Energie eines einzelnen Zustandes unterliegt hier starken Fluktuationen, $\Delta E_i = \bar{E}_i$. In Übereinstimmung mit dem mikrokanonischen Ensemble ergibt sich im makroskopischen N -Teilchen-System jedoch eine scharfe Energieverteilung $\Delta E_i = \bar{E}_i/\sqrt{N}$. Die freie Energie $F(T, V, N) = -k_B T \ln Z(T, V, N)$ stellt die Verbindung zur Thermodynamik her.

Großkanonisches Ensemble

Im großkanonischen Ensemble wird neben der Temperatur auch das chemische Potential μ , anstelle der Teilchenzahl N , vorgegeben. Praktisch erfolgt die Vorgabe durch zusätzlichen Kontakt an ein Teilchenreservoir. Die Wahrscheinlichkeit, das System im Zustand i zu finden, ist

$$P_i(T, V, \mu) = \frac{1}{Y} \exp[-\beta \{E_i(V, N_i) - \mu N_i\}], \quad (1.52)$$

mit der großkanonischen Zustandssumme

$$Y(T, V, \mu) = \sum_i \exp[-\beta \{E_i(V, N_i) - \mu N_i\}]. \quad (1.53)$$

Das großkanonische Ensemble eignet sich für eine statistisch vollständige Beschreibung der experimentellen Situation für das in dieser Arbeit untersuchte Bose-Einstein-Kondensat aus Licht. Daher werden im folgenden Abschnitt die charakteristischen großkanonischen Teilchenzahlfluktuationen diskutiert.

1.3.1 Dichtefluktuationen im großkanonischen Ensemble

Im großkanonischen Ensemble ist die Teilchenzahl im Gegensatz zum chemischen Potential nicht festgelegt, daher kommt es im System zu großen Fluktuationen der Besetzungszahlen individueller Eigenzustände. In diesem Abschnitt werden die mittleren Teilchenzahlfluktuationen eines isolierten Energiemodens eines Bose-Gases berechnet. Dazu betrachten wir ein System aus spinlosen Bosonen in einer Konfiguration $\{n_1, n_2, \dots, n_i, \dots\}$, welche durch die Besetzungszahlen n_i der Eigenzustände mit Energie ϵ_i gegeben ist. Für die großkanonische Zustandssumme folgt

$$\begin{aligned}
 Y(T, V, \mu) &= \sum_{n_1=0}^{\infty} \exp[-\beta(\epsilon_1 - \mu)n_1] \cdot \sum_{n_2=0}^{\infty} \exp[-\beta(\epsilon_2 - \mu)n_2] \cdot \dots \\
 &= \frac{1}{1 - \exp[-\beta(\epsilon_1 - \mu)]} \cdot \frac{1}{1 - \exp[-\beta(\epsilon_2 - \mu)]} \cdot \dots \\
 &= \prod_i \frac{1}{1 - \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)]} \tag{1.54}
 \end{aligned}$$

mit $\beta = (k_B T)^{-1}$. In der zweiten Zeile von Gl. (1.54) wurde der Grenzwert der geometrischen Reihe verwendet. Wir berechnen zunächst die mittlere Besetzungszahl des i -ten Niveaus

$$\begin{aligned}
 \bar{n}_i &= \frac{1}{Y} \sum_{n_1=0}^{\infty} \dots \sum_{n_i=0}^{\infty} n_i \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)n_i] \dots \\
 &= \frac{1}{Y} \sum_{n_1=0}^{\infty} \dots \left(\frac{1}{\beta} \frac{\partial}{\partial \mu} \sum_{n_i=0}^{\infty} \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)n_i] \right) \dots \\
 &= \frac{1}{Y} \sum_{n_1=0}^{\infty} \dots \left(\frac{1}{\beta} \frac{\partial}{\partial \mu} \frac{1}{1 - \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)]} \right) \dots \\
 &= \frac{\exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)]}{1 - \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)]} = \frac{1}{\exp[\beta(\epsilon_i - \mu)] - 1}. \tag{1.55}
 \end{aligned}$$

Das Ergebnis entspricht der Bose-Einstein-Statistik. Um die charakteristischen Fluktuationen zu bestimmen, benötigt man zusätzlich den Erwartungswert der quadratischen Besetzungszahl $\langle n_i^2 \rangle$. Analog zur Rechnung in Gl. (1.55) folgt

$$\begin{aligned}
 \overline{n_i^2} &= \frac{1}{Y} \sum_{n_1=0}^{\infty} \dots \sum_{n_i=0}^{\infty} n_i^2 \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)n_i] \dots \\
 &= \frac{1}{Y} \sum_{n_1=0}^{\infty} \dots \left(\frac{1}{\beta^2} \frac{\partial^2}{\partial \mu^2} \frac{1}{1 - \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)]} \right) \dots \\
 &= \frac{\exp[-2\beta(\epsilon_i - \mu)] + \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)]}{\{1 - \exp[-\beta(\epsilon_i - \mu)]\}^2} \\
 &= \bar{n}_i^2 + \bar{n}_i(\bar{n}_i + 1). \tag{1.56}
 \end{aligned}$$

Nach der Definition für die mittlere Schwankung in der Teilchenzahl

$$(\Delta n_i)^2 = \langle (n_i - \bar{n}_i)^2 \rangle = \langle n_i^2 - 2n_i\bar{n}_i + \bar{n}_i^2 \rangle = \overline{n_i^2} - \bar{n}_i^2 \quad (1.57)$$

erhält man aus Gln. (1.56), (1.57) die großkanonischen Teilchenzahlfluktuationen:

$$(\Delta n_i)_{\text{g.k.}}^2 = \bar{n}_i (\bar{n}_i + 1), \quad \frac{\Delta n_i}{\bar{n}_i} = \sqrt{1 + \frac{1}{\bar{n}_i}} \stackrel{\bar{n}_i \gg 1}{\simeq} 1 + \frac{1}{2\bar{n}_i} \quad (1.58)$$

Diese theoretische Aussage enthält die verblüffende Konsequenz, dass bei Aufrechterhalten großkanonischer Bedingungen und makroskopischer Besetzung eines beliebigen Energiezustandes $n_i \simeq N$ die Schwankungen im Gesamtsystem groß werden können, da sie durch die Fluktuationen des makroskopisch besetzten Zustandes getrieben werden. Dieser in der Literatur viel diskutierte Effekt wird gemeinhin als „großkanonische Fluktuationkatastrophe“ bezeichnet [8, 9, 54–60]. Im Rahmen dieser Arbeit werden die statistischen Teilchenzahlfluktuationen experimentell an einem photonischen Bose-Einstein-Kondensat ($\hat{=}$ makroskopisch besetzter Moden) untersucht [61, 62], welches radiativ an ein effektives Wärme- und Teilchenreservoir aus angeregten Farbstoffmolekülen ankoppelt ($\hat{=}$ großkanonisches Ensemble).

1.4 Experimentelles Umfeld

Die Betrachtungen von Abschnitt 1.1.2 zeigen, dass Photonen der Schwarzkörperstrahlung zwar im thermischen Gleichgewicht sind, aber bei tiefen Temperaturen keine Bose-Einstein-Kondensation zeigen. Grund hierfür ist das verschwindende chemische Potential der Photonen in dem Hohlraum-System, was dazu führt, dass die Photonenzahl bei Temperaturvariation keine Erhaltungsgröße ist. Dies ist jedoch keine allgemeine Eigenschaft von Photonen, sondern eine Konsequenz des verwendeten Thermalisierungsmechanismus. In der vorliegenden Arbeit wird die Thermalisierung und Bose-Einstein-Kondensation von Photonen durch inkohärente Licht-Materie-Wechselwirkung des Photonengases mit einem dissipativen Farbstoffreservoir realisiert. Die Thermalisierung erhält die Photonenzahl und führt ein nicht-verschwindendes, temperaturunabhängiges chemisches Potential ein. Ein alternativer Ansatz, der die experimentelle Herstellung von Bose-Einstein-Kondensaten aus hybriden Licht-Materie Mischzuständen (Polaritonen) ermöglicht, wird im Folgenden kurz vorgestellt.

Exziton-Polaritonen in Halbleiter-Mikroresonatoren

Eine Klasse von Experimenten, die ebenfalls auf einem Mikroresonator-Schema zur Realisierung der Bose-Einstein-Kondensation lichtartiger Teilchen basieren (siehe Abbildung 1.5), verwendet Exziton-Polaritonen [15]. Historisch betrachtet beruhen diese Arbeiten auf den frühen Bestrebungen, Bose-Einstein-Kondensation im Festkörper zu beobachten. Als einer der ersten Kandidaten für die Kondensation galt in den 1960er Jahren das Exziton [63, 64], welches als gebundenes Elektron-Loch-Paar

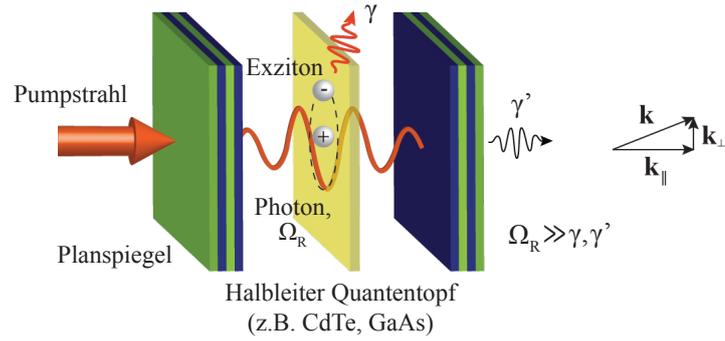


Abbildung 1.5: Schema der Quantentopf-Mikroresonator-Struktur zur Erzeugung von Exziton-Polaritonen. Optisches Pumpen der Halbleiterstruktur im Mikroresonator generiert lokalisierte, gebundene Elektron-Loch-Paare (Exzitonen) in einem Quantentopf. Koppelt das optische Strahlungsfeld im Fabry-Pérot Resonator stark an das Exziton (Rabi-Frequenz $\Omega_R \gg$ Verlustraten γ, γ'), so entstehen durch den kohärenten Energieaustausch Licht-Materie-Quasiteilchen, sogenannte Exziton-Polaritonen.

in Halbleitern und Isolatoren vorkommt und aufgrund der halbzahligen Spins seiner fermionischen Bausteine insgesamt ein bosonisches Quasiteilchen darstellt [65]. Die Absorption eines Photons in einem Halbleiter führt zur Anregung eines Elektrons aus dem Valenz- ins Leitungsband, die ein positiv geladenes „Loch“ im Valenzband hinterlässt. Erfolgt die niederenergetischste Realisierung dieser Elektronenanregung an die Unterkante des Leitungsbandes, dann entsteht durch Coulomb-Wechselwirkung ein gebundenes Elektron-Loch-Paar, ein sogenanntes Exziton. Für Exziton-Polaritonen sind vor allem die schwach gebundenen Wannier-Mott Exzitonen (Bindungsenergie $\sim 1-100$ meV) von Bedeutung. Sie besitzen eine verhältnismäßig große Ausdehnung (10–100 Å), können bei moderaten Teilchendichten aber dennoch als wasserstoffartige, bosonische Quasiteilchen betrachtet werden [66].

Exziton-Polaritonen entstehen, wenn der Dipol des Exzitons in einem Halbleitermaterial kohärent an ein Strahlungsfeld in einem Mikroresonator koppelt (siehe Abbildung 1.5) [15]. Die Voraussetzung für einen kohärenten Energieaustausch zwischen Licht und Materie ist, dass die Rabi-Frequenz Ω_R die Dekohärenzraten aus spontaner Exziton-Rekombination γ , Spiegelverlusten γ' und Phononenstreuung überschreitet, $\Omega_R \gg \gamma, \gamma'$. Im Bereich starker Kopplung kann die Licht-Materie-Wechselwirkung nicht mehr störungstheoretisch behandelt werden und es bilden sich neue Eigenzustände, die sowohl Licht- als auch Materieanteil besitzen, die Exziton-Polaritonen. Sie sind wie ihre Bestandteile ebenfalls Bosonen, besitzen eine parabolische Dispersion und eine 10^4 mal kleinere Masse als die Exzitonen, was die kritische Temperatur für Bose-Einstein-Kondensation entsprechend erhöht. Die Lebensdauer der Polaritonen ($\sim 1-10$ ps) liegt weit unterhalb der Lebensdauer der Exzitonen (~ 1 ns). Die Coulomb-Wechselwirkung des exzitonischen Anteils der Polaritonen führt zu Stößen der Polaritonen untereinander, was neben Stößen der Polaritonen mit Phononen des Kristallgitters zu einer Thermalisierung des Polaritonengases führen kann [67].

Inzwischen gibt es zahlreiche experimentelle Arbeiten, bei denen Kondensations-effekte von Exziton-Polaritonen beobachtet wurden [15–18, 68, 69]. Oberhalb einer kritischen Polaritonendichte kommt es zu einer makroskopischen Besetzung eines einzelnen Impulszustandes k_{\parallel} , begleitet von spontan auftretender Phasenkohärenz [16, 17]. Wegen der kurzen Lebensdauer und dem Auftreten strukturverändernder Prozesse bei hohen Dichten, ist das Exziton-Polaritonen-System in einem Übergangsbereich zwischen Nichtgleichgewicht und Gleichgewicht anzusiedeln [15, 70, 71]. Experimentell zeigt sich üblicherweise, dass die thermodynamischen Eigenschaften des Exziton-Polariton Systems stark vom Szenario des idealen Bose-Gases abweichen [16, 72], und sowohl die Phasenkorrelationen (bzw. die Linibreite der Polaritonenemission) als auch die zeitlichen Dichtekorrelationen $g^{(2)}(\tau)$ werden durch Wechselwirkungs- und Lebensdauerereffekte beeinflusst [18, 73].

1.5 Photonen im Farbstoff-Mikroresonator

Dieser Abschnitt soll einen Überblick über das experimentelle Schema geben, mit dem eine Bose-Einstein-Kondensation von Photonen im Rahmen dieser Arbeit realisiert wird. Eine detailliertere Behandlung der Theorie und Experimente zur Thermalisierungsdynamik des Photonengases, sowie den Korrelationen erster und zweiter Ordnung des Bose-Einstein-Kondensats folgt in späteren Kapiteln.

Im Experiment werden Photonen im grün-gelben Spektralbereich von 530 bis 600 nm in einem optischen Mikroresonator gefangen (Abbildung 1.6). Der Mikroresonator besteht aus zwei hochreflektiven, sphärisch gekrümmten Spiegeln. Zwischen den Spiegeln befindet sich eine Farbstofflösung, welche für das Photonengas im Resonator sowohl ein Wärmebad als auch ein Teilchenreservoir realisiert. Die Farbstoffmoleküle werden durch einen optischen Pumpstrahl elektronisch angeregt und zerfallen nach einer charakteristischen Lebensdauer unter der Emission von Fluoreszenzphotonen in die Resonatormoden ($\tau_{\text{sp}} \simeq 4$ ns). Die Finesse des Resonators erlaubt eine effiziente Speicherung des Lichts für eine Dauer von bis zu 500 ps. Es kommt zu einer Kaskade von Absorptions- und Reemissionsprozessen von Fluoreszenzphotonen durch Farbstoffmoleküle, wodurch ein thermischer Kontakt zwischen dem Photonengas und den Molekülreservoir hergestellt wird. Diese Ankopplung erfolgt im Sinne des großkanonischen Ensembles: das Photonengas nimmt die Temperatur T (Raumtemperatur) und das chemische Potential μ an, welche durch das externe Reservoir von molekularen Anregungen vorgegeben wird.

Der fluoreszenzinduzierte Thermalisierungsprozess und der Einfluss des Teilchenreservoirs auf die Photonenzahl-Statistik im Bose-Einstein-Kondensat werden in den Kapiteln 2 und 3 detaillierter diskutiert. An dieser Stelle soll nur eine kurze Darstellung des Thermalisierungsvorgangs erfolgen: Die Thermalisierung des Photonengases geht letztendlich auf Stöße zwischen Farbstoff- und Lösungsmittelmolekülen zurück. Die Stöße bewirken eine ständige Änderung der Rotations- und Vibrationszustände der Farbstoffmoleküle und wegen der Vielzahl von Stößen kommt es zu

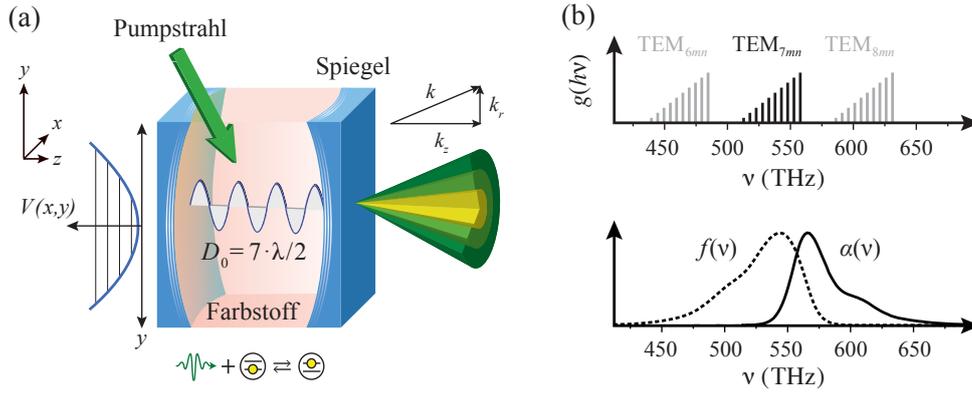


Abbildung 1.6: Schema des Mikroresonator-Experiments. (a) Der optische Resonator aus zwei hochreflektiven Spiegeln im Abstand von $q = 7$ Halbwellen schließt eine Farbstofflösung ein. Die sphärische Spiegelkrümmung sorgt für ein harmonisches Fallenpotential $V(x, y)$ für transversale Photonen (links). Ein Pumpstrahl regt Farbstoffmoleküle an und die nachfolgenden Fluoreszenz- und Absorptionsprozesse thermalisieren das Photonengas ($T = 300$ K). Das transmittierte Licht (rechts) wird räumlich-, spektral- und zeitaufgelöst analysiert. (b) Modenspektrum der Photonen im Mikroresonator (oben) und spektrale Profile der Farbstoffemission $f(\nu)$ und -absorption $\alpha(\nu)$ (unten). Der Anstieg der Moden gibt die Entartung der Photonenenergie an. Die Fluoreszenz im Mikroresonator erfolgt in Transversalmoden mit longitudinaler Wellenzahl $q = 7$ (schwarze Balken), womit dieser Freiheitsgrad ausfriert und ein effektiv zweidimensionales Photonengas entsteht.

einer Relaxation des rovibronischen Molekülzustands ins thermische Gleichgewicht. Der Relaxationsprozess ist derart schnell (≈ 1 ps), dass Emission und Absorption immer aus thermisch verteilten rovibronischen Energiezuständen erfolgen [74]. Daraus resultiert, dass die spektralen Verteilungen von Fluoreszenz $f(\omega)$ und Absorption $\alpha(\omega)$ über den Boltzmann-Faktor verknüpft sind, ausgedrückt durch die Kennard-Stepanov-Relation $f(\omega)/\alpha(\omega) \propto \omega^3 \exp(-\hbar\omega/k_B T)$ (siehe Abbildung 1.6 (b) für die spektralen Profile des Farbstoffs Rhodamin 6G). Durch den Fluoreszenz-basierten Energieaustausch mit dem Molekülbad überträgt sich die Thermalisierung auf die spektrale Verteilung des Photonengases, welches somit selbst im thermischen Gleichgewicht mit dem Wärmebad steht. Darüber hinaus erhält der Thermalisierungsmechanismus im zeitlichen Mittel die Photonenzahl im Mikroresonator, da die Wechselwirkung zwischen Photonen und Farbstoffmolekülen analog zu einer photochemischen Reaktion aufgefasst werden kann, siehe Abbildung 1.6 (a) unten. Die elektronische Anregungsenergie eines Farbstoffmoleküls $\hbar\omega \approx 2.3$ eV überschreitet bei weitem die thermische Energie bei Raumtemperatur $k_B T \approx 0.025$ eV, sodass die Erzeugung von Photonen durch thermische Fluktuationen mit $\exp(-\hbar\omega/k_B T) \approx 10^{-37}$ stark unterdrückt ist. Ein Photon wird also nur dann emittiert, wenn zuvor bereits ein optisches Photon absorbiert wurde. Auch hat dies zur Folge, dass die Photonen bei Abkühlung nicht wie bei der Schwarzkörperstrahlung im Medium verschwinden.

Der Spiegelabstand im Mikroresonator beträgt abhängig von den verwendet Spiegeln $D_0 \simeq 1.4$ oder $1.6 \mu\text{m}$. Um auf derart kurzen Weglängen eine ausreichende Reabsorption durch das Farbstoffmedium zu realisieren, werden zum einen Spiegel mit einer spektral breitbandigen, hohen Reflektivität von bis zu 99.9988% verwendet und zum anderen optische Dichten der Farbstofflösung nahe der Grenze für strahlungslose Abregung (*engl.: self-quenching*) gewählt [75]. Typische Farbstoffkonzentrationen liegen bei 1 mMol/l für die verwendeten Fluorophore Rhodamin 6G und Perylen Rot. Da die Dynamik des Thermalisierungsprozesses und die Gleichgewichtseigenschaften des Photonengases entscheidend von dem Verhältnis zwischen Resonatorverlusten durch Spiegeltransmission und Reabsorptions-kontrollierten Kopplungsstärken ans Farbstoffreservoir abhängen, werden beide Parameter im Laufe der diskutierten Experimente variiert [76]. Bei vorgegebenem Spiegelabstand schließt der Resonator q Halbwellen ein, wobei die longitudinale Wellenzahl im Experiment $q = 7$ (bzw. $q = 8$) beträgt. Mit dem Spiegelabstand auf der optischen Achse $D_0 = q \cdot \lambda / 2\tilde{n}_0$ wird der freie Spektralbereich zwischen benachbarten Longitudinalmoden $\Delta\lambda = \lambda^2 / 2\tilde{n}_0 D_0 \simeq 80 \text{ nm}$ (bzw. $\Delta\nu \simeq 75 \text{ THz}$) vergleichbar mit der spektralen Fluoreszenzbandbreite des Farbstoffs (Abbildung 1.6 (b)). Hierbei bezeichnet λ die optische Wellenlänge im Vakuum und \tilde{n}_0 den Brechungsindex der Farbstofflösung. Die Anwesenheit der Spiegel modifiziert die spektrale Zustandsdichte derart, dass ausschließlich Photonen mit einer festen longitudinalen Wellenzahl $q = \text{konst.}$ in den Resonator emittiert werden. Die Photonen unterscheiden sich dann nur noch in ihren transversalen Quantenzahlen (m, n) , während der longitudinale Freiheitsgrad der Bewegung vollständig ausgefroren ist. Die reduzierte Dimensionalität schafft überdies einen niederenergetischen, nicht-trivialen Grundzustand für die Photonen, der dem Zustand ohne transversalen Anregungen, dem TEM_{q00} Moden, entspricht. Der Thermalisierungsprozess sorgt für eine thermische Gleichgewichtsverteilung der Photonen über den Satz von transversal angeregten Moden TEM_{qmn} . Die mittlere Energie der Photonen ist dann von der Größenordnung $k_B T$ oberhalb der durch die Abschneidefrequenz ω_c gegebenen Energie. Die „kältesten“ Photonen des Gases befinden sich im Grundzustand des Systems und propagieren auf der optischen Achse, wohingegen „heiße“ Photonen unter großen Winkeln zur optischen Achse propagieren. Wird die Temperatur des Lösungsmittels erhöht, führt dies zu einer verstärkten Besetzung von hoch angeregten Transversalzuständen. Theoretisch erwartet man, dass die mittlere Besetzungszahl durch die Bose-Einstein-Verteilung beschrieben ist, welche für eine niedrige Gesamtteilchenzahlen im Gas in die klassische Boltzmann-Verteilung übergeht. Diese Vorhersage wird durch experimentelle Beobachtungen bestätigt.

Das Photonengas verhält sich formal analog zu einem zweidimensionalen, harmonisch gefangenen idealen Bose-Gas. Aufgrund der Zweidimensionalität erhalten die Photonen eine effektive Masse $m_{\text{ph}} = \hbar\omega_c / (c/\tilde{n}_0)^2$, und die Kinetik des Gases reduziert sich auf die Transversalebene des Resonators. Die Krümmung der Spiegel erzeugt ein effektives Fallenpotential für transversal angeregte Photonen (Abbil-

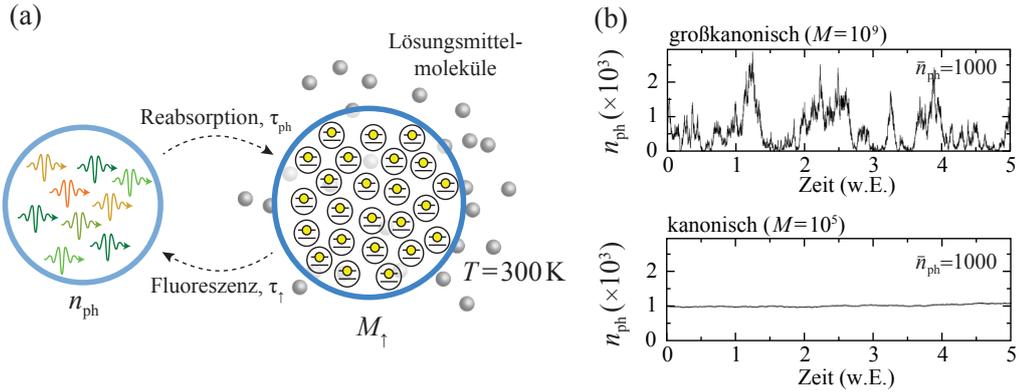


Abbildung 1.7: Statistisches Ensemble und Teilchenzahlfuktuationen. (a) Das polychrome Photonengas wird durch Reabsorption nach einer mittleren Photonenlebensdauer τ_{ph} an das Reservoir aus elektronisch angeregten Molekülen angekoppelt. Nach der Zeit τ_{\uparrow} zerfallen die molekularen Anregungen und chemisches Gleichgewicht zwischen Photonengas und Teilchenreservoir stellt sich ein. Unterdessen erfolgen viele Stöße zwischen den Farbstoff- und Lösungsmittelmolekülen ($T = 300 \text{ K}$), sodass die rovibronischen Farbstoffzustände bei Raumtemperatur thermalisieren. Durch die Licht-Materie-Wechselwirkung überträgt sich das thermische Gleichgewicht auf das Photonengas und die Moleküle können als Wärmebad angesehen werden. (b) Zeitliche Fluktuationen der Photonenzahl unter großkanonische Bedingungen ($M = 10^9$, oben), und gedämpfte Fluktuationen im kanonischen Ensemble ($M = 10^5$, unten).

dung 1.6 (a), links). Die Resonatorgeometrie bestimmt die harmonische Fallenfrequenz $\Omega = (c/\tilde{n}_0)(D_0R/2)^{-1/2}$, wobei D_0 den Abstand der sphärischen Spiegel auf der optischen Achse und R den Krümmungsradius der Spiegel bezeichnet. Aus theoretischen Betrachtungen ist bekannt, dass das harmonisch gefangene, ideale Bose-Gas in zwei Dimensionen im thermodynamischen Gleichgewicht unterhalb einer kritischen Temperatur bzw. oberhalb der kritischen Teilchenzahl ein Bose-Einstein-Kondensat ausbildet [26, 27]. Im vorliegenden Mikroresonator-Experiment lässt sich dies bestätigen: überschreitet die mittlere Gesamtphotonenzahl einen kritischen Wert, bildet sich mit der Injektion weiterer Photonen ins Gas ein Bose-Einstein-Kondensat im transversalen Grundzustand. Die Bose-Einstein-Kondensation wird von einer Sättigung transversal angeregter Moden begleitet.

Im Gegensatz zu Polaritonen-Experimenten kann die Wechselwirkung zwischen Photonen und Molekülen im Farbstoff-Mikroresonator als inkohärent betrachtet werden, d.h. es findet keine starke Kopplung zwischen dem molekularen Dipol und dem elektromagnetischen Feld statt. Die rasche Dekohärenz des Farbstoffzustands begründet sich durch zahlreiche Stöße zwischen Farbstoff- und Lösungsmittelmolekülen auf Femtosekunden-Zeitskala [74, 77], die sich während der angeregten Lebensdauer eines Farbstoffmoleküls ereignen. Die Licht-Materie-Wechselwirkung und damit die

Dynamik von Photonen und Molekülen kann somit über Ratengleichungen modelliert werden. Dies erlaubt eine Abschätzung der mittleren Populationen von Photonen und angeregten Farbstoffmolekülen (siehe Abbildung 1.7 (a)). Zu einem gewissen Zeitpunkt befinden sich n_{ph} Photonen und M_{\uparrow} elektronisch angeregte Farbstoffmoleküle im Mikroresonator. Da sich in einem stationären Zustand die Raten für eine Änderung der Photonen- bzw. angeregten Molekülzahl gerade ausgleichen, ist deren relative Anzahl durch das inverse Verhältnis ihrer jeweiligen charakteristischen Lebensdauern gegeben, $M_{\uparrow}/n_{\text{ph}} = \tau_{\text{ph}}/\tau_{\uparrow}$. Die mittlere Lebensdauer eines Photons τ_{ph} ist durch die Reabsorptionszeit gegeben und beträgt ~ 10 ps für typische experimentelle Parameter. Die charakteristische Zerfallszeit der Farbstoffmoleküle τ_{\uparrow} hingegen liegt im Nanosekundenbereich, sodass für diese Parameter zu jeder Zeit im Mittel 10^2 mal mehr molekulare als photonische Anregungen im System vorliegen. Da die Lebensdauer der angeregten Moleküle im Allgemeinen von der Anzahl und Frequenz der Photonen abhängt, lassen sich deutlich größere Verhältnisse von $M_{\uparrow}/n_{\text{ph}}$ als in der obigen Abschätzung realisieren. Das Ensemble aus Farbstoffanregungen kann daher als effektives Teilchenreservoir für das Photonengas interpretiert werden.

Der Wärme- und Teilchenaustausch des Photonengases mit dem Farbstoffreservoir erlaubt die Untersuchung des Übergangs von kanonischen zu großkanonischen statistischen Ensemble-Bedingungen, wie in Abbildung 1.7 schematisch dargestellt. Im großkanonischen Modell unterliegen die Besetzungszahlen jedes Zustands starken Fluktuationen $\Delta n_i/\bar{n}_i \simeq 1$ (siehe Abschnitt 1.3.1), was sich in einer unterdrückten Kohärenz zweiter Ordnung für das Bose-Einstein-Kondensat niederschlägt. Dies bestätigt sich auch experimentell: der Bose-Einstein-kondensierte Grundzustand zeigt starke, zeitliche Intensitätsfluktuationen, die für anwachsende Kondensate (bis zu $\bar{n}_0/\bar{N} \simeq 70\%$) fortbestehen, solange das Teilchenreservoir großkanonische Bedingungen gewährleistet. Im Gegensatz dazu berichten Experimente mit kalten, atomaren Gasen die Unterdrückung von Dichtefluktuationen im Bose-Einstein-kondensierten Bereich [31, 34]. Die Ausprägung von Kohärenz zweiter Ordnung ist hier eine Konsequenz der Isolierung des atomaren Ensembles von seiner Umgebung, sodass die experimentelle Situation durch das mikrokanonische Ensemble mit festgelegter Gesamtteilchenzahl und reduzierten Fluktuationen $\Delta n_i/\bar{n}_i = 1/\sqrt{\bar{n}_i} \xrightarrow{n_i \gg 1} 0$, wiedergegeben wird. Im Laser ist die Photonenzahl-Statistik ebenfalls durch eine Poisson-Verteilung beschrieben [37, 39, 78]. Die Fluktuationseigenschaften des photonischen Bose-Einstein-Kondensats im großkanonischen Bereich unterschieden sich also deutlich von denen eines Lasers als auch von üblichen, auf dem mikrokanonischen oder kanonischen Ensemble basierenden, Bose-Einstein-Kondensaten.

Kapitel 2

Bose-Einstein-Kondensation von Licht

Es sollen in Folge die Grundlagen des betrachteten experimentellen Systems beschrieben werden, in dem die späteren Untersuchungen zur Thermalisierungsdynamik und zu Kohärenzeigenschaften erster und zweiter Ordnung durchgeführt werden. In einem hochreflektiven, optischen Mikroresonator lassen sich Photonen effizient speichern und formal als zweidimensionale, massive Bosonen betrachten, die in einem harmonischen Fallenpotential gefangen sind. Ihre paraxiale Wellengleichung entspricht dann der nicht-relativistischen Schrödingergleichung [79, 80]. Bringt man das Photonengas zusätzlich in thermischen Kontakt mit Farbstoff-Molekülen, thermalisiert das Photonengas unabhängig von seiner Gesamtteilchenzahl bei der Temperatur des molekularen Wärmebades. Beim Überschreiten einer kritischen Photonenzahl kommt es zur Ausprägung eines Bose-Einstein-Kondensats im transversalen Grundmoden des Resonators.

2.1 Fluoreszenzinduzierte Thermalisierung

Der Thermalisierungsprozess der Photonen durch ihre Ankopplung an ein molekulares Wärmebad wurde bereits am Ende von Kapitel 1 schematisch diskutiert. Der Energieaustausch zwischen dem photonischen System und dem Molekülreservoir erfolgt radiativ, d.h. Absorptions- und Emissionsprozesse von Photonen durch Farbstoffmoleküle stellen einen thermischen Kontakt zwischen beiden Teilsystemen her. Dies führt zu einem Photonengas im thermischen Gleichgewicht bei der Temperatur des Molekülbads von $T = 300$ K. Die überschüssige Energie „heißer“ Photonen wird dabei inkohärent ins Reservoir abgeführt, während „kalten“ Photonen Energie bereitgestellt werden kann. Anders als im Schwarzkörperstrahler erhält dieser Mechanismus die mittlere Photonenzahl bei Temperaturvariation (vgl. Abschnitte 1.1.2 und 1.5). In diesem Abschnitt wird der Thermalisierungsprozess unter Berücksichtigung der photonischen und molekularen Freiheitsgrade behandelt. Eine besonders wichtige Rolle spielen die spektralen Absorptions- und Emissionsprofile der Farbstoffmoleküle, die über das Kennard-Stepanov-Gesetz miteinander verknüpft sind und thermodynamische Informationen über das Medium enthalten.

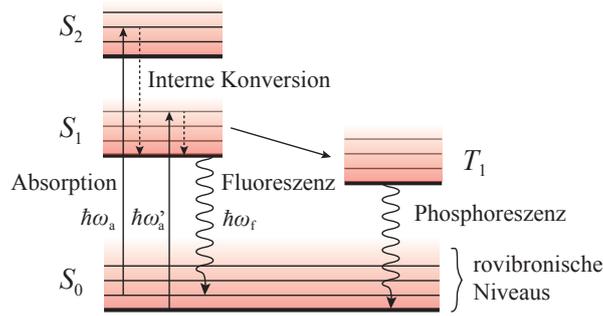


Abbildung 2.1: Jablonski-Diagramm der Übergänge in einem schematischen Farbstoffmolekül [74].

2.1.1 Kennard-Stepanov-Relation der Farbstoffmoleküle

Zu Beginn werden einige allgemeine Fluoreszenzeigenschaften von Farbstoffmolekülen zusammengefasst [74, 81, 82]. Die Charakteristiken der Fluoreszenzemission werden anhand des Jablonski-Diagramms in Abbildung 2.1 diskutiert. Darin sind der Singulett-Grundzustand und die ersten zwei elektronisch angeregten Zustände mit S_0 bzw. $S_{1,2}$ bezeichnet. Die elektronischen Niveaus sind mit einer Substruktur versehen, welche die vibronischen und rotatorischen Freiheitsgrade des Moleküls darstellt (schattierte Flächen in Abbildung 2.1). Die Absorption von Photonen bei Energien $\hbar\omega_a$ und $\hbar\omega'_a$ ist durch vertikale durchgezogene Pfeile gezeigt. Die Energieaufspaltung zwischen S_0 und S_1 beträgt typischerweise ca. 2 eV, sodass die thermische Energie bei Raumtemperatur von 1/40 eV keine elektronische Anregung des Farbstoffmoleküls bewirken kann, sondern für eine Anregung ein optisches Photon benötigt wird. Nach der Absorption ändern die Farbstoffmoleküle durch Stöße mit Lösungsmittelmolekülen (alle 10^{-15} s bei Raumtemperatur) laufend ihre Rotations- und Vibrationszustände im elektronisch angeregten Niveau. Im thermischen Gleichgewicht stellt sich abhängig von der rovibronischen Zustandsdichte und der Temperatur eine gewisse mittlere Besetzung im angeregten Zustand ein. Die überschüssige Energie bei jedem Absorptionsprozess wird durch diese interne Konversion auf einer Zeitskala von 10^{-12} s ins Lösungsmittelbad dissipiert. Die typischerweise viel langsamere Fluoreszenzemission (10^{-9} s) erfolgt damit in der Regel bei einer geringeren Frequenz als die vorangegangene Absorption (Stokes-Verschiebung [83]), sowie aus einem Satz von thermisch equilibrierten rovibronischen Niveaus in S_1 in den Grundzustand S_0 , der seinerseits ebenfalls innerhalb weniger Pikosekunden thermalisiert. Der Thermalisierungsprozess ist dafür verantwortlich, dass keine Korrelation zwischen der Energie des absorbierten Photons und dem Spektrum der Fluoreszenz besteht (Kasha's-Regel [84]). Da die elektronische Anregung eines Moleküls die nukleare Geometrie nahezu unverändert lässt, sind auch die Energieabstände und Wellenfunktionen der Vibrationsniveaus in S_0 und S_1 ähnlich. Eine Konsequenz ist, dass die spektralen Profile von Absorption und Emission gespiegelt erscheinen (Spiegelbild-Regel). Außerdem können Singulett-Zustände durch Interkombination strahlungslos in Triplett-Zustände T_1 übergehen, welche dann auf einer langsameren Zeitskala ($\geq 10^{-3}$ s) als Phosphoreszenz zerfallen.

Eine weitere Konsequenz der rovibronischen Thermalisierung ist die Verknüpfung von Absorptions- und Fluoreszenzspektren über einen Boltzmann-Faktor:

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \omega^3 \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \quad (2.1)$$

Hierin bezeichnet $\alpha(\omega)$ den Absorptionskoeffizient und $f(\omega)$ die spektrale Energiedichte (mittlere emittierte Energie pro Frequenzintervall) bei der Frequenz ω . Dieser Zusammenhang wurde zunächst von Kennard hergeleitet [85, 86] und in späteren Arbeiten weitergehend untersucht [87–90]. Zur Herleitung der Relation in Gl. (2.1) betrachten wir das in Abbildung 2.1 gezeigte Energieschema der Zustände S_0 und S_1 , wobei der Energieabstand zwischen den rovibronischen Grundzuständen $\hbar\omega_{\text{ZPL}}$ („Null-Phononen-Linie“, *engl.: zero-phonon line*) betrage. Die relativen Fluoreszenz- und Absorptionsstärken können durch Integration über die Energieniveaus der rovibronischen Substruktur gewonnen werden

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{\int D_{\uparrow}(\epsilon') p(\epsilon') A(\epsilon', \omega) d\epsilon'}{\int D_{\downarrow}(\epsilon) p(\epsilon) B(\epsilon, \omega) d\epsilon}, \quad (2.2)$$

wobei ϵ, ϵ' die Energien und $D_{\downarrow}(\epsilon), D_{\uparrow}(\epsilon')$ die rovibronische Zustandsdichte im Grund- (\downarrow) bzw. angeregten (\uparrow) Zustand bezeichnen. Die Verteilungsfunktion ist aufgrund der stoßinduzierten Thermalisierung in beiden Zuständen identisch

$$p(\epsilon) = \exp\left(-\frac{\epsilon}{k_B T}\right). \quad (2.3)$$

Die Einstein-Koeffizienten $A(\epsilon', \omega)$ und $B(\epsilon, \omega)$ sind, unter Beachtung der Energieerhaltung $\hbar\omega + \epsilon = \hbar\omega_{\text{ZPL}} + \epsilon'$, über die A-B-Relation miteinander verknüpft [89]

$$D_{\uparrow}(\epsilon') A(\epsilon', \omega) d\epsilon' = \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} D_{\downarrow}(\epsilon) B(\epsilon, \omega) d\epsilon. \quad (2.4)$$

Unter der Annahme einer identischen rovibronischen Substruktur, $D_{\downarrow}(\epsilon) = D_{\uparrow}(\epsilon')$, liefert Einsetzen von Gl. (2.3), (2.4) in Gl. (2.2)

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} \exp\left(-\frac{\epsilon' - \epsilon}{k_B T}\right) = \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} \exp\left(-\frac{\hbar(\omega - \omega_{\text{ZPL}})}{k_B T}\right). \quad (2.5)$$

Die Kennard-Stepanov-Relation aus Gl. (2.5) wurde experimentell in flüssigen Farbstofflösungen [20, 91–94], sowie Farbstoff-dotierten Polymermatrizen bei Raumtemperatur beobachtet [95]. Andere Experimente haben die Boltzmann-Skalierung von Absorption und Emission in Halbleitern [96] und ultradichten, druckverbreiterten Rubidiumgasen [97, 98] bestätigt.

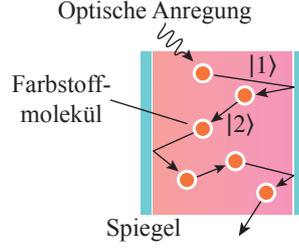


Abbildung 2.2: In der „Photonen-Box“ ändern wiederholte Absorptions-Emissions-Zyklen von Photonen durch Farbstoffmoleküle laufend die Konfiguration des Lichtfeldes ($|1\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow \dots$), sodass die Photonen thermalisieren.

Thermisches Gleichgewicht durch Absorption-Emissions-Zyklen

Gemäß der Kennard-Stepanov-Theorie überträgt sich das thermische Gleichgewicht eines molekularen Wärmebades auf die spektralen Fluoreszenz-Eigenschaften. Während Photonen bei der Fluoreszenz spontan in das Modenkontinuum des freien Raums emittiert werden, kommt es im optischen Mikroresonator zu wiederholten Absorptions- und Reemissionsprozessen von Photonen durch das Farbstoffmedium in ein durch die Resonatorspiegel modifiziertes Modenvolumen (vgl. Abschnitt 2.3).

Die Auswirkung von wiederholten Absorptions-Fluoreszenz-Zyklen (Abbildung 2.2) auf die Thermodynamik des Photonengases lässt sich durch eine Zufallsentwicklung (*engl.: random walk*) der Photonenkonfiguration

$$|1\rangle = \{n_0, n_1, \dots, n_i, \dots, n_j, \dots\} \quad (2.6)$$

modellieren, worin n_i die (aktuelle) Population des i -ten Resonatormoden (Kreisfrequenz ω_i) bezeichnet. Die Absorption eines Photons aus dem Moden i und nachfolgende Emission eines anderen Photons in j führe zur Konfiguration des Strahlungsfeldes

$$|2\rangle = \{n_0, n_1, \dots, n_i - 1, \dots, n_j + 1, \dots\}. \quad (2.7)$$

Die Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den Konfigurationen werden durch Absorption sowie spontane und stimulierte Emission reguliert:

$$R_{12} \propto n_i \alpha(\omega_i) \times (n_j + 1) \tilde{f}(\omega_j) \quad (2.8)$$

$$R_{21} \propto (n_j + 1) \alpha(\omega_j) \times n_i \tilde{f}(\omega_i) \quad (2.9)$$

mit der spektralen Fluoreszenzwahrscheinlichkeit pro Moden $\tilde{f}(\omega) = f(\omega) \pi^2 c^3 / (\hbar \omega^3)$. Für das Verhältnis der Übergangsraten folgt

$$\frac{R_{12}}{R_{21}} = \frac{n_i \alpha(\omega_i) (n_j + 1) \tilde{f}(\omega_j)}{(n_j + 1) \alpha(\omega_j) n_i \tilde{f}(\omega_i)} = \frac{\alpha(\omega_i) f(\omega_j) \omega_j^3}{\alpha(\omega_j) f(\omega_i) \omega_i^3} \stackrel{(2.5)}{=} \exp \left[-\frac{\hbar(\omega_j - \omega_i)}{k_B T} \right] \quad \forall i, j, \quad (2.10)$$

wobei im letzten Schritt die Kennard-Stepanov-Relation eingesetzt wurde. Aus der Theorie der Markov-Prozesse ist bekannt, dass eine derartige Boltzmann-Relation der Übergangsraten einen stationären Zustand der Mastergleichung („detailliertes Gleichgewicht“) herbeiführt [20, 99, 100]. Letztere ist eine Ratengleichung für den Wahrscheinlichkeitsfluss zwischen verschiedenen Konfigurationen des Systems. Die Kennard-Stepanov-Relation stellt somit sicher, dass das Photonengas für hinreichend lange Zeiten über alle Moden ins thermische Gleichgewicht strebt.

Chemisches Gleichgewicht

Neben dem Energieaustausch mit dem Wärmebad bei der Temperatur T , findet auch ein effektiver Teilchenaustausch zwischen dem Photonengas und dem Farbstoffmedium statt. Der Kontakt zu dem Teilchenreservoir führt ein chemisches Potential μ_γ für die Photonen ein, welches durch den Anregungsgrad des Farbstoffmediums eingestellt wird. Wegen $\hbar\omega_{\text{ZPL}} \gg k_B T$, kann die Anregung eines Moleküls aus dem elektronischen Grundzustand (\downarrow) in den elektronisch angeregten Zustand (\uparrow) praktisch nur durch die Absorption eines optischen Photons (γ) erfolgen. Umgekehrt führt der Zerfall des Moleküls zur Emission eines Photons. Dies entspricht einer photochemischen Reaktion



die im chemischen Gleichgewicht (kein Netto-Teilchenfluss zwischen den Spezies) die Angleichung der jeweiligen chemischen Potentiale bewirkt:

$$\mu_\gamma + \mu_\downarrow = \mu_\uparrow \quad (2.12)$$

Daher folgt für die Fugazität der Photonen

$$z = e^{\frac{\mu_\gamma}{k_B T}} = e^{\frac{\mu_\uparrow}{k_B T}} / e^{\frac{\mu_\downarrow}{k_B T}}. \quad (2.13)$$

Die Zustandssumme eines Farbstoffmoleküls sei

$$\mathcal{F} = w_\downarrow e^{\frac{\mu_\downarrow}{k_B T}} + w_\uparrow e^{\frac{\mu_\uparrow - \hbar\omega_{\text{ZPL}}}{k_B T}} \quad (2.14)$$

mit den statistischen Gewichten $w_{\downarrow,\uparrow} = \int_{\epsilon \geq 0} D_{\downarrow,\uparrow}(\epsilon) \exp[-\epsilon/k_B T] d\epsilon$. Die Wahrscheinlichkeit, das Molekül im Grund- oder angeregten Zustand zu finden,

$$w_\downarrow e^{\frac{\mu_\downarrow}{k_B T}} / \mathcal{F} = \frac{M_\downarrow}{M} \quad (2.15)$$

$$w_\uparrow e^{\frac{\mu_\uparrow - \hbar\omega_{\text{ZPL}}}{k_B T}} / \mathcal{F} = \frac{M_\uparrow}{M} \quad (2.16)$$

ist durch das Verhältnis der Anzahl von angeregten bzw. relaxierten Farbstoffmolekülen $M_{\uparrow,\downarrow}$ zur Gesamtmolekülzahl M gegeben. Einsetzen in Gl. (2.13) liefert

$$e^{\frac{\mu_\gamma}{k_B T}} = \frac{w_\downarrow M_\uparrow}{w_\uparrow M_\downarrow} e^{\frac{\hbar\omega_{\text{ZPL}}}{k_B T}} \quad (2.17)$$

Im chemischen Gleichgewicht wird das chemische Potential der Photonen also durch den Anregungsgrad der Farbstoffmoleküle M_\uparrow/M_\downarrow bestimmt. Wie im folgenden Abschnitt erläutert wird, ist es vorteilhaft, alle Energien im Mikroresonator bezüglich der des Grundzustandes $\hbar\omega_c$ (siehe Gl. (2.30)) zu renormieren. Mit $\mu := \mu_\gamma - \hbar\omega_c$ folgt somit

$$e^{\frac{\mu}{k_B T}} = \frac{w_\downarrow M_\uparrow}{w_\uparrow M_\downarrow} e^{-\frac{\hbar\Delta}{k_B T}} \quad (2.18)$$

mit der Verstimmung $\Delta := \omega_c - \omega_{\text{ZPL}}$ zwischen Kondensat und Farbstoffresonanz¹.

2.2 Dispersionsrelation im Mikroresonator

In diesem Abschnitt wird die Dispersionsrelation des zweidimensionalen, harmonischen gefangenen Photonengases im Mikroresonator diskutiert. Es wird ein Resonator aus zwei sphärisch gekrümmten Spiegeln betrachtet, die einen Abstand von wenigen optischen Wellenlängen besitzen (siehe Abbildung 2.3). In einem Medium mit Brechungsindex \tilde{n} verknüpft die Dispersionsrelation von Photonen im freien Raum

$$E = \frac{\hbar c}{\tilde{n}} k \quad (2.19)$$

die Photonenenergie E mit dem Betrag des Wellenvektors $k \equiv |\vec{k}|$, siehe Abbildung 2.4(a). Im Allgemeinen lässt sich der Wellenvektor in eine longitudinale Komponente entlang der optischen Achse k_z und eine transversale Radialkomponente k_r zerlegen. Für die Energie-Impuls-Beziehung in Gl. (2.19) folgt dann

$$E = \frac{\hbar c}{\tilde{n}} \sqrt{k_r^2 + k_z^2}. \quad (2.20)$$

Die Randbedingungen für die Photonen-Eigenzustände im Resonator sind durch den

¹Im Folgenden wird Δ auch als „Farbstoff-Resonator-Verstimmung“ bezeichnet.

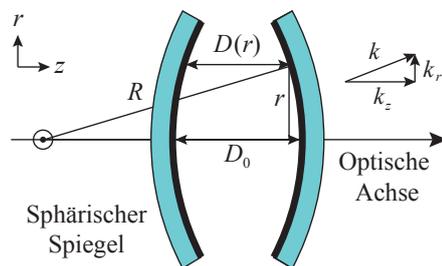


Abbildung 2.3: Schema des Resonators aus zwei sphärischen Spiegeln mit Krümmungsradius R im Abstand D_0 auf der optischen Achse (z -Richtung). Bei einer transversalen Position r abseits der optischen Achse verringert sich der Spiegelabstand auf einen Wert $D(r)$. Der Wellenvektor lässt sich in Longitudinal- und Transversalkomponente, k_z bzw. k_r , zerlegen (rechts).

Abstand der Spiegeloberflächen mit Krümmungsradius R vorgegeben. Der Einfachheit halber nehmen wir an, dass die Knoten der elektromagnetischen Stehwellen auf der Spiegeloberfläche liegen und nicht in die reflektierende Schicht eindringen, wie es bei (den im Experiment verwendeten) dielektrischen Spiegeln der Fall ist. Der Spiegelabstand bei einer radialen Entfernung r von der optischen Achse betrage $D(r)$, und zur vereinfachten Notation bezeichnen wir die maximale Entfernung der Spiegel auf der optischen Achse mit $D_0 \equiv D(r = 0)$. Die verwendeten Parameter sind in Abbildung 2.3 skizziert. Die z -Komponente des Wellenvektors bei der transversalen Position r lautet

$$k_z(r) = \frac{\pi q}{D(r)}, \quad (2.21)$$

wobei die longitudinale Wellenzahl q die Anzahl der im Resonator eingeschlossenen Halbwellen festlegt. Anhand von Gl. (2.21) wird deutlich, dass die z -Komponente des Wellenvektors in einem Mikroresonator sehr groß werden kann und somit die „paraxiale Näherung“ $k_z \gg k_r$ relevant wird. Aus geometrischen Betrachtungen (siehe Abbildung 2.3) folgt für den Spiegelabstand

$$D(r) = D_0 - 2R \left[1 - \sqrt{1 - \left(\frac{r}{R}\right)^2} \right] \quad (2.22)$$

Im verwendeten Mikroresonator ist der Krümmungsradius der Spiegel wesentlich größer als die untersuchten Abstände von der optischen Achse ($r \ll R$), weshalb der Wurzelterm in Gl. (2.22) in erster Ordnung entwickelt werden kann. Insgesamt liefert dies eine parabolische Skalierung

$$D(r) = D_0 - \frac{r^2}{R}. \quad (2.23)$$

Unter Verwendung der paraxialen Näherung folgt für die Dispersionsrelation aus Gl. (2.20) näherungsweise

$$\begin{aligned} E &\simeq \frac{\hbar c}{\tilde{n}} \left(k_z + \frac{k_r^2}{2k_z} \right) \stackrel{(2.21)}{=} \frac{\pi \hbar c q}{\tilde{n} D(r)} + \frac{\hbar c D(r)}{2\pi q \tilde{n}} k_r^2 \\ &\simeq \frac{\pi \hbar c q}{\tilde{n} D_0} + \frac{\pi \hbar c q}{\tilde{n} R D_0^2} r^2 + \frac{\hbar c D_0}{2\pi q \tilde{n}} k_r^2. \end{aligned} \quad (2.24)$$

In der zweiten Zeile wurde der inverse Spiegelabstand $D(r)^{-1}$ wegen $D_0 \gg r^2/R$ für kleine r^2/R entwickelt. Es soll zusätzlich ein nichtlineares Antwortverhalten des Brechungsindex aufgrund von Veränderungen der zweidimensionalen Photonendichte, d.h. der Intensität des Lichtfeldes $I(\vec{r})$, in Gl. (2.24) implementiert werden. Mit dem Ansatz

$$\tilde{n} = \tilde{n}_0 + \Delta \tilde{n}_r = \tilde{n}_0 + \tilde{n}_2 I(\vec{r}) \quad (2.25)$$

lässt sich der Gesamtbrechungsindex als Summe des linearen Brechungsindex in der Abwesenheit von Photonen \tilde{n}_0 und eines nichtlinearen Anteils \tilde{n}_2 ausdrücken. Der

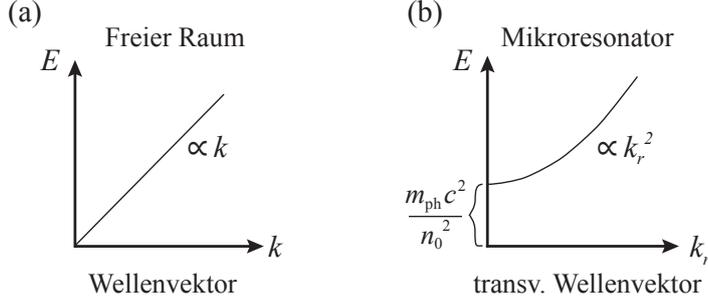


Abbildung 2.4: Modifizierte Dispersion im Mikroresonator. (a) Lineare Abhängigkeit der Photonen-Energie $E = \hbar kc/\tilde{n}_0$ vom dreidimensionalen Wellenvektor im freien Raum. (b) Im Mikroresonator skaliert die Energie-Impuls-Beziehung des Photons für kleine Werte von k_r quadratisch mit dem transversalen Wellenvektor k_r , analog zur Dispersionsrelation eines massiven Teilchens mit Ruhemasse $m_{\text{ph}}(c/\tilde{n}_0)^2$.

letzte Term in Gl. (2.25) beinhaltet damit physikalische Effekte die zu intensitätsabhängigen Energieverschiebungen führen, wie z.B. den optischen Kerr-Effekt [101], oder zeitlich retardierte thermische Linseneffekte. Insgesamt erhält man:

$$\begin{aligned}
 E &= \frac{1}{\tilde{n}_0 + \Delta\tilde{n}_r} \left[\frac{\pi\hbar cq}{D_0} + \frac{\pi\hbar cq}{RD_0^2} r^2 + \frac{\hbar c D_0}{2\pi q} k_r^2 \right] \\
 &\simeq \frac{\pi\hbar cq}{\tilde{n}_0 D_0} + \frac{\pi\hbar cq}{\tilde{n}_0 R D_0^2} r^2 + \frac{\hbar c D_0}{2\pi q \tilde{n}_0} k_r^2 - \frac{\pi\hbar cq}{\tilde{n}_0^2 D_0} \Delta\tilde{n}_r
 \end{aligned} \tag{2.26}$$

Im letzten Schritt wurde die Näherung $\tilde{n}_0 \gg \Delta\tilde{n}_r$ verwendet und berücksichtigt, dass nur der erste Term in der Klammer in Kombination mit $\Delta\tilde{n}_r$ einen wesentlichen Beitrag zur Dispersionsrelation liefert. In Gl. (2.26) lässt sich die effektive Photonenmasse und die Fallenfrequenz identifizieren

$$m_{\text{ph}} := \frac{\pi\hbar q \tilde{n}_0}{D_0 c} = \frac{\hbar \tilde{n}_0}{c} k_z(0), \tag{2.27}$$

$$\Omega := \frac{c}{\tilde{n}_0} \sqrt{\frac{2}{D_0 R}}, \tag{2.28}$$

womit sich die Energie-Impuls-Beziehung aus Gl. (2.26) umschreiben lässt:

$$E = m_{\text{ph}} \frac{c^2}{\tilde{n}_0^2} + \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m_{\text{ph}}} + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2 - \frac{m_{\text{ph}} c^2}{\tilde{n}_0^3} \tilde{n}_2 I(\vec{r}) \tag{2.29}$$

Vernachlässigt man Wechselwirkungen, $\tilde{n}_2 = 0$, so entspricht Gl. (2.29) formal der Dispersionsrelation eines massiven, harmonisch gefangenen Teilchens, dessen nicht-relativistische Bewegung in den zwei Dimensionen der Transversalebene erfolgt (Abbildung 2.4 (b)). Der erste Term in Gl. (2.29) bezeichnet eine effektive Ruheenergie

der Photonen, eine globale Energieverschiebung, die durch die Spiegelrandbedingungen festgelegt wird. Sie entspricht gerade der Energie des q -ten Longitudinalmoden ohne transversale Anregungen

$$m_{\text{ph}} \frac{c^2}{\tilde{n}_0^2} \stackrel{!}{=} E_{q00} = \hbar\omega_c, \quad (2.30)$$

mit der „Abschneidefrequenz“ ω_c . In Analogie zur nicht-relativistischen Quantenmechanik lassen sich dann mit den transversalen Quantenzahlen n_x und n_y die diskreten Energie-Eigenzustände E_{n_x, n_y} und Wellenfunktionen $\psi_{n_x, n_y}(x, y)$ des zweidimensionalen, quantenmechanischen Oszillators angeben [102]:

$$E_{n_x, n_y} = m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n_0^2} + \hbar\Omega(n_x + n_y + 1) \quad (2.31)$$

$$\begin{aligned} \psi_{n_x, n_y}(x, y) &= \psi_{n_x}(x) \cdot \psi_{n_y}(y) \\ \psi_n(x) &= \frac{1}{\sqrt{2^n n!}} \left(\frac{m_{\text{ph}} \Omega}{\pi \hbar} \right)^{1/4} e^{-\frac{m_{\text{ph}} \Omega x^2}{2\hbar}} H_n \left(\sqrt{\frac{m_{\text{ph}} \Omega}{\hbar}} x \right) \end{aligned} \quad (2.32)$$

Die Wellenfunktionen des zweidimensionalen harmonischen Oszillators separieren in Lösungen des eindimensionalen Problems $\psi_n(x)$, wobei $H_n(x) = (2x - \partial/\partial x)^n \cdot 1$ Hermite-Polynome n -ten Grades bezeichnen. Die nicht-relativistische Quantenmechanik liefert mit Gleichungen (2.31) und (2.32) dieselben Ergebnisse wie die paraxiale Wellengleichung, welche ebenfalls ein diskretes Spektrum von Hermite-Gauß-Moden vorhersagt [79, 103].

Gross-Pitaevskii-Gleichung

In der Anwesenheit eines Thermalisierungsprozesses bei gleichzeitiger Teilchenzahlerhaltung kann ein Bose-Gas in diesem zweidimensionalen System eine Bose-Einstein-Kondensation zeigen, wie in Abschnitt 2.3 im Detail diskutiert wird. Aus Gl. (2.29) lässt sich eine nichtlineare Wellengleichung für den Grundzustand des kondensierten Systems ableiten, die formal einer Gross-Pitaevskii-Gleichung entspricht [104, 105]. Bei tiefen Temperaturen, $T \simeq 0$, befindet sich ein makroskopischer Anteil von Teilchen im transversalen Grundzustand $\psi_0(\vec{r})$. Die Intensität

$$I(\vec{r}) = \frac{m_{\text{ph}} c^2}{\tilde{n}_0^2 \tau_{\text{rt}}} N_0 |\psi_0(\vec{r})|^2 \quad (2.33)$$

setzt sich aus der Energie der N_0 kondensierten Photonen und der zweidimensionalen Photonendichte $|\psi_0(\vec{r})|^2$ pro Resonatorumlaufzeit $\tau_{\text{rt}} = \tilde{n}_0 D_0 / c$ zusammen. Der Wechselwirkungsterm aus Gl. (2.29) lautet dann

$$E_{\text{int}} = -\frac{m_{\text{ph}}^2 c^4}{\tilde{n}_0^5 \tau_{\text{rt}}} \tilde{n}_2 N_0 |\psi_0(\vec{r})|^2 = \frac{\hbar^2}{m_{\text{ph}}} \tilde{g} N_0 |\psi_0(\vec{r})|^2, \quad (2.34)$$

mit der dimensionslosen Wechselwirkungskonstante $\tilde{g} = -(m_{\text{ph}}^3 c^4 \tilde{n}_2) / (\hbar^2 \tilde{n}_0^5 \tau_{\text{rt}})$ [106]. Insgesamt folgt die Dispersionsrelation

$$E \simeq m_{\text{ph}} \frac{c^2}{\tilde{n}_0^2} + \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m_{\text{ph}}} + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{\hbar^2}{m_{\text{ph}}} \tilde{g} N_0 |\psi_0(\vec{r})|^2. \quad (2.35)$$

In Analogie zur nicht-relativistischen Quantenmechanik lässt sich die zugehörige Eigenwertgleichung angeben:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_{\text{ph}}} \nabla^2 + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{\hbar^2}{m_{\text{ph}}} \tilde{g} N_0 |\psi_0(\vec{r})|^2 \right) \psi_0(\vec{r}) = \mu \psi_0(\vec{r}), \quad (2.36)$$

wobei μ das chemische Potential bezeichnet. Gleichung (2.36) ist die für atomare Bose-Einstein-Kondensate bekannte zeitunabhängige Gross-Pitaevskii-Gleichung.

2.3 Statistische Physik des Photonengases

In diesem Abschnitt wird das Temperaturverhalten des idealen Bose-Gases in zwei Dimensionen in einem harmonischen Fallenpotential untersucht [25, 27, 107–109]. Neben der kritischen Teilchenzahl bzw. Temperatur, werden die spektralen und räumlichen Verteilungen für das experimentell untersuchte, zweidimensionale Photonengas diskutiert. Nach Gl. (2.31) lassen sich die transversalen Anregungsenergien im Potential des harmonischen Oszillators angeben

$$u_{n_x, n_y} := E_{n_x, n_y} - m_{\text{ph}} \frac{c^2}{\tilde{n}_0^2} - \hbar \Omega = \hbar \Omega (n_x + n_y). \quad (2.37)$$

Wie man an Gl. (2.37) sieht, wächst die Entartung der Zustände des harmonischen Oszillators linear für größer werdende Energien. Entsprechend lautet die Zustandsdichte

$$g(u) = 2 \left(\frac{u}{\hbar \Omega} + 1 \right), \quad (2.38)$$

worin der Faktor 2 die zweifache Polarisationsentartung der Photonen berücksichtigt. Bei einer Temperatur T im thermischen Gleichgewicht ist die mittlere Besetzungszahl eines transversal angeregten Zustands bei der Energie u durch das Produkt aus der Zustandsdichte und der Bose-Einstein-Verteilung bestimmt

$$\bar{n}_{T, \mu}(u) = \frac{g(u)}{\exp[(u - \mu) / k_B T] - 1}. \quad (2.39)$$

Es wird implizit angenommen, dass sich das System im großkanonischen Ensemble befindet. Das chemische Potential μ reguliert die mittlere Teilchenzahl \bar{N} gemäß der Nebenbedingung

$$\bar{N} = \sum_{u=0, \hbar \Omega, 2\hbar \Omega, \dots} \bar{n}_{T, \mu}(u). \quad (2.40)$$

Bei hohen Temperaturen bzw. kleinen Gesamtteilchenzahlen erfüllt das chemische Potential $\mu/k_B T \ll 0$, und Gl. (2.39) geht in die klassische Boltzmann-Verteilung über. Bei größer werdender Phasenraumdichte ($T \rightarrow 0$ bzw. $N \rightarrow \infty$) nähert sich das chemische Potential asymptotisch der Grundzustandsenergie an, hier: $\mu \rightarrow 0^-$ (Abbildung 2.5 (b)). Die Besetzung des Grundzustandes $\bar{n}_0 \equiv \bar{n}_{T,\mu=0}(u=0)$ divergiert und muss in der Summe aus Gl. (2.40) gesondert betrachtet werden

$$\bar{N} = \bar{n}_0 + \sum_{u=\hbar\Omega, 2\hbar\Omega, \dots} \bar{n}_{T,\mu=0}(u). \quad (2.41)$$

Das Einfügen weiterer Teilchen ins System führt zu einer makroskopischen Anhäufung der Teilchen im Grundzustand, weil die hochenergetischen Zustände keine weiteren Anregungen aufnehmen können. Die Bose-Einstein-Kondensation setzt bei der kritischen Teilchenzahl ein:

$$N_c = \sum_{u=\hbar\Omega, 2\hbar\Omega, \dots} \bar{n}_{T,\mu=0}(u) = \sum_{u=\hbar\Omega, 2\hbar\Omega, \dots} \frac{2(u/\hbar\Omega + 1)}{e^{u/k_B T} - 1} \quad (2.42)$$

Im Falle von quasi-kontinuierlichen Energieniveaus, $\hbar\Omega \gg k_B T$, kann die Summe durch ein Integral genähert werden. Setzen von $x := u/k_B T$ liefert

$$N_c = \frac{1}{\hbar\Omega} \int \frac{2(u/\hbar\Omega + 1)}{e^{u/k_B T} - 1} du \simeq 2 \left(\frac{k_B T}{\hbar\Omega} \right)^2 \int_0^\infty \frac{x}{e^x - 1} dx. \quad (2.43)$$

Die Lösung des Integrals ist durch die Riemann'sche Zeta-Funktion $\xi(2) = \pi^2/6$ gegeben, sodass insgesamt für die kritische Teilchenzahl bzw. Temperatur folgt

$$N_c = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B T}{\hbar\Omega} \right)^2 \quad \text{bzw.} \quad T_c = \frac{\sqrt{3}}{\pi} \frac{\hbar\Omega}{k_B} \sqrt{\bar{N}}. \quad (2.44)$$

Wenn die Fallenfrequenz nach Gl. (2.28) als Funktion der Resonatorparameter ausgedrückt wird, ändert sich Gl. (2.44) zu

$$N_c = \frac{\pi^2}{6} \left(\frac{k_B T}{\hbar} \frac{\tilde{n}_0}{c} \right)^2 D_0 R \quad \text{bzw.} \quad T_c = \frac{\sqrt{6}\hbar c}{\pi k_B \tilde{n}_0} \sqrt{\frac{1}{D_0} \frac{\bar{N}}{R}}. \quad (2.45)$$

Um von einem Gleichgewichtsphasenübergang sprechen zu können, muss die kritische Temperatur auch im thermodynamischen Limes $\bar{N}, V \rightarrow \infty$ ihren endlichen Wert beibehalten. Wie man anhand von Gl. (2.45) sieht, ist dies aber gerade dann erfüllt, wenn die Teilchenzahl $\bar{N} \rightarrow \infty$ und das Volumen durch „Abschalten“ des Fallenpotentials $R \rightarrow \infty$ bei konstant gehaltener Teilchendichte $\bar{N}/R = \text{konst.}$ vergrößert werden. Obwohl auch gleichzeitiges Vergrößern von \bar{N} und D_0 bei fixierter Potentialgeometrie die Übergangstemperatur konstant hält, ist dieser Fall für das hier betrachtete System physikalisch irrelevant, da die Zweidimensionalität des Photonengases für große Spiegelabstände verloren geht. Die erwarteten mittleren

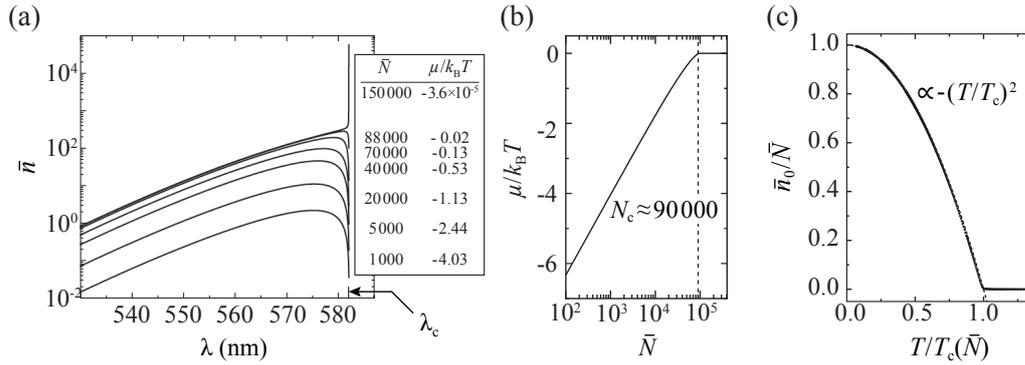


Abbildung 2.5: Spektrale Verteilung, chemisches Potential und Kondensatanteil. (a) Mittlere Besetzungszahl \bar{n} als Funktion der optischen Wellenlänge. Die Ruheenergie der Photonen ist durch die Abschneidewellenlänge λ_c gegeben, $m_{\text{ph}}c^2/\bar{n}_0 = hc/\lambda_c$. Unterhalb der kritischen Photonenzahl $N_c \approx 90\,000$ zeigen die Spektren eine Boltzmann-Skalierung bei kleinen Wellenlängen. Für $\bar{N} > N_c$ wird der Grundzustand makroskopisch besetzt. (b) Das chemische Potential (in Einheiten des Boltzmann-Faktors), $\mu/k_B T$, wächst im klassischen Bereich mit steigender Gesamtteilchenzahl stetig an, ehe es bei N_c mit $\mu = 0$ in Sättigung geht. (c) Anteil von kondensierten Photonen an der Gesamtteilchenzahl bei Variation der reduzierten Temperatur. Die numerische Berechnung (Punkte) zeigt die erwartete quadratische Skalierung (gestrichelte Linie). Entsprechend der experimentellen Bedingungen ($T = 300\text{ K} = \text{konst.}$) wird die reduzierte Temperatur durch Änderung der kritischen Temperatur $T_c \propto \sqrt{\bar{N}}$ angepasst.

spektralen Verteilungen der Photonen für zunehmende chemische Potentiale sind in Abbildung 2.5 (a) als Funktion der Wellenlänge dargestellt.

Kondensatanteil und räumliche Verteilung des Photonengases

In Analogie zu Abschnitt 1.1.1 lässt sich das Verhältnis aus der Zahl der kondensierten Photonen \bar{n}_0 und der Gesamtteilchenzahl \bar{N} mit der reduzierten Temperatur T/T_c verknüpfen. Nach Gln. (2.41), (2.44) ist die mittlere Anzahl von Photonen in angeregten Zuständen bei der Temperatur T durch

$$\bar{N}_{\text{exc}} = \bar{N} - \bar{n}_0 = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B T}{\hbar \Omega} \right)^2 \stackrel{(2.44)}{=} \bar{N} \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \quad (2.46)$$

gegeben. Daraus folgt die in Abbildung 2.5(c) gezeigte, quadratische Abhängigkeit des Kondensatanteils von der reduzierten Temperatur

$$\frac{\bar{n}_0}{\bar{N}} = 1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2, \quad (2.47)$$

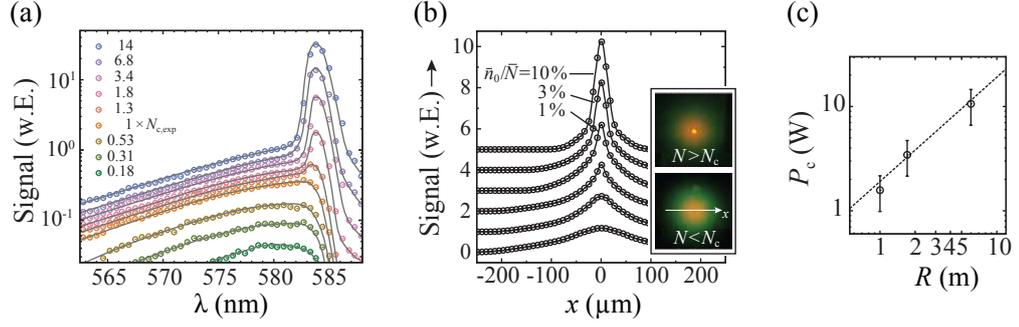


Abbildung 2.6: Spektrale und räumliche Bose-Einstein-Kondensation von Licht, aus [21]. (a) Spektrum der Besetzungszahlen für verschiedene chemische Potentiale. Unterhalb der kritischen Photonenzahl beobachtet man eine Boltzmann-verteilte Besetzung transversal angeregter Energiezustände. Oberhalb der Kondensationsschwelle sättigt diese Besetzung nahezu und der Grundzustand wird makroskopisch besetzt. (b) Räumliche Intensitätsverteilungen $I_{T=300\text{K},\mu}(x, 0)$ unter- und oberhalb der kritischen Teilchenzahl entlang eines Schnittes in x -Richtung (siehe Teilabbildung mit CCD-Bildern). (c) Linearer Anstieg der kritischen Leistung bei geänderter Fallengeometrie durch Einsatz von Spiegeln mit unterschiedlichen Krümmungsradien R , entsprechend der theoretischen Vorhersage aus Gl. (2.45).

für das harmonisch gefangene, ideale Bose-Gas in zwei Dimensionen [25, 109]. Im harmonischen Fallenpotential findet neben der Bose-Einstein-Kondensation im Impulsraum auch eine Kondensation im Ortsraum statt, siehe Abbildung 2.6(b). Die räumliche Intensitätsverteilung des Bose-Einstein-kondensierten Photonengases folgt aus einer Summation über die Oszillator-Eigenfunktionen aus Gl. (2.32) mit Energien aus Gl. (2.31) gewichtet mit dem Bose-Einstein-Faktor bei der Temperatur T :

$$\begin{aligned}
 I_{T,\mu}(x, y) &= \sum_{n_x, n_y} \frac{E_{n_x, n_y}}{\tau_{\text{rt}}} |\psi_{n_x, n_y}(x, y)|^2 2 \left(e^{\frac{\hbar\Omega(n_x + n_y) - \mu}{k_B T}} - 1 \right)^{-1} \\
 &\simeq \frac{2m_{\text{ph}}c^2}{\tilde{n}_0^2 \tau_{\text{rt}}} \sum_{n_x, n_y} |\psi_{n_x, n_y}(x, y)|^2 \left(e^{\frac{\hbar\Omega(n_x + n_y) - \mu}{k_B T}} - 1 \right)^{-1} \quad (2.48)
 \end{aligned}$$

Im letzten Schritt wurde die Leistung pro Photon durch $E_{n_x, n_y} \simeq m_{\text{ph}}(c/\tilde{n}_0)^2/\tau_{\text{rt}}$ genähert, da die transversalen Energien $\hbar\Omega$ im Vergleich zur Ruheenergie $m_{\text{ph}}(c/\tilde{n}_0)^2$ vernachlässigt werden können.

Experimentelle Realisierung des Lichtkondensats

Die statischen spektralen und räumlichen Verteilungen des Photonengases, gegeben in Gln. (2.39) und (2.48), wurden im Rahmen der Dissertation von Jan Klärs für den klassischen sowie Bose-Einstein-kondensierten Bereich experimentell verifiziert [21, 22, 110]. Innerhalb der Messgenauigkeit wird hierin auch die theoretische

Vorhersage für die kritische Photonenzahl und deren Abhängigkeit von der Fallengeometrie, siehe Gl. (2.45), gut bestätigt. Abbildung 2.6 zeigt einige der experimentellen Resultate zur Bose-Einstein-Kondensation von Photonen aus Referenz [21].

Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit ist die Untersuchung von Kohärenzeigenschaften von Bose-Einstein-Kondensaten aus Licht. Typische experimentell realisierte Parameter für den verwendeten Mikroresonatoraufbau sind hierbei $q = 8$ als longitudinale Wellenzahl, bei einer Abschneidewellenlänge von $\lambda_c = 580$ nm. Die Randbedingung des Resonators verknüpft dies mit einem Spiegelabstand auf der optischen Achse von $D_0 = 1.62$ μm , wobei der Brechungsindex des Farbstoffmediums $\tilde{n}_0 = 1.43$ beträgt. Der Krümmungsradius der Spiegel liegt bei $R = 1$ m und die Experimente finden bei Raumtemperatur $T = 300$ K statt. Die effektive Photonenmasse beträgt somit, nach Gl. (2.27), $m_{\text{ph}} = 7.8 \cdot 10^{-36}$, und aus Gl. (2.28) ergibt sich die harmonische Fallenfrequenz $\Omega/2\pi = 37 \cdot 10^9$ Hz. Mit diesen Parametern resultiert aus Gl. (2.45) die kritische Teilchenzahl $N_c = 93\,000$. Bei der Resonatorumlaufzeit von $\tau_{\text{rt}} = 15$ fs beträgt die im Resonator zirkulierende optische Leistung dann etwa $P_c \approx 2.1$ W. Aufgrund der hohen Spiegelreflektivität wird nur ein geringer Anteil von $\tilde{T} = 2.5 \cdot 10^{-5}$ der zirkulierenden optischen Leistung durch die Spiegel transmittiert. Auch wird das Photonenkondensat nur über eine Einschaltdauer von 1 : 10 000 betrieben. Aus dem Resonator ausgekoppelte, kontinuierlich messbare Leistungen liegen somit bei ca. $P_{c,\text{aus}} \approx 5$ nW. Da im Laufe der dargestellten Experimente die Parameter vielfältig variiert werden, gibt Tabelle 2.1 einen Überblick über fünf typische Parametersätze.

q	7	7	8	7	7	Einheit
R	1	6	1	1	1	[m]
λ_c	580	580	580	560	610	[nm]
D_0	1.42	1.42	1.62	1.37	1.49	[μm]
m_{ph}	7.79	7.79	7.80	8.07	7.42	[10^{-36}kg]
$\Omega/2\pi$	39.6	16.2	37.1	40.3	38.7	[GHz]
N_c	81 700	490 200	93 200	78 800	85 700	

Tabelle 2.1: Experimentelle Konfigurationen des Photonengases bei Variation der Resonatorgeometrie (Brechungsindex $\tilde{n}_0 = 1.43$, Temperatur $T = 300$ K).

Kapitel 3

Dynamik & Kohärenz von kondensierten Photonen

Bose-Einstein-Kondensation ist ein Phasenübergang des Bose-Gases im thermischen Gleichgewicht. Die Thermalisierung eines Nichtgleichgewichts-Systems kann durch unterschiedliche Mechanismen mit charakteristischer Dynamik erfolgen. Atomare Gase z.B. relaxieren durch Kontaktwechselwirkung ins thermische Gleichgewicht, Photonen im optischen Mikroresonator erhalten ihre Temperatur durch thermischen Kontakt an ein molekulares Wärmebad. Während es zur Equilibrierung rund fünf interatomarer Kollisionen bedarf [111, 112], ist das Photonengas im homogenen Fall bereits nach einem einzelnen Absorptions- und Emissionszyklus thermisch. Darüber hinaus kann der Anregungsaustausch zwischen Farbstoff-Reservoir und Bose-Einstein-Kondensat zu starken Teilchenzahlfluktuationen führen, trotz des Auftretens von Phasenkohärenz. Die Photonenzahl-Statistik des Grundzustands ist dann ähnlich einer thermischen Lichtquelle nahezu Bose-Einstein-verteilt, im Gegensatz zu sowohl atomaren Bose-Einstein-Kondensaten als auch dem Laser [31, 79, 113]. Unter diesen Bedingungen lässt sich der Phasenübergang als Bose-Einstein-Kondensation im großkanonischen Ensemble interpretieren.

3.1 Ratengleichungsmodell

In diesem Abschnitt werden die Ratengleichungen für Absorption und Emission von Photonen in die Strahlungsmoden des Mikroresonators diskutiert. Durch den Einschluss der Farbstofflösung im Innern des Resonators erfolgt die Fluoreszenzemission unmittelbar in das reabsorbierende Medium - ein Szenario, welches sich vom konventionellen Laserbetrieb maßgeblich unterscheidet. Nach einem Absorptionsprozess resultieren die hohen Stoßraten zwischen Lösungsmittel- und Farbstoffmolekülen (Femtosekunden-Zeitskala bei Raumtemperatur [74]) in einer Dekohärenzrate des molekularen Dipols, welche die Rabi-Frequenz übertrifft [77, 114]. Das Photon-Molekül-System ist somit im Regime schwacher Kopplung anzusiedeln; es entstehen keine Polaritonen (vgl. Abschnitt 1.4). In erster Ordnung Störungstheorie ist es daher ausreichend, die Photonendynamik anhand von semiklassischen Ratengleichungen bezogen auf die Diagonaleinträge der Dichtematrix zu modellieren.

Als Ausgangspunkt der Betrachtungen befinde sich das Lichtfeld in einer Konfiguration $\{n_1, n_2, \dots, n_i, \dots\}$ von Photonen-Besetzungen n_i in den verschiedenen Resonatormoden. Die Übergangsraten (pro Volumen)

$$R_{12}^i(\vec{r}) = B_{12}(\omega_i)u^i(\vec{r})\rho_{\downarrow}n_i \quad (3.1)$$

$$R_{21}^i(\vec{r}) = B_{21}(\omega_i)u^i(\vec{r})\rho_{\uparrow}(n_i + 1), \quad (3.2)$$

geben die Wahrscheinlichkeit pro Zeitintervall, ein Photon in dem Moden i am Ort \vec{r} zu absorbieren oder emittieren. Sie hängen von den Einstein-Koeffizienten für Absorption und Emission $B_{12,21}(\omega_i)$, der modenabhängigen, spektralen Energiedichte pro Photon $u^i(\vec{r})$ bei der Resonatorposition \vec{r} , sowie den Moleküldichten $\rho_{\downarrow, \uparrow}$ im Grund- bzw. angeregten Zustand und den Photonenzahlen selbst ab. Der zusätzliche +1 Term in Gl. (3.1) rührt von der spontanen Emission. Mit den molekularen Dichten auf der rechten Seite von Gln. (3.1) und (3.2) erhält man Raten pro Volumen, welche nach Integration über das Resonatorvolumen in absoluten Raten übergehen. Für den transversalen Grundzustand ($i = q00$), mit $\omega_i = E_{q00}/\hbar$ und $n_i = n$, wird die Absorptionsrate

$$\begin{aligned} R_n^{12} &= \int R_{12}^i(\vec{r}) dV = \int B_{12}(E_{q00}/\hbar)u^{q00}(\vec{r})\rho_{\downarrow}n dV \\ &= B_{12}(E_{q00}/\hbar)u^{q00}(0)n\rho_{\downarrow}\frac{1}{|f^{q00}(0)|^2}, \end{aligned} \quad (3.3)$$

wobei die spektrale Energiedichte $u^{q00}(\vec{r}) = u^{q00}(0)|f^{q00}(\vec{r})|^2/|f^{q00}(0)|^2$ durch die normierten Modenfunktionen $f^i(\vec{r})$ (mit $\int |f^i(\vec{r})|^2 dV = 1$) ausgedrückt wurde. Weiterhin kann in Gl. (3.3) das aus der Literatur bekannte, effektive Modenvolumen identifizieren werden [115, 116]:

$$\tilde{V}_{\text{eff}}^{q00} := \int \frac{|f^{q00}(\vec{r})|^2}{\max\{|f^{q00}(\vec{r})|^2\}} dV = \int \frac{|f^{q00}(\vec{r})|^2}{|f^{q00}(0)|^2} dV = \frac{1}{|f^{q00}(0)|^2}, \quad (3.4)$$

Für die Absorptionsrate folgt dann

$$R_n^{12} = B_{12}(E_{q00}/\hbar)u^{q00}(0)\rho_{\downarrow}\tilde{V}_{\text{eff}}^{q00}n. \quad (3.5)$$

Definiert man die modifizierten Einstein-Koeffizienten $\hat{B}_{12,21} := B_{12,21}(E_{q00}/\hbar)u^{q00}(0)$ und die Anzahl der Moleküle im Grund- und elektronisch angeregtem Zustand $M_{\downarrow, \uparrow} := \rho_{\downarrow, \uparrow}\tilde{V}_{\text{eff}}^{q00}$, folgen die Ratengleichungen für den mit n Photonen besetzten Grundmoden:

$$R_n^{12} = \hat{B}_{12}M_{\downarrow}n = \hat{B}_{12}(M - X + n)n \quad (3.6)$$

$$R_n^{21} = \hat{B}_{21}M_{\uparrow}(n + 1) = \hat{B}_{21}(X - n)(n + 1) \quad (3.7)$$

Im Hinblick auf die photochemische Reaktion aus Gl. (2.11) ist es hilfreich, die Zahl aller molekularen und photonischen Anregungen $X = M_{\uparrow} + n$, sowie die Molekülan-

zahl $M = M_{\downarrow} + M_{\uparrow} = M_{\downarrow} + X - n$ im Volumen des Grundmoden einzuführen. Das vorliegende Modell vernachlässigt zustandsändernde Photon-Photon-Wechselwirkungen und geht von konstanten Reservoirparametern X, M aus. Letzteres ist durch die üblicherweise viel größere Zahl von Molekülen ($\sim 10^8$) verglichen mit Photonen ($\sim 10^4$) gerechtfertigt. Die zeitliche Änderung der Photonenzahl im i -ten Moden ist

$$\frac{\partial}{\partial t} n_i = \hat{B}_{21} M_{\uparrow} (n_i + 1) - (\hat{B}_{12} M_{\downarrow} + \gamma_{\text{ph},i}) n_i, \quad (3.8)$$

wobei die zusätzlich eingeführte photonische Verlustrate $\gamma_{\text{ph},i}$ die Spiegeltransmission von Photonen berücksichtigt. Die Erhaltung der Anregungszahl X erfordert das Hinzufügen einer ausgleichenden Anregungsrate P in den molekularen Ratengleichungen, die im Experiment durch optisches Pumpen mit einem Laserstrahl realisiert wird:

$$-\frac{\partial}{\partial t} M_{\downarrow} = \frac{\partial}{\partial t} M_{\uparrow} = P - \sum_i \frac{\partial}{\partial t} n_i - \gamma_{\text{M}} M_{\uparrow} \quad (3.9)$$

Die Anregungsrate muss somit auch die molekulare Verlustrate γ_{M} ausgleichen, die aus strahlungsloser Molekülabbregung (Quanteneffizienz $\eta < 100\%$) und Fluoreszenz in nicht-gefangene Moden resultiert.

3.2 Thermalisierungsdynamik

Mithilfe der in Abschnitt 3.1 eingeführten Ratengleichungen lässt sich die Thermalisierungsdynamik der Photonen im Farbstoff-gefüllten Mikroresonator quantitativ untersuchen. Das im Folgenden diskutierte, vereinfachte Modell beschreibt ein homogenes Mehrmoden-System ohne räumliche Photonendynamik. Für das unkondensierte System ($\bar{N} < N_c$) können die Ratengleichungen des Farbstoffmediums aus Gl. (3.9) darüber hinaus als quasi-stationär angenommen werden, da die Molekülanzahl ($\simeq 10^8$) bei weitem die mittlere Photonenzahl pro Moden ($\simeq 10^2$) überschreitet. Zur Vereinfachung wird die zeitliche Entwicklung der Photonenzahl aus Gl. (3.8) in einem Resonatormoden mit Index i und Frequenz ω_i in einer perfekt reflektierenden „Photonen-Box“ untersucht, d.h. mit verschwindenden Pump- und Verlustraten, $P = 0$ bzw. $\gamma_{\text{ph},\text{M}} = 0$, und vorgegebenem molekularem Anregungsgrad $M_{\uparrow}/M_{\downarrow}$:

$$\frac{\partial}{\partial t} n_i(t) = \hat{B}_{21}^i M_{\uparrow} [n_i(t) + 1] - \hat{B}_{12}^i M_{\downarrow} n_i(t) \quad (3.10)$$

Ein vollständigeres Modell unter Berücksichtigung von Pump- und Verlustraten wurde von Kirton und Keeling ausgearbeitet [117, 118]. Das Kennard-Stepanov-Gesetz und die Bedingung für chemisches Gleichgewicht, siehe Gln. (2.5) und (2.18), lassen sich für den isolierten Moden der Frequenz ω_i entsprechend umformulieren

$$\frac{\hat{B}_{21}^i}{\hat{B}_{12}^i} = \frac{\hat{B}_{21}(\omega_i)}{\hat{B}_{12}(\omega_i)} = \frac{w_{\downarrow}}{w_{\uparrow}} e^{-\frac{\hbar(\omega_i - \omega_{\text{ZPL}})}{k_{\text{B}} T}} \quad \text{bzw.} \quad e^{\frac{\mu}{k_{\text{B}} T}} = \frac{w_{\downarrow} M_{\uparrow}}{w_{\uparrow} M_{\downarrow}} e^{-\frac{\hbar \Delta}{k_{\text{B}} T}}, \quad (3.11)$$

mit der Farbstoff-Resonator-Verstimmung $\Delta = \omega_c - \omega_{\text{ZPL}}$ und den statistischen Gewichten der rovibronischen Niveaus in Grund- und angeregtem elektronischen Molekülzustand $w_{\downarrow,\uparrow}$ (vgl. Abschnitt 2.1). Im stationären Fall, $\partial n_i(t)/\partial t=0$, kompensieren sich die Absorptions- und Emissionsraten und aus Gl. (3.10) folgt die mittlere Photonenzahl im thermischen und chemischen Gleichgewicht

$$\begin{aligned}\bar{n}_i &= \left\{ \frac{\hat{B}_{12}^i M_{\downarrow}}{\hat{B}_{21}^i M_{\uparrow}} - 1 \right\}^{-1} \\ &= \left\{ \exp \left[\frac{\hbar(\omega_i - \omega_c) - \mu}{k_{\text{B}}T} \right] - 1 \right\}^{-1},\end{aligned}\quad (3.12)$$

welche der Bose-Einstein-Verteilung entspricht. Die Bewegungsgleichung für einen einzelnen Moden in Gl. (3.10) lässt sich durch Summation über alle Moden mit Energie $\epsilon_i = \hbar\omega_i$ auf die Modenstruktur des Mikroresonators verallgemeinern. Mit der Photonenzahl $n(\omega, t) = \sum_{\epsilon_i=\hbar\omega} n_i(t)$ bei der Frequenz ω erhält man die Rategleichung des Vielmodensystems

$$\frac{dn(\omega, t)}{dt} = \frac{d}{dt} \sum_{\epsilon_i=\hbar\omega} n_i(t) = \hat{B}_{21} \left[n(\omega, t) + \sum_{\epsilon_i=\hbar\omega} 1 \right] M_{\uparrow} - \hat{B}_{12} n(\omega, t) M_{\downarrow}, \quad (3.13)$$

wobei $\sum_{\epsilon_i=\hbar\omega} 1$ die frequenzabhängige Zustandsdichte der Moden im Mikroresonator $g(\omega) = 2 [(\omega - \omega_c)/\Omega + 1]$ bezeichnet, vergleiche Gl. (2.38). Insgesamt folgt

$$\frac{dn(\omega, t)}{dt} = \hat{B}_{21} n(\omega, t) M_{\uparrow} + \hat{A}_{21} M_{\uparrow} - \hat{B}_{12} n(\omega, t) M_{\downarrow}, \quad (3.14)$$

worin $\hat{A}_{21} = g(\omega)\hat{B}_{21}$ mit dem Einstein-Koeffizienten für Spontanemission identifiziert wurde. Die Gleichgewichtsverteilung lautet dann in Analogie zu Gl. (2.39)

$$\bar{n}(\omega) = g(\omega) \left\{ \frac{\hat{B}_{12}(\omega) M_{\downarrow}}{\hat{B}_{21}(\omega) M_{\uparrow}} - 1 \right\}^{-1} \quad (3.15)$$

$$\stackrel{(2.5),(2.18)}{=} g(\omega) \left\{ \exp \left[\frac{\hbar(\omega - \omega_c) - \mu}{k_{\text{B}}T} \right] - 1 \right\}^{-1}. \quad (3.16)$$

Zeitliche Evolution der Photonenzahl

Zur Analyse der Zeitskala, auf der sich die Thermalisierung des Photonengases ereignet, betrachtet man das Einzelmodenbild aus Gl. (3.10). Um die zeitliche Relaxation der Photonenzahl $n_i \equiv n_i(t)$ ins Gleichgewicht zu erhalten, schreiben wir die Differentialgleichung (3.10) in der Form

$$\dot{n}_i + \alpha n_i + \beta = 0, \quad (3.17)$$

mit den Koeffizienten $\alpha = \hat{B}_{12}^i M_{\downarrow} - \hat{B}_{21}^i M_{\uparrow}$ und $\beta = -B_{21}^i M_{\uparrow}$. Mit der Anfangsbedingung $n_i(t=0) = 0$ lautet die allgemeine Lösung von Gl. (3.17)

$$n_i(t) = -\frac{\beta}{\alpha} [1 - e^{-\alpha t}] = \bar{n}_i [1 - e^{-t/\tau_i}], \quad (3.18)$$

worin im letzten Schritt die Zeitkonstante

$$\tau_i = \frac{\bar{n}_i + 1}{\hat{B}_{12}^i M_{\downarrow}} = \frac{\bar{n}_i}{\hat{B}_{21}^i M_{\uparrow}} \quad (3.19)$$

definiert wurde. Um die Evolution der spektralen Photonenzahlverteilung für kurze Zeiten zu untersuchen, ist es hilfreich, die Modenpopulation in zweiter Ordnung als Funktion der Zeit zu entwickeln. Aus Gl. (3.18) folgt

$$n_i(t) = \bar{n}_i \frac{t}{\tau_i} \left(1 - \frac{t}{2\tau_i}\right) \stackrel{(3.10),(3.19)}{=} \hat{B}_{21}^i M_{\uparrow} t \left[1 - \frac{t}{2} (\hat{B}_{12}^i M_{\downarrow} - \hat{B}_{21}^i M_{\uparrow})\right]. \quad (3.20)$$

Zu frühen Zeitpunkten kann der Term zweiter Ordnung vernachlässigt werden und die spektrale Verteilung folgt dem durch $\hat{B}_{21}(\omega)$ vorgegebenen Emissionsprofil. Eine Näherung von Gl. (3.20) für das klassische Regime mit $M_{\uparrow} \ll M_{\downarrow} \hat{B}_{12}^i / \hat{B}_{21}^i$ liefert die Zeitskala, auf der eine erste Abweichung vom spektralen Emissionsprofil des Farbstoffs auftritt

$$\tau_{\text{th}} \simeq \frac{1}{\hat{B}_{12}^i M_{\downarrow}}, \quad (3.21)$$

welche gerade der mittleren Reabsorptionszeit eines Photons im Farbstoffmedium entspricht. Eine Betrachtung der relativen Besetzungszahlen n_i und n_{i+1} von zwei benachbarten Resonatormoden (mit Modenindizes $i, i+1$ und Frequenzen $\omega_i, \omega_i + \Omega$) zeigt, dass die spektrale Verteilung nach der Zeit τ_{th} nahezu einem thermischen Verlauf folgt. Zur Vereinfachung sei die Fluoreszenzemission in benachbarte Moden spektral flach, $\hat{B}_{21}^i = \hat{B}_{21}^{i+1}$, was für den im Experiment verwendeten Farbstoff gut erfüllt ist, vgl. Kapitel 4. Nach Gl. (3.11) lauten die Absorptionskoeffizienten

$$\hat{B}_{12}^i = \hat{B}_{21}^i \exp \left[\frac{\hbar(\omega_i - \omega_{\text{ZPL}})}{k_{\text{B}} T} \right] \quad (3.22)$$

$$\hat{B}_{12}^{i+1} = \hat{B}_{21}^{i+1} \exp \left[\frac{\hbar(\omega_i + \Omega - \omega_{\text{ZPL}})}{k_{\text{B}} T} \right] = \hat{B}_{12}^i \exp \left[\frac{\hbar\Omega}{k_{\text{B}} T} \right] \quad (3.23)$$

Aus Gl. (3.20) erhält man die Dynamik der Besetzungszahlen für kleine Zeiten

$$n_i(t) \simeq M_{\uparrow} \hat{B}_{21}^i t \cdot \left[1 - \frac{t}{2} M_{\downarrow} \hat{B}_{12}^i\right] \quad (3.24)$$

$$n_{i+1}(t) \simeq M_{\uparrow} \hat{B}_{21}^{i+1} t \cdot \left[1 - \frac{t}{2} M_{\downarrow} \hat{B}_{12}^{i+1}\right], \quad (3.25)$$

woraus die spektrale Populationsdifferenz berechnet werden kann

$$\frac{n_{i+1} - n_i}{\Omega}(t) = -M_{\uparrow}M_{\downarrow}\hat{B}_{21}^i\hat{B}_{12}^i\frac{t^2}{2}\frac{\exp[\hbar\Omega/k_{\text{B}}T]}{\Omega} \quad (3.26)$$

$$\simeq -\frac{\hbar}{k_{\text{B}}T}M_{\uparrow}M_{\downarrow}\hat{B}_{21}^i\hat{B}_{12}^i\frac{t^2}{2}. \quad (3.27)$$

Aufgrund des geringen Energieabstandes benachbarter Transversalmoden hinsichtlich der thermischen Energie von $\hbar\Omega/k_{\text{B}}T \simeq 6 \cdot 10^{-3}$ wurde die Exponentialfunktion im letzten Schritt in erster Ordnung entwickelt. Einsetzen der Thermalisierungszeit aus Gl. (3.21) in Gl. (3.27) liefert

$$\frac{n_{i+1} - n_i}{\Omega}(t = \tau_{\text{th}}) = -\frac{1}{2}\frac{\hbar}{k_{\text{B}}T}\frac{M_{\uparrow}\hat{B}_{21}^i}{M_{\downarrow}\hat{B}_{12}^i} = -\frac{1}{2}\frac{\hbar}{k_{\text{B}}T}\bar{n}_i \quad (3.28)$$

im klassischen Grenzfall einer Boltzmann-Verteilung mit $\bar{n}_i = M_{\uparrow}\hat{B}_{21}^i(M_{\downarrow}\hat{B}_{12}^i)^{-1}$. Andererseits findet man für die spektrale Besetzungsdifferenz im Gleichgewicht

$$\frac{\bar{n}_{i+1} - \bar{n}_i}{\Omega} \stackrel{(3.12)}{=} -\frac{\hbar}{k_{\text{B}}T}\bar{n}_i. \quad (3.29)$$

Die Ähnlichkeit von Gln. (3.28) und (3.29) demonstriert, dass das Spektrum der Photonen nach der charakteristischen Reabsorptionszeit τ_{th} bis auf einen Faktor 1/2 den spektralen Verlauf einer Boltzmann-Verteilung aufweist. Dieses Ergebnis legt nahe, dass die Photonen, die sich zu einem Zeitpunkt t im Mikroresonator befinden, nach Durchlaufen etwa eines Emissions-Absorptions-Zyklus ins thermische Gleichgewicht relaxiert sind.

Die Rate, mit der die Photonenbesetzung individueller Moden ins Gleichgewicht relaxiert, hängt im Allgemeinen von der Frequenz ab. Zur quantitativen, theoretischen Untersuchung der Thermalisierungsdynamik der spektralen Photonenverteilung für typische experimentelle Parameter ist es daher hilfreich, den Einstein-Koeffizienten für Absorption $\hat{B}_{12}(\omega)$ als Funktion des experimentell zugänglichen Wirkungsquerschnitts $\sigma(\omega)$ auszudrücken. Ein Koeffizientenvergleich zwischen dem Lambert-Beer-Gesetz $(\partial n/\partial t)_{\text{L.B.}} = -M_{\downarrow}\tilde{V}_{\text{eff}}^{-1}\sigma(\omega)c n$ und der Einstein'schen Ratengleichung für Absorption $(\partial n/\partial t)_{\text{E.}} = -M_{\downarrow}\hat{B}_{12}(\omega)n$ liefert

$$\hat{B}_{12}(\omega) = \frac{\sigma(\omega)c}{\tilde{V}_{\text{eff}}}. \quad (3.30)$$

In Abbildung 3.1(a) ist die berechnete Zeitentwicklung der Spektren aus Gl. (3.18) als Funktion der Wellenlänge gezeigt. Aufgrund der Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für Absorption, dessen Maximum bei ~ 530 nm liegt (Farbstoff: Rhodamin 6G, vgl. Kapitel 4), variiert die Zeit τ_{th} , nach der die spektrale Verteilung die Gleichgewichtspopulation $\bar{n}(\lambda)$ erreicht hat, stark mit dem untersuchten

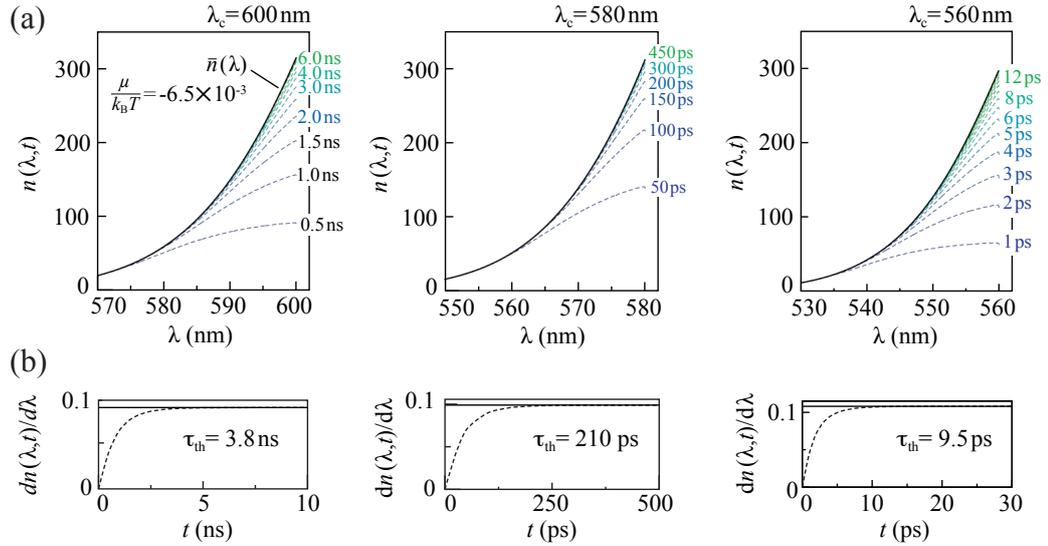


Abbildung 3.1: (a) Erwartete, spektrale Thermalisierungsdynamik des Photonengases für drei verschiedene Abschneidewellenlängen $\lambda_c = \{600; 580; 560\}$ nm für ein homogenes System. Alle Gleichgewichtsspektren $\bar{n}(\lambda)$ (durchgezogene Linie) besitzen ein chemisches Potential nahe der Kondensationsschwelle. Die spektral variierende Reabsorptionsstärke des Farbstoffmediums, $\sigma(\lambda) \propto \exp(-\lambda)$, resultiert in einer wesentlich langsameren zeitlichen Entwicklung der Photonenbesetzung (gestrichelt) im roten Spektralbereich (10^{-9} s) als im grünen (10^{-11} s). (b) Der spektrale Anstieg bei niedrigen Wellenlängen (gestrichelte Linie) ist ein Maß für den Grad der Thermalisierung. Für fortschreitende Zeit nähert er sich dem Gleichgewichtswert (durchgezogene Linie). Nach der charakteristischen Thermalisierungszeit τ_{th} ist die Abweichung zwischen beiden Kurven $\leq 1\%$. (Farbstoffkonzentration 10^{-4} Mol/l)

Spektralbereich. Während im roten Spektralbereich das Photonengas innerhalb einiger Nanosekunden ins Gleichgewicht relaxiert (Abbildung 3.1(b), links), findet man im gelb-grünen Spektralbereich eine erwartete Thermalisierungsdynamik im Pikosekunden-Regime (rechts).

Zum Beispiel absorbiert der experimentell verwendete Farbstoff (Rhodamin 6G) Photonen der Wellenlänge $\lambda = 580$ nm mit einem Wirkungsquerschnitt $\sigma(2\pi c/\lambda) \simeq 10^{-22}$ m². Ausgehend vom Spiegelabstand $D_0 \simeq 1.4$ μ m und dem Durchmesser des TEM₀₀-Modens $d_0 \simeq 12$ μ m, können das effektive Grundmodenvolumen zu $\tilde{V}_{\text{eff},00} = \pi(d_0/2)^2 D_0 \simeq 1.8 \cdot 10^{-16}$ m³ und die Ratenkoeffizienten zu $\hat{B}_{12}(\omega) \simeq 170$ s⁻¹ abgeschätzt werden. Bei typischen Farbstoffkonzentrationen im Lösungsmittel von 1 mMol/l befinden sich $M_{\downarrow} \approx 10^8$ elektronisch abgeregte Moleküle im Grundmodenvolumen. Die Thermalisierungszeit der Photonen beträgt dann näherungsweise $\tau_{th} \approx 50$ ps.

Zeitkonstante des chemischen Gleichgewichts

Im vorherigen Abschnitt wurde gezeigt, dass die spektrale Thermalisierungszeit des Photonengases τ_{th} im klassischen Regime näherungsweise durch die Reabsorptionszeit der Photonen im Farbstoffmedium $(\hat{B}_{12}M_{\downarrow})^{-1}$ gegeben ist. Diese Thermalisierungszeit kann jedoch von der Zeit τ_{ch} abweichen, die das System zur Relaxation ins chemische Gleichgewicht benötigt, in welchem sich die Gleichgewichtsverteilung $\bar{n}(\omega)$ einstellt. Analog zur Diskussion der Einzelmoden-Dynamik aus Gl. (3.18) lässt sich die zeitliche Entwicklung der Photonenzahl mit der zugehörigen Zeitkonstante auch für das Multimoden-System aus Gl. (3.14) bestimmen:

$$n(\omega, t) = \bar{n}(\omega) [1 - e^{-t/\tau(\omega)}], \quad \text{mit} \quad \tau(\omega) = \frac{\bar{n}(\omega)}{g(\omega)\hat{B}_{21}(\omega)M_{\uparrow}} = \frac{\bar{n}(\omega)}{\hat{A}_{21}(\omega)M_{\uparrow}} \quad (3.31)$$

Im klassischen Regime, $\mu \ll 0$, geht Gl. (3.16) in die Boltzmann-Statistik $\bar{n}(\omega) = g(\omega)\hat{B}_{21}(\omega)M_{\uparrow}/[\hat{B}_{12}(\omega)M_{\downarrow}]$ über. Die chemische Relaxationszeit der Gesamtphotonenzahl folgt als gewichtetes Mittel über alle frequenzabhängigen Relaxationszeiten

$$\begin{aligned} \tau_{\text{ch}} &= \frac{\Omega^{-1} \int_{\omega_c}^{\infty} \tau(\omega) \bar{n}(\omega) d\omega}{\Omega^{-1} \int_{\omega_c}^{\infty} \bar{n}(\omega) d\omega} = \frac{1}{\hat{B}_{21}M_{\downarrow}} \frac{\int_{\omega_c}^{\infty} (\omega - \omega_c + \Omega) \exp\left[-\frac{2\hbar(\omega - \omega_{\text{ZPL}})}{k_{\text{B}}T}\right] d\omega}{\int_{\omega_c}^{\infty} (\omega - \omega_c + \Omega) \exp\left[-\frac{\hbar(\omega - \omega_{\text{ZPL}})}{k_{\text{B}}T}\right] d\omega} \\ &= \tau_{\text{th}} \frac{\int_0^{\infty} (\omega' + \Omega) \exp\left[-\frac{2\hbar(\omega' + \Delta)}{k_{\text{B}}T}\right] d\omega'}{\int_0^{\infty} (\omega' + \Omega) \exp\left[-\frac{\hbar(\omega' + \Delta)}{k_{\text{B}}T}\right] d\omega'} \stackrel{k_{\text{B}}T \gg \hbar\Omega}{\approx} \frac{\tau_{\text{th}}}{4} \exp\left(-\frac{\hbar\Delta}{k_{\text{B}}T}\right), \quad (3.32) \end{aligned}$$

wobei im zweiten Schritt in Analogie zur obigen Diskussion der spektralen Thermalisierung ein spektral flaches Emissionsprofil angenommen wurde. Die Verstimmung $\Delta = \omega_c - \omega_{\text{ZPL}}$ beläuft sich im Experiment auf Werte zwischen $\Delta_{560\text{nm}} = -2.4k_{\text{B}}T/\hbar$ und $\Delta_{605\text{nm}} = -8.7k_{\text{B}}T/\hbar$. Somit überragt die Zeitskala für chemische Equilibrierung die thermische Relaxationszeit um einen Faktor von $\tau_{\text{ch}}/\tau_{\text{th}} \approx 3$ (für $\lambda_c = 560\text{nm}$) bis zu 1500 (für $\lambda_c = 605\text{nm}$). Dieses Verhalten lässt sich experimentell bestätigen (Kapitel 4). Das diskutierte, analytische Modell der Equilibrierungsdynamik lässt sich nicht auf die Entwicklung der Grundzustandspopulation in der kondensierten Phase anwenden. Die große Photonenzahl im Bose-Einstein-Kondensat beschleunigt die Dynamik durch überwiegend stimulierte Emissionsprozesse und die Rückwirkung des optischen Feldes auf die Population angeregter Farbstoffmoleküle muss durch die Ratengleichungen des Mediums, $\partial M_{\uparrow,\downarrow}/\partial t$, berücksichtigt werden. Unter diesen Umständen kann die chemische Equilibrierung deutlich schneller erfolgen als die Thermalisierung (siehe Anhang A.1). Bis zur kritischen Photonenzahl $N_c \approx 90\,000$ beschreibt das vereinfachte Ratengleichungsmodell jedoch adäquat die Relaxationsdynamik für die Gesamtzahl der Photonen, d.h. insbesondere einschließlich des Grundmoden. Die Vorhersage unterschiedlicher Zeitskalen für Energie- und Teilchenrelaxation, τ_{th} und τ_{ch} , sind eine unmittelbare Folge der spektralen Eigenschaften des Farbstoffmediums, sowie der endlichen Größe des Systems. Im thermodynamischen Limes wird erwartet, dass sich beide Zeitskalen wieder angleichen.

3.3 Photonenzahl-Statistik

Für eine Bose-Einstein-Kondensation unter großkanonischen Ensemble-Bedingungen, d.h. in der Anwesenheit eines unendlich großen Teilchenreservoirs (vgl. mit Abschnitt 1.3.1), erwartet man Fluktuationen der Kondensatbesetzung von der Größenordnung der Gesamtteilchenzahl [8, 9, 54, 55]. Demgegenüber treten lediglich höchstens Poisson'sche, also mit der Wurzel der Teilchenzahl skalierende, Fluktuationen im (mikro-)kanonischen Ensemble auf, welches üblicherweise in Experimenten mit atomaren Bose-Einstein-Kondensaten realisiert ist [31, 32]. Im hier diskutierten Farbstoff-Mikroresonator-System hingegen koppeln Photonen des Bose-Einstein-kondensierten Grundzustands an elektronische Übergänge einer bestimmten Anzahl von Farbstoffmolekülen. Dadurch kommt es zum Austausch von Anregungen mit diesem molekularen Reservoir, dessen Größe M durch das Produkt aus Farbstoffkonzentration und Modenvolumen des transversalen Grundzustands bestimmt ist.

Mastergleichung und Photonenzahlverteilung

Wir betrachten zunächst die Mastergleichung für die Wahrscheinlichkeit $p_n \equiv p_n(t)$, zum Zeitpunkt t gerade n Photonen im Grundzustand zu finden¹. Der Wahrscheinlichkeitsfluss zwischen Photonen im Kondensat und dem Reservoir folgt

$$\dot{p}_n = R_{n-1}^{21}p_{n-1} - (R_n^{12} + R_n^{21})p_n + R_{n+1}^{12}p_{n+1}, \quad (3.33)$$

mit den Raten aus Gln. (3.6) und (3.7) [62, 119]. Für die Diskussion der Photonenzahlverteilung betrachten wir die Molekülzahl $M = M_\uparrow + M_\downarrow$ und die Anregungszahl $X = M_\uparrow + n$ als konstant. Für lange Zeiten $t \rightarrow \infty$ erwartet man, dass der Wahrscheinlichkeitsfluss $p_n(t)$ stationär wird, $\dot{p}_n(\infty) = 0$, und die Photonenzahlverteilung ihren Gleichgewichtswert $\mathcal{P}_n := p_n(\infty)$ annimmt. In diesem Grenzfall, lässt sich Gl. (3.33) durch den Rekursivansatz $\mathcal{P}_n = \mathcal{P}_0 \prod_{k=0}^{n-1} R_k^{21}/R_{k+1}^{12}$ lösen. Dieser liefert für die vorliegenden Ratengleichungen die Photonenzahlverteilung

$$\frac{\mathcal{P}_n}{\mathcal{P}_0} = \frac{(M - X)!X!}{(M - X + n)!(X - n)!} \left(\frac{\hat{B}_{21}}{\hat{B}_{12}} \right)^n, \quad (3.34)$$

woraus die mittlere Besetzungszahl, sowie die Fluktuationen des Grundzustands bestimmt werden können. Eine alternative Herleitung von Gl. (3.34) gelang mit einem Entropie-Maximierungs-Prinzip [120].

Im Allgemeinen kann Gl. (3.34) nur numerisch ausgewertet werden. Die Berechnung basiert auf der Annahme einer konstanten Temperatur $T = \text{konst.}$, während das Vergrößern der mittleren Gesamtphotonenzahl \bar{N} durch Absenken der reduzierten Temperatur $T/T_c(\bar{N})$ den Phasenübergang auslöst. Bei jeder Teilchenzahl \bar{N} muss

¹Zur vereinfachten Notation bezeichnen n (bzw. \bar{n}) in den folgenden Abschnitten 3.3 und 3.4 die (mittlere) Photonenzahl im Bose-Einstein-Kondensat.

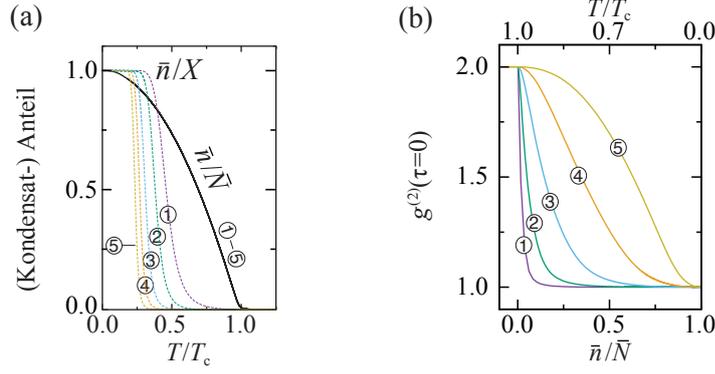


Abbildung 3.2: (a) Berechneter Kondensatanteil \bar{n}/\bar{N} und photonischer Anteil an der Anregungszahl \bar{n}/X als Funktion der reduzierten Temperatur $T/T_c(\bar{N})$ für Reservoirgrößen $M_{\text{①-⑤}} = \{10^8; \dots; 10^{12}\}$ bei einer Verstimmung $\hbar\Delta = -4.67k_B T$ aus [62]. (b) Die berechnete Autokorrelation $g^{(2)}(0)$ des Kondensats für Reservoirs wie in (a) lässt starke Photonenzahlfuktuationen bis tief in die kondensierte Phase erwarten.

über die numerische Prozedur eine Anregungszahl X ermittelt werden, welcher die geforderte Randbedingung an die Gesamtteilchenzahl erfüllt: bei einem Startwert X folgt die mittlere Photonenzahl im Grundzustand

$$\bar{n} = \sum_{n \geq 0} n \mathcal{P}_n, \quad (3.35)$$

welche den molekularen Anregungsgrad des Mediums im Volumen des Grundmoden festlegt

$$\frac{M_\uparrow}{M_\downarrow} = \frac{X - \bar{n}}{M - X + \bar{n}}. \quad (3.36)$$

Die Annahme von chemischem Gleichgewicht zwischen den Teilchenspezies, siehe Gl. (2.18), verlangt eine räumlich homogene Dichte angeregter Moleküle. Aus dem Anregungsgrad im Volumen des Grundmoden in Gl. (3.36) lässt sich daher der Anregungsgrad an allen anderen Resonatorpositionen vorhersagen. Das Verhältnis M_\uparrow/M_\downarrow steuert nach Gl. (2.18) das chemische Potential der Photonen μ , womit die Beiträge angeregter Zustände zur Gesamtphotonenzahl folgen

$$\bar{n}_{\text{exc}} = \sum_{u > 0} \frac{g(u)}{\exp[(u - \mu)/(k_B T)] - 1}. \quad (3.37)$$

Bei Abweichungen zwischen $\bar{n} + \bar{n}_{\text{exc}}$ und der Ziel-Photonenzahl \bar{N} wird die numerische Prozedur mit angepasster Anregungszahl X so häufig iteriert, bis ein gewünschtes Niveau von Übereinstimmung erfüllt ist.

In Abbildung 3.2 sind Ergebnisse der numerischen Berechnungen exemplarisch dargestellt, siehe auch [62]. Die Teilabbildung 3.2(a) zeigt den Kondensatanteil \bar{n}/\bar{N}

als Funktion der reduzierten Temperatur $T/T_c(\bar{N})$ für eine konstante Temperatur $T = 300$ K, sowie den Anteil von kondensierten Photonen an der Gesamtanregungszahl \bar{n}/X für fünf verschiedene molekulare Reservoirgrößen. Die Verstimmung zwischen Bose-Einstein-Kondensat und Null-Phononen-Linie $\hbar\Delta = -4.67k_B T$ stellt gemäß Gl. (3.11) das Verhältnis der Einstein-Koeffizienten $\hat{B}_{21}/\hat{B}_{12}$ ein und beeinflusst somit die Photonenzahlstatistik aus Gl. (3.34). Der Kondensatanteil folgt für alle Reservoirparameter der analytischen Lösung $\bar{n}/\bar{N} = 1 - (T/T_c)^2$ und der Verlauf von \bar{n}/X zeigt, dass bis zu niedrigen Temperaturen ein Großteil der Anregungen in molekularer Form vorliegt. Die Autokorrelationsfunktion bei verschwindender Zeitverzögerung

$$g^{(2)}(\tau = 0) = \frac{\langle n(n-1) \rangle}{\bar{n}^2} = \frac{\sum_{n \geq 0} n(n-1)\mathcal{P}_n}{(\sum_{n \geq 0} n\mathcal{P}_n)^2} \quad (3.38)$$

ist für dieselben Reservoirparameter in Abbildung 3.2(b) in Abhängigkeit des Kondensatanteils und der reduzierten Temperatur dargestellt. Im klassischen Regime, $T \geq T_c$, zeigt die Besetzung des Grundzustandes die üblichen, starken Intensitätsfluktuationen des thermischen Bose-Gases, $g^{(2)}(0) = 2$, und die Photonenzahl folgt der Bose-Einstein-Statistik. Entgegen der üblichen Beobachtung in atomaren Bose-Gasen (siehe Abbildung 1.1(c)), führt die Temperaturreduktion in der Gegenwart von großen Reservoirparametern zum Fortbestehen der Intensitätskorrelationen bis weit in den kondensierten Bereich. Die Fluktuationen sind eine Konsequenz des großkanonischen Teilchenaustauschs mit dem Molekülreservoir. Bei sehr niedrigen Temperaturen unterhalb von T_c werden die Schwankungen ausgefroren und die Rechnungen demonstrieren eine Ausprägung von Kohärenz zweiter Ordnung, $g^{(2)}(0) = 1$, begleitet von einer Poisson-artigen Photonenzahlverteilung. Der Übergang zwischen beiden statistischen Bereichen wird von keiner Unstetigkeit in den thermodynamischen Größen begleitet [62]. Es besteht somit kein Grund zur Annahme eines weiteren Phasenübergangs innerhalb des Bose-Einstein-kondensierten Bereichs. Dennoch werden wir im Folgenden sehen, dass das Übergangsverhalten der Photonenzahlstatistik innerhalb der Bose-Einstein-kondensierten Phase auch im thermodynamischen Grenzfall seine Gültigkeit beibehält.

Asymptotische Photonenzahlverteilungen

Im Allgemeinen interpoliert die Photonenzahl-Statistik aus Gl. (3.34) zwischen einer Bose-Einstein-Statistik und einer Poisson-Statistik. In diesem Abschnitt werden diese zwei Grenzfälle diskutiert. Dazu ist es hilfreich, Gl. (3.34) in einer Rekursionsform zu schreiben:

$$\frac{\mathcal{P}_{n+1}}{\mathcal{P}_n} = \frac{X - n}{M - X + n + 1} \frac{\hat{B}_{21}}{\hat{B}_{12}} \quad (3.39)$$

Bose-Einstein-Verteilung. Im Falle der Bose-Einstein-Photonenzahlstatistik ist \mathcal{P}_n durch eine geometrische Reihe gegeben mit einem Verhältnis $\mathcal{P}_{n+1}/\mathcal{P}_n$, das unabhängig von n ist. Dies ist gerade dann erfüllt, wenn die Reservoirdimensionen M

und X so groß werden, dass die Photonenzahl auf der rechten Seite von Gl. (3.39) vernachlässigt werden kann, also $X \gg n$ und $M - X \gg n$ („großkanonischer Grenzfall“). Mit $X \simeq M_\uparrow$ und $M - X \simeq M_\downarrow$ folgt

$$\frac{\mathcal{P}_{n+1}}{\mathcal{P}_n} \stackrel{\text{gr. kan.}}{=} \frac{M_\uparrow \hat{B}_{21}}{M_\downarrow \hat{B}_{12}} \Rightarrow \frac{\mathcal{P}_n}{\mathcal{P}_0} \stackrel{\text{gr. kan.}}{=} \left(\frac{M_\uparrow \hat{B}_{21}}{M_\downarrow \hat{B}_{12}} \right)^n, \quad (3.40)$$

sodass \mathcal{P}_n exponentiell zerfällt und ein Maximum bei $n = 0$ besitzt. Normierung von Gl. (3.40) liefert

$$\mathcal{P}_n = \left(1 - \frac{M_\uparrow \hat{B}_{21}}{M_\downarrow \hat{B}_{12}} \right) \left(\frac{M_\uparrow \hat{B}_{21}}{M_\downarrow \hat{B}_{12}} \right)^n = \frac{\left(\frac{\bar{n}}{\bar{n}+1} \right)^n}{\bar{n}+1}, \quad (3.41)$$

wobei im letzten Schritt die mittlere Photonenzahl im Bose-Einstein-Kondensat \bar{n} aus Gl. (3.12) eingesetzt wurde. Dieses Ergebnis behält bei Vergrößerung von M seine Gültigkeit, solange der Anregungsgrad $M_\uparrow/M_\downarrow \simeq X/(M-X)$ (und somit auch μ, \bar{n}, \bar{N}) konstant gehalten wird. Die Verteilung in Gl. (3.41) ist die bekannte Bose-Einstein-Statistik, die zum Beispiel auch für chaotisches, thermisches Licht oder die Schwarzkörperstrahlung gültig ist (siehe Abbildung 3.3 für $\bar{n} \ll \bar{N}$).

Poisson-Verteilung. Wenn keine Bose-Einstein-Verteilung vorliegt, befindet sich die wahrscheinlichste Photonenzahl bei einem endlichem Wert $n_{\max} > 0$. In guter Näherung gilt dann in der Umgebung des Maximums $\mathcal{P}_{n_{\max}+1} = \mathcal{P}_{n_{\max}}$, sodass aus Gl. (3.39) folgt:

$$n_{\max} = X - \frac{M+1}{1 + \hat{B}_{21}/\hat{B}_{12}} \quad (3.42)$$

Die Statistik in Gl. (3.39) kann in der Umgebung $\Delta n = n - n_{\max}$ entwickelt werden

$$\frac{\mathcal{P}_{n+1}}{\mathcal{P}_n} = 1 - \frac{\Delta n}{\lambda} + \frac{1}{1 + \hat{B}_{21}/\hat{B}_{12}} \left(\frac{\Delta n}{\lambda} \right)^2 - \frac{1}{(1 + \hat{B}_{21}/\hat{B}_{12})^2} \left(\frac{\Delta n}{\lambda} \right)^3 + \dots \quad (3.43)$$

mit dem Parameter

$$\lambda = \frac{\hat{B}_{21}}{\hat{B}_{12}} \frac{M+1}{\left(\hat{B}_{21}/\hat{B}_{12} + 1 \right)^2}. \quad (3.44)$$

Im Grenzfall niedriger Temperaturen hängt die Kennard-Stepanov-Relation aus Gl. (3.11) empfindlich von der Farbstoff-Resonator-Verstimmung $\Delta = \omega_c - \omega_{\text{ZPL}}$ ab. Für die im Experiment realisierten, negativen Verstimmungen divergiert das Verhältnis der Einstein-Koeffizienten

$$\frac{\hat{B}_{21}(\omega)}{\hat{B}_{12}(\omega)} = \frac{w_\downarrow}{w_\uparrow} e^{-\frac{\hbar\Delta}{k_B T}} \stackrel{T \rightarrow 0}{\simeq} \begin{cases} 0 & (\Delta > 0) \\ \infty & (\Delta < 0) \end{cases} \quad (3.45)$$

und Gl. (3.43) vereinfacht sich im Tieftemperaturfall zu

$$\frac{\mathcal{P}_{n+1}}{\mathcal{P}_n} \stackrel{T \rightarrow 0}{\simeq} \begin{cases} 1 - \frac{\Delta n}{\lambda} + \left(\frac{\Delta n}{\lambda}\right)^2 - \left(\frac{\Delta n}{\lambda}\right)^3 + \dots & (\Delta > 0) \\ 1 - \frac{\Delta n}{\lambda} & (\Delta < 0) \end{cases} \quad (3.46)$$

$$= \begin{cases} \frac{\lambda}{\lambda + \Delta n} & (\Delta > 0) \\ \frac{\lambda - \Delta n}{\lambda} & (\Delta < 0), \end{cases} \quad (3.47)$$

worin für positive Verstimmungen der Grenzwert der alternierenden geometrischen Reihe identifiziert wurde. Unter Verwendung dieser Rekursivbedingung lässt sich die relative Wahrscheinlichkeit in der Umgebung Δn um das Maximum der Verteilung n_{\max} ausschreiben:

$$\frac{\mathcal{P}_{n_{\max} + \Delta n}}{\mathcal{P}_{n_{\max}}} \simeq \begin{cases} \frac{(\lambda - 1)!}{(\lambda - 1 + \Delta n)!} \lambda^{\Delta n} & (\Delta > 0) \\ \frac{\lambda!}{(\lambda - \Delta n)!} \lambda^{-\Delta n} & (\Delta < 0) \end{cases} \quad (3.48)$$

Beide Photonenzahlverteilungen in Gl. (3.48) stimmen abgesehen von einer Spiegelung $\Delta n \rightarrow -\Delta n$ miteinander überein, und verhalten sich analog zur gewöhnlichen Poisson-Verteilung

$$\mathcal{P}_n^{\text{P}} = e^{-\lambda} \frac{\lambda^n}{n!} \quad \Rightarrow \quad \frac{\mathcal{P}_{n_{\max} + \Delta n}^{\text{P}}}{\mathcal{P}_{n_{\max}}^{\text{P}}} = \frac{\lambda!}{(\lambda + \Delta n)!} \lambda^{\Delta n}, \quad (3.49)$$

worin nur ein identischer Parameter λ für Erwartungswert und Varianz enthalten ist. Die Lösungen aus Gl. (3.48) hingegen sind nur bezüglich der Relativphotonenzahl Δn Poisson-artig, weil sie mit der Photonenzahl n_{\max} einen weiteren, freien Parameter besitzen. Beispielsweise folgt für den Grenzfall $T = 0$ mit $\Delta \neq 0$ die wahrscheinlichste Photonenzahl $n_{\max} = \bar{n} = \bar{N}$ und $\lambda = 0$, sodass alle Photonen des Systems in den Grundzustand kondensiert sind und die Photonenzahl scharf definiert ist.

Übergang der Statistik

Abbildung 3.3 zeigt verschiedene Photonenzahlverteilungen \mathcal{P}_n , d.h. die Wahrscheinlichkeiten, n Photonen im Bose-Einstein-Kondensat zu finden. Beim Absenken der reduzierten Temperatur von $T/T_c = 1.0$ auf 0.4, respektive Vergrößern des Kondensatanteils von $\bar{n}/\bar{N} \simeq 1\%$ bis 80%, wird ein kontinuierlicher Übergang von der Bose-Einstein-Statistik hin zur Poisson-Statistik sichtbar. Die gezeigten Wahrscheinlichkeitsverteilungen resultieren aus numerischen Berechnungen bei festgehaltener Reservoirgröße, realisiert durch eine konstante Molekülzahl $M = 10^{10}$ und Verstimmung der Kondensat-Eigenfrequenz von der Null-Phononen-Linie des Farbstoffs $\Delta = \omega_c - \omega_{\text{ZPL}} = -2.4k_{\text{B}}T/\hbar$.

Als Übergangspunkt zwischen beiden statistischen Bereichen definieren wir die reduzierte Temperatur $T_x/T_c(\bar{N})$, bei der die wahrscheinlichste Photonenzahl im Grund-

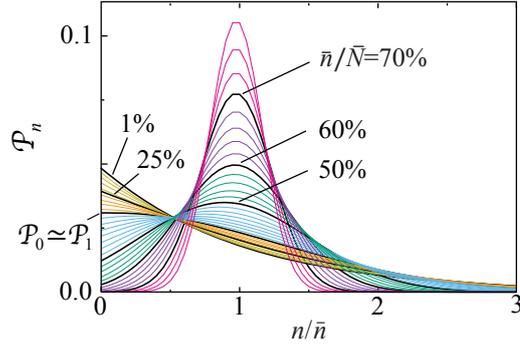


Abbildung 3.3: Übergang der Photonenzahl-Statistik von Bose-Einstein- zu Poisson-Verteilungen von der Kritizitätsschwelle bis tief in die Bose-Einstein-kondensierte Phase bei fixierter Reservoirgröße. Die Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_n ist gegen die auf die mittlere Grundzustandsbesetzung \bar{n} normierte Photonenzahl aufgetragen. Für $\bar{n}/\bar{N} \leq 33\%$ befindet sich das Maximum der Verteilung bei $n_{\max} = 0$. Bei stärkerer Quantenentartung verschiebt sich die Verteilung zu $n_{\max} > 0$ und die Varianz der Verteilung nimmt ab, was eine Dämpfung der Teilchenzahlfluktuationen und das Auftreten von Kohärenz zweiter Ordnung demonstriert. ($M = 10^{10}$, $\hbar\Delta = -2.4k_B T$)

zustand ausgehend von einer Bose-Einstein-Verteilung nicht mehr bei $n_{\max} = 0$ Photonen liegt. Dies ist gerade für die Bedingung $\mathcal{P}_0 = \mathcal{P}_1$ (siehe Abbildung 3.3) erfüllt, welche in Gl. (3.39) eingesetzt liefert:

$$\frac{M+1}{X} = 1 + \frac{\hat{B}_{21}}{\hat{B}_{12}} \quad (3.50)$$

Aufgrund der großen Molekülanzahl kann $M+1 \simeq M$ gesetzt werden. In Analogie zu den experimentellen Begebenheiten leiten wir die so definierte Übergangstemperatur T_x für eine jeweils konstante Gesamtanzahl von Molekülen M und Photonen \bar{N} ab. Mit der Anregungszahl im stationären Zustand, $X = \bar{n} + M_\uparrow$, liefert Gl. (3.50) die mittlere Besetzung des Grundzustands

$$\bar{n} = M \frac{\frac{\hat{B}_{12}}{\hat{B}_{21}} \frac{M_\downarrow}{M_\uparrow} - 1}{\left(1 + \frac{\hat{B}_{12}}{\hat{B}_{21}}\right) \left(1 + \frac{M_\downarrow}{M_\uparrow}\right)}. \quad (3.51)$$

Im großkanonischen Fall ($M_\downarrow, M_\uparrow \gg \bar{n}$) enthält die Photonen-Statistik eine geometrische Reihe, siehe Gl. (3.41), und der Zähler in Gl. (3.51) entspricht der inversen, mittleren Photonenzahl:

$$\bar{n} = \sum_{n=0}^{\infty} n \mathcal{P}_n \stackrel{\text{gr. kan.}}{=} \left(\frac{\hat{B}_{12}}{\hat{B}_{21}} \frac{M_\downarrow}{M_\uparrow} - 1 \right)^{-1} = \left[\exp\left(\frac{\hbar\omega_c - \mu_\gamma}{k_B T} \right) - 1 \right]^{-1} \quad (3.52)$$

Im Übergangsbereich der Photonen-Statistik sind großkanonische Bedingungen zwar

nicht perfekt erfüllt, dennoch kann Gl. (3.52) zur Abschätzung der Übergangstemperatur T_x verwendet werden. Aus Kombination der Gln. (3.51) und (3.52) folgt

$$\bar{n} = \sqrt{\frac{M}{\left(1 + \frac{\hat{B}_{12}}{\hat{B}_{21}}\right) \left(1 + \frac{M_{\downarrow}}{M_{\uparrow}}\right)}} = \sqrt{\frac{M}{\left[1 + \frac{w_{\uparrow}}{w_{\downarrow}} e^{\frac{\hbar\Delta}{k_B T}}\right] \left[1 + \frac{w_{\downarrow}}{w_{\uparrow}} e^{\frac{\hbar\omega_{ZPL} - \mu_{\gamma}}{k_B T}}\right]}}, \quad (3.53)$$

worin im zweiten Schritt sowohl das Kennard-Stepanov-Gesetz als auch chemisches Gleichgewicht zwischen Photonen und Farbstoffmolekülen als erfüllt angenommen wurde, siehe Gl. (3.11). Für die statistischen Gewichte durch die rovibronische Zustandsdichte in Grund- und elektronisch angeregten Zustand wird zur Vereinfachung $w_{\downarrow} = w_{\uparrow}$ angenommen, da keine wesentlichen Unterschiede in den internen molekularen Freiheitsgraden für S_0 und S_1 erwartet werden. In der kondensierten Phase ($T < T_c$) liegt das chemische Potential der Photonen im Bereich $\hbar(\omega_c + \Omega) < \mu_{\gamma} < \hbar\omega_c$, sodass man $\mu_{\gamma} \simeq \hbar\omega_c = \hbar(\Delta + \omega_{ZPL})$ setzen kann. Das reduzierte chemische Potential $\mu = \mu_{\gamma} - \hbar\omega_c$ liegt dann nahe Null. Die Näherung für das chemische Potential der Photonen kann im zweiten Klammerterm im Nenner von Gl. (3.53) eingesetzt werden.

Gleichung (3.53) gibt eine obere Grenze für die mittlere Anzahl kondensierter Photonen an, bis zu welcher die Teilchenzahl-Statistik des Kondensats als Bose-Einsteinartig angesehen werden kann. Mit Gl. (2.47) erhält man eine implizite Definition der Übergangstemperatur

$$\bar{n} = \bar{N} \left[1 - \left(\frac{T_x}{T_c}\right)^2\right] = \sqrt{\frac{M}{\left(1 + e^{\frac{\hbar\Delta}{k_B T_x}}\right) \left(1 + e^{\frac{-\hbar\Delta}{k_B T_x}}\right)}} \quad (3.54)$$

$$= \sqrt{\frac{M}{2} \left[1 + \cosh\left(\frac{\hbar\Delta}{k_B T_x}\right)\right]^{-1}}. \quad (3.55)$$

Um die Skalierung der reduzierten Übergangstemperatur $t = T_x/T_c$ mit den Systemparametern zu untersuchen, ist es hilfreich, Gl. (3.55) umzuformulieren:

$$1 - t^2 = \frac{\sqrt{M/2}}{\bar{N}} \left[1 + \cosh\left(\frac{\hbar\Delta}{k_B T_c t}\right)\right]^{-1/2} \quad (3.56)$$

Die Temperatur des Übergangs hängt demnach nur von den relativen Systemgrößen \sqrt{M}/\bar{N} und der reduzierten Verstimmung $\hbar\Delta/k_B T_c$ ab. Dies spielt eine entscheidende Rolle bei der Betrachtung des thermodynamischen Grenzfalles

$$\bar{N}, R, M \rightarrow \infty \quad \text{mit} \quad \frac{R}{\bar{N}} = \text{konst.} \quad \text{und} \quad \frac{\sqrt{M}}{\bar{N}} = \text{konst.}, \quad (3.57)$$

wobei die erste Randbedingung $R/\bar{N} = \text{konst.}$ gemäß Gl. (2.45) die Übergangstem-

$M_{\text{①-⑤}}$	10^8	10^9	10^{10}	10^{11}	10^{12}
T_x/T_c	0.986	0.958	0.874	0.684	0.473
\bar{n}/\bar{N}	2.7%	8.3%	23.6%	52.9%	77.6%
$g^{(2)}(0)$	1.5705	1.5707	1.5708	1.5708	1.5707

Tabelle 3.1: Numerisch berechnete, reduzierte Temperaturen und zugehörige Kondensatanteile, bei welchen der Übergang zwischen Bose-Einstein- und Poisson-Statistik für unterschiedlich große molekulare Teilchenreservoirs $M_{\text{①-⑤}}$ auftritt. Beim Übergang beträgt die Autokorrelation stets $g_{M_{\text{①-⑤}}}^{(2)}(0) \simeq \pi/2$, siehe Gl. (3.59). ($\hbar\Delta = -2.4k_B T_c$, $\bar{N} = 10^5$)

peratur T_c erhält und folglich die reduzierte Verstimmung $\hbar\Delta/k_B T_c$ festlegt. Die zweite Forderung $\sqrt{M}/\bar{N} = \text{konst.}$ führt zur Erhaltung der Temperatur T_x unterhalb von T_c . Es ist somit ausgeschlossen, dass die Differenz zwischen beiden Temperaturen aus der endlichen Größe des Systems folgt. Die Bereiche Bose-Einstein- und Poisson-artiger Statistik existieren innerhalb der „echt“ Bose-Einstein-kondensierten Phase. Während erstere Photonenzahlverteilung auf das großkanonische statistische Ensemble hinweist ($M \gg \bar{n}^2$), beschreibt letztere eine kanonische Ensemblesituation ($M \ll \bar{n}^2$). Ein Übergang zwischen beiden Bereichen lässt sich durch Variation von \bar{n}/\bar{N} bzw. Δ erreichen. Exemplarisch zeigt Tabelle 3.1 verschiedene, aus Gl. (3.56) numerisch bestimmte, reduzierte Übergangstemperaturen T_x/T_c für Reservoirs $M_{\text{①-⑤}} = 10^8 - 10^{12}$ bei einer festgehaltenen, typischen Systemgröße von $\bar{N} = 10^5$ Photonen und einer Verstimmung $\hbar\Delta = -2.4k_B T_c$ (Wellenlänge von Bose-Einstein-Kondensat $\lambda_c = 560$ nm und Null-Phononen-Linie $\lambda_{\text{ZPL}} = 545$ nm). Im Grenzfall großer Reservoirs und geringer Verstimmungen dehnt sich die Bose-Einstein-Statistik weit in den kondensierten Bereich aus.

Kohärenzgrad zweiter Ordnung am Übergangspunkt

Abbildung 3.4 zeigt die Wahrscheinlichkeitsverteilung bei einer Übergangstemperatur $T_x = 0.874 T_c$ (vergleiche mit Tabelle 3.1). Die Datenpunkte wurden numerisch berechnet und lassen sich in guter Näherung durch eine Gaußverteilung anpassen:

$$\mathcal{P}_n = \frac{2}{\pi\bar{n}} \exp\left[-\frac{1}{\pi} \left(\frac{n}{\bar{n}}\right)^2\right] \quad (3.58)$$

Diese Verteilung ist normiert und hängt ausschließlich von der mittleren Kondensatbesetzung \bar{n} ab. Gleichung (3.58) erlaubt die analytische Bestimmung der unverzögerten Autokorrelationsfunktion $g^{(2)}(0)$. Nach Gl. (3.38) folgt

$$g^{(2)}(0) = \frac{\sum_{n \geq 0} n(n-1)\mathcal{P}_n}{\left[\sum_{n \geq 0} n\mathcal{P}_n\right]^2} = \frac{\int_0^\infty (n^2 - n)e^{-\frac{(n/\bar{n})^2}{\pi}} dn}{\left[\frac{2}{\pi\bar{n}} \int_0^\infty n e^{-\frac{(n/\bar{n})^2}{\pi}} dn\right]^2} = \frac{\pi}{2} - \frac{1}{\bar{n}} \stackrel{\bar{n} \gg 1}{\simeq} \frac{\pi}{2}, \quad (3.59)$$

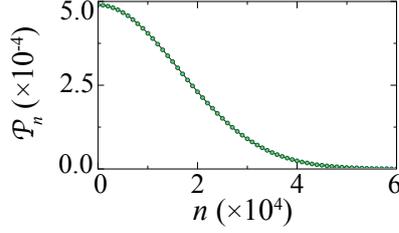


Abbildung 3.4: Photonenzahl-Verteilung bei der Übergangstemperatur $T_x = 0.874 T_c$ (Besetzungsgrad $\bar{n}/\bar{N} \simeq 23.6\%$). Die Wahrscheinlichkeitsverteilung folgt einer Gaußfunktion (durchgezogene Linie) mit einer mittleren Anzahl von $\bar{n} \simeq 13\,000$ Photonen. ($M = 10^{10}$, $\bar{N} \simeq 59\,000$; die numerische Berechnung (Kreise) erfolgte ohne Berücksichtigung der Polarisationsentartung der Photonen)

welches die in Tabelle 3.1 angegebenen, numerischen Ergebnisse wiedergibt. Die Autokorrelation ist über Gl. (1.23) mit den Fluktuationen des Besetzungsgrades verknüpft. Für den Übergangspunkt ergeben sich mit Gl. (3.59) relative Teilchenzahlfuktuationen in der Grundzustandsbesetzung von $\Delta n/\bar{n} = \sqrt{g^{(2)}(0) - 1} \simeq 75\%$.

Zeitliche Korrelation zweiter Ordnung des Bose-Einstein-Kondensats

Die Diskussion der Photonenstatistik wird in diesem Abschnitt auf die zeitliche Dynamik der statistischen Fluktuationen erweitert [121]. Die Photonen des Kondensatmoden können von M_\downarrow Molekülen im elektronischen Grundzustand absorbiert werden, und M_\uparrow angeregte Moleküle können Photonen in den Kondensatmoden emittieren. Unter Vernachlässigung von Verlusten liefert die Ratengleichung aus Gl. (3.8), mit $n \equiv n(t)$ also die Zahl der Photonen im Grundmoden

$$\frac{\partial}{\partial t}n = \hat{B}_{21}M_\uparrow(n+1) - \hat{B}_{12}M_\downarrow n, \quad (3.60)$$

mit der stationären Lösung $\bar{n} = 1/(\hat{B}_{12}\bar{M}_\downarrow/\hat{B}_{21}\bar{M}_\uparrow - 1)$, siehe auch Gl. (3.12). Einsetzen der Anregungszahl $X = M_\uparrow + n$ und Molekülzahl $M = M_\downarrow + M_\uparrow$ liefert

$$\frac{\partial}{\partial t}n = \hat{B}_{21}(X-n)(1+n) - \hat{B}_{12}n(M-X+n). \quad (3.61)$$

Um zeitliche Abweichungen von der stationären Photonenzahl einzuführen, setzt man $\delta n(t) := n(t) - \bar{n}$ und erhält

$$\frac{\partial}{\partial t}\delta n(t) = -(\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21})\delta n(t)^2 - \gamma\delta n(t), \quad (3.62)$$

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{\hat{B}_{21}X}{\bar{n}} + (\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21})\bar{n} \\ &\simeq \frac{\hat{B}_{12}\hat{B}_{21}}{\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21}} \frac{M}{\bar{n}} + (\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21})\bar{n}. \end{aligned} \quad (3.63)$$

Für typische experimentelle Parameter, $(\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21})\delta n \simeq 10^6 \text{ s}^{-1}$ und $\gamma \simeq 10^9 \text{ s}^{-1}$, erfüllen die Koeffizienten in Gl. (3.62) die Bedingung

$$(\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21})\bar{n}\sqrt{g^{(2)}(0) - 1} \ll \gamma, \quad \text{mit } \frac{\delta n}{\bar{n}} = \sqrt{g^{(2)}(0) - 1}, \quad (3.64)$$

sodass die Bewegungsgleichung linearisiert werden kann:

$$\frac{\partial}{\partial t}\delta n(t) \simeq -\gamma\delta n(t) \quad (3.65)$$

Die Autokorrelation zweiter Ordnung zu den Zeitpunkten t und $t' = \tau + t$ lautet

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle n(t+\tau)n(t) \rangle}{\bar{n}^2} = 1 + \frac{\langle \delta n(t+\tau)\delta n(t) \rangle}{\bar{n}^2} \equiv 1 + \frac{\langle \delta n(\tau)\delta n(0) \rangle}{\bar{n}^2}, \quad (3.66)$$

worin $\langle \delta n(t+\tau) \rangle = \langle \delta n(t) \rangle = 0$ verwendet wurde. Die Auswertung von Gl. (3.66) erfolgt dann unter Zuhilfenahme des Quantenregressionstheorems, welches besagt, dass eine zeitliches Mittel vom Typ $\langle A(\tau)B(0) \rangle$ dieselben Bewegungsgleichungen wie das Mittel über die einzelne zeitabhängige Größe $\langle A(\tau) \rangle$ befolgt [121–123]. Die Dynamik von $\langle \delta n(\tau)\delta n(0) \rangle$ lässt sich somit auf die Zeitentwicklung aus Gl. (3.65) zurückführen:

$$\frac{\partial}{\partial t}\langle \delta n(\tau)\delta n(0) \rangle \simeq -\gamma\langle \delta n(\tau)\delta n(0) \rangle, \quad (3.67)$$

mit der Lösung $\langle \delta n(\tau)\delta n(0) \rangle = \text{konst.} \cdot \exp(-\gamma\tau)$. Insgesamt folgt

$$g^{(2)}(\tau) - 1 \simeq [g^{(2)}(0) - 1] \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_c^{(2)}}\right), \quad (3.68)$$

wobei $\tau_c^{(2)} = \gamma^{-1}$ die Korrelationszeit zweiter Ordnung bezeichnet. Sie bestimmt die Zeitskala für Intensitätsfluktuationen des Photonenkondensats, d.h. für die mittlere Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Einbrüchen in der Intensität. Durch Einfügen der Kennard-Stepanov-Relation, siehe Gl. (3.11), lässt sich die inverse Korrelationszeit aus Gl. (3.63) auch als Funktion der experimentellen Parameter formulieren:

$$\frac{1}{\tau_c^{(2)}} = \hat{B}_{21} \left\{ \left[1 + \exp\left(-\frac{\hbar\Delta}{k_B T}\right) \right]^{-1} \frac{M}{\bar{n}} + \bar{n} \left[1 + \exp\left(\frac{\hbar\Delta}{k_B T}\right) \right] \right\} \quad (3.69)$$

Bei der Übergangstemperatur T_x von großkanonischen zu kanonischen Ensemble-Bedingungen ist der Besetzungsgrad des Bose-Einstein-Kondensats durch Reservoir und Farbstoff-Resonator-Verstimmung festgelegt, vergleiche mit der Bedingung in Gl. (3.55). Die Korrelationsrate zweiter Ordnung skaliert dann abschnittsweise

$$\frac{1}{\tau_c^{(2)}} = \begin{cases} \frac{M}{\bar{n}} \frac{\hat{B}_{12}\hat{B}_{21}}{\hat{B}_{12}+\hat{B}_{21}} & (T \gg T_x \quad \text{bzw.} \quad \bar{n}^2 \ll M_{\text{eff}}) \\ 2\bar{n}(\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21}) & (T = T_x \quad \text{bzw.} \quad \bar{n}^2 = M_{\text{eff}}) \\ \bar{n}(\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21}) & (T \ll T_x \quad \text{bzw.} \quad \bar{n}^2 \gg M_{\text{eff}}) \end{cases} \quad (3.70)$$

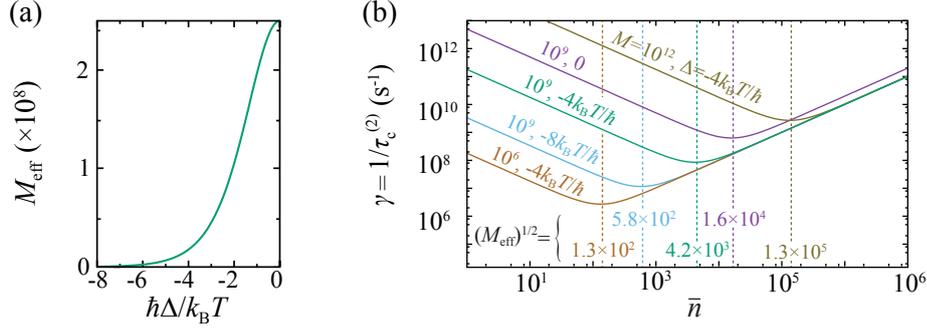


Abbildung 3.5: (a) Effektive Reservoirgröße als Funktion der Farbstoff-Resonator-Verstimmung. (b) Fluktuationsrate der Grundzustandsbesetzung ($\hat{=}$ inverse Korrelationszeit zweiter Ordnung) gegen die mittlere Photonenzahl im Kondensat für fünf verschiedene effektive Reservoirgrößen M_{eff} . Die Kurvenverläufe zeigen jeweils Minima bei $\bar{n}_{\text{min}} = (M_{\text{eff}})^{1/2}$, welche den Übergangspunkt vom großkanonischen ($\bar{n} < \bar{n}_{\text{min}}$) zum kanonischen ($\bar{n} > \bar{n}_{\text{min}}$) Ensemble markieren. (Parameter: $\hat{B}_{21} = 10^4 \text{ s}^{-1}$, $M = 10^9$).

mit der effektiven Reservoirgröße

$$M_{\text{eff}} := \frac{M}{2} \left[1 + \cosh \left(\frac{\hbar\Delta}{k_B T} \right) \right]^{-1}, \quad (3.71)$$

vergleiche Gl. (3.55). Abbildung 3.5(a) stellt die Variation der effektiven Reservoirgröße exemplarisch als Funktion der Verstimmung dar, und Abbildung 3.5(b) zeigt den analytischen Verlauf der Fluktuationsrate $\gamma = 1/\tau_c^{(2)}$ als Funktion von \bar{n} für verschiedene Reservoirgrößen. Für ein bestimmtes M_{eff} nimmt die inverse Korrelationszeit im großkanonischen Bereich ($g^{(2)}(0) \rightarrow 2$) solange mit wachsender Kondensatgröße ab, bis sie einen Minimalwert bei $\bar{n}_{\text{min}} = \sqrt{M_{\text{eff}}}$ erreicht hat. Im kanonischen Regime ($g^{(2)}(0) \rightarrow 1$) zeigt die Fluktuationsrate dann ein gegenteiliges Verhalten und wächst linear mit steigender mittlerer Photonenzahl. Numerische Simulationen der Fluktuationsrate, die im Kontext mit der im folgenden Abschnitt diskutierten Phasenkohärenz des Photonenkondensats durchgeführt wurden (Abbildung 3.9(b)), demonstrieren die Gültigkeit der mittels des Quantenregressionstheorems hergeleiteten Formel aus Gl. (3.63).

Als Beispiel schätzen wir die Größenordnung der erwarteten Korrelationszeiten zweiter Ordnung für die in den Kapiteln 5 und 6 diskutierten Experimente anhand von Gl. (3.70) beim Übergangspunkt der Photonenzahl für typische experimentelle Parameter ab. Für eine Kondensatwellenlänge von $\lambda_c = 580 \text{ nm}$, mit entsprechender Farbstoff-Resonator-Verstimmung $\hbar\Delta = -5.3k_B T$ (Rhodamin 6G) und Einstein-Ratenkoeffizienten $\hat{B}_{12} \simeq 170 \text{ s}^{-1}$ bzw. $\hat{B}_{21} \simeq 3.4 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$, ergibt sich in der Anwesenheit von $M = 10^{10}$ Molekülen beim Übergangspunkt eine mittlere Kondensatbesetzung von $\bar{n}_{\text{min}} = M_{\text{eff}} \simeq 7000$ Photonen. Aus Gl. (3.70) folgt dann eine erwartete Zeitskala der Intensitätsfluktuationen von $\tau_c^{(2)} \approx 2 \text{ ns}$, ähnlich zu Messergebnissen.

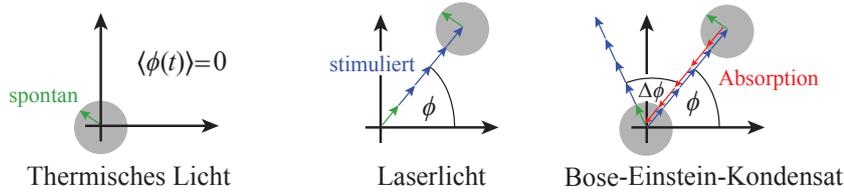


Abbildung 3.6: Phasor-Modell für thermische Lichtquelle, Laser und Bose-Einstein-Kondensat von Photonen. Während die Spontanemission im Mittel keine globale Phase ausbildet, führen stimulierte Prozesse im Laser zu einer makroskopischen Phase. Das photonische Bose-Einstein-Kondensat selektiert ebenfalls eine Phase ϕ . Im Fall großer Reservoirs verschwindet das Photonenkondensat zunächst durch starke Farbstoff-Reabsorption und entsteht im Anschluss mit erneut gebrochener Symmetrie $\phi + \Delta\phi$.

3.4 Phasenkohärenz

Das Phasor-Modell (vgl. mit Abschnitt 1.2.2) dient der Beschreibung der Amplituden- und Phasenentwicklung, $\sqrt{n(t)}$ und $\phi(t)$, eines optischen Feldes mit n Photonen. Mit Hilfe eines Argand-Diagramms, vergleiche Abbildung 3.6, können qualitative Unterschiede zwischen thermischer Lichtquelle, Laser und Bose-Einstein-Kondensat von Photonen besonders einfach verdeutlicht werden.

- Für eine klassische, thermische Lichtquelle führt die Superposition zufällig verteilter Phasenwinkel von spontan emittierten Photonen zu einem *random walk* der Gesamtphase. Die destruktive Interferenz der individuellen Wellenzüge verhindert die Ausprägung eines makroskopisch besetzten Zustands mit globaler Phase. Die Photonenzahlstatistik wird durch eine Bose-Einstein-Verteilung bestimmt mit der wahrscheinlichsten Photonenzahl $n_{\max} = 0$.
- Beim Laserbetrieb ermöglichen stimulierte Emissionsprozesse die makroskopische Besetzung eines selektierten Modens mit einer nahezu stabilen Phase. Erreicht wird dies durch die Vergrößerung der optischen Verluste für alle unerwünschten Moden, sodass Laseremission im Allgemeinen keiner thermischen Gleichgewichtsbedingung genügt. Der verbleibende Beitrag der Spontanemission zum optischen Gesamtfeld führt zur Schawlow-Townes Linienbreite und einer Amplituden- und Phasenunschärfe [124]. Das Lichtfeld befindet sich in einem kohärenten Zustand mit Poisson'scher Photonenzahlverteilung um $n_{\max} > 0$ und verschwindender Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_0 = 0$.
- Das Zeigerdiagramm lässt sich auch zur Behandlung der Phasendynamik des Bose-Einstein-Kondensats von Photonen hinzuziehen: wie in Abschnitt 3.3 gesehen, bewirkt die Kopplung des Systems an ein hinreichend großes Reservoir starke Schwankungen der makroskopischen Besetzungszahl $\sqrt{n(t)}$, welche durch Bose-Einstein-artige Statistik charakterisiert sind. Fluktuiert die Photonenzahl kurzzeitig zu $n = 0$, kommt es infolgedessen nach einer bestimmten

Zeit zur Emission eines spontanen Photons, welches durch eine Kaskade stimulierter Prozesse eine erneuten Ausbildung der makroskopischen Grundzustandspopulation auslöst. Durch die Zufallsnatur der Spontanemission erwarten wir daher, wie weiter unten genauer ausgeführt, diskrete Sprünge in der Gesamtphase $\phi(t)$ der Wellenfunktion des Kondensats.

Phasendynamik der Wellenfunktion

Basierend auf den Ratengleichungen (3.6) und (3.7) lassen sich Monte-Carlo Simulationen durchführen, um die Photonenzahl- und Phasenentwicklung des Bose-Einstein-Kondensats im Phasor-Modell zu bestimmen [100]. Stimulierte Absorptions- und Emissionsprozesse ändern die Phase der Wellenfunktion nicht, ausschließlich spontan hinzugefügte Photonen bewirken eine Diffusion des Phasenwinkels [50, 51, 53]. Wie in der nebenstehenden Abbildung 3.7 dargestellt, lautet der Vektor für n kondensierte Photonen mit Phase ϕ

$$\sqrt{n}e^{i\phi}. \quad (3.72)$$

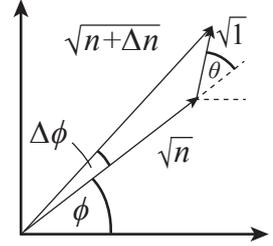


Abbildung 3.7

Infolge der Spontanemission eines Photons mit zufälliger Phase θ und Amplitude $\sqrt{1}$ ändert sich der Vektor zu

$$\sqrt{n + \Delta n} e^{i(\phi + \Delta\phi)} = \sqrt{n}e^{i\phi} + (\sqrt{n + 1} - \sqrt{n})e^{i\theta}. \quad (3.73)$$

Dies bewirkt eine Längenänderung des Zeigers

$$n + \Delta n = 1 + n - 2\sqrt{n} \cos(\theta - \pi) \Leftrightarrow \Delta n = 1 + 2\sqrt{n} \cos \theta \quad (3.74)$$

sowie eine Drehung des Gesamtphasenwinkels um

$$\Delta\phi = \sin \theta / \sqrt{n}. \quad (3.75)$$

Der Einfluss der Spontanphase auf die Gesamtphase wird besonders für kleine Photonenzahlen n relevant. Gleichung (3.75) beschreibt jedoch nur relative Änderungen der Phase und gilt nicht für die Situation $n = 0$, wenn die zufällige Selektion der Phase θ die Symmetrie bricht und die Gesamtphase des neu entstehenden Bose-Einstein-Kondensats festlegt. Im Allgemeinen wird das Phasenverhalten jedoch durch Gl. (3.73) vollständig beschrieben. Die nachfolgend diskutierten Monte-Carlo-Simulationen basieren auf der Phasor-Addition aus Gl. (3.73) zur Berechnung von Änderungen der Kondensatphase.

In Abbildung 3.8(a) ist die simulierte Zeitentwicklung der normierten Besetzungszahl (mittlere Photonenzahl $\bar{n} \simeq 300$) und die zugehörige Phasenentwicklung eines fluktuierenden Bose-Einstein-Kondensats gezeigt. Das Reservoir mit den Parametern $\Delta = 0k_B T$ und $M = 10^6$ erfüllt die Bedingung $\bar{n} < \sqrt{M_{\text{eff}}} = 500$ für groß-

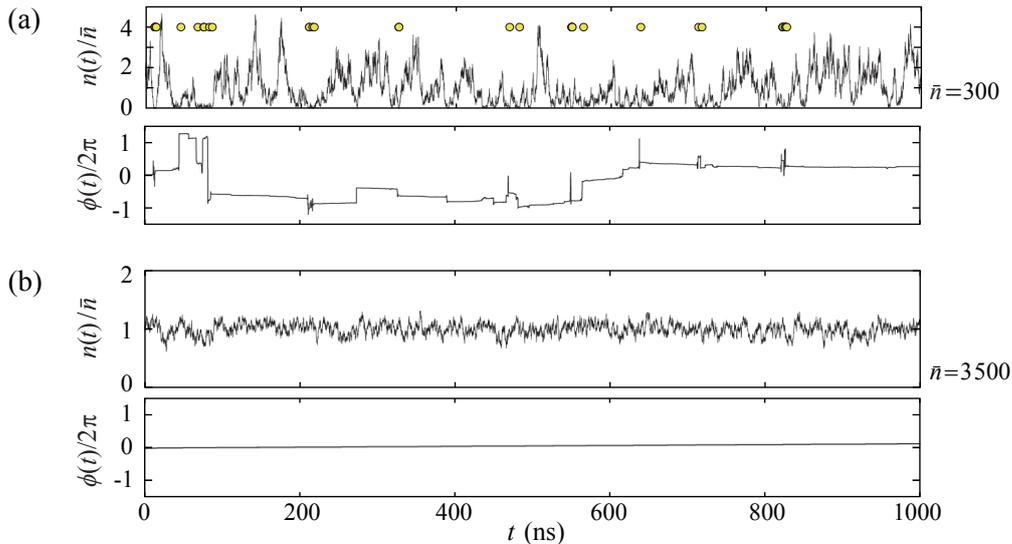


Abbildung 3.8: Simulation der zeitlichen Evolution der normierten Besetzungszahl $n(t)/\bar{n}$ und Phase $\phi(t)$ des Bose-Einstein-Kondensats für $M_{\text{eff}} = 2.5 \cdot 10^5$. (a) Unter großkanonischen Bedingungen weist die Population starke Fluktuationen auf (oben) und es werden Phasensprünge (unten) zu Zeitpunkten beobachtet, bei denen die Photonenzahl auf Null abfällt (Kreise). (b) Bei größeren mittleren Photonenzahlen (kanonischen Bedingungen) nehmen die Schwankungen in der Photonenzahl ab. Wegen der nun verschwindenden Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_0 = 0$ ist das Auftreten von Phasensprüngen stark unterdrückt (unten).

kanonische Ensemble-Statistik. Die simulierten Daten zeigen das Auftreten diskreter Phasensprünge bei verschwindender Photonenzahl (Kreise in Abbildung 3.8(a) weisen auf Zeitpunkte mit $n = 0$ hin). Für dieselben Reservoirparameter stellt Abbildung 3.8(b) die entsprechende Populations- und Phasendynamik eines Bose-Einstein-Kondensats unter kanonischen Bedingungen dar. Aufgrund seiner endlichen Größe, kann das Reservoir die großen Teilchenzahlschwankungen des nun stärker besetzten Kondensats mit $\bar{n} \simeq 3500 > \sqrt{M_{\text{eff}}}$ nicht mehr aufnehmen. Die Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_0 wird hier verschwindend gering, sodass keine diskreten Phasensprünge mehr auftreten.

Abhängig vom Verhältnis von Reservoirgröße M_{eff} und Kondensatbesetzung \bar{n} werden in den gezeigten Simulationen mit fortschreitender Zeit mehr oder weniger häufig Sprünge in der Phase des Photonenkondensats beobachtet. Als Maß für die zeitliche Phasenstabilität der Kondensatmission ist es daher naheliegend, die Phasensprungrate $\Gamma_{\text{PJ}} = \# \text{Phasensprünge} / \text{Zeitintervall}$ (*engl.: phase jump*) einzuführen. Weiterhin lässt sich aus den Resultaten der Simulation der Photonenzahl $n(t)$ die Autokorrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ und die entsprechende Korrelationszeit zweiter Ordnung $\tau_c^{(2)}$ ableiten. Es wird erwartet, dass sich die Amplitudenmodulation aufgrund der fluktuierenden Kondensatbesetzung (Zeitkonstante $\tau_c^{(2)}$) durch Phasendiffusion

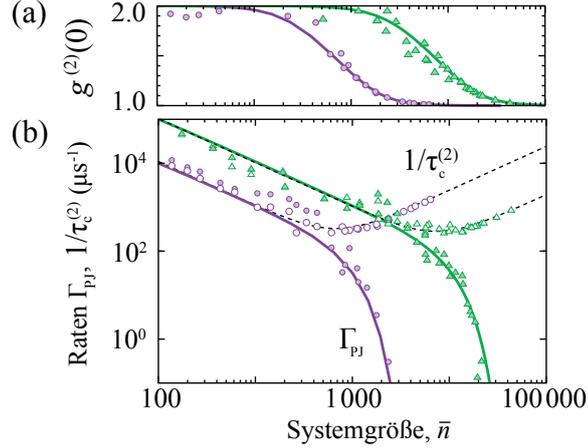


Abbildung 3.9: (a) Simulierte Autokorrelationen $g^{(2)}(0)$, (b) Phasensprungraten Γ_{PJ} (gefüllte Symbole) und Korrelationsraten zweiter Ordnung $1/\tau_c^{(2)}$ (offene Symbole) als Funktion der Kondensatbesetzung \bar{n} für zwei effektive Reservoirgrößen (violette Punkte bzw. grüne Dreiecke). Die Übereinstimmung der Phasensprungrate mit $\hat{B}_{12}M\mathcal{P}_0$ (durchgezogene Linie) unterstützt die Annahme, dass Phasensprünge durch Situationen mit null Photonen verursacht werden. Die Zunahme der Phasenkohärenz erster Ordnung wird verstärkt, wenn die Photonenzahl-Statistik von einer Bose-Einstein- zur Poisson-Verteilung überführt wird. Dies geschieht bei der Extremalstelle $\bar{n} = \sqrt{M_{\text{eff}}}$ von $1/\tau_c^{(2)}$ mit $g^{(2)}(0) \simeq \pi/2$, siehe (a), in Übereinstimmung mit der analytischen Vorhersage (gestrichelte Linie). (Parameter: $\hat{B}_{12} = 1000 \text{ s}^{-1}$, $M = 10^9$, $\hbar\Delta = \{-2.8; -7.7\}k_B T$)

auch im Kohärenzgrad erster Ordnung $g^{(1)}(\tau)$ niederschlägt. Abbildung 3.8(a) (unten) legt jedoch nahe, dass dieser Effekt im Vergleich zu den großen Phasensprüngen zu vernachlässigen ist. Er kann zudem im Experiment nicht gemessen werden. Die Phasenkohärenz beruht somit im Wesentlichen auf der längeren Zeitskala, die durch $1/\Gamma_{PJ}$ vorgegeben ist.

Abbildung 3.9(b) zeigt Phasensprungraten und inverse Korrelationszeiten $1/\tau_c^{(2)}$ als Funktion der mittleren Kondensatbesetzung \bar{n} für zwei unterschiedlich große Reservoirs, realisiert durch variierte Farbstoff-Resonator-Verstimmung Δ . Die abgebildeten Datenpunkte resultieren aus Monte-Carlo-Simulationen ähnlich zu Abbildung 3.8. Im großkanonischen Bereich ($\bar{n} < \sqrt{M_{\text{eff}}}$) nehmen die Phasensprungrate und die Korrelationsrate zweiter Ordnung gleichermaßen mit wachsender Systemgröße \bar{n} linear ab. Beim Statistik-Übergang zum kanonischen Regime ($\bar{n} \geq \sqrt{M_{\text{eff}}}$) - in Abbildung 3.9(a) erkennbar an der Autokorrelation $g^{(2)}(0) \approx \pi/2$ sowie dem Minimum der inversen Korrelationszeit zweiter Ordnung $1/\tau_c^{(2)}$ (gestrichelte Linie) in Abbildung 3.9(b) - kommt es zu einer Separation der Zeitskalen. Während Phasensprünge hier verstärkt unterdrückt werden, deuten die Daten auf einen Anstieg der Korrelationsrate zweiter Ordnung hin. Diese Separation wird für beide unter-

suchten Reservoirs im jeweiligen Übergangsbereich der Photonenzustand durch die Simulationen vorhergesagt und zeigt eine gute Übereinstimmung mit der analytisch hergeleiteten Rate für die Intensitätsfluktuationen aus Gl. (3.63). Das Kondensat bildet hier ausgedehnte Phasenkohärenz trotz seiner statistisch fluktuierenden Besetzungszahl mit $g^{(2)}(0) > 1$ aus. Je größer das Teilchenreservoir gewählt wird, desto weiter dehnt sich der Bereich mit hohen Phasensprungraten in den kondensierten Bereich aus.

Abschätzung der Phasensprungrate

Die Ergebnisse der Monte-Carlo-Simulationen implizieren, dass die Rate Γ_{PJ} , mit der es zu diskreten Sprüngen in der Phase der Kondensat-Wellenfunktion kommt, und die Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_0 , null Photonen im Grundzustand vorzufinden, miteinander korreliert sind. Unter der Annahme, dass Phasensprünge nur dann auftreten, wenn sich keine Photonen im Grundzustand des Resonators befinden, folgt die entsprechende Rate

$$\Gamma_{PJ}^0 = \mathcal{P}_0 \cdot \frac{1}{\tau_0}. \quad (3.76)$$

Hierin bezeichne τ_0 die natürliche Zeitskala des Systems (bzw. $1/\tau_0$ eine Photonenemissionsrate), d.h. die mittlere Zeit, mit der ein Null-Photonen-Zustand im Resonator existieren kann. Infolge einer statistischen Fluktuation des Kondensats zu null Photonen vergeht also eine gewisse Zeit, ehe dieser Zustand verlassen und eine neue makroskopische Phase ausgebildet wird. Diese charakteristische Zeitskala der Phasensprünge wird durch die inverse Rate für die spontane Emission eines Photons bei der Frequenz des Resonatorgrundzustands bestimmt. Wie man aus der Rategleichung Gl. (3.7) für $n = 0$ sieht, hängt sie von dem Einstein-Koeffizienten für Emission \hat{B}_{21} als auch der Anzahl angeregter Farbstoffmoleküle M_\uparrow ab, $1/\tau_0 = \hat{B}_{21}M_\uparrow$. Unter stationären Bedingungen mit $\bar{n} \gg 1$, siehe Gl. (3.12), erhält man außerdem $\hat{B}_{21}M_\uparrow \simeq \hat{B}_{12}M_\downarrow$. Unter typischen experimentellen Bedingungen gilt weiterhin $M_\downarrow \simeq M$, sodass aus Gl. (3.76) insgesamt folgt:

$$\Gamma_{PJ}^0 = B_{12}M\mathcal{P}_0 \quad (3.77)$$

Da die Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_0 von der jeweiligen Photonenzustand abhängt, werden die zwei, in Abschnitt 3.3 diskutierten Grenzfälle der Statistik betrachtet: Für ein großes Reservoir (großkanonischer Fall), siehe Gl. (3.41), ist die Photonenzustand durch eine Bose-Einstein-Verteilung mit der Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit gegeben:

$$\mathcal{P}_0 = \frac{1}{\bar{n} + 1} \stackrel{\bar{n} \gg 1}{\simeq} \frac{1}{\bar{n}} \quad (3.78)$$

Nach Gl. (3.77) führt dies zur Phasensprungrate

$$\Gamma_{PJ}^0 = \frac{B_{12}M}{\bar{n}}, \quad (3.79)$$

was bis auf einen Faktor 2 der theoretischen Vorhersage für ein Bose-Einstein-Kondensat von Photonen in Anwesenheit eines unendlich großen Reservoirs entspricht [118]. Für kleinere Reservoirs (kanonischer Fall) hingegen kommt es zum Übergang von Bose-Einstein- zu Poisson-artiger Statistik und die erwartete Wahrscheinlichkeit, null Photonen im Kondensat zu finden, wird für zunehmende mittlere Photonenzahlen stark unterdrückt, sodass wir allgemein für die Grenzfälle schreiben:

$$\Gamma_{\text{PJ}}^0 = \frac{\hat{B}_{12}M}{\bar{n}^\alpha}, \quad \alpha = \begin{cases} 1 & \text{(Bose-Einstein \& Gau\ss)} \\ \infty & \text{(Poisson)} \end{cases} \quad (3.80)$$

Im Grenzfall von Poisson'scher Photonenzahlverteilung führt $\alpha \rightarrow \infty$ zu einer Unterdrückung von Phasensprüngen und dem Auftreten von vollständiger Phasenkohärenz. Auch für eine Bose-Einstein-verteilte Photonenzahlverteilung legt Gl. (3.80) nahe, dass die Phasensprungrate für anwachsende Kondensate immer weiter unterdrückt wird, sofern die Reservoirgröße M nicht verändert wird. Dies bewirkt jedoch gleichzeitig einen Übergang zu Poisson-artiger Statistik. Mit dem obigen Ansatz, siehe Gl. (3.77), lässt sich der Verlauf der simulierten Phasensprungraten gut reproduzieren, wie in Abbildung 3.9(b) an der Phasensprungrate Γ_{PJ}^0 (durchgezogene Linie) für beide Reservoirs deutlich wird. Die hierin inbegriffene Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_0 wurde wie die in Abschnitt 3.3 gezeigten Photonenzahlverteilungen numerisch berechnet.

Korrelationszeiten im thermodynamischen Grenzfall

Abbildung 3.9 demonstriert eine Separation der simulierten Zeitskalen für Phasen- und Intensitätsfluktuationen des Photonengases im Farbstoff-Mikroresonator-System. Dies lässt den Schluss zu, dass sich die Kohärenzeigenschaften des Bose-Einstein-kondensierten Photonengases grundlegend von der Erwartung für eine thermische Lichtquelle mit $g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2$ unterscheiden. Es stellt sich also die Frage, ob die Separation der Zeitskalen im thermodynamischen Grenzfall ihre Relevanz beibehält. Durch Kombination der Gleichungen (3.63) und (3.80) folgt das Verhältnis der Korrelationszeiten

$$\begin{aligned} \frac{\tau_c^{(1)}}{\tau_c^{(2)}} &= \bar{n}^{\alpha-1} \left[\frac{\hat{B}_{12}}{\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21}} + \frac{\hat{B}_{12} + \hat{B}_{21}}{\hat{B}_{21}} \frac{\bar{n}^2}{M} \right] \\ &\stackrel{(2.47)}{=} \bar{N}^{\alpha-1} \left[K_1(T) + K_2(T) \left(\frac{\bar{N}}{\sqrt{M}} \right)^2 \right], \end{aligned} \quad (3.81)$$

wobei $\bar{n} = \bar{N}[1 - (T/T_c)^2]$ verwendet wurde. Die Temperaturabhängigkeit ist in den Konstanten $K_{1,2}(T)$ inbegriffen. Im thermodynamischen Limes, siehe Gl. (3.57), mit $\bar{N} \rightarrow \infty$, $T_c = \text{konst.}$ und $\bar{N}/\sqrt{M} = \text{konst.}$, erwartet man also eine relative Skalierung der Korrelationszeiten abhängig vom Parameter α , der ebenso wie \bar{N}/\sqrt{M} die Photonenzahlstatistik \mathcal{P}_n und somit $g^{(2)}(0)$ festlegt. Im großkanonischen Regime ($\alpha = 1$) bis zur Temperatur T_x verschwindet die Abhängigkeit von der Gesamt-

teilchenzahl \bar{N} in Gl. (3.81) und die Zeitkonstanten stimmen auch im thermodynamischen Limes überein. Beim Übergang zu „Poisson-artiger“ Statistik ($\alpha > 1$), sowie im Falle echter Poisson-Statistik ($\alpha \rightarrow \infty$) wird jedoch ein Divergieren der Kohärenzzeit erster Ordnung relativ zur Kohärenzzeit zweiter Ordnung erwartet. Dementsprechend sagt diese Abschätzung hier trotz verhältnismäßig starker Kondensatfluktuationen mit $g^{(2)}(0) \simeq 1.5$ (für $1 < \alpha < \infty$) im thermodynamischen Limes eine Separation der Korrelationszeiten erster und zweiter Ordnung voraus.

Ein ähnliches Grenzwertverhalten lässt sich auch für die heuristisch eingeführte Phasensprungrate Γ_{PJ}^0 erkennen, wenn Gl. (3.80) entsprechend der obigen Grenzwertbetrachtung zu

$$\Gamma_{\text{PJ}}^0 = K_3(T) \frac{M}{\bar{N}^2} \frac{1}{\bar{N}^{\alpha-2}} \quad (3.82)$$

umformuliert wird, wobei $K_3(T)$ einen temperaturabhängigen, jedoch von den Systemgrößen unabhängigen Parameter bezeichnet. Für $\bar{N}, M \rightarrow \infty$, $T_c = \text{konst.}$ und $\bar{N}^2/M = \text{konst.}$ wird eine vollständige Unterdrückung der Phasensprünge im thermodynamischen Limes gemäß Gl. (3.82) erst für $\alpha > 2$ erwartet. Die physikalische Ursache hierfür liegt darin, dass es im Bereich der Bose-Einstein-artigen Statistik auch im thermodynamischen Limes immer wieder zu starken Intensitätsfluktuationen zu Null-Photonen-Zuständen im Resonator kommen wird, was eine Kopplung der Zeitskalen für Phasensprünge und Intensitätsfluktuationen zur Folge hat, sofern das Teilchenreservoir groß genug ist und die Fluktuationen aufnehmen kann. Etwas genauer gesprochen nimmt für $\alpha = 1$ bei der Extrapolation der Phasensprungrate Γ_{PJ}^0 in den thermodynamischen Limes zwar einerseits die Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_0 \propto \bar{n}^{-1}$ - ähnlich wie bei einer thermischen Lichtquelle - mit steigender Photonenzahl ab, andererseits führt jedoch die zur Aufrechterhaltung der Photonenzahl notwendige, quadratisch anwachsende Anzahl von Molekülen M letztendlich zu einem Anstieg der Phasensprungrate.

Kapitel 4

Experimente zur Thermalisierungsdynamik

4.1 Apparativer Aufbau

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse von zeitaufgelösten Messungen der spektralen Photonenkinetik vorgestellt, welche Einblick in die Thermalisierungsdynamik gewähren und die Equilibrierung durch thermischen Kontakt an das molekulare Wärmebad demonstrieren. Diese Messungen finden bei Photonenzahlen im Bereich der kritischen Photonenzahl $N_c \simeq 90\,000$ ($q = 8$) statt. Außerdem erlaubt das Experiment die räumlich und spektral aufgelöste Beobachtung der Übergangsdynamik von kohärenten, laserartigen Wellenpaketen fern des thermischen Gleichgewichts ins thermisch equilibrierte Bose-Einstein-Kondensat bei Gesamtphotonenzahlen weit im quantenentarteten Bereich, $N > N_c$. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 4.1 gezeigt und besteht im Wesentlichen aus dem optischen Mikroresonator, der Pumpquelle und dem Analysesystem. Zur zeitaufgelösten Untersuchung wird das Farbstoffreservoir im Mikroresonator unter einem Winkel von 42° zur optischen Achse durch einen Pikosekunden-Pulslaser gepumpt. Das aus dem Resonator ausgekoppelte Licht wird räumlich und spektral mit einer Streak-Kamera zeitaufgelöst detektiert.

Mikroresonator

Der Mikroresonator besteht aus zwei hochreflektiven, sphärisch gekrümmten, dielektrischen Spiegeln hergestellt von der Firma CRD Optics (Typ: 901-0010-0550), die üblicherweise zur *Cavity Ring-down*-Spektroskopie eingesetzt werden [125]. Das messbare Maximum der Spiegelreflektivität (Abb. 4.2(c)) befindet sich bei einer Wellenlänge von $\lambda \approx 560$ nm und beträgt $\tilde{R} = 99.9988(2)\%$, während sich die Bandbreite mit einer Reflektivität von über 99.98% über einen Bereich von 500–595 nm erstreckt. Im Rahmen der Masterarbeit von Christian Wahl wurde dies durch Messung der *Cavity Ring-down*-Abklingzeit eines im Resonator gespeicherten Lichtpulses, der von einem durchstimmbaren (560–605 nm) Farbstofflaser (Typ: Matisse, Firma Sirah) emittiert wurde, bestimmt [126]. Der Maximalwert entspricht einer

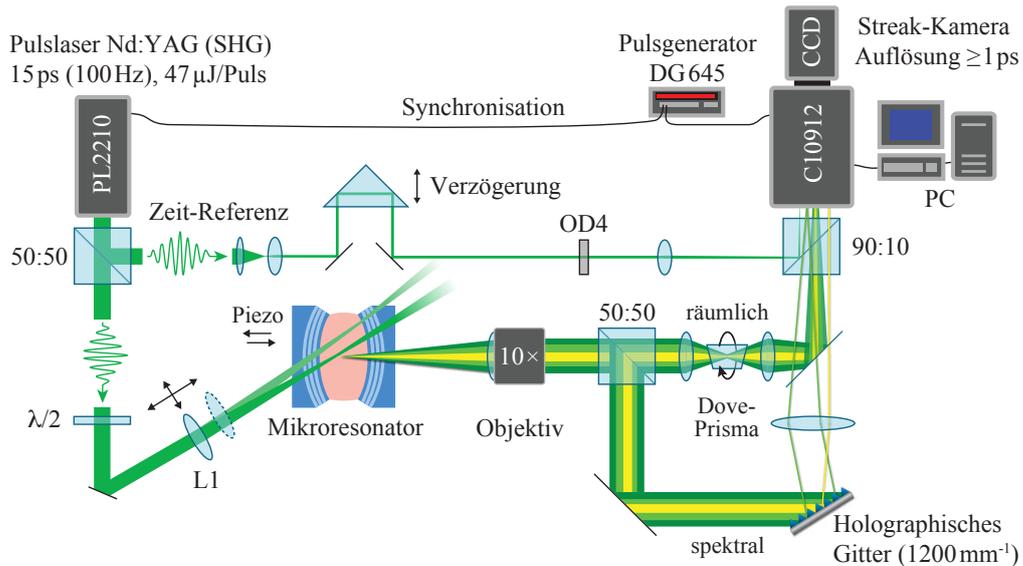


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau zur zeitaufgelösten Messung der räumlichen und spektralen Thermalisierungsdynamik des Photonengases. Der Mikroresonator wird unter einem Winkel von 42° zur optischen Achse gepumpt und das emittierte Licht räumlich und spektral auf den Eingangsspalt einer Streak-Kamera abgebildet.

Finesse von $\mathcal{F} \approx 260\,000$. Uns stehen Spiegel mit zwei Krümmungsradien $R = 1$ m bzw. 6 m zur Verfügung. Um Spiegelabstände im Mikrometerbereich zu realisieren, muss die gekrümmte Oberfläche eines der Resonatorspiegel verkleinert werden. Dazu werden die gelieferten Substrate (Durchmesser 1") zunächst in 5×5 mm große Stücke zerteilt, deren Oberfläche danach in einem Rotationsschleifprozess von außen hin auf eine Kreisform mit ~ 1 mm Durchmesser verkleinert wird (siehe Abbildung 4.2(a)). Die seitlichen Schnittfacetten werden mit einem Polierfilm für optische Fasern auf eine Oberflächenrauheit von bis zu $0.3 \mu\text{m}$ geglättet. Anschließend werden die Spiegelstücke auf ein Quarzglas-Substrat geklebt. Zusätzlich werden seitlich und auf der Rückseite des Substrats Prismen angebracht, die ein Pumpen der Farbstofflösung unter dem Winkel maximaler Transmission von 42° erlauben. Da die Spiegeltransmission außerdem von der Polarisation abhängt, kann die in den Mikro-

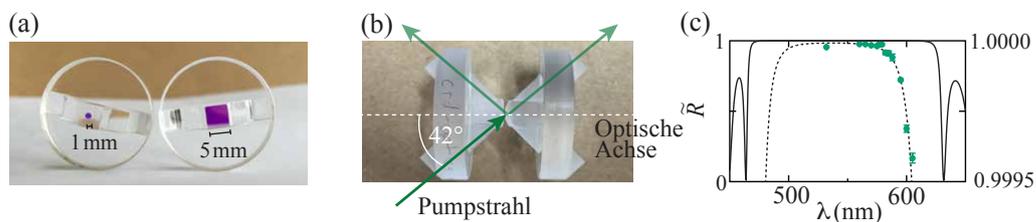


Abbildung 4.2: Fotografie der geschliffenen und mit optischen Zugängen versehenen Resonatorspiegel, (a) frontal (b) in Aufsicht in der verwendeten Resonatorconfiguration. (c) Reflexionskoeffizient \tilde{R} der Spiegel [126].

resonator eingekoppelte Pumpleistung durch Rotation einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte optimiert werden. Der direkt messbare transmittierte Anteil der einfallenden optischen Leistung durch den gesamten Resonator beträgt dann etwa 80%. Das Pumpen unter einem Winkel zur optischen Achse hat weiterhin den Vorteil, dass wegen der fehlenden Modenanpassung keine direkte Anregung der Resonatormoden durch den Pumpstrahl erfolgt, sondern Photonen nur durch Farbstoff-Fluoreszenz in die Modenstruktur emittiert werden. Durch Anpassung der Linse L1 lässt sich sowohl der Durchmesser als auch die Position des Pumpstrahls in der Resonatorebene variieren, sodass sich sowohl ein räumlich nahezu homogenes (beispielsweise 500 μm Durchmesser) als auch alternativ ein sehr konzentriertes (20 μm) Anregungsniveau des Farbstoffmediums erzielen lässt. Vergleichsweise beträgt die räumliche Ausdehnung des Kondensatmoden $d_0 \approx 15 \mu\text{m}$, während sich das thermische Hintergrundgas über die gesamte Pumpregion von gegebenenfalls mehreren hundert Mikrometern ausdehnt (siehe Abbildung 2.6(b)).

Einer der Resonatorspiegel ist auf einem Piezo-Verschiebetisch montiert. Die Grobeinstellung der Resonatorlänge erfolgt durch mechanisches Schrauben, und durch Anlegen einer Spannung an den Piezo-Kristall wird der Spiegelabstand über einen Gesamtbereich von 25 μm feinjustiert. Dies hat den Vorteil, dass sich die Resonanzbedingung auf der optischen Achse und damit die Wellenlänge des Bose-Einstein-Kondensats verändern und aktiv stabilisieren lässt. Dazu wird ein Helium-Neon Laser mit einer Wellenlänge von 632 nm verwendet. Bei dieser Wellenlänge erlaubt ein spektral lokales Reflexionsminimum der dielektrischen Spiegel eine ausreichend hohe Transmission des Lichts (siehe Abb. 4.2(c)). Aufgrund der sphärisch gekrümmten Oberfläche der Resonatorspiegel beobachtet man ringförmige Bereiche konstruktiver Interferenz, deren Radien von dem Abstand der Spiegel abhängen. Die Ringe werden auf eine Zeilenkamera abgebildet, deren Analogsignal von einem Computer ausgelesen wird. Durch einen Regelkreis wird der Ist-Wert des Durchmessers auf einen Soll-Wert stabilisiert, indem eine zur Abweichung von Ist- und Soll-Wert proportionale Spannung über den Rechner am Piezo-Verstärker angelegt wird. Die Regelbandbreite der Stabilisierung liegt bei 10 Hz und sie erreicht eine Wellenlängen-Genauigkeit von 0.2 nm. Trotz der verhältnismäßig langsamen Regelrate können thermisch oder mechanisch verursachte Langzeitverschiebungen effektiv vermieden werden. Außerdem weist der Mikroresonator eine hohe passive mechanische Stabilität auf, da die Spiegel einerseits bei $q < 10$ anstoßen und andererseits die viskose Farbstofflösung (Ethylenglykol) zwischen den Spiegeln eingebracht ist, sodass schnelle akustische Schwingungen effizient gedämpft werden. Die Basisplatte, auf welcher der Resonator montiert ist, ist über schwingungsdämpfende Sorbothan-Füße vom optischen Tisch entkoppelt.

Als Farbstoffe werden Rhodamin 6G (Hersteller: Radiant Dyes) und das Perylen-Derivat Fluoreszenzrot (Hersteller: Kremer Pigmente), welches im Folgenden als Perylen Rot bezeichnet wird [127, 128] verwendet, dargestellt in Abbildung 4.3. Die Fluoreszenz-Quantenausbeute von Rhodamin liegt bei $\Phi_{\text{Rh6G}} = 0.95$ [129] und

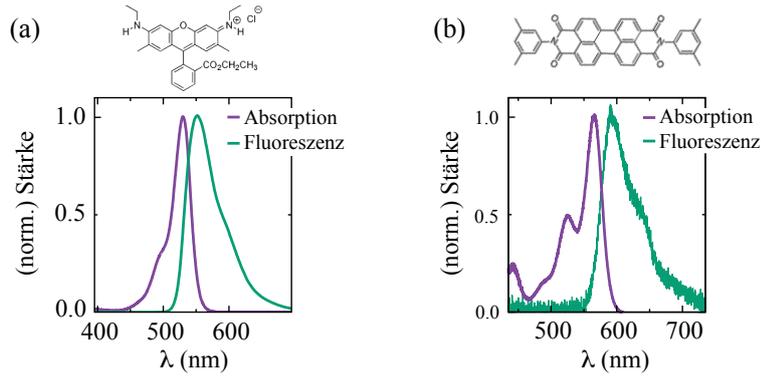


Abbildung 4.3: Normierte spektrale Absorptions- und Fluoreszenzstärken $\alpha(\lambda)/\alpha_{\max}$ und $f(\lambda)/f_{\max}$ im freien Raum für (a) Rhodamin 6G gelöst in Ethylenglykol und (b) Perylen Rot gelöst in dünnflüssigem Paraffinöl zusammen mit den jeweiligen Strukturformeln (oben).

die von Perylen Rot bei $\Phi_{\text{PDI}} = 0.96$ [130, 131]. Als Lösungsmittel für Rhodamin wird vorzugsweise Ethylenglykol mit einem Brechungsindex von $\tilde{n}_0 = 1.43$ eingesetzt, bei Perylen Rot wird dünnflüssiges Paraffinöl mit $\tilde{n}_0 = 1.48$ verwendet. Die Farbstofflösungen werden nach ihrer Herstellung einmalig durch einen Spritzenvorsatzfilter von $0.2 \mu\text{m}$ Porenstärke von ungelösten Rückständen bereinigt, um optische Streuverluste zu reduzieren. Die molare Masse von Rhodamin 6G beträgt $m_{\text{Rh6G}} = 479.02 \text{ g/Mol}$, die von Perylen Rot $m_{\text{PDI}} = 598.66 \text{ g/Mol}$. Es werden Farbstoffkonzentrationen zwischen 0.1 und 5 mMol/l verwendet. Die molare Absorptivität der Fluorophore bei $\lambda = 532 \text{ nm}$ beträgt $\varepsilon_{\text{Rh6G}} = 114\,000$ und $\varepsilon_{\text{PDI}} = 18\,000$, eine Größe, die über die Beziehung $\sigma = 3.82 \times 10^{-21} \varepsilon$ (in Einheiten von cm^2 [74]) mit dem Wirkungsquerschnitt für Absorption σ verknüpft ist, woraus sich $\sigma_{\text{Rh6G}} = 4.3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ und $\sigma_{\text{PDI}} = 6.9 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ ergibt. In einer 1 mMol/l konzentrierten Farbstofflösung wird ein Photon des grünen Spektralbereichs im Mittel nach einer Zeit $\tau_{\text{Rh6G}} = (n\sigma_{\text{Rh6G}}c)^{-1} = 0.13 \text{ ps}$ reabsorbiert, für den Perylenfarbstoff gilt analog $\tau_{\text{PDI}} = 0.8 \text{ ps}$. Wie in Kapitel 3 gezeigt, erwartet man Thermalisierungszeiten in der Größenordnung der Reabsorptionsdauer, sodass Farbstoffkonzentrationen von 0.1 mMol/l eingesetzt werden, um die Thermalisierungsdynamik zeitlich aufgelöst detektieren zu können. Die Null-Phononen-Linien der Farbstoffe liegen bei $\omega_{\text{ZPL}}^{\text{Rh6G}} = 2\pi c/(545 \text{ nm}) = 2\pi \times 550 \text{ THz}$ und $\omega_{\text{ZPL}}^{\text{PDI}} = 2\pi c/(585 \text{ nm}) = 2\pi \times 513 \text{ THz}$.

Pumpquelle

Zum optischen Pumpen des Farbstoffs in dem zeitaufgelösten Experiment wird ein modengekoppelter, frequenzverdoppelter Nd:YAG Puls laser (Typ: PL2201, Firma EKSP LA) verwendet. Bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ beträgt die Energie pro Puls $47 \mu\text{J}$, während ohne Frequenzverdopplung eine Emissionsenergie von $100 \mu\text{J}$ bei 1064 nm erreicht wird. Die Pulslänge beträgt 15 ps und die Repetitionsrate der Pulsemission lässt sich variabel zwischen 1 Hz und 1 kHz einstellen. Sowohl räumlich als auch zeitlich folgt das Intensitätsprofil der Laseremission ei-

ner Gaußverteilung. Um irreversibles Photobleichen der Farbstoffmoleküle als auch Anregung von molekularen Triplett-Zuständen hinreichend zu unterdrücken, wird im Experiment typischerweise eine Repetitionsrate von maximal 100 Hz verwendet. Der Strahlradius an der Ausgangsapertur beträgt 1.5 mm und die Strahldivergenz 1.5 mrad. Das Lasersystem wird als globaler Taktgeber für das Experiment eingesetzt. Es verfügt über einen Triggerausgang zur Taktung eines Pulsgenerators (Typ: DG 645, Firma Stanford Research Systems) und des restlichen Analyseapparats. Der Triggerausgang verfügt zudem über eine vorschaltbare Verzögerungsdauer zur Synchronisation von optischem und elektrischem Ankunftszeitpunkt am Detektor. Das zeitliche Rauschen des Signals liegt unter 100 ps. Um im Experiment Zeitauflösungen im Bereich weniger Pikosekunden zu erreichen, wird eine zeitliche Rauschkorrektur an der Streak-Kamera durch gleichzeitiges Aufnehmen des Pumpulses durchgeführt. Zur Angleichung der Ankunftszeit von Referenzpuls und untersuchtem Mikroresonator-Licht an der Streak-Kamera wird ein Teil des Pumpasers durch einen Strahlteiler in eine variable Zeitverzögerungstrecke geleitet und danach auf die Streak-Kamera fokussiert.

Analysesystem

Die zeitaufgelöste Analyse der spektralen und räumlichen Verteilung der Photonen wird mit einer Streak-Kamera durchgeführt. Die Emission der Mikroresonatorstrahlung folgt jeder gepulsten Anregung durch den Pumpaser. Das in der Resonatorebene entstandene, divergente Licht wird zunächst mit Hilfe eines 10-fach vergrößernden Mikroskopobjektivs mit weitem Arbeitsabstand von 33.5 mm (Typ: M-Plan Apo 10 \times , Firma Mitutoyo) kollimiert und dann in zwei Teilstrahlen aufgespalten. In dem ersten Pfad wird das Licht auf ein holographisches Beugungsgitter (600 Linien/mm) geleitet, welches das Licht wellenlängenabhängig unter verschiedenen Winkeln dispergiert. Danach bildet eine Linse die unterschiedlichen Winkel auf verschiedene Orte in der Brennebene ab, sodass dort das Spektrum der Mikroresonatorstrahlung detektiert werden kann. Die Brennebene ist auf den Eintrittsspalt der Streak-Kamera justiert, der eine Breite von 1.5 cm und eine variable Höhe von typischerweise 30 μm besitzt. Im zweiten optischen Pfad wird ein Teleskop verwendet, um ein räumliches Zwischenbild des Photonengases in einem drehbar montierten Dove-Prisma zu erzeugen, welches eine Rotation der (x, y) -Ortskoordinaten um die optische Achse erlaubt. Es wird für die in Abschnitt 4.4 behandelten räumlichen Messungen ohne Rotationssymmetrie eingesetzt, um die Oszillation eines optischen Wellenpakets in einer beliebigen Transversalachse $(\cos \alpha, \sin \alpha)$ auf den bei $\alpha = 0$ fixierten Eintrittsspalt der Streak-Kamera rotiert abzubilden. Hinter dem Teleskop befindet sich eine weitere Linse zur Abbildung der räumlichen Verteilung auf den Eintrittsspalt. Aufgrund der begrenzten Detektorfläche der Streak-Kamera erfolgt die Messung der spektralen und räumlichen Photonenverteilung nicht gleichzeitig.

Das Streak-Kamera System (Typ: C10910, Firma Hamamatsu), dargestellt in Abbildung 4.4, ist mit einer schnellen Hochspannungsrampe ausgestattet (*Fast single sweep unit*, Typ: M10912), welches die zeitaufgelöste Untersuchung des einfallenden

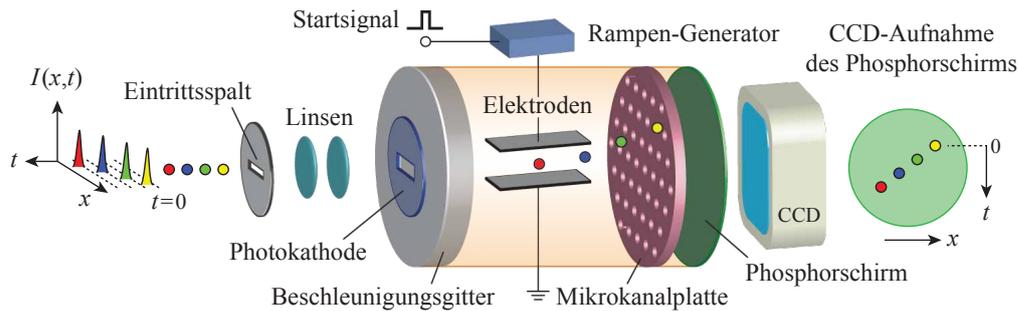


Abbildung 4.4: Schematischer Aufbau und Funktionsprinzip der Streak-Kamera nach [132]. Zu unterschiedlichen Zeiten t eintreffende Photonen werden an der Photokathode in einen Elektronenstrahl konvertiert, der abhängig vom Zeitpunkt unterschiedlich stark im gerampten, elektrischen Feld der Elektroden deflektiert wird. Nach der Elektronenvervielfachung in einer Mikrokanalplatte, wird die Phosphoreszenz mit Hilfe einer CCD-Kamera detektiert. Während die horizontale Achse Ortsinformation enthält, zeigt die vertikale Achse die Zeitentwicklung.

Lichts in Zeitfenstern von $\{50; 20; 10; 5; 2; 1\}$ ns sowie $\{500; 200; 100\}$ ps ermöglicht. Die Zeitauflösung liegt bei jeweils ca. 1% des gesamten Zeitbereichs; sie beträgt maximal somit 1 ps. Eine kontinuierliche Lichtmessung ist in der vorliegenden Konfiguration nicht möglich. Das eingestrahelte Licht passiert den horizontalen Eintrittsspalt und fällt auf eine Photokathode mit einer Quanteneffizienz von $\sim 6\%$ bei 580 nm, wo es durch den Photoeffekt freie Sekundärelektronen in einer Kathodenröhre produziert. Hierin werden die Elektronen einerseits durch ein konstantes elektrisches Feld in z -Richtung beschleunigt, andererseits durch Anlegen einer zeitlich durch den Trigger des Pulslasers ausgelösten, schnell ansteigenden Hochspannung auch transversal abgelenkt, ehe sie in einer Mikrokanalplatte mit einer Verstärkung von bis zu 10^4 vervielfacht werden. Im letzten Schritt fällt der verstärkte Elektronenstrahl auf einen Phosphorschirm, dessen Phosphoreszenz von einer aktiv gekühlten CCD Kamera (Typ: C9300-508, Firma Hamamatsu) mit einer Auflösung von 640×480 Pixeln aufgenommen, digitalisiert und auf einen Rechner übertragen wird. Die Quanteneffizienz des vollständigen Streak-Kamera Systems liegt bei etwa 1.5%. Die Datenerfassung erfolgt im Photonenzählmodus bei einer Aufnahmezeit von 60 Bildern/s. Dies hat den Vorteil, dass durch gleichzeitige Detektion der Emissionszeit des Laserpulses ein zeitliches Rauschen in der Pump- und Fluoreszenz-Emission von Schuss zu Schuss in der Größenordnung von 100 ps nachträglich korrigiert werden kann, was eine Optimierung der Zeitauflösung erlaubt.

4.2 Spektrale Thermalisierungsdynamik

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Untersuchungen der spektralen Thermalisierungsdynamik und -zeiten des Photonengases dargestellt. Die Messungen wer-

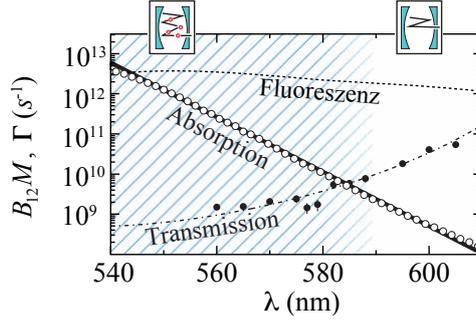


Abbildung 4.5: Vergleich der gemessenen Raten für Absorption $\hat{B}_{12}M$, Fluoreszenz und Verluste durch Spiegeltransmission Γ als Funktion der Wellenlänge. Das Fluoreszenzprofil (gestrichelte Linie, normiert auf das Maximum der Absorption) ist über den betrachteten Wellenlängenbereich nahezu konstant. Für $\lambda < 590$ nm wird die Photonendynamik durch die exponentiell abfallende Reabsorptionsrate dominiert (weiße Kreise), und ein thermischer Gleichgewichtszustand wird erwartet (blau schraffiert). Die durchgezogene Linie entspricht einer exponentiellen Anpassung an die Absorptionsrate $\propto \exp[hc(\lambda - \lambda_{ZPL})/k_B T]$ mit $T = 308(14)$ K. Verstärkte Spiegelverluste (Punkte, gepunktet-gestrichelte Linie [126]) im langwelligen Spektralbereich verursachen für eine Abschneidewellenlänge in diesem Spektralbereich eine dissipative Dynamik. (Rhodamin 6G bei Raumtemperatur, $\rho = 1$ mMol/l)

den für verschiedene Kopplungsstärken an das molekulare Wärmebad sowie verschiedene Verlustraten durch Spiegeltransmission durchgeführt. Da sowohl die Reabsorption als auch die Spiegeltransmission von der Wellenlänge des Lichts abhängen, lassen sich beide Parameter experimentell durch Variation der Abschneidewellenlänge $\lambda_c = \{601; 585; 577; 571\}$ nm verändern. Darüber hinaus kann die Reabsorptionsstärke durch die Farbstoffkonzentration $\rho = \{0.1; 1\}$ mMol/l eingestellt werden. Im Rahmen der in diesem Kapitel diskutierten Messungen wird ausschließlich Rhodamin 6G als Farbstoff verwendet. Abbildung 4.5 zeigt neben dem spektroskopisch bestimmten Verlauf der Absorptions- und Emissionsraten, auch die Verlustrate durch Spiegeltransmission. Während die Fluoreszenz im untersuchten Spektralbereich nahezu keine Abhängigkeit von der Wellenlänge aufweist, fällt die Absorptionsrate exponentiell mit zunehmenden Wellenlängen ab. Diese relative Skalierung der Absorptions- und Emissionsstärke erfüllt in guter Näherung das Kennard-Stepanov-Gesetz, siehe Gl. (2.10). Die Photonen-Verlustrate durch Spiegeltransmission wächst im roten Spektralbereich, sodass man nur für Abschneidewellenlängen unterhalb von 590 nm einen thermischen Gleichgewichtszustand innerhalb der Lebensdauer des Photongases erwarten kann. Für Abschneidewellenlängen größer als 590 nm verhindert Dissipation einen thermischen Zustand des Gases.

Den Ausgangspunkt der Messung bildet eine räumlich homogene Anregung des molekularen Mediums mit Hilfe eines aufgeweiteten, zentral positionierten Pumpstrahls von $500 \mu\text{m}$ Durchmesser. Durch diese Art der Anregung weist das Farbstoffmedium

keine Gradienten im Anregungsgrad auf und befindet sich zum Startzeitpunkt $t = 0$ im chemischen Gleichgewicht, sodass eine wohldefinierte Anfangsbedingung für die Messung realisiert ist. Abbildung 4.6(a) zeigt Streak-Kamera-Bilder mit gemessenen Zeitentwicklungen der spektralen Modenbesetzung für fünf Parametersätze, welche über eine Messdauer von jeweils 8-9 Stunden integriert wurden. Der Startpunkt $t = 0$ ist durch den Zeitpunkt festgelegt, an dem die ersten Fluoreszenzphotonen den Resonator verlassen, vergleiche mit der Gesamtphotonenzahl $N/N_c(t = 0)$ in Abbildung 4.6(d). In Abbildung 4.6(a) wurden die Rohdaten der Streak-Kamera Messung zeilenweise normiert, und die spektrale Leistung $P(\lambda, t)$ in linearer Skalierung und Falschfarben dargestellt. In den abgebildeten Messreihen wird die Reabsorptionsstärke durch entsprechende Änderung der Abschneidewellenlänge von links nach rechts vergrößert. Zur Auflösung der Thermalisierungsdynamik bedarf es einer entsprechenden Anpassung des Detektions-Zeitfensters. Die in Abbildung 4.6(b) halblogarithmisch gezeigten Spektren bei fortschreitenden Zeiten wurden aus (a) nach einer Gewichtung mit dem Spiegeltransmissionskoeffizienten extrahiert. Zur besseren Übersicht sind die Spektren gegeneinander vertikal verschoben dargestellt.

Aufgrund der Modenstruktur des Mikroresonators existiert eine Photonenbesetzung nur bei Wellenlängen unterhalb der Abschneidewellenlänge λ_c , welche dem transversalen Grundmoden (TEM₈₀₀) entspricht. Angeregte Transversalmoden, welche einen spektralen Abstand $\Lambda = 42$ pm ($\Omega/2\pi = 37$ GHz) besitzen, können mit dem verwendeten Beugungsgitter von 1 nm Auflösung nicht aufgelöst werden. Im analysierten Spektralbereich der Breite $\Delta\lambda = 25$ nm ($\Delta E = 3.5k_B T$) befindet sich ein Großteil aller Photonen des Gases. Die Gesamtzahl der Photonen in diesem Bereich ergibt sich zu:

$$\bar{N}_{\text{exp.}} \stackrel{(2.39)}{=} \int_0^{3.5k_B T} \frac{2(u/\hbar\Omega + 1)}{\exp[(u - \mu)/k_B T] - 1} du \approx 0.93 \cdot \bar{N} \quad (4.1)$$

Es wird entsprechend davon ausgegangen, dass sich anhand der vorliegenden Spektren eine verlässliche Aussage über den Grad der spektralen Thermalisierung des gesamten Photonengases treffen lässt. Die Leistung des Pumplasers wird so angepasst, dass am Ende des Detektionszeitraums die Ausprägung einer makroskopischen Grundzustandsbesetzung beginnt, wonach die asymptotische Photonenzahl gerade der kritischen Photonenzahl von $N_c \approx 90\,000$ Photonen entspricht. Durch Integration über die Verteilungen bei früheren Zeiten t sind somit die Gesamtphotonenzahl $N(t)$ und das zugehörige chemische Potential $\mu(t)$ zu beliebigen Zeitpunkten kalibriert und die Spektren können mit den korrespondierenden Bose-Einstein-Verteilungen im thermischen Gleichgewicht (durchgezogene Linien, Gl. (2.39)) verglichen werden.

Für einen Spektralbereich mit schwacher Farbstoffreabsorption und hohen Transmissionsverlusten, $\lambda_c = 601$ nm (Abb. 4.6, links), weicht die thermische Flanke (schraffiert) zu allen Zeitpunkten von der Gleichgewichtsverteilung ab und das Photonengas thermalisiert nicht während seiner Lebensdauer im Mikroresonator. Bei Erhöhung der absorptiven Kopplungsrate ans Molekülbad, $\lambda_c \geq 585$ nm, (Abbil-

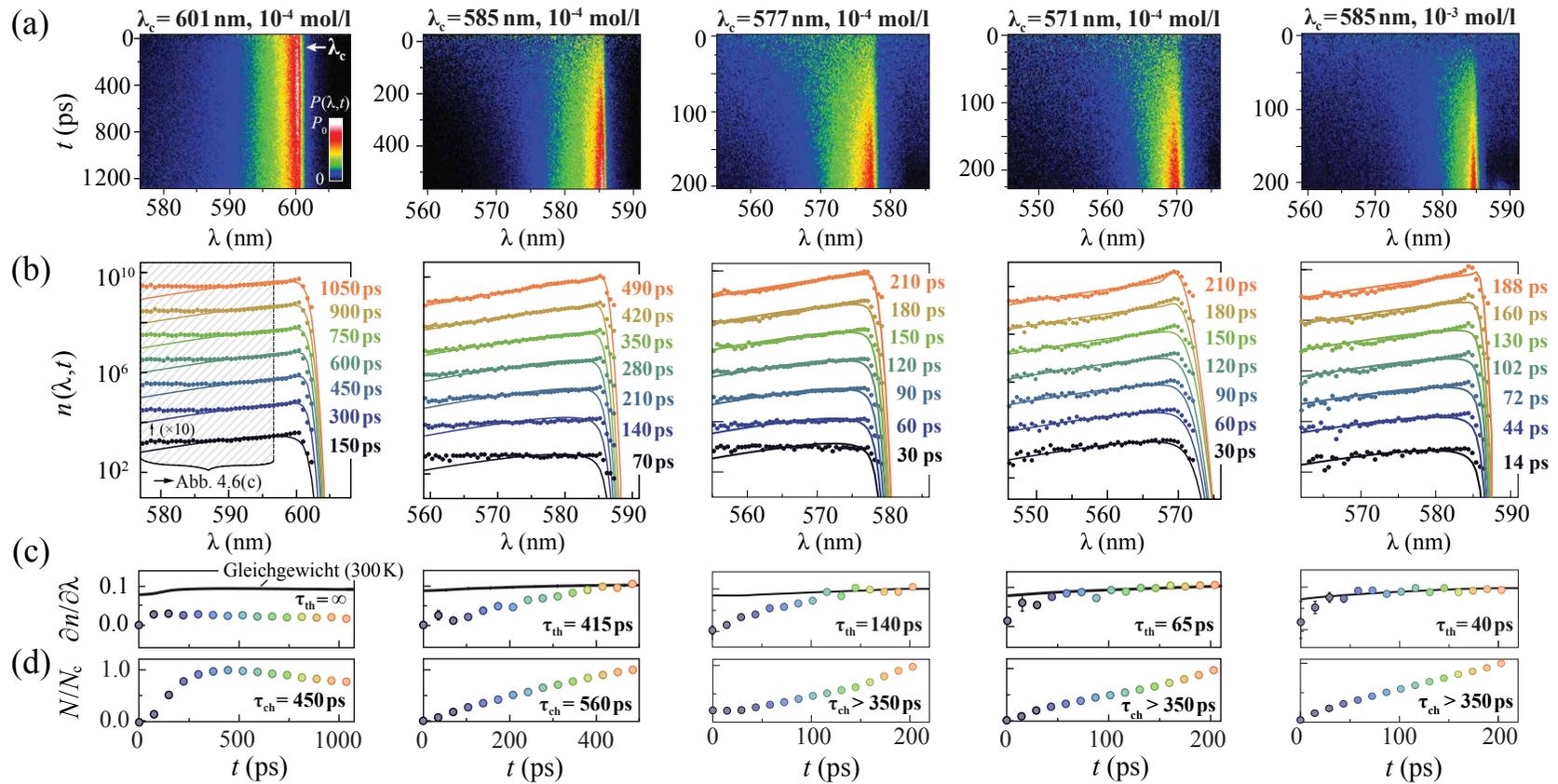


Abbildung 4.6: Thermalisierungsdynamik des Photonengases bei verstärkter Reservoirkopplung (von links nach rechts). (a) Streak-Kamera Bilder (zeilenweise normiert) zeigen den Zeitverlauf der spektralen Photonverteilung. (b) Aus (a) extrahierte Spektren zu verschiedenen Zeiten (Punkte) mit 300 K-Bose-Einstein-Verteilungen von entsprechendem chemischen Potential (durchgezogene Linien). Der Anstieg der thermischen Flanke (schraffiert) erlaubt eine Quantifizierung der Thermalisierungszeit durch den (c) gemessenen spektralen Anstieg (Punkte) im Vergleich zum Gleichgewichtswert (Linie). Die Thermalisierungszeiten nehmen von links nach rechts durch verstärkten Kontakt ans Wärmebad ab. (d) Die auf N_c normierte, emittierte Gesamtleistung gibt die Zeitskala für chemische Equilibrierung zwischen Photonen und Farbstoffanregungen.

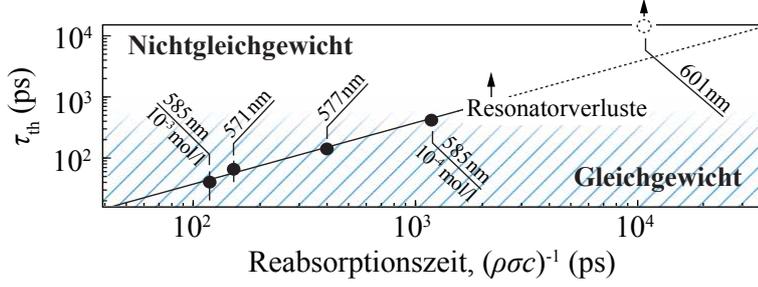


Abbildung 4.7: Experimentell beobachtete Thermalisierungszeit τ_{th} (Punkte) gegen Reabsorptionszeit in der Farbstofflösung. Für $\tau_{\text{th}} < \tau_{\text{res}}$ erreicht das Photonengas einen thermischen Gleichgewichtszustand (blau), andernfalls existiert ein Nichtgleichgewichtsgas im Mikroresonator.

Abbildung 4.6, 2.-5. Spalte) beobachtet man ein Fortschreiten der Thermalisierung, und nach der Thermalisierungszeit τ_{th} zeigt die Population in den angeregten Zuständen den Anstieg einer Raumtemperatur-Verteilung. Die Thermalisierungszeit lässt sich durch die Steigung $\partial n(\lambda, t)/\partial \lambda$ der spektralen Flanke quantifizieren, wie in Abbildung 4.6(c) gezeigt. Falls das Photonengas thermalisiert, nähern sich die spektralen Steigungen (Punkte) im Laufe der Zeit der Steigung der Gleichgewichtsverteilung (durchgezogene Linie). Die angegebenen Werte für die Thermalisierungszeiten $\tau_{\text{th}} = \{415; 140; 65; 40\}$ ps resultieren aus den Zeitpunkten, an denen die Abweichung zwischen gemessener und theoretischer Gleichgewichtssteigung weniger als 1% beträgt. Abbildung 4.6(d) zeigt die Zeitentwicklung der aus dem Resonator ausgekoppelten Gesamtleistung, welche solange anwächst, bis sich ein chemisches Gleichgewicht zwischen Photonen und Farbstoffmolekülen eingestellt und die Besetzungszahl in jedem Zustand ihren stationären Wert angenommen hat. Die Zeitskala für thermische Equilibrierung stimmt im Allgemeinen nicht mit der chemischen Relaxationsrate überein, wie am Ende von Abschnitt 3.2 diskutiert. Letztere wird durch das Verhältnis von spontaner und stimulierter Emission kontrolliert. Auch wenn die Gesamtphotonenzahl noch nicht ihren stationären Wert erreicht hat, können die im Mikroresonator enthaltenen Photonen bereits thermisch verteilt sein.

In Abbildung 4.7 sind die gemessenen Thermalisierungszeiten gegen die Absorptionszeit $(\rho\sigma(\lambda)c)^{-1}$ aufgetragen. Die Datenpunkte folgen der linearen Skalierung

$$\tau_{\text{th}} = 0.37(5) \cdot (\rho\sigma(\lambda)c)^{-1}. \quad (4.2)$$

Die Skalierung der Zeiten τ_{th} demonstriert, dass das Photonengas durch thermischen Kontakt zum Wärmebad aus Farbstoffmolekülen ins thermische Gleichgewicht relaxiert und eine verstärkte reabsorptive Kopplung die Thermalisierungsdynamik beschleunigt. Die Photonen thermalisieren damit so schnell, wie sie reabsorbiert werden. Kommt es innerhalb der Lebensdauer des Photonengases im Resonator zur Thermalisierung, $\tau_{\text{th}} < \tau_{\text{res}} \approx 500$ ps, so stellen sich Gleichgewichtsbedingungen ein (blau schraffiert). Andernfalls, siehe den Datenpunkt für eine Abschneidewellenlänge von 601 nm, müssen die Photonen als Gas im Nichtgleichgewicht angesehen werden.

4.3 Dynamik der Bose-Einstein-Kondensation

Die in Abschnitt 4.2 diskutierten Experimente zur Thermalisierungsdynamik des Photonengases erfolgten bei Gesamtphotonenzahlen unterhalb der kritischen Teilchenzahl, sowie stets ausgehend von einem räumlich homogenen Anregungsgrad des molekularen Mediums. In diesem Abschnitt werden Messungen der zeitlichen Entwicklung der spektralen Photonen-Verteilung dargestellt, die sich auf eine (i) räumlich inhomogene und (ii) stark invertierende Anregung des Farbstoffs (Konzentration $\rho = 0.25$ mMol/l) folgend ereignet. Wie zuvor wird die Dynamik für verschiedene Kopplungsstärken an das molekulare Wärmebad $\rho\sigma(\lambda)c$ und Resonator-Verlusten $\Gamma(\lambda)$ untersucht. Experimentell wird dies durch Variation der Abschneidewellenlänge des Resonators λ_c erreicht (vgl. Abschnitt 4.2). Im dissipativen Bereich ($\Gamma(\lambda) > \rho\sigma(\lambda)c$) resultiert der Nichtgleichgewichtszustand des Mediums in einem Vielmoden-Laserbetrieb, während das Photonengas für $\Gamma(\lambda) < \rho\sigma(\lambda)c$ thermisches Gleichgewicht erreicht und ein Bose-Einstein-Kondensat bildet.

Abbildung 4.8(a) zeigt das Schema der experimentellen Realisierung von Startbedingungen fern des Gleichgewichts. Der Pumpstrahl wird mit einem Durchmesser von $d_0 = 80$ μm auf einen Transversalpunkt ($x = \Delta x, y = 0$) im Abstand $\Delta x = 150$ μm von der optischen Achse ($x = 0, y = 0$) in die Resonatorebene fokussiert, was eine räumlich inhomogene Dichte von gepumpten Farbstoffmolekülen $\rho_{\uparrow}(x)$ bewirkt. Infolge des lokalisierten Pumpprozesses relaxieren die angeregten Moleküle zunächst unter Spontanemission von Photonen in transversal hoch angeregte Resonatormoden, die einen maximalen räumlichen Überlapp mit der Pumpregion aufweisen. Diese angeregten Eigenzustände des harmonischen Oszillatorpotentials besitzen eine höhere Energie (niedrigere Wellenlänge) als der transversale Grundzustand mit $\hbar\omega_c(\lambda_c)$. Ein diffusiver, chemischer Ausgleich der Moleküldichten in Grund- und angeregtem Zustand vor der Lichtemission wird wegen der verhältnismäßig langsamen Diffusion der Moleküle im Lösungsmittel nicht erwartet [133].

Nach den ersten Emissionsprozessen hängt die Dynamik des Photonengases im Resonator maßgeblich von der Reabsorptionsstärke durch das Molekülreservoir sowie den Resonatorverlusten durch Spiegeltransmission ab. Die erste Teilabbildung in Abbildung 4.8(b) zeigt die spektrale Zeitentwicklung eines Photonengases im schwach reabsorbierenden, roten Spektralbereich mit $\lambda_c = 603$ nm. Die Streak-Kamera Bilder wurden zeilenweise (in Richtung der Zeit-Achse) normiert, um relative Umverteilungen der spektralen Besetzungszahlen besser sichtbar zu machen. Die freie Reabsorptionsdauer von $(\rho\sigma(\lambda_c)c)^{-1} = 5.8$ ns und die nach Gl. (4.2) zugehörige Thermalisierungszeit $\tau_{\text{th}} = 2.3$ ns überschreiten hier deutlich die Speicherungszeit eines Photons im Resonator $\tau_{\text{res}}(\lambda_c) = 18$ ps, sodass eine Redistribution der Photonen zu einer Gleichgewichtsverteilung unerreicht bleibt. Vielmehr führt die optische Rückkopplung der Photonen auf das invertierte Medium im Mikroresonator zur stimulierten Verstärkung des Lichtfeldes in den angeregten Moden im Wellenlängenbereich um $\lambda_{\text{max}} = 595.7$ nm nach etwa 100 ps. Die Maximalstelle der Nichtgleichgewichts-

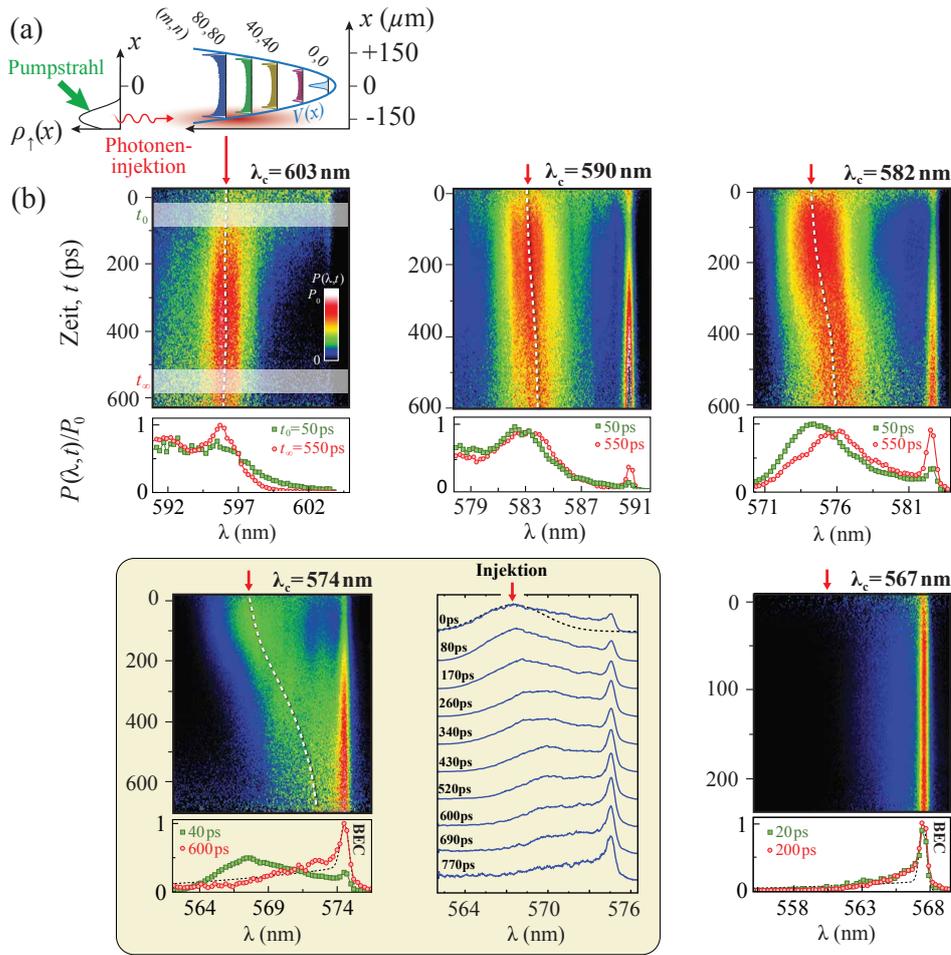


Abbildung 4.8: Zeitliche Entwicklung der spektralen Verteilung ausgehend von einer Nichtgleichgewichts-Anregung abseits des harmonischen Potentialminimums $V(x = 0)$ für fünf verschiedene Thermalisierungsraten. (a) Der intensive Lichtpuls regt lokalisiert Moleküle $\rho_1(x)$ an, welche unter stimulierter Emission von Photonen in die mit der Region überlappenden, hoch angeregten Transversalmoden zerfallen. (b) Streak-Kamera Aufnahmen (oben) und daraus extrahierte Spektren kurz nach der Photoneninjektion (unten, grüne Quadrate) und am Ende des Detektionsfensters (rote Kreise). Bei schwacher Kopplung ans Reservoir, $\lambda_c = 603$ nm, wird keine Thermalisierung der Photonen beobachtet. Für verstärkte Reabsorption, $\lambda_c = \{590; 582\}$ nm, relaxiert das Maximum der Photonemission partiell zu größeren Wellenlängen (weiß gestrichelte Linie), und für $\lambda_c = \{574; 567\}$ nm wird das Nichtgleichgewichtsgas vollständig zu einer thermischen, bimodalen Bose-Einstein-Verteilung umverteilt. In der hinterlegten Teilabbildung ist die spektrale Entwicklung im Übergangsbereich für $\lambda_c = 574$ nm gezeigt. (Parameter: $\rho = 0.25$ mMol/l, $\tau_{\text{th}} = \{2\,300; 388; 124; 38; 13\}$ ps, $1/e$ -Resonatorlebensdauer $\tau_{\text{res}} = \{18; 83; 165; 303; 500\}$ ps)

Verteilung (gestrichelte Linie) behält dabei über den gesamten Detektionszeitraum ihren Wert bei. Im Abstand $r = \Delta x$ vom Fallenzentrum weicht die Wellenlänge der Photonen nach Gl. (2.23) von der Abschneidewellenlänge ab:

$$\Delta\lambda(r) = \lambda_c - \lambda(r) = \frac{2n}{q} \frac{r^2}{R} \quad (4.3)$$

Bei $r = 150 \mu\text{m}$ entspricht dies einem um 8 nm unterhalb der Abschneidewellenlänge verschobenen spektralen Emissionsmaximum, in guter Übereinstimmung mit dem gemessenen spektralen Abstand von 7.3 nm.

In weiteren Messungen, wie in Abbildung 4.8(b) dargestellt, wird die Kopplung an das Molekülbad durch Verringern der Abschneidewellenlänge λ_c sukzessive vergrößert und eine immer rascher auftretende, spektrale Umverteilung der Photonen mit fortschreitender Zeit beobachtet. In diesem Spektralbereich werden Photonen infolge ihrer Emission wieder in das Farbstoffmedium reabsorbiert, was zu einem chemischen Ausgleich der Dichtegradienten von Grund- und elektronisch angeregten Molekülen führt. Durch die Anwesenheit des harmonischen Fallenpotentials erfolgt dieser licht-induzierte Diffusionsprozess überwiegend gerichtet in Transversalmoden, die eine geringere Energie besitzen als Moden, die mit der Region des Pumpstrahls überlappen. Insbesondere kommt es zu einer makroskopischen Besetzung des Grundzustandes, und für sowohl $\lambda_c = 574 \text{ nm}$ (Abbildung 4.8(b), Box links unten) als auch $\lambda_c = 567 \text{ nm}$ (Abbildung 4.8(b), rechts unten) bildet sich innerhalb der Lebensdauer des Photonengases ein Bose-Einstein-Kondensat mit thermisch besetzten angeregten Zuständen heraus. Für $\lambda_c = 567 \text{ nm}$ geschieht die Thermalisierung der injizierten Anregungen derart schnell, dass keine Nichtgleichgewichtsemission innerhalb der Detektorauflösung gemessen werden kann.

Alle in Abbildung 4.8 gezeigten Messungen erfolgten bei identischer Pumpstrahlgeometrie und zeigen eine gute Übereinstimmung mit den im Anhang A.1 behandelten numerischen Simulationen der spektralen Photonendynamik bei Farbstoffanregung abseits des Potentialminimums. Die hier gewonnenen Resultate weisen darauf hin, dass stimulierte optische Verstärkung durch Rückkopplung, was als Vielmoden-Laservorgang interpretiert werden kann, durch verstärkten Energieaustausch des Photonengases mit einem inkohärenten Wärmebad unterdrückt wird. Das zweidimensionale, harmonisch gefangene Photonengas im thermischen Kontakt mit einem räumlich homogenen Wärmebad formiert sich oberhalb der kritischen Teilchenzahl stets als Bose-Einstein-Kondensat mit einer makroskopischen Besetzung des energetisch niedrigsten verfügbaren Eigenzustandes. Die Photonenkinetik zeigt im Falle einer räumlich inhomogenen Pumpverteilung des molekularen Anregungsgrades im Gegensatz zu den in Abschnitt 4.2 diskutierten, homogenen Anfangsbedingungen keine universelle Thermalisierungsdynamik, sondern die Thermalisierungszeit ist maßgeblich durch die anfängliche Pumpverteilung mitbestimmt - eine Beobachtung, die auch durch numerische Simulationen (Anhang A.1) bestätigt wird.

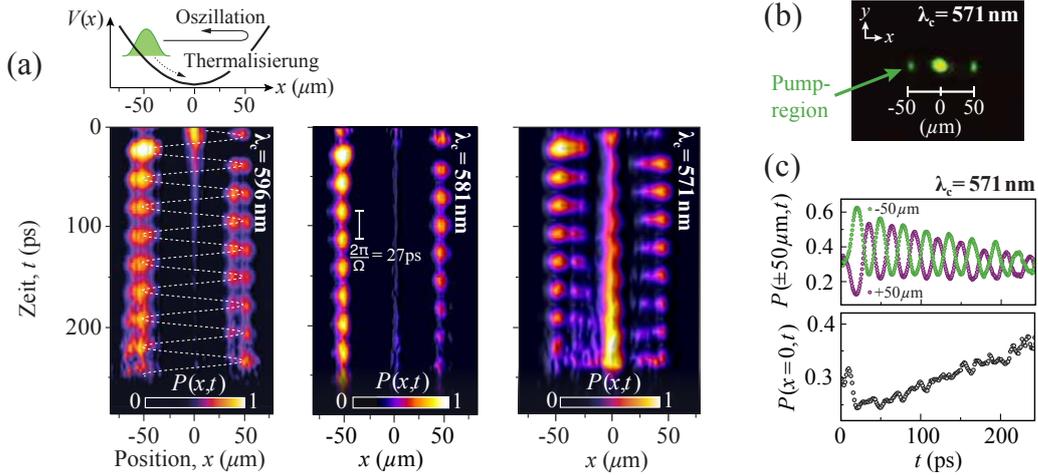


Abbildung 4.9: Modengekoppelter Laserbetrieb und Bose-Einstein-Kondensation von Photonen. (a) Streak-Kamera-Aufnahmen der Zeitentwicklung des räumlichen Profils der Photonenemission aus dem Mikroresonator (zeilenweise normiert) für drei verschiedene Werte der Abschneidewellenlänge. Der Pumpstrahl ($d_0 \simeq 27 \mu\text{m}$, $\Delta x \simeq 50 \mu\text{m}$) regt ein oszillierendes Wellenpaket im harmonischen Fallenpotential an (oben). Bei schwacher Farbstoff-Reabsorption (links) wird eine unabgeschwächte, modengekoppelte Laseroszillation beobachtet (gestrichelte Linie), wobei der Großteil des Lichts an den Umkehrpunkten aus dem Resonator ausgekoppelt wird. Bei verstärkter Reabsorption (Mitte und rechts) thermalisieren die Photonen und ein Kondensat bildet sich im Fallenzentrum. (b) Digitalkamera-Bild der Resonatoremmission. (c) Zeitliche Variation der detektierten relativen Intensität aus (a, rechts) an den Umkehrpunkten (oben) und in dem Kondensatmoden (unten). (Parameter: $\rho = 0.1 \text{ mMol/l}$, $\lambda_c = \{596; 581; 571\} \text{ nm}$)

4.4 Messung der räumlichen Photonenkinetik

Wie bereits in Abschnitt 2.3 gesehen, findet die Bose-Einstein-Kondensation aufgrund der Anwesenheit des harmonischen Fallenpotentials nicht nur im Impuls- sondern auch im Ortsraum statt. Im Folgenden soll daher die räumliche Kondensationsdynamik des Photonengases untersucht werden. Zur Untersuchung der räumlichen Dynamik des Photonengases infolge einer lokalen Inversion des Farbstoffmediums (Konzentration $\rho = 1 \text{ mMol/l}$) wird - ähnlich wie im vorherigen Abschnitt - ein stark fokussierter Pumpstrahl ($d_0 \simeq 27 \mu\text{m}$) abseits des Fallenzentrums ($\Delta x \simeq 50 \mu\text{m}$) eingestrahlt. Zur Analyse der räumlichen Intensitätsverteilung der Photonen wird die Resonatorebene auf den Eintrittsspalt der Streak-Kamera abgebildet, siehe Abbildung 4.1. Zuvor wird das Lichtbündel durch ein Dove-Prisma (Typ: PS992M-A, Firma Thorlabs) geführt, wodurch die Abbildung bei Bedarf in der Transversalebene (um die z -Achse) rotiert werden kann.

Eine typische Digitalkameraaufnahme der aus dem Resonator ausgekoppelten Fluoreszenz (Abbildung 4.9(b)) zeigt neben dem optischen Signal im Fallenzentrum ($x = 0, y = 0$) zwei weitere, helle Emissionspunkte: einerseits in der Region der Pumpstrahlanregung ($-50\mu\text{m}, 0$), andererseits auch bei der um das Fallenzentrum gespiegelten Position ($50\mu\text{m}, 0$). Experimentell wird bei Veränderung der Pumpstrahlposition für beliebige Koordinaten (x, y) beobachtet, dass einer der beiden Emissionspunkte dem Pumpstrahl folgt, während der andere das um den Punkt $(0, 0)$ gespiegelte Verhalten aufweist. Die in Abbildung 4.9(a) dargestellten Streak-Kamera-Aufnahmen (falschfarben, zeilenweise normiert) zeigen die Intensitätsverteilung entlang der x -Achse als Funktion der Zeit und geben Aufschluss über die Ursache der beobachteten, um das Fallenzentrum gespiegelten Emission: nach der inhomogenen Farbstoffanregung durch dem Pumpimpuls formiert sich ein optisches Wellenpaket, welches im harmonischen Fallenzentrum oszilliert. Die gespiegelte Emission ist somit durch die Position des rückwärtigen Umkehrpunkts des Wellenpakets gegeben. Die gemessene Oszillationsperiode $T = 27$ ps zeigt eine hervorragende Übereinstimmung mit der theoretisch erwarteten inversen Fallenzentrumfrequenz $2\pi/\Omega \simeq (37.1 \text{ GHz})^{-1}$ (vgl. Tabelle 2.1). Die Formation des Wellenpakets innerhalb weniger Pikosekunden passiert deutlich schneller als die spontane Zerfallszeit eines elektronisch angeregten Rhodamin-Moleküls $\tau_{\text{sp}} \simeq 4$ ns und basiert folglich auf stimulierten Emissionsprozessen, welche die Phase des optischen Feldes erhalten. Resonatormoden, deren Umkehrpunkte in der Nähe der Pumpregion liegen, erfahren wegen ihres räumlichen Überlapps mit der invertierten Farbstoffregion maximale Verstärkung. Die zeitliche Dynamik des Wellenpakets kann nicht durch einzelne stationäre Eigenzustände des zeitunabhängigen Hamilton-Operators beschrieben werden. Sie lässt sich jedoch als kohärente Superposition benachbarter Eigenzustände mit Energieabstand $\hbar\Omega$ erklären, deren Relativphasen konstant sind, in Analogie zu einem modengekoppelten Puls laser mit extrem hoher Wiederholrate. Ein Großteil der im Wellenpaket gespeicherten Photonen verlässt den Resonator an den Umkehrpunkten der Schwingung, wo die Geschwindigkeit des Wellenpakets - klassisch gesprochen - minimal wird und das Licht somit eine erhöhte Auskoppelwahrscheinlichkeit pro Strecke erfährt. Quantenmechanisch lässt sich diese erhöhte Transmission auf die konstruktive Interferenz zwischen den Wellenfunktionen des harmonischen Oszillators zurückführen, siehe Gl. (2.32).

Die Messung der räumlichen Photonenkinetik im Bereich schwacher Reabsorption und hoher Resonatorverluste, siehe Abbildung 4.9(a) für $\lambda_c = 596$ nm (links), offenbart über das gesamte Detektionsfenster von 250 ps eine ungestörte modengekoppelte Photonenemission aus dem angeregten, kohärenten Superpositionszustand. Der nicht-verschwindende räumliche Überlapp zwischen den äußeren Bereichen der Pumpregion und der lateralen Ausdehnung des Grundmoden um $x = 0$ führt auch dort zu einer schwachen Photonenpopulation, die im Laufe der Zeit jedoch wegen der hier großen Resonatorverluste schnell abklingt. Ein anderes Verhalten zeigt sich, wenn durch Verringerung der Abschneidewellenlänge zu $\lambda_c = 581$ nm und 571 nm (mittlere und rechte Aufnahme in Abbildung 4.9(a)) ein verstärkter thermischer Kontakt

an das Farbstoffreservoir hergestellt wird. Die Photonen durchqueren bei ihrer Oszillation das eingeschlossene Farbstoffvolumen im Bereich $[-50\mu\text{m}, 50\mu\text{m}]$, wobei der zunächst inhomogene molekulare Anregungsgrad des Mediums $\rho_{\uparrow}/\rho_{\downarrow}(x)$ durch vermehrte Reabsorptionsprozesse ausgeglichen wird, siehe Abbildung A.1 im Anhang. Mit fortschreitender Zeit kommt es zu einer dynamischen Umverteilung der relativen Population vom laserartigen Wellenpaket zu einem Bose-Einstein-Kondensat in dem transversalen Grundmoden. Die Dämpfung der zeitabhängigen, kohärenten Oszillation und das Anwachsen der Grundzustandspopulation in der Anwesenheit eines thermischen Wärmebades wird in Abbildung 4.9(c) sichtbar. Numerische Simulationen der Photonenkinetik zeigen eine qualitative Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten [76], wie im Anhang A.1 näher erläutert wird.

Die beschriebenen experimentellen Beobachtungen der Photonendynamik demonstrieren, dass die Thermalisierung der Photonen im Mikroresonator durch die Kopplung an ein molekulares Wärmebad hervorgerufen wird. Thermisches Gleichgewicht ist eine notwendige Voraussetzung für die Ausprägung eines Bose-Einstein-Kondensats. Insbesondere kann die Effizienz des thermischen Kontakts, d.h. die Thermalisierungsrate, systematisch durch die optische Dichte des Farbstoffmediums kontrolliert werden. Im Sinne des kanonischen und großkanonischen statistischen Ensembles, vgl. mit Abschnitt 1.3, wird die Temperatur der Farbstofflösung somit zu einem extern vorgegebenen Systemparameter für das Photonengas.

Kapitel 5

Experimente zur Statistik kondensierter Photonen

5.1 Apparativer Aufbau

Im vorliegenden Kapitel werden die experimentellen Resultate von Messungen zur Photonenzahlstatistik und Korrelationsfunktion zweiter Ordnung in photonischen Bose-Einstein-Kondensaten präsentiert. Das Photonengas wird an unterschiedlich große molekulare Teilchenreservoirs gekoppelt, wodurch sowohl kanonische als auch großkanonische statistische Bedingungen realisiert werden können. In Abschnitt 3.3 wurde diskutiert, dass sich die statistische Physik des Quantengases dann in unterschiedlich starken Teilchenzahlfuktuationen manifestiert: während im Grenzfall kleiner Reservoirs (kanonisch) die Photonenzahl-Statistik einer Poisson-Verteilung folgt und relative Fluktuationen gedämpft sind, $\Delta n/\bar{n} = 1/\sqrt{\bar{n}} \approx 0$ für $\bar{n} \gg 1$, zeigen Kondensate in der Gegenwart von großen Teilchenreservoirs (großkanonisch) relative Teilchenzahlfuktuationen von der Größenordnung der mittleren Besetzungszahl, $\Delta n/\bar{n} = 1$ ebenfalls für $\bar{n} \gg 1$. Die Messung der Photonen-Korrelationen erfolgt mit Hilfe eines Hanbury Brown-Twiss-Interferometers (vgl. Abschnitt 1.2.2) [37, 43], während zur zeitaufgelösten Detektion der Fluktuationen und Statistik ein Photovervielfacher (PMT) herangezogen wird. In allen Messungen weisen Bose-Einstein-verteilte Spektren der Mikroresonatorstrahlung darauf hin, dass die Kopplung an das Wärmebad bei $T = 300$ K stets gegeben ist.

Abbildung 5.1 zeigt den schematischen Aufbau des Experiments. Im Vergleich zu dem im vorherigen Kapitel diskutierten Aufbau kommt eine andere Pumpquelle und ein abgeändertes Analysesystem zum Einsatz, wie im Folgenden erläutert wird. Analog zu Kapitel 4 wird derselbe Mikroresonator bei einer longitudinalen Wellenzahl von $q = 8$ verwendet, was bei $\lambda_c = 580$ nm einem Spiegelabstand $D_0 \simeq 1.62 \mu\text{m}$ entspricht. Als Farbstofflösung wird bei diesen Messreihen neben Rhodamin 6G in Ethylenglykol nun auch alternativ Perylen Rot in dünnflüssigem Paraffinöl bei variierenden Farbstoffkonzentrationen zwischen den Resonatorspiegeln eingebracht.

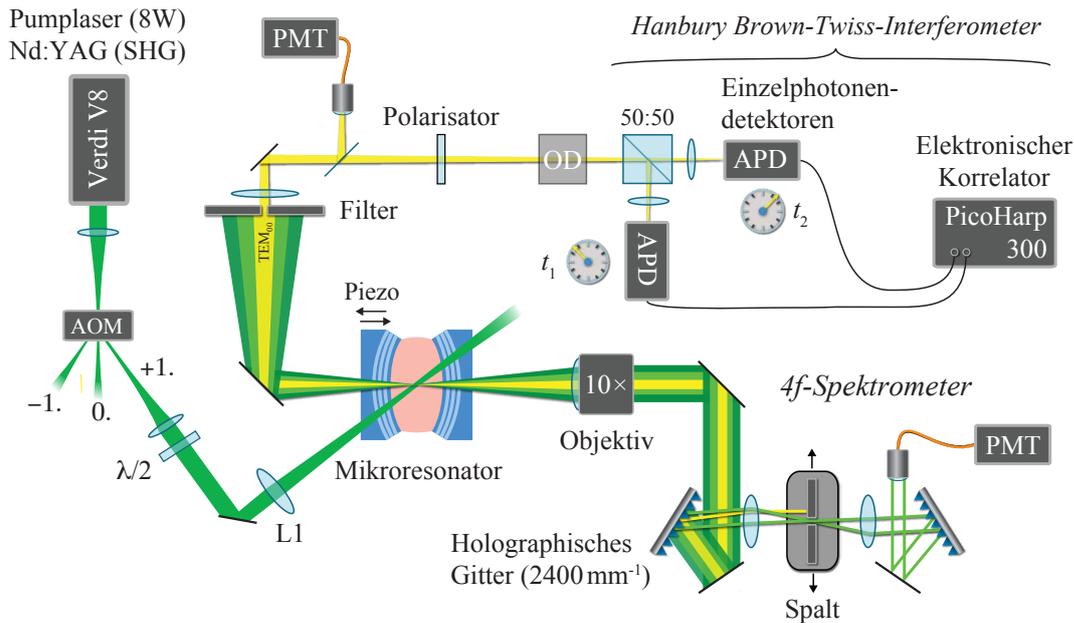


Abbildung 5.1: Schematischer Aufbau zur zeitaufgelösten Messung der Korrelationen, Photonenzahlstatistik und -fluktuationen im Grundzustand des Bose-Einstein-kondensierten Photonengases. Der Mikroresonator wird quasi-kontinuierlich gepumpt, und das durch einen Resonatorspiegel transmittierte Licht spektral analysiert. Die entgegengesetzte Emission im transversalen Grundmoden passiert im Fernfeld mehrere Modenfilter und wird in einem Hanbury Brown-Twiss-Interferometer detektiert.

Pumpquelle

Das optische Medium wird mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser (Typ: Verdi V8, Firma Coherent) gepumpt, der bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ eine maximale Ausgangsleistung von $P_{\text{pump}} = 8 \text{ W}$ emittiert. Zum schnellen Schalten des Strahls wird ein akusto-optischer Modulator (AOM) eingesetzt, der mit einer Beugungseffizienz von 85% eine Intensitätsmodulation des Pumplichts zu 200 ns langen Pulsen bei einer Wiederholrate von 200 Hz erlaubt. Die Dunkelzeit ist einerseits notwendig, um die elektronische Anregung von unerwünscht langlebigen Farbstoff-Triplett-Zuständen zu minimieren, andererseits lässt sich der mittlere Besetzungsgrad des Bose-Einstein-Kondensats durch einen geeigneten Zeitverlauf der Pumpstrahlintensität über die gesamte Pulsdauer nahezu konstant halten (Abbildung 5.2(a)). Dazu wird das in den AOM eingekoppelte Radiofrequenzsignal mit einem arbiträren, vorzugsweise zeitlich ansteigendem Spannungspuls gemischt, der durch einen Funktionsgenerator (Typ: AFG3252, Firma Tektronix, 240 MHz Bandbreite) erzeugt wird. Die Amplitude des Radiofrequenzsignals wird außerdem über einen spannungsgesteuerten variablen Abschwächer angepasst, was der aktiven Stabilisierung der Kondensatleistung über einen computergesteuerten Regelkreis (10 Hz Regelbandbreite) dient. Ein Teil der Leistung im Kondensatmoden wird dazu mit

einem Photovervielfacher detektiert und zur Weiterverarbeitung im Computer über eine Sampling-Karte (Typ: PCIe-6320 & BNC-2111, Firma National Instruments) digitalisiert.

Der Pumpstrahl wird über die Linse L1 (Abbildung 5.1) mit $f_{L1} = 40$ cm Brennweite auf einen Durchmesser von $d_0 \approx 150 \mu\text{m}$ in die Mikroresonatorebene fokussiert, was im Resonator zur Ausbildung eines zweidimensionalen Photonengases führt. Die Pumpleistung bestimmt den Anregungsgrad des Farbstoffmediums, und damit auch das chemische Potential und die Zahl der im Resonator gespeicherten Photonen. Letzteres bestimmt außerdem den Kondensatanteil \bar{n}_0/\bar{N} . Durch kontinuierliches Einstrahlen des Pumplichts über die gesamte Pulsdauer von 200 ns werden Verluste aus dem Farbstoff-Mikroresonator-System kompensiert und der molekulare Anregungsgrad aufrechterhalten.

Analysesystem

Spektrometer. Um den Kondensatanteil \bar{n}_0/\bar{N} und die reduzierte Temperatur T/T_c zu bestimmen, wird die mittlere Energieverteilung der Photonen, vergleiche mit Gl. (2.39) und Abbildung 5.3(a), spektroskopisch gemessen. Dazu wird das durch einen Resonatorspiegel transmittierte Licht kollimiert und in einen $4f$ -Aufbau geführt, der aus zwei holographischen Gittern (2400 Striche/mm) und zwei Linsen mit $f = 10$ cm Brennweite aufgebaut ist. Diese Anordnung Fourier-transformiert die einfallende, räumliche Photonverteilung in Raumfrequenzen in der Brennebene, welche durch Abtasten mit einem elektronisch positionierbaren Spalt selektiert werden können. Das zweite, symmetrisch angeordnete Gitter sorgt für eine Rücktransformation des transmittierten Lichts in den Ortsraum, wo es in einer optischen Vielmodenfaser auf einen Detektor transportiert wird. Auf diese Weise lassen sich auch geringe Photonbesetzungen mit einem empfindlichen Photovervielfacher (Typ: H10721-210, Firma Hamamatsu) detektieren. Die Auflösung des Spektrometers beträgt $\Delta\lambda = 0.5$ nm, weshalb benachbarte Transversalmoden mit einem Abstand von $\Delta\lambda \simeq 41$ pm spektral nicht getrennt werden können. Zur Verifizierung der ausschließlichen makroskopischen Besetzung des transversalen Grundzustandes wird daher ein Doppelmonochromator (Typ: Demon, Firma Lasertechnik Berlin) mit 6 pm Auflösung eingesetzt (siehe die Teilabbildung in Abbildung 5.3(a) und 5.4).

Hanbury Brown-Twiss-Interferometer. Die Intensitätskorrelationen der kondensierten Photonen werden mit einem Hanbury Brown-Twiss-Experiment aufgenommen, wie in Abbildung 5.1 dargestellt. Um den Kondensatmoden von den höheren Transversalmoden zu separieren, wird die durch den linken Spiegel transmittierte, divergente Resonatorstrahlung im Fernfeld durch einen Fourier-Filter (kreisförmige Apertur von 0.5 cm Durchmesser im Abstand von 85 cm zum Resonator) geführt¹.

¹Interessanterweise verhält sich die freie und divergente Propagation des Photonengases äquivalent zur freien Expansion eines harmonisch gefangenen atomaren Gases, was in Experimenten mit atomaren Gasen zur orts aufgelösten Bestimmung (in der „Fourier-Ebene“) der ursprünglichen Impulsverteilung der Gasteilchen genutzt wird [25].

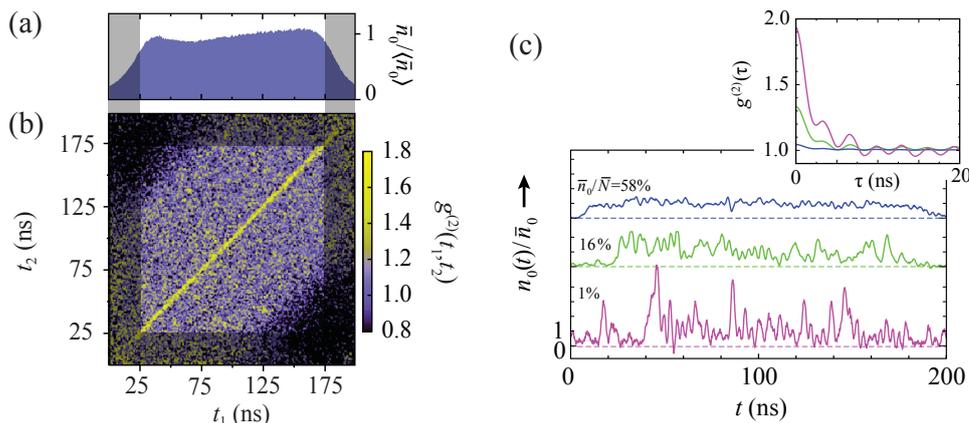


Abbildung 5.2: Typische experimentelle Resultate der (a) mittleren (normierten) Pulsdauer und (b) Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(t_1, t_2)$ aus dem Hanbury Brown-Twiss-Interferometer. (c) Zeitentwicklung der mit einem einzigen Photovervielfacher bestimmten (normierten) Kondensatpopulation für verschiedene Besetzungsgrade \bar{n}_0/\bar{N} (großes Bild unten) und zugehörige Autokorrelationsfunktionen für $\tau = t_2 - t_1$ (kleines Bild oben).

Die Irisblende agiert als transversaler Impulsfilter, der Beiträge angeregter Moden bestmöglich unterdrückt. Die Nullpunktenergie des Fallenpotentials $\hbar\Omega$ bestimmt die transversale Impulsunschärfe¹ des Grundmoden $k_r = \sqrt{2m_{\text{ph}}\Omega/\hbar} \simeq 3 \cdot 10^4 \text{ m}^{-1}$, und die Longitudinalkomponente des Wellenvektors beträgt nach Gl. (2.21) gerade $k_z(0) = q\pi/D_0 \simeq 1.5 \cdot 10^7 \text{ m}^{-1}$. Unter Berücksichtigung des Quarzglas-Luft-Übergangs ($n_{0,\text{Quarz}} \simeq 1.46$) bei der Auskopplung des Resonatorstrahlung ergibt sich ein Divergenzwinkel von $\Theta = 0.33^\circ$, und der Kondensatmoden besitzt am Ort des Impulsfilters einen Durchmesser von $\sim 0.49 \text{ cm}$. Der erste transversal angeregte Eigenzustand ($2\hbar\Omega$) hingegen misst bereits $\sim 0.69 \text{ cm}$, sodass dessen Maximalstellen durch den Impulsfilter blockiert werden. Das transmittierte Licht durchläuft einen Polarisator, der nur Photonen einer Polarisation des zweifach-entarteten Grundmoden transmittiert. Im Anschluss wird das Licht im Hanbury Brown-Twiss-Aufbau von einem nicht-polarisierenden Strahlteilerwürfel in zwei Pfade aufgeteilt und auf (*Avalanche*)-Photodioden mit Einzelphotonensensitivität (Typ: PD5CTC, Firma MPD) fokussiert. Die Zeitauflösung der Halbleiterdetektoren liegt bei $\Delta t \simeq 50 \text{ ps}$, die Totzeit beträgt $\tau_{\text{tot,PD}} \simeq 79 \text{ ns}$ und die optisch aktive Chipfläche misst $50 \times 50 \mu\text{m}$. Die Detektoren sind mit zwei individuellen Kanälen eines elektronischen Korrelatorsystems (Typ: PicoHarp 300, Firma PicoQuant) verbunden, welches Histogramme von Detektionsereignissen bei den Zeiten t_1, t_2 registriert und Photonenkorrelationen der Kondensatbesetzung mit einer zeitlichen Genauigkeit von bis zu $\simeq 60 \text{ ps}$ erlaubt. Um die Koinzidenzmessung nicht durch Totzeiteffekte ($\tau_{\text{tot,PicoHarp}} \simeq 90 \text{ ns}$) zu verfälschen, wird das Kondensatlicht mit Neutraldichte-

¹Über die Unschärferelation $d_0 \cdot k_r \geq 1/2$ lässt sich außerdem auch unmittelbar die Größenordnung des Durchmessers des Bose-Einstein-Kondensats $d_0 \simeq 17 \mu\text{m}$ abschätzen.

filtern hinreichend stark abgeschwächt, sodass die Photonenzählrate pro Detektor üblicherweise bei ~ 0.5 Photonen/Puls ($2.5 \cdot 10^6$ Photonen/s) liegt. Die Auswertung der Histogramme liefert die zeitabhängige Korrelationsfunktion zweiter Ordnung für den Grundmoden,

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{\langle n_0(t_1)n_0(t_2) \rangle}{\langle n_0(t_1) \rangle \langle n_0(t_2) \rangle}, \quad (5.1)$$

wobei $\langle \dots \rangle$ eine zeitliche Mittelung über viele Detektionsereignisse angibt. Ein typischer Datensatz ist in Abbildung 5.2(b) gezeigt. Zu gleichen Zeiten $t_1 = t_2$ wird eine Anhäufung von Photonen gemessen, $g^{(2)}(t_1, t_1) \approx 1.7$ (gelbliche Diagonale), wohingegen große Zeitabstände keine Intensitätskorrelationen aufweisen, $g^{(2)}(t_1, t_2) \approx 1.0$. Da die mittlere Anzahl kondensierter Photonen innerhalb eines Messzyklus nahezu konstant ist (vgl. Abbildung 5.2(a)), hängen die Korrelationen zweiter Ordnung nur von der relativen Zeitverzögerung $\tau = t_2 - t_1$ ab. Dementsprechend wird für die weitere Analyse die zeitlich gemittelten Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau) = \langle g^{(2)}(t_1, t_2) \rangle_{t_2-t_1=\tau}$ herangezogen. Die an- und absteigenden Flanken des Pulses, siehe grau-schattierte Fläche in Abbildung 5.2(b), werden von der Analyse ausgeschlossen.

Direkte Intensitätsdetektion. Die Zeitentwicklung der Intensität im Grundzustand wird in dem selben optischen Analysepfad, siehe Abbildung 5.1 (oben), mit einem Photovervielfacher detektiert (Typ: H9305-01, Firma Hamamatsu, Zeitauflösung 1.4 ns, Quantenausbeute $\approx 10\%$) und von einem Oszilloskop mit 5 GHz Bandbreite (Typ: DDA 5005A, Firma Lecroy) digitalisiert. Die Fluktuationen in der Intensität ereignen sich typischerweise auf einer Zeitskala von ~ 2 ns und können somit für verschiedene mittlere Kondensatpopulationen direkt gemessen werden. Typische Zeitspuren sind in Abbildung 5.2(c) exemplarisch gezeigt. Im Laufe der Experimente hat sich gezeigt, dass eine hohe Photovervielfacher-Quantenausbeute für eine korrekte Messung der Photonenzählstatistik erforderlich ist. Aus der zeitlichen Kondensatintensität $I_0(t)$ lässt sich ebenfalls die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung pro Puls ableiten,

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_0(t + \tau)I_0(t) \rangle_t}{\langle I_0(t) \rangle_t \langle I_0(t + \tau) \rangle_t}, \quad (5.2)$$

wobei $\langle \dots \rangle_t = (T - \tau)^{-1} \int_0^{T-\tau} (\dots) dt$ das zeitliche Mittel über einen Puls der Länge T bezeichnet. Das Resultat ist insbesondere für die verzögerungsfreie Autokorrelation $g^{(2)}(0)$ mit dem Ergebnis der Hanbury Brown-Twiss-detektierten Korrelationsfunktion konsistent. Im Allgemeinen ist die Messung der Korrelationsfunktion mit den beiden Einzelphotonendetektoren jedoch als exakter zu betrachten, da sie im Korrelationsaufbau eine höhere Zeitauflösung aufweisen.

5.2 Zeitaufgelöste Photonenkorrelationen

Im Folgenden werden experimentelle Resultate der Intensitätskorrelationen unterschiedlich „kalter“ Bose-Einstein-Kondensate von Photonen in der Anwesenheit eines

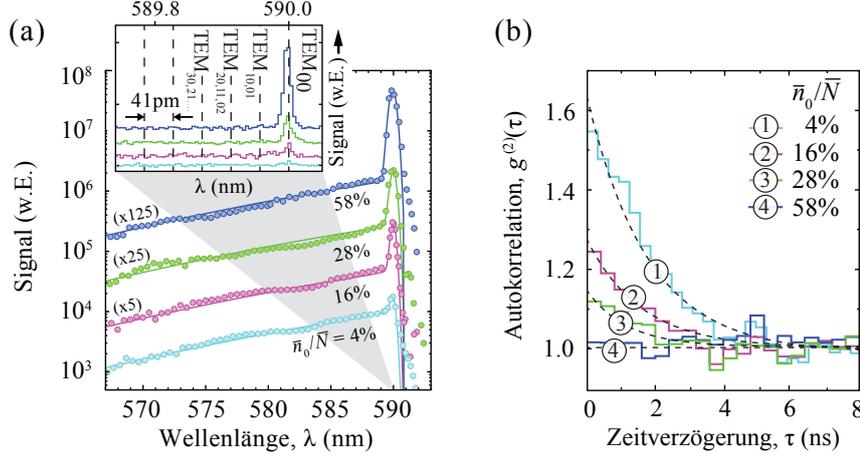


Abbildung 5.3: (a) Die gemessenen spektralen Verteilungen für unterschiedliche Kondensatanteile (Kreise) stimmen mit entsprechenden 300 K Bose-Einstein-Verteilungen überein (durchgezogene Linien). Die separat gezeigten, hochaufgelösten Spektren (kleines Bild, oben links) weisen die ausschließliche makroskopische Besetzung des Kondensatmoden nach. Die Spektren sind zur besseren Darstellung gegeneinander vertikal verschoben. (b) Die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ zeigt für ①–③ nicht-verschwindende Intensitätskorrelationen bei kurzen Zeitverzögerungen τ . (Experimentelle Parameter: $\lambda_c = 590$ nm, $\hbar\Delta = -6.7k_B T$, $\rho = 1$ mMol/l, Rhodamin 6G)

konstant großen molekularen Teilchenreservoirs vorgestellt. Dazu wird sowohl die Farbstoffkonzentration $\rho = 1$ mMol/l als auch die Verstimmung zwischen Kondensatwellenlänge $\lambda_c = 590$ nm und Null-Phononen-Linie $\lambda_{ZPL} = 545$ nm (Rhodamin 6G)

$$\hbar\Delta = hc \left(\frac{1}{\lambda_c} - \frac{1}{\lambda_{ZPL}} \right) = -6.7k_B T \quad (5.3)$$

in allen Messungen konstant gehalten. Die Aufnahme der Korrelationsdaten erfolgt im Hanbury Brown-Twiss-Interferometer, und der thermodynamische Zustand des Photonengases bei Raumtemperatur wird aus der spektralen Photonverteilung abgeleitet.

Abbildung 5.3(a) zeigt Photonenspektren, die sich in der kondensierten Phase oberhalb der kritischen Teilchenzahl $N_c \approx 90\,000$ befinden und neben dem Bose-Einstein-kondensierten Maximum bei der Abschneidewellenlänge eine thermische Besetzung angeregter Zustände aufweisen. Die Kondensatanteile $\bar{n}_0/\bar{N} = \{4\%; 16\%; 28\%; 58\%\}$, und die zugehörigen reduzierten Temperaturen $T/T_c = \{0.98; 0.92; 0.85; 0.65\}$, werden aus einer Anpassung von Theorie-Spektren bei $T = 300$ K, siehe Gl. (2.39), an die Messdaten extrahiert. Die korrespondierenden, absoluten Populationen betragen $\bar{n}_0 \simeq \{4; 19; 37; 120\} \cdot 10^3$ und $\bar{N} \simeq \{100; 119; 132; 207\} \cdot 10^3$. Das eingebettete Diagramm in Abbildung 5.3(a) zeigt ein hochaufgelöstes Spektrum der Modenbesetzung

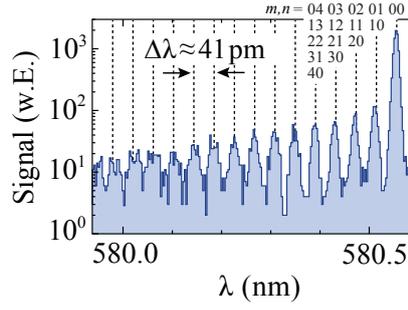


Abbildung 5.4: Hochaufgelöstes, transversales Modenspektrum im Mikroresonator mit Bose-Einstein-Kondensat bei $\lambda_c \simeq 580.55$ nm.

des transversalen Grundzustandes TEM_{00} mit einer spektralen Halbwertsbreite von 9 pm, was die Einzelmodeneigenschaft des Bose-Einstein-Kondensats verifiziert. Die thermische Population in benachbarten Transversalmoden TEM_{mn} , im Abstand von diskreten Vielfachen von $\Delta\lambda = 41$ pm (gestrichelte Linien), ist zu gering, um ein Signal oberhalb des Rauschniveaus des Detektors zu generieren. Die Modenstruktur wird messbar, wenn die gesamte emittierte Mikroresonatorstrahlung in den Doppelmonochromator eingekoppelt wird, siehe die Abbildung 5.4 für $\lambda_c \simeq 580.55$ nm. Abbildung 5.3(b) präsentiert die gemessenen Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$. Sie zeigen Korrelationen $g^{(2)}(0)_{\text{①-④}} = \{1.64(2); 1.30(2); 1.15(2); 1.01(1)\}$ gefolgt von einem exponentiellen Zerfall auf $g^{(2)}(\tau) \simeq 1$ bei größeren Zeitverzögerungen (gestrichelte Linien) entsprechend der theoretischen Vorhersage aus Gl. (3.68),

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + [g^{(2)}(0) - 1] \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_{c,\text{exp}}^{(2)}}\right), \quad (5.4)$$

mit den für die Datensätze ①–③ angepassten Korrelationszeiten zweiter Ordnung $\tau_{c,\text{exp}}^{(2)} \simeq \{1.75(5); 1.56(8); 1.18(3)\}$ ns. Für Datensatz ④ liefert die Anpassung aufgrund der verschwindenden unverzögerten Autokorrelation, $g^{(2)}(0) \simeq 1$, eine unbestimmte Korrelationszeit $\tau_{c,\text{exp}}^{(2)} \simeq 1.8 \pm 91.8$ ns. Entgegen der experimentellen Beobachtung erwartet man beim Überschreiten der kritischen Teilchenzahl N_c in einem System mit streng erhaltener Teilchenzahl einen unmittelbaren Abfall auf $g^{(2)}(0) = 1$ [35, 62]. Das hier beobachtete Verhalten kann jedoch gut als Konsequenz aus einem großkanonischen Teilchenaustausch des Photonenkondensats mit einem effektiven Teilchenreservoir erklärt werden. Beobachtet wird ein Wert von $g^{(2)}(0) > 1$ für die gezeigten Messdaten nur bis zu einem endlichen Kondensatanteil, was darauf zurückgeführt wird, dass für große Kondensatpopulationen großkanonische Bedingungen nicht mehr erfüllt sind: das Molekülreservoir kann die starken Fluktuationen des Bose-Einstein-Kondensats dann nicht mehr aufrechterhalten und kanonische Ensemblebedingungen beginnen die statistische Physik des Gesamtsystems zu dominieren. Nach der in Kapitel 3 eingeführten Relation

$$\frac{\delta n_0}{\bar{n}_0} = \sqrt{g^{(2)}(0) - 1} \quad (5.5)$$

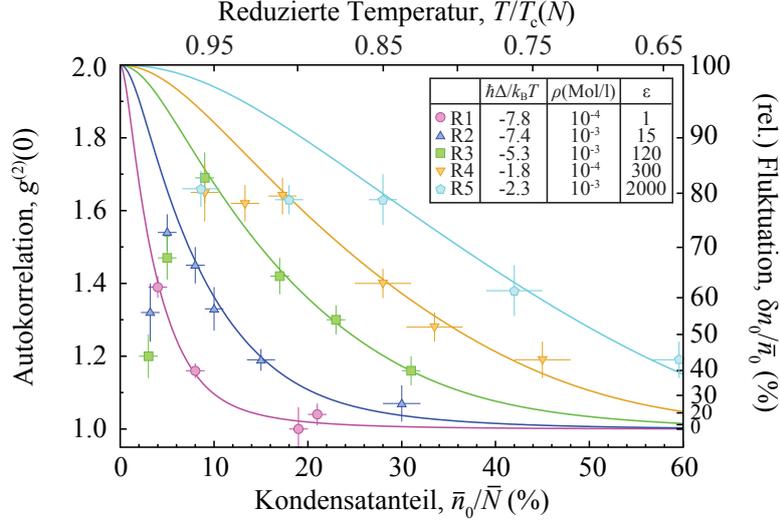


Abbildung 5.5: Autokorrelationen $g^{(2)}(0)$ und die entsprechenden relativen Kondensatfluktuationen $\delta n_0/\bar{n}_0$ als Funktion des Besetzungsgrades \bar{n}_0/\bar{N} (sowie der entsprechenden reduzierten Temperatur T/T_c), für fünf verschiedene Reservoirre R1–R5. Das Anwachsen der effektiven Reservoirgröße wird durch den Parameter ε quantitativ ausgedrückt (Tabelle). Die Fluktuationen der Grundmodenpopulation dehnen sich für große Farbstoffkonzentration ρ und geringe Verstimmung Δ (R5) weit in den kondensierten Bereich aus. Die durchgezogenen Linien zeigen die Vorhersage des theoretischen Modells aus Abschnitt 3.3. Die Fehlerbalken geben statistische Unsicherheiten an. (Experimentelle Parameter: $\lambda_c = \{598; 595; 580; 598; 602\}$ nm für R1–R5; Farbstoffkonzentration $\rho = \{0.1; 1.0; 1.0\}$ mMol/l für R1–R3 (Rhodamin 6G) und $\rho = \{0.1; 1.0\}$ mMol/l für R4,R5 (Perylen Rot). Für die Theoriekurven ergeben sich Reservoirgrößen $M = \{5.5(22); 20.5(71); 16.0(57); 2.1(4); 10.8(37)\} \cdot 10^9$ für R1–R5)

ist die unverzögerte Autokorrelation $g^{(2)}(0)$ mit der relativen Fluktuationsstärke der Kondensatbesetzung $\delta n_0/\bar{n}_0$ verknüpft. Für die Messwerte aus Abbildung 5.3(b) erhält man daraus $\delta n_0/\bar{n}_0 = \{80(1); 55(2); 39(3); 10(5)\}\%$. Die relativen Fluktuationen werden auch in den nachfolgend behandelten Messungen angegeben.

5.3 Bose-Einstein-Kondensate für variable Reservoirgrößen

In diesem Abschnitt werden experimentelle Resultate vorgestellt, welche die großkanonische Natur des Photonen-Farbstoff-Systems in der Bose-Einstein-kondensierten Phase verifizieren, indem die Reservoirgröße variiert wird. Im Allgemeinen, siehe Gl. (3.71), lässt sich das Reservoir effektiv durch erhöhte Farbstoffkonzentration ρ und eine Kondensatwellenlänge λ_c nahe der Null-Phononen-Resonanz λ_{ZPL}

der Farbstoffmoleküle vergrößern. Abbildung 5.5 zeigt unverzögerte Autokorrelationen $g^{(2)}(0)$, respektive den relativen Grad der Fluktuationen, gegen den Kondensatanteil \bar{n}_0/\bar{N} für fünf verschiedene Kombinationen von Farbstoffkonzentration und Farbstoff-Resonator-Verstimmung. Die Datensätze R1–R3 wurden mit Rhodamin 6G (Null-Phononen-Linie $\lambda_{\text{ZPL}} \simeq 545$ nm) aufgenommen, während für Messungen R4 und R5 Perylen Rot ($\lambda_{\text{ZPL}} \simeq 585$ nm) als Farbstoffspezies verwendet wurde. Letzteres erlaubt die Realisierung von geringen Verstimmungen $\hbar\Delta > -2.5k_{\text{B}}T$ mit extrem hohen Reabsorptionsraten in einem Spektralbereich mit ausreichend großer Spiegeltransmission (585–605 nm), sodass eine noch messbare Lichtleistung den Resonator verlässt. Zur Quantifizierung der relativen effektiven Reservoirgrößen, wird das Verhältnis

$$\varepsilon = \frac{M_{\text{eff},R_i}}{M_{\text{eff},R1}} \stackrel{(3.71)}{=} \frac{\rho_{R_i}}{\rho_{R1}} \times \frac{1 + \cosh(\hbar\Delta_{R1}/k_{\text{B}}T)}{1 + \cosh(\hbar\Delta_{R_i}/k_{\text{B}}T)}, \quad (5.6)$$

definiert, wie in der dritten Spalte der Tabelle in Abbildung 5.5 angegeben, wodurch auf die Messung mit Reservoir R1 normiert wird. Im Falle der geringsten Farbstoffkonzentration und der größten Verstimmung (R1) ist das Teilchenreservoir so klein, dass Fluktuationen der Kondensatbesetzung nahezu direkt oberhalb der Kondensationsschwelle ($N \geq N_c$) gedämpft werden. Durch Erhöhung der Farbstoffkonzentration und Reduktion der Verstimmung (R1→R5) kann der Bereich starker Fluktuationen systematisch bis hin zu größeren Kondensatanteilen ausgedehnt werden. Für das größte realisierte Reservoir (R5) werden Korrelationen von $g^{(2)}(0) \simeq 1.2$ bei einem Kondensatanteil von $\bar{n}_0/\bar{N} \simeq 60\%$ beobachtet. Bei diesem Punkt zeigt das Photonenkondensat immer noch starke Fluktuationen der Teilchenzahl von $\delta n_0/\bar{n}_0 = (g^{(2)}(0) - 1)^{1/2} \simeq 45\%$, obwohl seine Besetzungszahl von $\bar{n}_0 \approx 144\,000$ Photonen vergleichbar mit der Gesamtphotonenzahl $\bar{N} \approx 240\,000$ ist. Dieses Verhalten liefert eine starke Evidenz für eine Photonenstatistik, die durch großkanonischem Teilchenaustausch zwischen dem Kondensat und dem Farbstoffreservoir bestimmt wird.

Die Messergebnisse werden durch das theoretische Modell (durchgezogene Linien in Abbildung 5.5) gut bestätigt, mit Ausnahme des Bereichs geringer Kondensatanteile unter $\simeq 5\%$. Die beobachtete Abweichung in diesem Bereich wird auf eine unvollständige räumliche Filterung der Mikroresonatoremission zurückgeführt, die es auch Photonen in angeregten Transversalmoden teilweise gestattet, das Detektionssystem zu erreichen. Die Mittelung unkorrelierter Photonen in mehreren, bei $\bar{N} \simeq N_c$ ähnlich stark besetzten Transversalmoden hat dann ein unterdrücktes Korrelationssignal zur Folge. Diese Problematik spielt eine untergeordnete Rolle, wenn die Besetzung des Grundzustandes hinreichend hoch, $\bar{n}_0/\bar{N} \geq 5\%$, wird. Bei genauerer Betrachtung der Datenreihen R4 und R5, welche die stärksten Fluktuationen aufweisen, fällt zudem auf, dass die maximal detektierte Kondensatkorrelation im Bereich von $g^{(2)}(0) \simeq 1.6\text{--}1.7$ liegt, was zu einer Abweichung der Theoriekurven in diesen Messreihen führt. Zur Anpassung aller gezeigten Theoriekurven an die Messdaten wird ein einzelner Parameter, die Reservoirgröße M , verwendet. Eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment wird für Reservoirgrößen mit $10^9\text{--}10^{10}$

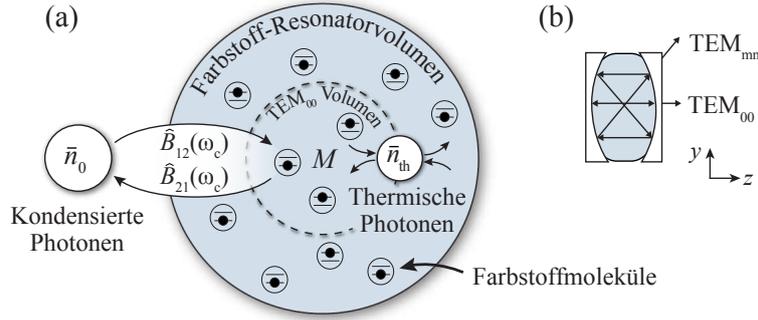


Abbildung 5.6: (a) Schema der effektiven Reservoirvergrößerung durch die indirekte Ankopplung von Farbstoffmolekülen im Volumen angeregter Transversalmoden. (b) Resonator in seitlicher Ansicht.

Molekülen erzielt. Die exakten Werte mit Fehler finden sich in der Beschriftung von Abbildung 5.5. Dies legt nahe, dass nicht nur Farbstoffmoleküle im TEM_{00} Modenvolumen des Resonators ($\approx 10^8$ Moleküle bei $\rho = 1$ mMol/l), sondern in einem größeren effektiven Farbstoffvolumen zum Reservoir beitragen.

Die schematische Abbildung 5.6 illustriert eine mögliche Ursache für die Reservoirvergrößerung im vorliegenden Vielmoden-System. Die Skizze des Mikroresonators in seitlicher Ansicht (Abbildung 5.6(b)) deutet den räumlichen Modenüberlapp von TEM_{mn} und TEM_{00} -Moden an. Dadurch wird eine Kopplung zwischen Farbstoffmolekülen außerhalb und innerhalb des Grundmodenvolumens durch Absorption und Emission „thermischer“ Photonen in angeregten Eigenzuständen hergestellt (Abbildung 5.6(a)). Dies führt zu einer effektiven Reservoirvergrößerung für die \bar{n}_0 Kondensatphotonen, welche nur mit Molekülen im TEM_{00} -Volumen wechselwirken. Die gemessene Abhängigkeit der Photonenkorrelationen und -fluktuationen von Reservoirgröße und Verstimmung demonstriert, dass die Sättigung des Reservoirs, wie von der großkanonischen Theorie für Bose-Einstein-Kondensate vorhergesagt [8, 9, 62], die Photonenstatistik festlegt.

5.4 Intensitätsfluktuationen und Photonenstatistik

Wie in den vorherigen Abschnitten gesehen, liegen die experimentell bestimmten Korrelationszeiten zweiter Ordnung des kondensierten Grundzustandes typischerweise im Bereich von $\simeq 2$ ns, siehe Abbildung 5.3. Die Zeitskala der Intensitätsfluktuationen ist damit hinreichend langsam, um die Zeitentwicklung der Kondensatbesetzung mittels eines Photovervielfachers mit 0.7 GHz Bandbreite aufzunehmen. Dennoch darf die Zeitauflösung des verwendeten Detektors nicht gänzlich vernachlässigt werden, da sie die charakteristische Zeitkonstante der Fluktuationen nur recht knapp unterschreitet. In dem vorgestellten experimentellen Ansatz wird dementsprechend auf eine systematische Analyse der Korrelationszeiten zweiter Ordnung $\tau_c^{(2)}$ verzichtet. Die direkte Untersuchung der Zeitreihen erlaubt außerdem die Bestim-

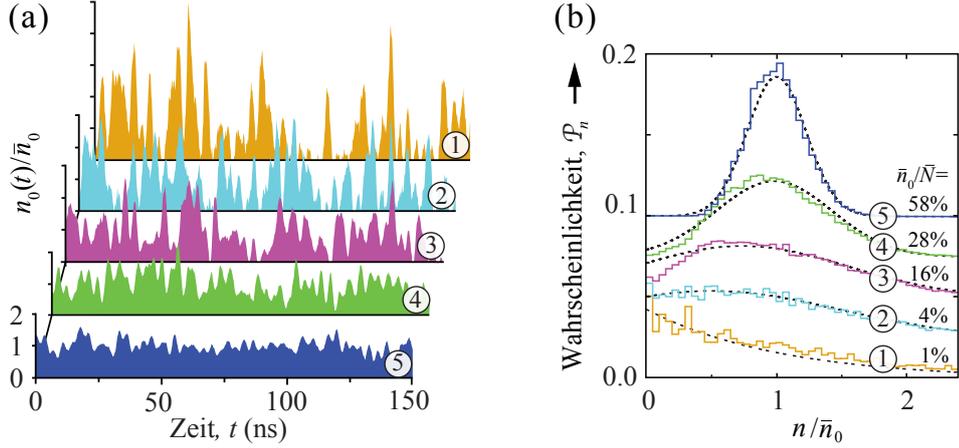


Abbildung 5.7: (a) Zeitliche Entwicklung der normierten Kondensatpopulation $n_0(t)/\bar{n}_0$ ($\simeq 1.4$ ns Zeitauflösung). Mit ansteigendem Besetzungsgrad (①→⑤) wird eine Dämpfung der Fluktuationen beobachtet. (b) Die extrahierten Photonenzahlverteilungen weisen auf einen Übergang von Bose-Einstein- zu Poisson-artiger Statistik hin. Zur besseren Sichtbarkeit wurden die Kurven vertikal gegeneinander verschoben. Die gestrichelten Linien zeigen Theoriekurven, siehe Abbildung 3.3. (Experimentelle Parameter wie in Abbildung 5.3: $\lambda_c = 590$ nm, $\hbar\Delta = -6.7k_B T$, $\rho = 1$ mMol/l, Rhodamin 6G)

mung der unverzögerten Intensitätskorrelation $g^{(2)}(0)$, die mit den Messergebnissen von $g^{(2)}(0)$ für entsprechende Kondensatanteile aus dem Hanbury Brown-Twiss-Aufbau konsistent ist, siehe Abschnitt 5.2.

Abbildung 5.7(a) zeigt den Zeitverlauf der mit dem Photovervielfacher bestimmten, auf die mittlere Photonenzahl normierten Messdaten als Funktion der Zeit, $n_0(t)/\bar{n}_0(t)$, für eine konstante effektive Reservoirgröße bei den selben experimentellen Parametern wie in Abschnitt 5.2. Unmittelbar oberhalb der kritischen Teilchenzahl weist die Kondensatpopulation starke Fluktuationen auf, die mit wachsendem Kondensatanteil immer stärker gedämpft werden. Eine Histogramm-Analyse von etwa 50 Zeitspuren pro Besetzungsgrad liefert die Photonenzahlstatistik \mathcal{P}_n - die Verteilung der Wahrscheinlichkeit n Photonen im Kondensat zu finden, wie in Abbildung 5.7(b) dargestellt. Die ermittelten Photonenzahlstatistiken zeigen einen Übergang von einer näherungsweise exponentiell abfallenden Bose-Einstein-Verteilung für das stark fluktuierende Kondensat zu einer Poisson-Verteilung im Bereich schwacher Fluktuationen. Die Breite der Wahrscheinlichkeitsverteilungen δn_0 gibt ein Maß für den relativen Fluktuationsgrad $\delta n_0/\bar{n}_0$ des jeweiligen Photonenkondensats. Die Messresultate zeigen eine gute Übereinstimmung mit den theoretisch erwarteten Wahrscheinlichkeitsverteilungen (gestrichelte Linien) aus Gl. (3.34), und der vorhergesagte kontinuierliche Übergang der statistischen Bedingungen von kanonischem zu großkanonischem Verhalten wird hier direkt sichtbar (vgl. Abschnitt 3.3).

Interessanterweise zeigen auch stark besetzte Bose-Einstein-Kondensate, die zig-Tausende von Photonen enthalten, in der Anwesenheit von hinreichend großen Molekülreservoiriren eine endliche Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_0 > 0$, einen Zustand vorzufinden, der keine Photonen enthält. Es stellt sich somit ganz natürlich die Frage: Welchen Einfluss haben die statistischen (Amplituden)-Fluktuationen der Kondensatbesetzung auf die zeitliche Phasenstabilität der Wellenfunktion? Demgegenüber steht der Grenzfall kleiner Reservoirire, in welchem die Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_0 = 0$ aufgrund der Poisson-verteilten Photonenzustandstatistik verschwindet, sodass - ungeachtet von möglichen Diffusionsprozessen [50–53] - eine definierte Phase erwartet wird. Das Auftreten von Phasenkohärenz in der Kondensatwellenfunktion wird durch entsprechende experimentelle Beobachtungen mit (mikro-)kanonischen atomaren Bose-Einstein-Kondensaten nahegelegt [29–32]. Das hieran anschließende Kapitel 6 setzt sich genauer mit der zeitlichen Phasenkohärenz des Bose-Einstein-Kondensats von Photonen auseinander.

Kapitel 6

Experimente zur zeitlichen Phasenkohärenz

6.1 Apparativer Aufbau

In diesem Kapitel werden experimentelle Resultate vorgestellt, welche die zeitliche Kohärenz der Phase des Bose-Einstein-Kondensats demonstrieren. Die Untersuchung der Phasenentwicklung erfolgt mit Hilfe eines Heterodyn-Interferometers, in dem die Emission des Photonenkondensats mit der eines frequenz- und phasenstabilen Referenzlasers überlagert und das resultierende Schwebungssignal zeitaufgelöst detektiert wird [53]. Die zeitliche Entwicklung der Kondensatintensität wird zudem für jeden Besetzungsgrad gesondert aufgenommen, woraus sich der Fluktuationsgrad $g^{(2)}(0)$ und die Korrelationszeit zweiter Ordnung $\tau_c^{(2)}$ ableiten lässt.

Abbildung 6.1 zeigt ein Schema des experimentellen Aufbaus. In allen Messungen beträgt die longitudinale Wellenzahl $q = 7$, was bei einer Abschneidewellenlänge $\lambda_c = 580$ nm einem Abstand der Resonatorspiegel $D_0 \simeq 1.42 \mu\text{m}$ entspricht. Als optisches Medium wird eine Rhodamin 6G Farbstofflösung mit einer Konzentration von $\rho = 3$ mMol/l in Ethylenglykol zwischen den Resonatorspiegeln eingebracht. Die zeitliche Modulation der kontinuierlichen Pumpquelle wird im Vergleich zu dem in Kapitel 5 dargestellten Verfahren leicht modifiziert, und als Analysesystem kommt ein Heterodyn-Interferometer zum Einsatz, in dem ein Farbstofflaser als phasenstabiler, lokaler Referenzoszillator verwendet wird. Die Funktionsweise und Eigenschaften der drei Komponenten werden im Folgenden erläutert.

Pumpquelle

Die optische Anregung des Farbstoffmediums erfolgt wie in Kapitel 5 mit einem kontinuierlichen Laser. Durch Anlegen geeigneter Radiofrequenz-Pulse an einen akustooptischen Modulator, in den der Pumpstrahl fokussiert wird, wird die Laseremission in zeitlich äquidistante Rechteck-Pulse von 600 ns Länge mit einer Wiederholrate von 40 Hz zerteilt. Wie nachfolgend diskutiert wird, ist eine zeitliche Verlängerung der Pumppulse notwendig, um hinreichend lange Schwebungssignale zwi-

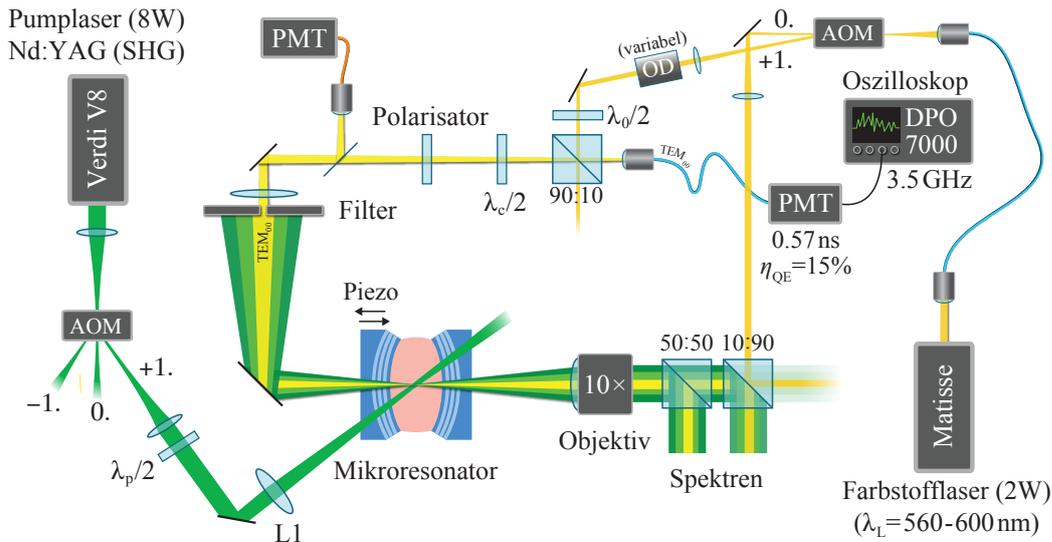


Abbildung 6.1: Schema des heterodynen Interferometrie-Aufbaus zur Untersuchung der Phasenevolution des Photonenkondensats. Der Grundmoden wird mit einem Impuls-Filter von der restlichen Resonatoremmission (linker Pfad) getrennt und in einer Einzelmoden-Faser mit der Emission eines Farbstofflasers überlagert. Das Schwebungssignal der optischen Felder wird von einem Photovervielfacher (PMT) detektiert und mit Hilfe eines Digitaloszilloskops dargestellt. Die entgegengesetzte Resonatoremmission (rechter Pfad) dient sowohl der parallelen Aufnahme von Kondensat- und Farbstofflaserwellenlänge, λ_c und λ_L , mit in einem hochauflösenden Doppelmonochromator, als auch der Analyse des Kondensatanteils mit einem $4f$ -Spektrometer.

schen der Kondensat- und Farbstofflaseremission detektieren zu können, siehe Abbildung 6.2(b) für eine typische Intensitätsspur.

Der zeitliche Intensitätsverlauf der Pumppulse zwischen ansteigender und abfallender Flanke wird durch zeitabhängiges Mischen des an den akusto-optischen Modulator angelegten Radiofrequenzsignals geeignet angepasst (Typ: AFG3252, Firma Tektronix, vgl. Abschnitt 5.1), sodass eine im zeitlichen Mittel stationäre Kondensatbesetzung aus dem Resonator ausgekoppelt wird, siehe Abbildung 6.2(a). Zur langsameren Intensitätsmodulation der Pulse wird ein baugleicher Funktionsgenerator verwendet, wie in Abbildung 6.2(a) unten als abfallende Rampe dargestellt ist. Dadurch werden vier verschiedene Besetzungsgrade im zeitlichen Abstand von 25 ms eingestellt. Diese zeitliche Sequenz wiederholt sich alle 100 ms. Zur zeitlichen Steuerung dieser Pulsfolge kommen zwei Pulsgeneratoren (Typ: DG645, Firma Stanford Research Systems) zum Einsatz.

Diese Methode hat den Vorteil, dass die detektierten Schwebungssignale innerhalb einer Vierersequenz in jedem Puls einen vergleichbaren Zeitverlauf aufweisen, sodass sich auch bei kleinen Kondensatleistungen Schwebungen aufgrund der Koinzidenz ei-

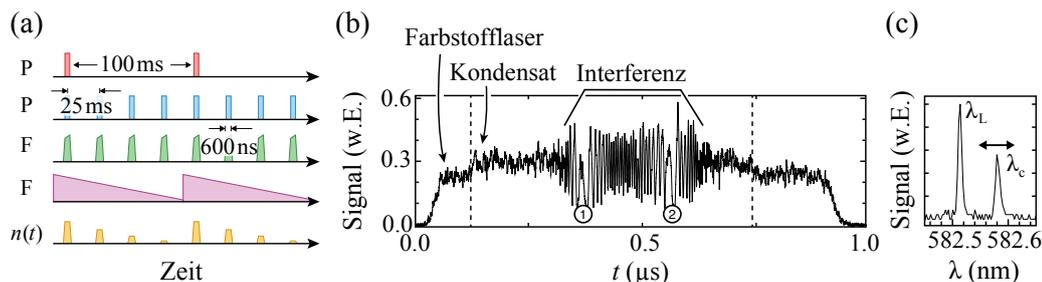


Abbildung 6.2: (a) Protokoll der zeitlichen Taktung und Intensitätsmodulation der Kondensatmission $n(t)$ (unten). Durch ein 10 Hz Signal (rot, P: Pulsgenerator) wird eine Sequenz von vier Pulsen (blau) sowie eine langsame, abfallend Rampe (violett, F: arbiträrer Funktionsgenerator) ausgelöst. Die Vierersequenz wird unter Verwendung eines weiteren Funktionsgenerators innerhalb der Pulsdauer amplitudenmoduliert (grün). Die zeitliche Modulation des Pumpimpulses führt zu einer Fluoreszenzemission von vier unterschiedlich stark besetzten Photonenkondensaten mit jeweils zeitlich konstanter Population (gelb). (b) Typisches Intensitätssignal der resonanten Überlagerung von Farbstofflaser und Kondensat mit Interferenzsignal. (c) Hochaufgelöstes Spektrum, in dem die Emission des Farbstofflasers bei der Wellenlänge λ_L und des Bose-Einstein-Kondensats bei λ_c erkennbar ist.

nes Interferenzsignals bei hoher Besetzung identifizieren lassen. Die Ursache hierfür liegt in der Stabilität der mittleren Kondensatwellenlänge in zwei aufeinanderfolgenden Pulsen aufgrund des geringen mechanischen Drifts der Resonatorspiegel. Im Rahmen der Experimente hat es sich als hilfreich erwiesen, die Pulsabstände äquidistant einzustellen. Zwar ist es möglich, eine rasche Pulssequenz gefolgt von hinreichend langer Dunkelzeit zur Vermeidung von Triplet-Anregung auf den Farbstoff einzustrahlen, allerdings führt jeder Pumpimpuls zu einem Wärmeeintrag im Farbstoffmedium und damit zu einer zeitabhängigen Verschiebung der Kondensatwellenlänge (siehe Abschnitt 6.1.1). Da die Aufheizung des Lösungsmittels typischerweise erst nach einigen Millisekunden abgeklungen ist, dehnt sich der Wellenlängendrift für schnelle Wiederholraten der Pumpimpulse über die gesamte Sequenz der vier Pulse aus. Entsprechend werden dann keine Interferenzsignale mehr in allen vier aufeinanderfolgenden Pulsen beobachtet.

Referenzlaser

Als lokaler Oszillator für die Heterodyn-Interferometrie kommt ein kontinuierlich emittierender Farbstofflaser (Typ: Matisse, Firma Sirah) zum Einsatz, siehe Abbildung 6.1 (rechts). Der Laserfarbstoff (Rhodamin 6G in Ethylenglykol) wird von einem diodengepumpten Festkörperlaser (Typ: Verdi G12, Firma Coherent, 12 W) gepumpt. Die maximale Emissionsleistung des Farbstofflasers beträgt 2 W bei einer Linienbreite von 250 kHz und die Wellenlänge des Lichts kann über einen Bereich von $\lambda_L = 560\text{-}605$ nm durchgestimmt werden. Der Laserstrahl wird über eine polarisati-

onserhaltende Einzelmodenfaser auf den optischen Tisch geführt und im Anschluss mit Hilfe eines akusto-optischen Modulators in 800 ns lange Pulse mit einer Wiederholrate von 40 Hz zerteilt, wie in Abbildung 6.2(b) gezeigt. Die Intensität des transmittierten Lichts kann durch variable Neutraldichtefilter adäquat abgeschwächt und die Polarisation mit Hilfe einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte gedreht werden, bevor der Laserstrahl in den Interferometer-Aufbau geführt wird. Die nullte Beugungsordnung des akusto-optischen Modulators wird zur Wellenlängendetektion in einen hochauflösenden Doppelmonochromator eingekoppelt.

Analysesystem

4f-Spektrometer. Die rechtsseitig aus dem Mikroresonator ausgekoppelte Fluoreszenz wird durch ein Mikroskopobjektiv kollimiert (Abbildung 6.1). Danach wird die Hälfte der Lichtleistung über einen nichtpolarisierenden Strahlteilerwürfel in das in Kapitel 5 diskutierte 4f-Spektrometer geleitet. Aus den Multimoden-Spektren im Wellenlängenintervall (Energiebereich) von 30 nm ($\simeq 4k_B T$) wird der thermodynamische Zustand des Photonengases (mittlere Grundzustandsbesetzung \bar{n}_0 , Gesamtphotonenzahl \bar{N} und Kondensatanteil \bar{n}_0/\bar{N}) abgeleitet. Die Messmethode ist durch Aufnahme eines Referenzspektrums an der Kondensationsschwelle über die bekannte kritische Teilchenzahl $N_c \simeq 79\,000$ (vgl. Tabelle 2.1) kalibriert.

Doppelmonochromator. Ein Großteil der durch den Strahlteilerwürfel transmittierten Resonatoremission wird gemeinsam mit Farbstofflaserlicht über eine Multimodenfaser in einen hochauflösenden Doppelmonochromator eingekoppelt. Abbildung 6.2(c) zeigt ein typisches Spektrum der relativen Lage von Kondensat- und Referenzlaser-Wellenlänge. Photonen in transversal angeregten Zuständen werden aufgrund der begrenzten Empfindlichkeit des hier verwendeten Detektors nicht registriert. Bei typischen Spiegelabständen ($D_0 \approx 1.42 \mu\text{m}$) sind mechanische Drifts der Resonatorlänge nur relativ schwach ausgeprägt, da die gekrümmten Spiegel bereits fest aufeinander aufliegen. Unter diesen Umständen lässt sich die Wellenlänge des Kondensatmoden besonders gut durch aktive, Piezo-gesteuerte Variation der Resonatorlänge auf die des Farbstofflasers abstimmen. Die spektrale Präzision von $\Delta\lambda \approx 10 \text{ pm}$ bei $\lambda = 580 \text{ nm}$ erlaubt somit eine Stabilisierung des Spiegelabstands auf eine Genauigkeit von $\Delta D_0 = D_0 \cdot \Delta\lambda/\lambda \approx 24.5 \text{ pm}$.

Heterodyn-Interferometer. Nach einer freien Expansion des linksseitig aus dem Mikroresonator ausgekoppelten Photonengases wird der Kondensatmoden durch einen Transversalimpulsfilter im Fernfeld (Fourier-Ebene) von dem thermischen Hintergrundgas separiert, siehe Abbildung 6.1 und Kapitel 5. Ein Teil der transmittierten Kondensatleistung wird von einem Photovervielfacher detektiert, der andere Teilstrahl passiert einen Polarisator und eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte, welche die Polarisations Ebenen der elektrischen Felder von Kondensat und Farbstofflaser aufeinander rotiert. Im Interferometer werden letztlich 90% der optischen Kondensatleistung durch einen nichtpolarisierenden Strahlteiler transmittiert und in einer polarisati-

onservierenden Einzelmodenfaser mit 10% der Farbstofflaserintensität überlagert. Das optische Signal wird von einem Photovervielfacher (Typ: H10721-20, Firma Hamamatsu) mit 0.57 ns zeitlicher Auflösung detektiert und von einem Oszilloskop (Typ: DPO7000, Firma Tektronix) mit 3.5 GHz Bandbreite im *Fast Frame*-Modus digitalisiert. Abbildung 6.2(b) zeigt ein typisches Signal, bei dem die Wellenlängen der beiden Lichtquellen ähnlich sind. Im Allgemeinen liefert die Überlagerung der optischen Felder von Bose-Einstein-Kondensat $\psi_c(t) = \sqrt{n_c(t)} \exp\{i[\omega_c(t)t + \varphi(t)]\}$ und Laser $\psi_L(t) = \sqrt{n_L(t)} \exp(i\omega_L t)$ eine Zeitentwicklung der Form

$$|\psi_c(t) + \psi_L(t)|^2 = n_c(t) + n_L(t) + 2\sqrt{n_c(t)n_L(t)} \cos\{[\omega_c(t) - \omega_L]t + \varphi(t)\}, \quad (6.1)$$

wobei $\varphi(t)$ die Evolution der Kondensatphase enthält, und die Zeitabhängigkeit der Kondensatfrequenz $\omega_c(t)$ explizit angegeben wurde, wie in Abschnitt 6.1.1 genauer diskutiert wird. In ersten Experimenten zur Detektion des Interferenzsignals war ein Aufbau zur balancierten Heterodyndetektion [134] verwendet worden, bei der die Intensitäten in beiden Ausgangsports eines symmetrischen (50:50) Strahlteilers gemessen und unter Ausnutzung der 180° Phasenverschiebung voneinander subtrahiert werden. Bei geringen Kondensatleistungen hat es sich jedoch als vorteilhaft erwiesen, die optische Leistung in einem der beiden Interferometerausgänge unter Verwendung eines asymmetrischen Strahlteilers (90:10) zu maximieren, was ein besseres Signal-zu-Rausch-Verhältnis in den Schwebungssignalen erlaubte.

6.1.1 Modulation der Kondensatfrequenz

Die gemessenen Intensitätsspuren zeigen eine Frequenzmodulation der Schwebungssignale. Das Signal lässt sich mit Variation des Spiegelabstandes durch Anlegen einer Piezo-Spannung beeinflussen, wie in Abbildung 6.3(a) dargestellt, was auf eine mögliche absolute Wellenlängenverschiebung durch das Steuersignal zurückgeführt werden kann. Wenn die mittlere, mit Hilfe des Doppelmonochromators gemessene Kondensatwellenlänge relativ zur Farbstofflaserwellenlänge blauverschoben wird, verschwindet das Schwebungssignal. Für den Fall einer Rotverschiebung fällt hingegen auf, dass sich im Schwebungssignal zwei Resonanzdurchgänge ausprägen, die sich für zunehmende Verstimmung zwischen Farbstofflaser und Kondensat zeitlich immer weiter aufspalten. Unter diesen Umständen überschreitet die Oszillationsfrequenz zwischen den Resonanzdurchgängen die Detektionsbandbreite. Der aus der modulierten Schwebung extrahierte Frequenzdrift $\nu_c(t)$ des Bose-Einstein ist in Abbildung 6.3(b) für verschiedene Spiegelabstände gezeigt.

Abbildungen 6.3(a) und (b) zeigen Daten, die bei zeitlich äquidistanter Pulsanregung (Pulslänge $\Delta t = 1.5 \mu\text{s}$ bei Abstand $T_p = 25 \text{ ms}$) aufgenommen wurden. Unter diesen Umständen weisen die Schwebungssignale in aufeinanderfolgenden Kondensatpulsen einen ähnlichen Zeitverlauf aus. Bei rascher Pulsfolge ($\Delta t = T_p = 600 \text{ ns}$, nach dem vierten Puls 100 ms Dunkelzeit), siehe Abbildung 6.3(c), wird hingegen immer nur in jeweils einem Puls der Vierersequenz ein Schwebungssignal beobach-

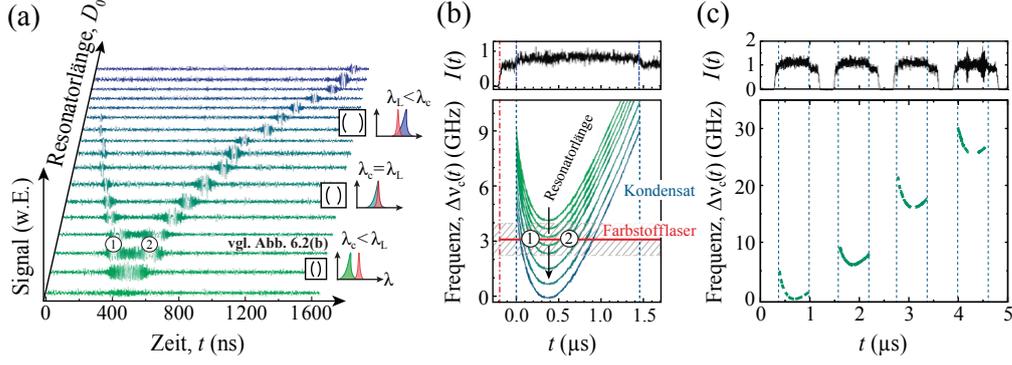


Abbildung 6.3: (a) Interferenzsignale beim Durchfahren der Kondensatwellenlänge λ_c über die Farbstofflaserlinie $\lambda_L = \text{konst.}$ (rot) durch Vergrößern des Spiegelabstandes. Neben einer Frequenzmodulation wird eine zeitliche Separation von zwei Resonanzdurchgängen (①,②) beobachtet. (b) Intensitätsspur (oben) und aus den Zeitreihen in (a) rekonstruierter relativer Drift der Kondensatfrequenz (unten). Vertikal verschobene Kurven entsprechen von oben nach unten zunehmenden Resonatorlängen, und die schraffierte Fläche deutet die Detektionsbandbreite von $\simeq 1.75$ GHz an. (c) Kondensatintensität (oben) und -frequenzdrift (unten) bei Pumpanregung mit einer Vierersequenz von zeitlich um 600 ns getrennten Pulsen. Der Frequenzdrift setzt sich über das Ende der jeweiligen Pulse hinaus fort, und das parabelförmige Driftverhalten reproduziert sich in guter Näherung bei jedem einzelnen Anregungspuls.

tet, welches dennoch den charakteristischen, nahezu parabolischen Frequenzverlauf enthält. Zurückgeführt wird dieses Verhalten darauf, dass jede Pumpanregung aufgrund der endlichen Quanteneffizienz des Farbstoffmediums ($\eta_{\text{Q.E.}} \simeq 95\%$) einen globalen Wärmeeintrag verursacht, der eine Brechungsindex- und Wellenlängenänderung mit einer Abklingzeit im Millisekundenbereich bewirkt - in Analogie zu einem thermischen Linseneffekt [20, 21]. Das Hin- und Zurücklaufen der Eigenfrequenz des Photonenkondensats während eines einzelnen Pulses, das auf einer erheblich schnelleren Zeitskala erfolgt, hingegen wird den steilen Flanken der Pumppulse selbst zugeschrieben, wie in der wiederholten Modulationsstruktur aus Abbildung 6.3(c) sichtbar wird. Dieses Verhalten wird nur bei longitudinalen Wellenzahlen $q \leq 10$ beobachtet, wenn das Farbstoff-Medium eine hinreichende geometrische Zweidimensionalität aufweist. Beide Beobachtungen geben Anlass zu der Annahme, dass der parabolische Anteil der Frequenzmodulation $\nu_c(t)$ während eines einzelnen Pulses auf einer Dichte- und Brechungsindexmodulation basiert, die aus dem Anschwingen einer stark gedämpften Schallwelle im zweidimensionalen Farbstofffilm resultiert. Da innerhalb der Pulsdauer Variationen des Spiegelabstands vernachlässigt werden können, ist zu jedem Zeitpunkt t die Randbedingung

$$D_0 = q \frac{\lambda_c(t)}{2\tilde{n}_0(t)} = q \frac{c}{2\tilde{n}_0(t)\nu_c(t)} \stackrel{!}{=} \text{konst.} \quad (6.2)$$

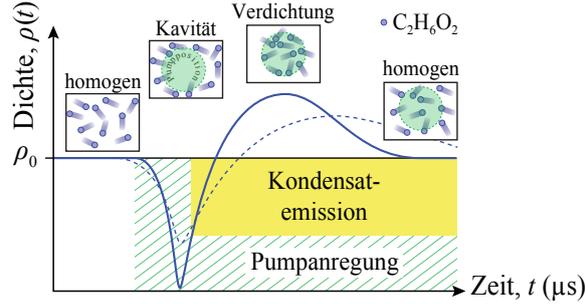


Abbildung 6.4: Schema der angenommenen zeitlichen Dichtemodulation im Farbstoffmedium nach dem Anschalten der Pumpanregung (grün schraffiert). Eine starke Pumpstrahlfokussierung (durchgezogene Linie) resultiert in einer erhöhten Modulationsamplitude und -dynamik während der Kondensatemitteion (gelb), im Vergleich zu dem zeitlichen Verlauf bei schwacher Fokussierung (gestrichelte Linie).

erfüllt, wobei c die Vakuum-Lichtgeschwindigkeit bezeichnet. Für den Brechungsindex $\tilde{n}_0(t)$ und die Dichte $\rho(t)$ der Farbstofflösung im Grundmodenvolumen folgt

$$\rho(t) \propto \tilde{n}_0(t) = q \frac{c}{2D_0\nu_c(t)} = q \frac{1}{\tau_{rt}\nu_c(t)}, \quad (6.3)$$

wobei im letzten Schritt die Resonatorumlaufzeit im Vakuum $\tau_{rt} = 2D_0/c$ eingesetzt wurde. Nach Gl. (6.3) verhält sich die Dichte invers zum Frequenzverlauf aus Abbildung 6.3(b), und die Flüssigkeit wird auf der Querschnittsfläche des Pumpstrahls komprimiert. Ursache hierfür ist mutmaßlich eine anfängliche, lokale Aufheizung und Verdünnung des Mediums durch den Pumpimpuls, siehe Abbildung 6.4. Die entstandene Kavität wird dann durch verstärkten Rückfluss von Ethylenglykolekülen ($C_2H_6O_2$) verdichtet, ehe sich das Medium homogenisiert. Die Zeitkonstante lässt sich durch die Laufzeit einer Schallwelle durch das Grundmodenvolumen vom Durchmesser $d_0 \approx 15 \mu\text{m}$ abschätzen, $t_s = d_0/v_s \approx 10^{-8} \text{ s}$, wobei $v_s = 1688 \text{ m/s}$ die Schallgeschwindigkeit in Ethylenglykol bei 300 K bezeichnet [135]. Sie liefert eine entsprechend schnellere Dynamik verglichen mit der beobachteten Abklingzeit (10^{-3} s) des linearen thermischen Linseneffekts. Der obige Interpretationsansatz wird durch die weitere experimentelle Beobachtung unterstützt, dass die Geometrie des Pumpfokus entscheidend den Zeitverlauf der Frequenzmodulation beeinflusst. So ereignet sich bei schwächerer Fokussierung die Dichtemodulation wesentlich langsamer und das Maximum der Kompression verschiebt sich zu späteren Zeitpunkten (gepunktet-gestrichelte Linie). Die Defokussierung ermöglicht prinzipiell also eine Detektion von zeitlich ausgedehnten Schwebungssignalen. Dies erfordert aber auch eine Verlängerung der Pulsdauer, was aufgrund der Anregung von Triplett-Zuständen und dem damit verbundenen Ausbleichen des Photonenkondensats experimentell nicht unproblematisch realisierbar ist. Für die folgenden Messungen der Interferenzsignale und der zugehörigen Phasenentwicklung wurde die Pumpgeometrie mit einem Durchmesser von $2w_{01} = 2\lambda f_{L1}/\pi w_0 \simeq 140 \mu\text{m}$ (Pumpstrahltaile: $w_0 = 1 \text{ mm}$, Brennweite: $f_{L1} = 40 \text{ cm}$, siehe Abbildung 6.1) für alle Datensätze beibehalten.

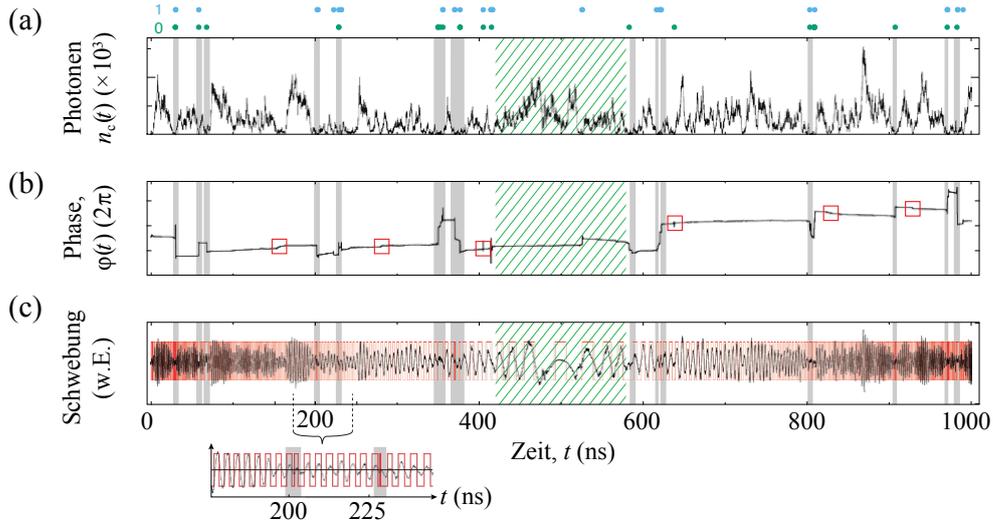


Abbildung 6.5: Phasensprunganalyse simulierter Interferenzsignale. (a) Zeitliche Entwicklung der stark fluktuierenden Photonenzahl und markierte Zeitpunkte mit null oder einem Photon (Punkte, oben). (b) Zugehörige Phasenentwicklung (in Einheiten von 2π) des Photonenkondensats mit einer Auflösung von $\Delta\varphi > 0.2\pi$ (rote Kästchen markieren Phasensprünge außerhalb des Detektionsfensters). (c) Schwebung zwischen Kondensat und Referenzlaser (schwarz) und digitalisiertes Rechtecksignal (rot). Starke Unregelmäßigkeiten in der relativen Breite und zentralen Position aufeinanderfolgender Rechteckanteile werden markiert (grau, siehe Zeitausschnitt) und zeigen Koinzidenzen mit Phasensprüngen in (b). Die Resonanzumgebung wird von der Detektion ausgeschlossen (schraffiert). (Simulationsparameter: Reservoirgröße $M = 10^6$, Kondensatbesetzung $\bar{n}_c = 280$ mit Intensitätskorrelation $g_c^{(2)}(0) = 1.67$, Farbstoff-Resonator-Verstimmung $\hbar\Delta/k_B T = 0$. Photonenzahl im Referenzlaser $\bar{n}_L = 1000$ mit $g_0^{(2)}(0) = 1.0$, Wellenlängenmodulation $\lambda_c(t) = \lambda_L \cdot [1 - (0.5 - t/T)/20]$ mit $T = 1 \mu\text{s}$)

6.1.2 Algorithmus zur Phasensprungdetektion

Die diskutierte zeitliche Variation der Resonatoreigenfrequenz verhindert sowohl eine direkte Messung der Kondensatphase für den Fall dauerhafter Resonanz zwischen Photonenkondensat und Farbstofflaser, $\lambda_c = \lambda_L$, als auch eine direkte analytische Anpassung eines kosinusförmigen Schwebungssignals an die Messdaten. Gut können jedoch diskrete Sprünge in der Phase des Kondensats erkannt werden, indem die Interferenzsignale (vgl. Abbildung 6.2(b)) auf Irregularitäten in ihrem Oszillationsverhalten überprüft werden. Zur Analyse wird ein Algorithmus eingesetzt, dessen Funktionsweise anhand von simulierten Daten in Abbildung 6.5 illustriert ist. Das in Abbildung 6.5(c) gezeigte simulierte Schwebungssignal zwischen Bose-Einstein-Kondensat und Farbstofflaser (schwarz) wird in ein Rechtecksignal (rot) digitalisiert. Der Analyseprozess durchläuft die Zeitentwicklung und überprüft das Signal auf Unregelmäßigkeiten in (i) der Breite und (ii) der zentralen Position benachbarter hoch-

und niederwertiger Abschnitte. Falls die Unregelmäßigkeiten vorgegebene Grenzwerte überschreiten, wird der entsprechende Zeitpunkt markiert (graue Flächen). Die durch eine Fourieranalyse automatisiert eingegrenzte Resonanzumgebung niederfrequenter Komponenten wird von der Detektion ausgeschlossen (schraffiert), um eine hier vermehrt beobachtete fehlerhafte Phasensprungmarkierung zu vermeiden. Anhand der Simulationsdaten wird die korrekte Funktionsweise des Algorithmus verifiziert, wie anhand der Koinzidenzen von grau markierten Regionen mit Phasensprüngen (Abbildung 6.5(b)) und Null- bzw. Ein-Photonen-Zeitpunkten (Abbildung 6.5(a)) sichtbar ist. Somit können Phasensprünge im Intervall $[0.2\pi, 1.8\pi]$ verlässlich registriert werden. Aufgrund der Analyse von relativen Unregelmäßigkeiten ist die Zeitauflösung durch die jeweilige Schwebungsperiode limitiert.

6.2 Phasenevolution des Bose-Einstein-Kondensats

Abbildung 6.6 zeigt drei verschiedene, gemessene Zeitverläufe von Interferenzen zwischen Photonenkondensat und Farbstofflaser für variierte Photonenzustände bei fixierter Reservoirgröße, ausgehend von einem stark besetzten, zweite-Ordnung kohärentem Bose-Einstein-Kondensat in (a) bis hin zu einer statistisch stark fluktuierenden Kondensatbesetzung in (c). Die linke Spalte in Abbildung 6.6 gibt normierte Zeitspuren der Kondensatpopulation, $n(t)/\bar{n}$, die im Anschluss an jede Interferenzmessung bei geblockter Farbstofflaseremission mit demselben Photodetektor aufgenommen wurde. Aus dem zeitlichen Verlauf wird die Autokorrelation $g^{(2)}(\tau)$ berechnet (Mitte), welche bei $\tau = 0$ als Maß für den Fluktuationsgrad $\Delta n = \bar{n}\sqrt{g^{(2)}(0) - 1}$ dient (vergleiche Kapitel 5). Aus der Anpassung eines exponentiellen Zerfalls an die experimentellen Daten wird die zugehörige Korrelationszeit zweiter Ordnung $\tau_c^{(2)}$ ermittelt, siehe die angegebenen Werte in der Abbildung. Der zuvor diskutierte Frequenzdrift ist in allen Messreihen erkennbar.

Im Bereich kanonischer Ensemblebedingungen mit Poisson-artiger Photonenzustatsstatistik, siehe Abbildung 6.6(a) mit $g^{(2)}(0) = 1.01(2)$, weist das Schwebungssignal eine stetige Oszillation auf, welche die zeitliche Kohärenz des Bose-Einstein-Kondensats über den gesamten Zeitbereich des Detektionsfensters von 120 ns demonstriert¹. Wird der Kondensatanteil verringert so ist die gegebene Reservoirgröße hinreichend, dass wir uns zunehmend im Bereich großkanonischer statistischer Fluktuationen bewegen, wie anhand der sichtbar erhöhten Intensitätsfluktuationen in Abbildung 6.6(b) mit $g^{(2)}(0) = 1.33(4)$, respektive (c) mit $g^{(2)}(0) = 1.93(13)$ erkennbar (links). Demzufolge wird in den zugehörigen Interferenzreihen (rechts) ein diskontinuierliches Oszillationsverhalten beobachtet, das mit verstärkten Fluktuationen weiter zunimmt und den mittleren Zeitabstand zwischen aufeinanderfolgenden Phasensprüngen auf $\Gamma_{PJ}^{-1} \approx 21.3$ ns in (b) beziehungsweise $\Gamma_{PJ}^{-1} \approx 5.3$ ns in (c) reduziert. Hierzu wurde

¹Bei schwacher Pumpstrahlfokussierung betrug die längste, in einer einzelnen Intensitätsspur detektierte Zeit ohne Phasensprung $\Gamma_{PJ}^{-1} \approx 1 \mu\text{s}$, entsprechend einer Kohärenzlänge $\ell_c^{(1)} \approx 300$ m.

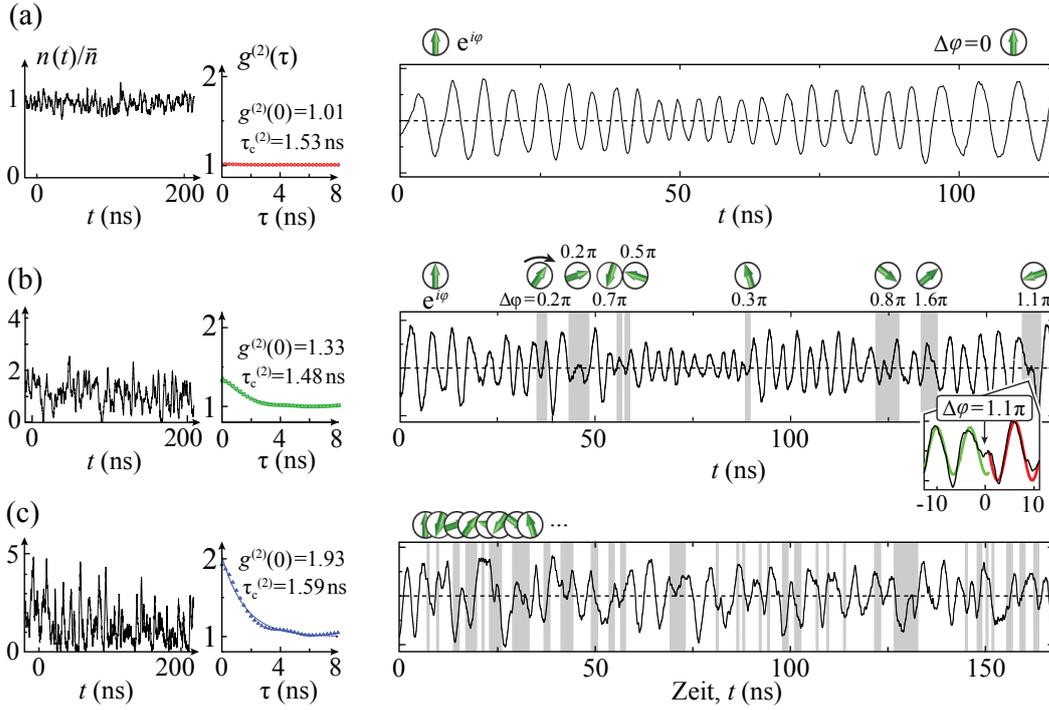


Abbildung 6.6: Zeitliche Interferenz zwischen Photonenkondensat und Farbstofflaser (rechts) für mittlere Besetzungszahlen (a) $\bar{n} = 114\,000$ (Kondensatanteil $\bar{n}/\bar{N} = 57\%$) (b) $8\,300$ (10%) und (c) $3\,700$ (5%), wodurch verschiedene Grade statistischer Teilchenzahlfuktuationen realisiert werden, wie in der normierten Photonenzahlentwicklung (links) und der Intensitätskorrelation (Mitte) sichtbar ist. Die durch den Algorithmus markierten Regionen (grau hinterlegt) weisen auf Phasensprünge hin, deren Rate von (a) nach (c) zunimmt. Die Drehwinkel der Phase werden aus einer Anpassung abgeleitet, wie im Einsatz von (b) gezeigt. (Experimentelle Parameter: Farbstoffkonzentration $\rho = 3$ mMol/l, Abschneidewellenlänge $\lambda_c = 582$ nm)

die Phasensprungrate eingeführt:

$$\Gamma_{PJ} = \frac{\#\text{Phasensprünge in Zeitintervall } T}{T} \quad (6.4)$$

Der Algorithmus zur Phasensprungdetektion markiert die entsprechenden Zeitpunkte (graue Flächen), in deren Umgebung eine Sinus-Anpassung Aufschluss über die aufgetretenen Phasenverschiebungen gibt, wie im Einsatz von Abbildung 6.6(b) (rechts) beispielhaft gezeigt ist. Eine Anpassung ist bei sehr hohen Störungsraten der Phase wie in Abbildung 6.6(c) (rechts) nicht mehr durchführbar. Die beobachteten Rotationswinkel der Kondensatphase sind innerhalb des Detektionsfensters $[0.2\pi, 1.8\pi]$ im Rahmen der Fehlergrenzen gleichverteilt, wie an dem Histogramm in Abbildung 6.7 deutlich wird. Die Zufallsverteilung folgt der erwarteten $U(1)$ -Symmetrie des unendlich entarteten Grundzustands. Zurückgeführt wird die Gleichverteilung der Phasenwinkel auf den zufälligen Phasenwinkel der spontanen

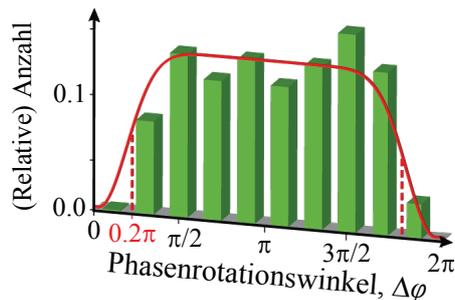


Abbildung 6.7: Histogramm der Rotationswinkel $\Delta\varphi$ bei 108 analysierten Phasensprüngen in typischen Interferenzsignalen wie in Abbildung 6.6(b) dargestellt. Innerhalb des Halbwerts-Detektionsintervalls $[0.2\pi, 1.8\pi]$ ist eine zufällige Verteilung von Rotationswinkeln erkennbar. An die Daten wurde eine exponentiell abfallende Fensterfunktion angepasst (rote Linie). Die Beobachtung reflektiert die $U(1)$ -Symmetrie des phasenentarteten Grundzustands, welche bei der Kondensation durch die Zufallsphase eines spontan emittierten Photons gebrochen wird.

Emission, die nach Fluktuationen der Kondensatintensität zu sehr kleinen Werten zu einem erneutem Anschwingen des Kondensats führt.

6.3 Korrelationszeiten erster und zweiter Ordnung

Ein Vergleich der Zeitkonstanten von Intensitäts- und Phasenfluktuationen in der linken und rechten Spalte von Abbildung 6.6 legt eine Separation der Dynamik offen: Während $\tau_c^{(2)}$ nahezu konstant bleibt, skaliert die Zeitskala für die Kohärenz erster Ordnung wesentlich stärker mit der Wahl des statistischen Ensembles und der damit verbundenen Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_0 . Ein entsprechendes Verhalten wurde bereits in den theoretischen Berechnungen und numerischen Simulationen im Rahmen von Kapitel 3 beobachtet. Worin liegt die physikalische Ursache für die Separation der Zeitskalen? Einerseits ist nur die Spontanemission in der Lage, die Phase der Wellenfunktion beliebig zu rotieren. Dies geschieht allerdings nur zu Zeitpunkten, bei denen wenige Photonen den Grundzustand des Mikroresonators besetzen. Die Wahrscheinlichkeit hierfür ist aber gerade durch die Photonenzahlverteilung vorgegeben und dominiert somit die Zeitskala der Phasenfluktuationen, siehe Gl. (3.80). Andererseits unterliegt die Dynamik der Teilchenzahlfluktuationen nach Gl. (3.63) den Absorptions- und Emissionsraten von Photonen durch das Farbstoffmedium. Für anwachsende Kondensatbesetzungen \bar{n} bei gegebener Reservoirgröße nehmen die relativen Fluktuationen $\delta n/\bar{n}$ zwar ab, die Zeitskala für verbleibende absolute Intensitätsfluktuationen wird jedoch weiterhin durch die Einstein-Koeffizienten kontrolliert. Starke Kondensatbesetzungen führen sogar zu einer Verringerung der Korrelationszeit zweiter Ordnung, im Gegensatz zur Ausdehnung der Kohärenzzeit erster Ordnung.

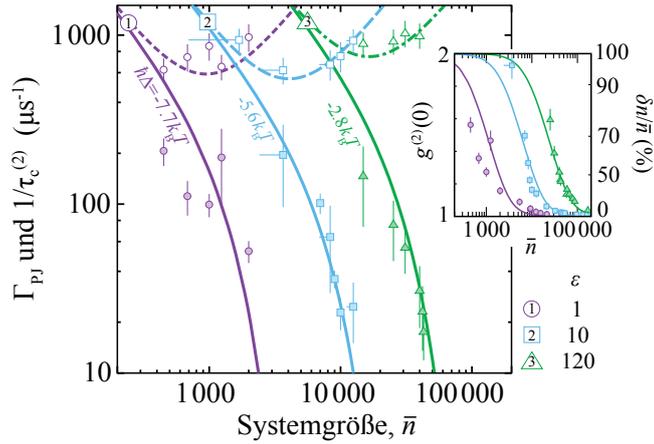


Abbildung 6.8: Intensitätskorrelationen und Kohärenzzeiten. Inverse Korrelationszeit zweiter Ordnung $1/\tau_c^{(2)}$ (offene Symbole) und Phasensprungraten Γ_{PJ} (gefüllte Symbole) als Funktion der Zahl der Photonen im Kondensat für drei unterschiedlich große Reservoirs, realisiert durch Variation der Farbstoff-Resonator-Verstimmung $\hbar\Delta = \{-7.7; 5.6; 2.8\}k_B T$. Die effektiven Reservoirgrößen relativ zum ersten Reservoir sind durch den Parameter ε aus Gl. (5.6) quantifiziert, und die durchgezogenen Linien sind Theoriekurven für Γ_{PJ}^0 mit $M = \{2.0; 4.5; 5.0\} \cdot 10^9$, $\hat{B}_{12} = \{140; 250; 1300\}s^{-1}$. Im experimentell zugänglichen Bereich unterschreiten die beobachteten Phasensprungraten signifikant die inversen Korrelationszeiten zweiter Ordnung. Die Teilabbildung (rechts) zeigt die unverzögerten Autokorrelationen $g^{(2)}(0)$ als Funktion der Kondensatpopulation für entsprechende Parameter. (Experimentelle Parameter: $\lambda_c = \{597; 582; 563\}nm$, $\rho = 3$ mMol/l, $\bar{n} = \sqrt{M_{\text{eff}}} \simeq \{1.0; 4.1; 16.5\} \cdot 10^3$, angegebene Fehler sind statistischer Natur)

Zur quantitativen Analyse der Zeitskalen zeigt Abbildung 6.8 experimentell bestimmte Phasensprungraten Γ_{PJ} gemeinsam mit inversen Korrelationszeiten zweiter Ordnung $1/\tau_c^{(2)}$ als Funktion der mittleren Photonenzahl im Kondensat. Die Messungen erfolgen an drei unterschiedlich großen Teilchenreservoirs, was durch Verstimmung der Wellenlängen von Kondensat λ_c und Null-Phononen-Resonanz λ_{ZPL} realisiert wird. Wie in Gl. (3.71) gesehen, bewirken geringe Verstimmungen eine Vergrößerung des effektiven Reservoirs $M_{\text{eff}} = M / \{2 + 2 \cdot \cosh[hc(\lambda_c^{-1} - \lambda_{ZPL}^{-1})/k_B T]\}$. Die Phasensprungraten (gefüllte Symbole) steigen sowohl mit anwachsender effektiver Reservoirgröße als auch abnehmender Photonenzahl im Kondensat (Systemgröße). Dies begründet sich durch die in beiden Fällen erhöhte Wahrscheinlichkeit, eine sehr geringe Photonenzahl im Grundmoden zu finden (siehe erhöhter Fluktuationsgrad im Einsatz von Abbildung 6.8), sodass die Phasenkohärenz des Kondensats nicht aufrechterhalten wird. Die Raten für null Photonen im Grundzustand, $\Gamma_{PJ}^0 = \hat{B}_{12} M \mathcal{P}_0$, (durchgezogene Linien in Abbildung 6.8) zeigen innerhalb der Fehlergrenzen eine

gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Dies legt nahe, dass das vollständige Einbrechen der Kondensatmission gefolgt von einem spontanen Emissionsprozess die physikalische Ursache für die beobachteten Phasensprünge erfasst.

Zum Vergleich zeigen die offenen Symbole in Abbildung 6.8 die inverse Korrelationszeit zweiter Ordnung $1/\tau_c^{(2)}$ mitsamt der Theoriekurven (gestrichelte Linien) aus Gl. (3.69). In allen drei Konfigurationen separieren die charakteristischen Zeitskalen der Kohärenz erster und zweiter Ordnung im Übergangsbereich der Photonenzahlstatistik, $\bar{n} = \sqrt{M_{\text{eff}}}$. Obwohl die angewandte Analyse der zeitlichen Phasenkohärenz keine diffusiven Beiträge zur Linienbreite des Kondensats erfasst [53], demonstriert bereits dieser experimentelle Befund den ungewöhnlichen Charakter des Bose-Einstein-kondensierten Lichts: es handelt sich um eine Lichtquelle bestehend aus einem einzelnen makroskopisch besetzten, statistisch fluktuierenden Emitter mit hoher Phasenraumdichte und relativen Intensitätsfluktuationen, welche dieselbe Größenordnung erreichen können wie Fluktuationen von thermischem Licht. Die für thermisches Licht bekannte Verknüpfung von Korrelationen erster und zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2$ [37, 42], wird hier jedoch nicht befolgt.

6.4 Phasenstabilität im thermodynamischen Limes

Im vorliegenden Abschnitt wird die Frage nach der Phasenstabilität der Wellenfunktion im thermodynamischen Grenzfall diskutiert, also nach der Signifikanz von statistischen Teilchenzahlfuktuationen und Phasenkohärenz im thermodynamischen Limes. Hierzu wird die Phasensprungrate als Funktion der Systemgröße untersucht. Sowohl die Photonenzahl im Grundzustand \bar{n} (und damit die Gesamtzahl der Photonen $\bar{N} = \bar{n}/[1 - (T/T_c)^2]$), als auch das effektive Teilchenreservoir M_{eff} werden dabei so vergrößert, dass die statistischen Ensemblebedingungen erhalten bleiben.

Abbildung 6.9 demonstriert, dass die Erhaltung des Größenverhältnisses $\sqrt{M_{\text{eff}}}/\bar{n} = \text{konst.}$ mit der Erhaltung der unverzögerten Autokorrelation $g^{(2)}(0) = \text{konst.}$ einhergeht. Jeder gezeigte Datenpunkt ist numerisch berechnet worden, indem bei festgehaltener Photonenzahl \bar{n} die Reservoirgröße M_{eff} so lange angepasst wird, bis die zugehörige Photonenzahlstatistik \mathcal{P}_n eine gewisse vorgegebene Autokorrelation $g^{(2)}(0) = \{1.10; \dots; 1.90\}$ liefert. Danach wird die Prozedur für vergrößerte Kondensate wiederholt, und man erhält weitere Datenpunkte bei demselben Fluktuationsgrad, siehe Abbildung 6.9. Es zeigt sich, dass für jeden einzelnen Datensatz mit fixiertem $g^{(2)}(0)$ auch das zugehörige Verhältnis $\sqrt{M_{\text{eff}}}/\bar{n}$ konstant bleibt.

Die oben angestellten Betrachtungen demonstrieren, dass das Verhalten der Phasenkohärenz in den thermodynamischen Grenzfall ($\bar{n}, \bar{N}, M \rightarrow \infty, \sqrt{M}/\bar{n} = \text{konst.}$) extrapoliert werden kann, sofern der Fluktuationsgrad $g^{(2)}(0)$ beibehalten wird. Streng genommen muss bei der Extrapolation auch die Übergangstemperatur $T_c \propto \sqrt{\bar{N}/R}$, siehe Gl. (2.45), durch eine zu \bar{N} äquivalente Vergrößerung des Spiegelkrümmungsradius $R \rightarrow \infty$ konstant gehalten werden, um den Kondensatanteil \bar{n}/\bar{N} unabhängig

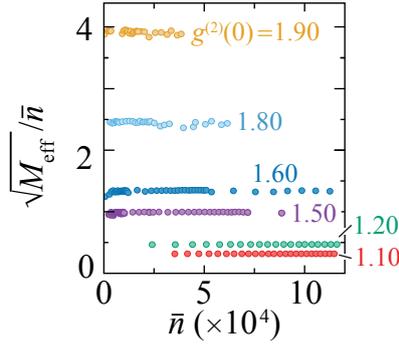


Abbildung 6.9: Berechnete Skalierung der relativen effektiven Reservoir- und Kondensatgröße $\sqrt{M_{\text{eff}}}/\bar{n}$ als Funktion der mittleren Kondensatpopulation \bar{n} für verschiedene vorgegebene Fluktuationsgrade $g^{(2)}(0)$. Für jede Besetzung \bar{n} wird M_{eff} numerisch angepasst, bis $g^{(2)}(0)$ den jeweiligen vorgegebenen Wert angenommen hat. Die Daten zeigen, dass das Verhältnis $\sqrt{M_{\text{eff}}}/\bar{n}$ konstant bleibt, wenn die Autokorrelation beibehalten wird. (Simulationsparameter: $\hbar\Delta = 0k_{\text{B}}T$, $M = 0.5\text{-}2.0 \cdot 10^{10}$)

von der Gesamtphotonenzahl \bar{N} zu konservieren. Experimentell ist eine derartige Skalierung jedoch extrem aufwendig und mit dem vorliegenden Aufbau nicht realisierbar, sodass wir lediglich die Forderung an die Erhaltung der relativen Kondensat- und Reservoirgröße erfüllen können¹.

Abbildung 6.10(a) zeigt Messwerte der Phasensprungrate Γ_{PJ} gegen die Autokorrelation $g^{(2)}(0)$ für drei unterschiedlich große Reservoirs, experimentell realisiert durch Variation der Verstimmung zwischen Farbstoff- und Kondensatfrequenz (Parameter wie in Abschnitt 6.3). Beim Vergleich der Raten für identische Autokorrelationen fällt auf, dass das Photonenkondensat im Kontakt mit dem kleinsten Reservoir ($\hbar\Delta = -7.7k_{\text{B}}T$) für alle Fluktuationsgrade eine geringere Kohärenzzeit besitzt als Kondensate, die an das mittlere ($\hbar\Delta = -5.6k_{\text{B}}T$) und große ($\hbar\Delta = -2.3k_{\text{B}}T$) Reservoir ankoppeln. Bei einem gleichen Wert der Teilchenzahlfluktuationen reduziert die erhöhte Kondensatbesetzung in der Gegenwart eines großen Reservoirs die Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_0 , null Photonen im Kondensat zu finden, in qualitativer Übereinstimmung mit numerischen Ergebnissen, siehe Einsatz von Abbildung 6.10(a).

Aus den Daten in Abbildung 6.10(a) werden Phasensprungraten für drei ausgewählte Werte der unverzögerten Autokorrelation $g^{(2)}(0) = 1.59(18)$, $1.18(9)$ und $1.02(1)$ extrahiert, die gegen die inverse Kondensatbesetzung $1/\bar{n}$ aufgetragen werden, siehe Abbildung 6.10(b). Die Datenpunkte liegen alle im Bereich $\bar{n} \geq \sqrt{M_{\text{eff}}}$, für den in Abschnitt 6.3 eine Separation der Zeitskalen von Γ_{PJ} und $1/\tau_c^{(2)}$ beobachtet wurde. Eine lineare Extrapolation der gezeigten Daten zu einem unendlich

¹Aktuell finden im Rahmen der Dissertation von David Dung vielversprechende Experimente zur wärmeinduzierten Erzeugung arbiträrer Potentiallandschaften für das Photonengas im Mikroresonator statt, welche einen Lösungsansatz für dieses Problem darstellen könnten.

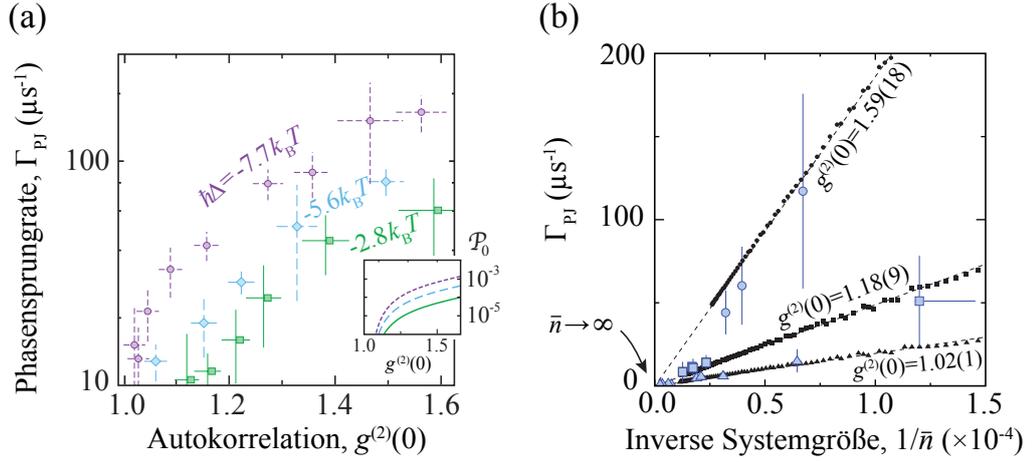


Abbildung 6.10: Extrapolation der Phasenkohärenz bei Vergrößerung des Photon-Molekül-Systems. (a) Phasensprungraten Γ_{PJ} gegen die unverzögerte Autokorrelation $g^{(2)}(0)$ für drei Reservoirgrößen. Bei jedem Fluktuationsgrad weist das größere System eine erhöhte Phasenstabilität auf. Die numerisch berechneten Null-Photonen-Wahrscheinlichkeiten \mathcal{P}_0 (eingebettete Abbildung) für entsprechende Reservoirparameter zeigen ein analoges Verhalten als Funktion von $g^{(2)}(0)$. (b) Phasensprungrate gegen inverse Kondensatpopulation $1/\bar{n}$ für Datensätze bei drei fixierten Fluktuationsgraden $g^{(2)}(0)$ (gefüllte Symbole). Die Extrapolation $\bar{n} \rightarrow \infty$ (gestrichelt) deutet in allen Fällen auf volle Phasenkohärenz im thermodynamischen Limes hin. Die schwarzen Symbole resultieren aus numerischen Berechnungen von $\Gamma_{PJ}^0 = \hat{B}_{12} M \mathcal{P}_0$, bei entsprechendem Fluktuationsgraden $g^{(2)}(0)$, mit $M = 4 \cdot 10^9$, $\hat{B}_{12} = 1000 \text{ s}^{-1}$. (Parameter wie in Abbildung 6.8.)

großen Kondensat ($\bar{n} \rightarrow \infty$) deutet darauf hin, dass das Kondensat im thermodynamischen Grenzfall vollständige Phasenkohärenz erlangt, trotz der Tatsache, dass das Kondensat keine Kohärenz zweiter Ordnung aufweist. Dieses Fazit wird auch durch die in Abbildung 6.10(b) gezeigten numerischen Berechnungen (schwarze Symbole, gestrichelte Linien) für $g^{(2)}(0) = 1.50, 1.18$ und 1.05 unterstützt. Der stärkste Fluktuationsgrad entspricht in guter Näherung den Bedingungen am Übergangspunkt der Photonenzahlstatistik ($g^{(2)}(0) = \pi/2$), bei dem die Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_0 = 2/\pi \cdot \bar{n}^{-1}$ im Kondensat aus der Gauß'schen Photonenzahlverteilung Gl. (3.58) folgt. Aus der Anpassung an die Messdaten an diesem Punkt folgt $\Gamma_{PJ}/\hat{B}_{12}M = \mathcal{P}_0 = 0.51(14)\bar{n}^{-1}$, was innerhalb der Fehlergrenzen und unter Annahme, dass Phasensprünge lediglich zu Zeitpunkten mit null Photonen im Resonator auftreten, die erwartete Skalierung mit $\mathcal{P}_0 = 2/\pi \cdot \bar{n}^{-1} \simeq 0.64 \bar{n}^{-1}$ reproduziert. Für geringere Fluktuationsgrade lässt sich analytisch keine Formel ableiten, welche die Skalierung der Null-Photonen-Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_0 als Funktion der mittleren Photonenzahl vorhersagt. Daher werden die Messdaten in diesen Fällen ausschließlich mit numerischen Resultaten verglichen, die im untersuchten Messbereich ebenfalls eine lineare Abhängigkeit von der inversen Kondensatgröße ($\mathcal{P}_0^{1,18} = 0.13(5)\bar{n}^{-1}$

und $\mathcal{P}_0^{1.02} = 0.06(2)\bar{n}^{-1}$) demonstrieren. Es sei darauf hingewiesen, dass die Amplitudenfluktuationen der Kondensatwellenfunktion $\sqrt{n(t)} \exp(i\phi(t))$ den Kohärenzgrad erster Ordnung reduzieren und zu einer spektralen Ausdehnung der Linienbreite führen können. Dennoch wird die Phasenkohärenz im System gemäß der Extrapolation niemals verloren gehen.

6.5 Photonisches Bose-Einstein-Kondensat & Laser

In den vorherigen Kapiteln wurden Experimente zur Thermalisierungsdynamik eines photonischen Bose-Einstein-Kondensats ausgehend von laserartigen Nichtgleichgewichtszuständen und den zeitlichen Korrelationen der Photonenzahl und Phase im Kondensat für unterschiedliche statistische Ensembles diskutiert. Sowohl der Laser als auch das Bose-Einstein-Kondensat weisen in ihrer Funktionsweise und Eigenschaften gewisse Parallelen auf - ein Umstand, der auch im experimentellen Umfeld ultrakalter atomarer Gase den Begriff „Atomlaser“ geprägt hat [31, 32, 52, 136, 137].

Für das photonische Bose-Einstein-Kondensat zeigt bereits der experimentelle Aufbau bestehend aus einem Resonator, in den ein extern gepumptes, optisch aktives Medium eingebracht wird, eine Ähnlichkeit mit einem konventionellen Lasersystem. In beiden Lichtquellen führen stimulierte Emissionsprozesse oberhalb einer gewissen kritischen optischen Resonatorleistung eine makroskopische Photonenbesetzung eines Einzelmoden-Zustandes herbei, die neben hoher Brillanz ($\hat{=}$ spektrale Photonenstromdichte pro Raumwinkel) und Phasenkohärenz, unter adäquaten Umständen auch durch Kohärenz zweiter Ordnung charakterisiert ist. Während Bose-Einstein-Kondensation oberhalb einer wohldefinierten, kritischen Phasenraumdichte eintritt [2, 3, 25, 26], existiert streng genommen keine eindeutige und universelle Definition des Lasers [32]. Meist definiert sich Laseroperation durch den Charakter der Ausgangsstrahlung, welche intensiv, gerichtet, monochromatisch, frequenz- und intensitätsstabil und in allen Ordnungen räumlich und zeitlich kohärent ist [40, 78, 79, 113, 138]. Laserlicht besitzt also insbesondere eine Poisson'sche Photonenstatistik $\mathcal{P}_n = \bar{n}^n e^{-\bar{n}}/n!$, im Gegensatz zur Bose-Einstein-Statistik $\mathcal{P}_n = \bar{n}^n/(\bar{n} + 1)^{n+1}$ einer thermischen (chaotischen) Lichtquelle.

Im Allgemeinen ist die Emission eines Lasers damit fern des thermischen Gleichgewichts zu betrachten [70]. Einerseits beruht das Verstärkungsprinzip des Lichtfeldes auf einer gezielt nicht-thermischen Populationsinversion eines strahlungsstarken, quantenmechanischen Übergangs in einem optisch aktiven Medium (z.B. in einem Gas, Festkörper, Flüssigkeit, etc.). Andererseits stellt der Laser ein hochgradig dissipatives System dar, in dem spontan in das gesamte Modenvolumen emittierte Photonen bewusst nicht vom Resonator eingefangen werden, sodass durch die Verluste eine scheinbare Entropieabsenkung von ungeordneter Pump- hin zu geordneter Laserstrahlung erreicht wird. Die Inversion des atomaren Übergangs unterdrückt zudem die Absorption von Photonen, sodass keine thermodynamische Information zwischen Medium und Resonatorlichtfeld wechselseitig ausgetauscht wird. Anders

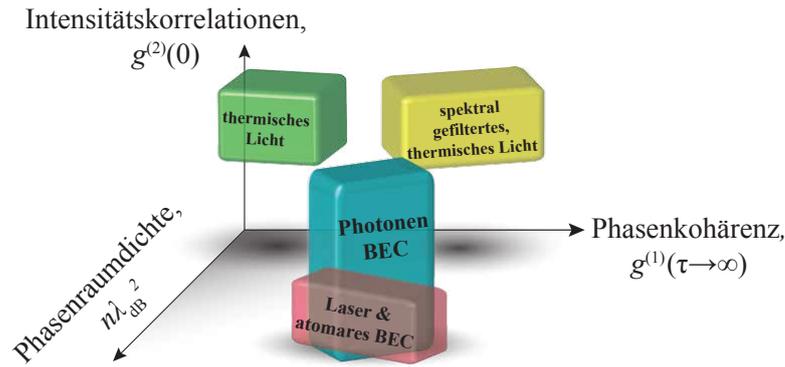


Abbildung 6.11: Phasendiagramm zur Einordnung des photonischen Bose-Einstein-Kondensats (BEC) relativ zu anderen Lichtquellen, sowie auch makroskopischen Quantensystemen, anhand der spezifischen Intensitätskorrelationen, Phasenkohärenz und Phasenraumdicke im thermodynamischen Grenzfall.

als im Bose-Einstein-kondensierten Photonengas resultieren Intensitäts- und Phasenfluktuationen von Laserstrahlung daher nicht aus der Kopplung an ein thermisches Reservoir, sondern basieren fundamental auf verbleibender Spontanemission von Photonen in den Lasermoden [124, 139]. Hinsichtlich dieser Laser-definierenden Eigenschaften liefert die vorliegende Arbeit experimentelle Evidenzen, die eine Abgrenzung der Phänomene des Laserprozesses und der Bose-Einstein-Kondensation nahe legen, siehe auch Abbildung 6.11:

Vielmoden-System. Die Photonverteilung über die Eigenzustände des Resonators folgt einem Gleichgewichtsspektrum bei der Temperatur des aktiven Farbstoffmediums ($T = 300$ K). Das Emissionsspektrum ist somit nicht durch das Fluoreszenzprofil, sondern durch die relative Skalierung von Fluoreszenz und Absorption mit einem Boltzmann-Faktor (Kennard-Stepanov-Relation) bestimmt. Demnach steht das Photonengas im thermischen Kontakt mit dem Farbstoffmedium, welches aufgrund seiner enormen Größe und effizienten Thermalisierung durch Lösungsmittelstöße ein Wärmebad für die Photonen darstellt. Spontanemission wird in der hochreflektiven Mikroresonatorgeometrie eingefangen und in das optische Medium durch Reabsorption zurückgeführt, wodurch Verluste niedrig gehalten werden. Der durch stimulierte Emission makroskopisch besetzte Zustand ist stets der Grundmoden unabhängig von der spektralen Position der Abschneidewellenlänge. Letzteres gilt im realen System naturgemäß nur in einem Bereich, in dem das Absorptionsprofil eine hinreichend starke Thermalisierung erlaubt.

Einzelmoden-Charakteristik. Die Kopplung des Bose-Einstein-Kondensats an ein Teilchenreservoir kann großkanonische statistische Bedingungen realisieren mit Teilchenzahlfuktuationen von der Größenordnung der mittleren Kondensatpopulation bis weit in die kondensierten Phase, analog zu einer (thermischen) chaotischen

Lichtquelle. Die Fluktuationen sind eine Konsequenz der Bose-Einstein-artigen Photonstatistik, welche beim Laser unmittelbar oberhalb der Schwelle einer Poisson-Verteilung folgt [79, 113]. Bis weit in den Bereich hoher Teilchenzahlfuktuationen zeigt das stark besetzte Kondensat ausgedehnte Phasenkohärenz. Insbesondere wird dann trotz starker Fluktuationen eine Separation der charakteristischen Zeitskalen für die Kohärenz erster und zweiter Ordnung beobachtet.

Photonendynamik. Das molekulare Wärmebad kontrolliert den Übergang von einem Nichtgleichgewichtsgas hin zu einem Bose-Einstein-Kondensat. Die Dynamik wird durch die absorptive Kopplungsstärke bestimmt. Bei hinreichend starker Pumpenanregung kann ein kohärentes Wellenpaket, analog zu einem modengekoppelten Puls laser, in einem Satz von angeregten Zuständen injiziert werden. Nur in der Abwesenheit des Wärmebades bildet sich die Laseroszillation dauerhaft aus, ansonsten equilibriert das Molekül-Photon-System und thermalisiert zum Zustand mit minimaler freier Energie, einem Bose-Einstein-Kondensat. Ein Vergleich der experimentellen Resultate mit numerischen Simulationen demonstriert, dass das Anschwingen der Laseroszillation eine lokale Inversion des aktiven Mediums und ein räumlich inhomogenes chemisches Potential erfordert. Bei der Bose-Einstein-Kondensation hingegen befinden sich Photonen und Farbstoffmoleküle im chemischen sowie thermischen Gleichgewicht und keine Inversion des Mediums ist notwendig.

Kapitel 7

Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Doktorarbeit wurden Untersuchungen der Dynamik, der zeitlichen Korrelations- und Kohärenzeigenschaften, sowie der statistischen Physik eines Bose-Einstein-kondensierten Photonengases durchgeführt. Dabei konnte erstmals eine Bose-Einstein-Kondensation im großkanonischen statistischen Ensemble anhand von verschiedenen experimentellen Evidenzen nachgewiesen werden. Die wichtigsten Hinweise hierfür lassen sich in drei Punkten zusammenfassen:

- i) Die spektrale Dynamik des Photonengases zeigt, dass die Thermalisierung der Photonen durch reabsorptive Kopplung an ein molekulares Wärmebad erfolgt. Sofern die Kopplungsrate die Verlustrate der Photonen übersteigt, wird die Formation einer Gleichgewichtsverteilung ausgehend von einem nicht-thermischen Gas verfolgt.
- ii) Aufgrund der Entkopplung von Photonenzahl und Temperatur im Farbstoff-Mikroresonator stellen die elektronisch angeregten Moleküle ein effektives Teilchenreservoir für die Photonen dar. Das großkanonische Ensemble manifestiert sich in den beobachteten Intensitätskorrelationen des Bose-Einstein-Kondensats bis in den Bereich hoher Quantenentartung.
- iii) Das an das Farbstoffreservoir gekoppelte Photonenkondensat zeigt eine spontan gebrochene Symmetrie und die damit verbundene Phasenkohärenz, deren Zeitskala die der statistischen Intensitätsfluktuationen deutlich übersteigt. Die zu großer Teilchenzahl extrapolierten Ergebnisse lassen im thermodynamischen Limes trotz der begrenzten Kohärenz zweiter Ordnung vollständige Phasenkohärenz erwarten.

Die Beobachtungen legen den Schluss nahe, dass es sich bei der Bose-Einstein-Kondensation des idealen, photonischen Bose-Gases um einen Phasenübergang handelt, der thermisches und chemisches Gleichgewicht erfordert. Die Interpretation als Phasenübergang wird ferner durch die beobachtete Aufhebung der unendlichenfachen Entartung der Grundzustandswellenfunktion durch Selektion einer makroskopischen Phase und der Ausprägung von Kohärenz unterstützt [6, 7]. Die Realisierung

eines Bose-Einstein-Kondensats im großkanonischen Ensemble gewährt erstmals Einblick in das viel diskutierte Phänomen der „großkanonischen Fluktuationkatastrophe“ [8, 9, 54, 55, 57–60]. Die Beobachtung von äußerst großen, statistisch schwankenden Kondensatpopulationen demonstriert die physikalische Relevanz des großkanonischen Ensembles für die Bose-Einstein-kondensierte Phase. In gewisser Weise stellen die gewonnenen Resultate eine Konsistenz zwischen der statistischen Beschreibung des Bose-Einstein-Kondensats und des idealen Bose-Gases her, denn traditionell wird in der analytischen Herleitung der Bose-Einstein-Kondensation selbst das großkanonische Ensemble zur Einführung des chemischen Potentials verwendet. Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit erlauben die fundamentale Einsicht, dass Bose-Einstein-Kondensation keine Kohärenz zweiter Ordnung impliziert und im engeren Sinne als „thermisch“ zu betrachten ist.

Die vorliegende, experimentelle Studie der Photonendynamik stellt eine tiefere Charakterisierung basierend auf der erstmaligen experimentellen Realisierung eines Bose-Einstein-kondensierten Photonengases dar [20], in welcher der Hauptfokus auf die thermodynamischen, stationären Eigenschaften des Kondensats gelegt wurde. Hierin wurde die asymptotische Gleichgewichtsverteilung des Photonengases unter und oberhalb der Kondensationsschwelle beobachtet und die Skalierung der kritischen Teilchenzahl anhand verschiedener Fallenparameter verifiziert [21, 110]. Ebenso konnten räumliche Relaxationseffekte von Fluoreszenzphotonen im Fallenpotential beobachtet werden, deren Dynamik und physikalische Ursache in der vorliegenden Arbeit zeitaufgelöst analysiert und verstanden worden sind. Gegenstand aktueller Forschung sind die Untersuchung der räumlichen Phasenkohärenz sowie der kalorimetrischen Eigenschaften des Photonengases, anhand derer bislang u.a. die spezifische Wärme bestimmt werden konnte. Die Beobachtung des von Helium II bekannten Lambda-Übergangs markiert hierbei auf besonders eindrucksvolle Weise das Auftreten des Phasenübergangs der Bose-Einstein-Kondensation von Photonen [140]. Zukünftig stellt sich weiterhin die Frage, ob neben der im Rahmen der vorliegenden Arbeit beobachteten Phasensprungrate des optischen Bose-Einstein-Kondensats unter großkanonischen statistischen Ensemble-Bedingungen auch der theoretisch vorhergesagte diffusive Beitrag zur Linienbreite beobachtet werden kann [53]. Ungeachtet der benötigten Photon-Photon-Wechselwirkung, wären hierzu sicher optische Bose-Einstein-Kondensate sehr hoher Frequenzstabilität erforderlich.

Eine weitere spannende Perspektive stellt die Untersuchung von Photonengasen in periodischen Gitterstrukturen dar. Einerseits können durch statische Mikrostrukturierung der Spiegeloberflächen, andererseits auch durch reversible Modifizierung des optischen Brechungsindex im Farbstoffmedium im Prinzip arbiträre attraktive oder repulsive Potentiale für das Photonengas im Mikroresonator realisiert werden. Zur räumlichen Potentialstrukturierung können den Lösungsmitteln für das Farbstoffmedium thermosensitive Polymere beigefügt werden, welche bei laserinduzierter Wärmedeposition zu einer nichtlinearen Modulation des Brechungsindex führen [141]. Erste Ergebnisse dazu, in denen das Tunneln von Photonen zwischen Kondensaten in

benachbarten Potentialtöpfen untersucht wurde, erscheinen vielversprechend [142]. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit erlangte Kenntnis über die Phasenstabilität des makroskopisch besetzten Grundzustandes erlaubt den formalen Analogieschluss zwischen in einer Gitterstruktur angeordneten Bose-Einstein-Kondensaten und einem XY-Modell aus zweidimensionalen Spins [49]. Hierbei kann das Tunneln von Photonen zwischen zwei Kondensaten als effektive Spin-Spin-Wechselwirkung interpretiert werden. Großkanonische Teilchenzahlfuktuationen könnten in diesem System die Rolle von thermischen Fluktuationen bei einer effektiven Temperatur übernehmen. Bei niedrigen „Temperaturen“ ist der Berezinskii-Kosterlitz-Thouless-Übergang vorhergesagt, ein topologischer Phasenübergang zu einem suprafluiden Zustand mit langreichweitiger Ordnung [106, 143–145]. Weiterhin ist vorstellbar, dass durch externes Koppeln von arbiträren Gitterplätzen komplexere Wechselwirkungen realisiert werden können, mit dem Potential für z.B. antiferromagnetisches Verhalten [146]. Selbst in der Abwesenheit von Gitterstrukturen wird für extrem hohe Farbstoffdichten im Mikroresonator erwartet, dass die Physik des Systems aus Photonen und kollektiven molekularen Dicke-Zuständen durch ein Mott-Hubbard-Modell beschrieben wird [147]. Darüber hinaus könnte die Suprafluidität von Photonen auch auf direktem Wege durch nichtlineare Photon-Photon-Wechselwirkungen im homogenen System implementiert und anhand der kritischen Landau-Geschwindigkeit überprüft werden [148].

Anhang

A.1 Numerische Simulation der Photonendynamik

Um einen Einblick in die physikalischen Prozesse zu erhalten, die den Übergang von transientem Laserverhalten (kritisches Nichtgleichgewichtsgas) zu einem Bose-Einstein-Kondensat (kritisches Gleichgewichtsgas) auslösen, werden numerische Simulationen der Photonendynamik im Mikroresonator durchgeführt [76]. Sie basieren auf einem Ratengleichungsmodell für ein harmonisch gefangenes Photonengas, welches sowohl die radiative Wechselwirkung mit einem optischen Medium als auch die Bewegung der Photonen beschreibt. Zur Vereinfachung beschränken sich die Berechnungen auf das eindimensionale System. Die Resultate können qualitativ auch durch eine semiklassische Theorie reproduziert werden [149]. Die Bewegungsgleichung der Photonendichte folge der partiellen Differentialgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} \bar{n}_i = \hat{B}_{21}^i \bar{\rho}_\uparrow (\bar{n}_i + \varepsilon_i) - \left(\hat{B}_{12}^i \bar{\rho}_\downarrow + \Gamma_i \right) \bar{n}_i - v_i \frac{\partial}{\partial x} \bar{n}_i, \quad (\text{A.1})$$

mit der Anzahldichte von Photonen $\bar{n}_i = \bar{n}_i(x, t)$ im i -ten Moden am Ort x und zur Zeit t (im Mittel über viele Realisierungen), den Anzahldichten von Molekülen im Grund- und elektronisch angeregten Zustand $\bar{\rho}_{\downarrow, \uparrow} = \bar{\rho}_{\downarrow, \uparrow}(x, t)$, sowie den Ratenkoeffizienten für Absorption und Emission $\hat{B}_{12, 21}^i = \hat{B}_{12, 21}(\omega_i)$ bei der Photonenfrequenz ω_i . Weiterhin bezeichnen $\varepsilon_i = \varepsilon_i(x)$ die Anzahldichte eines einzelnen Photons im i -ten Resonatormoden, $\Gamma_i = \Gamma(\omega_i)$ die Verlustrate des Resonators und $v_i = v_i(x)$ ein im Folgenden diskutiertes Geschwindigkeitsfeld der Photonen. Die Summe der Photonen und angeregten Farbstoffmoleküle sei eine Erhaltungsgröße, sodass folgt

$$-\frac{\partial}{\partial t} \bar{M}_\downarrow = \frac{\partial}{\partial t} \bar{M}_\uparrow = P - \sum_i \frac{\partial}{\partial t} \bar{n}_i, \quad (\text{A.2})$$

wobei $P = P(x, t)$ die Injizierung von Photonen durch den Pumpstrahl beschreibe.

In einem heuristischen Ansatz wird ein Satz von optischen Moden betrachtet, der sich aus kohärenten Zuständen $|\alpha_i\rangle$ mit den Amplituden $|\alpha_i| = \sqrt{u_i/\hbar\Omega}$ mit $u_i = i \cdot \hbar\Omega$ und der Fallenfrequenz Ω zusammensetzt. Das Energiespektrum der Moden $\{u_i\}$ stimmt mit den Energien der Eigenzustände des harmonischen Oszillatorpotentials überein. Im Gegensatz zu den stationären Eigenzuständen, erlauben die kohärenten Zustände eine Beschreibung der oszillatorischen Bewegung von Teilchen oder Wellenpaketen in der Falle. Die normierten Photonendichtefunktionen $\varepsilon_i(x)$ aus

Gl. (A.1) ergeben sich aus einer zeitlichen Mittelung

$$\varepsilon_i(x) = \frac{1}{T} \int_0^T |\langle x | \alpha_i(t) \rangle|^2 dt \quad (\text{A.3})$$

über eine Oszillationsperiode $T = 2\pi/\Omega$. Setzt man die Aufenthaltswahrscheinlichkeit eines Teilchens im Intervall dx , $\varepsilon_i(x)dx$, gleich dem zeitlichen Anteil an einer Halbperiode, den das Teilchen in jenem Intervall verbringt, $dt/\frac{1}{2}T$, lässt sich das Geschwindigkeitsfeld der Photonen zu

$$v_i(x) = \frac{dx}{dt} = \pm\Omega/\pi\varepsilon_i(x) \quad (\text{A.4})$$

definieren, wobei das Vorzeichen nach jeder Halbperiode der Bewegung wechselt. Im Fall eines verlustfreien Resonators, $\Gamma_i = 0$, zeigen Simulationstestläufe, dass das heuristische Modell die analytisch vorhergesagten Bose-Einstein-verteilten Photonenenergien und die Bose-Einstein-Kritizität bei der erwarteten Gesamtphotonenzahl asymptotisch reproduziert (siehe Abbildung A.1(b)), sofern die Einstein'schen Ratenkoeffizienten das Kennard-Stepanov-Gesetz erfüllen. Mit den Simulationen kann der Thermalisierungsprozess der Photonen für verschiedene Anfangsbedingungen im molekularen Medium reproduziert werden, wie auch experimentell beobachtet (Abschnitte 4.3 & 4.4).

Thermalisierungsprozess bei Anregung mit fokussiertem Pumpstrahl

Im Folgenden wird der Fall eines scharf fokussierten Anregungsstrahls untersucht, was der in Abbildung 4.9 gezeigten experimentellen Situation entspricht. Dazu werde das optische Medium durch einen kurzen Laserpuls gepumpt, der in Raum und Zeit durch eine Gaußverteilung beschrieben sei

$$P(x, t) \propto \exp[-(x - x_0)^2/2\sigma_x^2] \times \exp[-(t - t_0)^2/2\sigma_t^2], \quad (\text{A.5})$$

von Dauer $\sigma_t = 1.5$ ps und räumlicher Breite $\sigma_x = 7.5$ μm . Der Pumpimpuls ist außerhalb des Fallenzentrums bei $x_0 = -30$ μm platziert, wo dessen Absorption unmittelbar zu einem lokalen Anstieg des molekularen Anregungsgrades innerhalb der ersten Pikosekunden führt, siehe Abbildung A.1(a). Zu diesem Zeitpunkt weisen die chemischen Potentiale von Photonen (γ), Grund- (\downarrow) und elektronisch angeregten (\uparrow) Farbstoffmolekülen starke Gradienten auf, wie sich sowohl im Ungleichgewicht zwischen Photonen- und Anregungszahl in der Pumpregion als auch in der räumlichen Inhomogenität des Anregungsgrades des optischen Mediums zeigt. Die geeignete Wahl der Abschneidewellenlänge ($\lambda_c = 570$ nm) realisiert eine effiziente Kopplung des Photonengases an das Molekülreservoir. Die von den tatsächlichen experimentellen Größen leicht abweichenden Simulationsparameter (siehe auch detaillierte Abbildungsunterschrift von Abbildung A.1) sind so gewählt, dass die Simulation effizient berechnet werden kann und dennoch einen qualitativen Vergleich mit dem Experiment erlaubt.

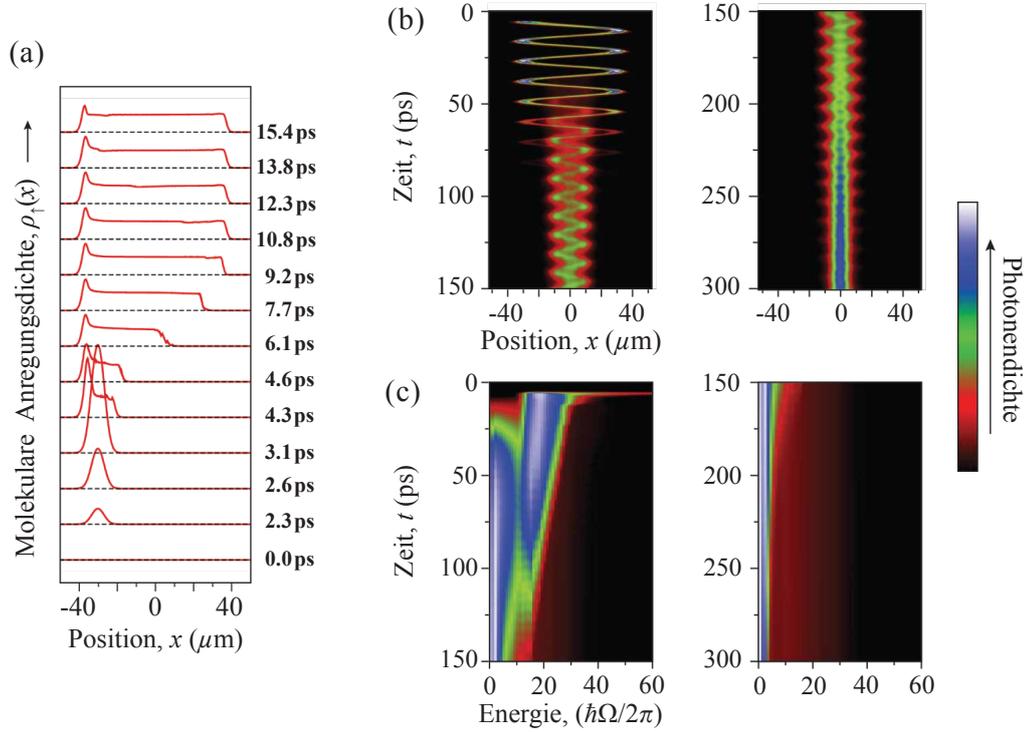


Abbildung A.1: Numerische Simulation des Thermalisierungsprozesses bei Anregung mit einem kurzen Pumpimpuls abseits des Fallen-zentrums. (a) Dichte der angeregten Molek ule f ur angegebene Zeiten nach dem Pumpimpuls. Der Puls generiert ein elektronisch stark angeregtes Medium um $x_0 = -30 \mu\text{m}$ abseits des Potentialminimums, woraus die Formation eines Wellenpakets resultiert (siehe (b)). Die Reabsorption des propagierenden optischen Pulses f uhrt zu einem homogen angeregten Medium nach einer Oszillationsperiode. (b) Zeitentwicklung der r aumlichen Photonendichteverteilung. Zun achst oszillieren die Photonen als Wellenpaket im harmonischen Fallenpotential, gefolgt von einer D ampfung dieses transienten laserartigen Verhaltens. Nach 250 ps ist die Mehrheit der Photonen in den transversalen Resonatorgrundzustand relaxiert. (c) Zeitentwicklung der spektralen Photonendichteverteilung. Die Energieachse ist auf die Energie eines kondensierten Photons, hc/λ_c , renormiert. Nach etwa 250 ps sind die Photonenenergien Bose-Einstein verteilt, und der Kondensatanteil erreicht $\bar{n}_0/\bar{N} \simeq 95\%$. (Simulationsparameter: Fallenfrequenz $\Omega/2\pi = 93 \text{ GHz}$, Abschneidewellenl ange $\lambda_c = 570 \text{ nm}$, Farbstoff-Resonator-Verstimmung $\hbar\Delta \simeq -4k_B T$ bei $T = 300 \text{ K}$, Ratenkoeffizient f ur Absorption $\hat{B}_{12} = 1.3 \text{ kHz}$, Molek uldichte $\rho_{\uparrow}(x) + \rho_{\downarrow}(x) = 1.5 \cdot 10^8 \mu\text{m}^{-1}$, Verlustrate $\Gamma_i = 0$.)

Die in Abbildung A.1 gezeigten numerischen Simulationen der Photonendynamik unter Vernachlässigung von Photonverlusten verdeutlichen, dass der Thermalisierungsprozess in mehreren Schritten vonstatten geht. Zunächst generiert das stark angeregte Medium in der Pumpregion eine hohe Photonendichte, welche nach nur wenigen Pikosekunden ihr Maximum erreicht hat. Das Fallenpotential durch die gekrümmten Resonatorspiegel beschleunigt die Photonen als Wellenpaket in Richtung des Fallenzentrums auf der optische Achse ($x = 0$), siehe Abbildung A.1(b). Diese Startkinetik verhält sich völlig analog zu der Pulspropagation in einem modengekoppelten Laser. Während der Oszillation in der Falle regt der Puls das optische Medium durch Reabsorptionsprozesse an, wodurch die molekularen Anregungen im Medium in der gesamten inneren Region des Resonators nach einer halben Oszillationsperiode ($T/2 = 5.4$ ps) räumlich nahezu homogen verteilt werden (Abbildung A.1(a)). Wie anhand von Gl. (2.18) gesehen, sorgt die räumliche Homogenität des Anregungsgrades $(M_{\uparrow}/M_{\downarrow})(x)$ für chemisches Gleichgewicht unter den Teilchenspezies und die Existenz eines globalen chemischen Potentials für das Photonengas. Diese Beobachtungen implizieren, dass der Zustand des optischen Mediums bereits zu frühen Zeitpunkten nahe des Gleichgewichtszustandes ist - eine Situation, die mit den in Abschnitt 4.2 diskutierten Experimenten unter räumlich homogener Pumpanregung verglichen werden kann. Im Gegensatz zum Medium befindet sich das Photonengas dann jedoch eindeutig in einem nicht-thermischen Zustand, wie die spektrale Verteilung in Abbildung A.1(c) zeigt. Der Thermalisierungsprozess des Photonengases nimmt zusätzliche 250 ps in Anspruch, was die Zeitskala für chemische Equilibrierung um ungefähr ein bis zwei Größenordnungen überschreitet. Im Anschluss ist das laserartige Verhalten abgeklungen, und die Photonenenergien folgen einer Bose-Einstein Verteilung mit einer mehrheitlichen Photonenbesetzung des Resonatorgrundzustands, dem Bose-Einstein-Kondensat.

Die Simulationen der räumlichen Dynamik in Abbildung A.1(b) zeigen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten in Abbildung 4.9(a, rechts). Hierbei wird ein Wellenpaket bei $x_0 \approx -50 \mu\text{m}$ injiziert, welches mit der Fallenfrequenz von 37 GHz oszilliert und dessen Amplitude mit der Zeit gedämpft wird. Für $\lambda_c = 571$ nm beginnt nach der ersten Halbperiode der Wellenpaketoszillation die Ausprägung einer makroskopischen Besetzung des transversalen Grundmoden. Dies ist ein Indiz für eine rasche Homogenisierung des molekularen Anregungsgrades basierend auf starker Farbstoffreabsorption. Entsprechend wird im schwach reabsorbierenden Bereich für $\lambda_c = 596$ nm, siehe Abbildung 4.9(a, links), keine Thermalisierung und Redistribution von Photonen innerhalb der experimentellen Lebensdauer der Photonen im Resonator beobachtet. Zudem decken sich die numerischen Simulationen der Zeitentwicklung der spektralen Photonverteilung (Abbildung A.1(c)) mit den experimentellen Beobachtungen bei Pumpanregung abseits des Fallenzentrums (Abbildung 4.8(b)). Zu frühen Zeiten werden nicht-thermische Spektren mit einer maximalen Photonenzahl bei einer energiereicheren spektralen Position als der Grundzustand beobachtet. Die Verteilung um das Maximum enthält die Energien vieler angeregter Resonatormoden, welche räumlich mit der Pumpregion überlap-

pen. In Simulation und Experiment verschiebt sich Emissionsmaximum graduell hin zur Abschneidewellenlänge, und letztlich thermalisiert das Photonengas zu einer Bose-Einstein-Verteilung. Die Zeitskala der Thermalisierung hängt - wie auch in Abbildungen 4.6 und 4.7 dargestellt - von der Reabsorptionszeit der Photonen durch das Farbstoffmedium und der Inhomogenität der anfänglich Pumpanregung ab. Die makroskopische Besetzung des transversalen Grundmoden erfolgt bereits, bevor die Dämpfung der Oszillation des Wellenpakets vollständig abgeschlossen ist (vgl. Abbildung 4.8(b) und A.1(c)).

Literaturverzeichnis

- [1] J. F. Donoghue, E. Golowich und B. R. Holstein, Dynamics of the standard model, Cambridge University Press (2014).
- [2] A. Einstein, Quantentheorie des einatomigen idealen Gases – Zweite Abhandlung, *Sitzungsberichte der Königlich Preußischen Akademie der Wissenschaften, Physikalisch-Mathematische Klasse, Sitzungsberichte 1925*, **3** (1925).
- [3] S. Bose, Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese, *Zeitschrift für Physik* **26**, 178 (1924).
- [4] K. Huang, Statistical Mechanics, Wiley, New York (1987).
- [5] O. Penrose und L. Onsager, Bose-Einstein Condensation and Liquid Helium, *Physical Review* **104**, 576 (1956).
- [6] P. W. Anderson, Basic Notions of Condensed Matter Physics, Westview Press, Boulder (2008).
- [7] A. J. Leggett, Broken Gauge Symmetry in a Bose Condensate, Bose-Einstein Condensation (A. Griffin, D. W. Snoke und S. Stringari, Editoren), Cambridge University Press, Cambridge, 452 (1996).
- [8] V. V. Kocharovskiy, V. V. Kocharovskiy, M. Holthaus, C. H. R. Ooi, A. Svidzinsky, W. Ketterle und M. O. Scully, Fluctuations in Ideal and Interacting Bose-Einstein Condensates: From the Laser Phase Transition Analogy to Squeezed States and Bogoliubov Quasiparticles, *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics* **53**, 291 (2006).
- [9] S. Grossmann und M. Holthaus, Fluctuations of the Particle Number in a Trapped Bose-Einstein Condensate, *Physical Review Letters* **79**, 3557 (1997).
- [10] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman und E. A. Cornell, Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor, *Science* **269**, 198 (1995).
- [11] K. B. Davis, M.-O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn und W. Ketterle, Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms, *Physical Review Letters* **75**, 3969 (1995).

- [12] C. C. Bradley, C. A. Sackett, J. J. Tollett und R. G. Hulet, Evidence of Bose-Einstein Condensation in an Atomic Gas with Attractive Interactions, *Physical Review Letters* **75**, 1687 (1995).
- [13] D. G. Fried, T. C. Killian, L. Willmann, D. Landhuis, S. C. Moss, D. Kleppner und T. J. Greytak, Bose-Einstein Condensation of Atomic Hydrogen, *Physical Review Letters* **81**, 3811 (1998).
- [14] M. W. Zwierlein, C. A. Stan, C. H. Schunck, S. M. F. Raupach, S. Gupta, Z. Hadzibabic und W. Ketterle, Observation of Bose-Einstein Condensation of Molecules, *Physical Review Letters* **91**, 250401 (2003).
- [15] H. Deng, H. Haug und Y. Yamamoto, Exciton-polariton Bose-Einstein condensation, *Review of Modern Physics* **82**, 1489 (2010).
- [16] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. Andre, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud und L. S. Dang, Bose-Einstein condensation of exciton polaritons, *Nature* **443**, 409 (2006).
- [17] R. Balili, V. Hartwell, D. Snoke, L. Pfeiffer und K. West, Bose-Einstein Condensation of Microcavity Polaritons in a Trap, *Science* **316**, 1007 (2007).
- [18] H. Deng, G. Weihs, C. Santori, J. Bloch und Y. Yamamoto, Condensation of Semiconductor Microcavity Exciton Polaritons, *Science* **298**, 199 (2002).
- [19] M. Planck, Ueber das Gesetz der Energieverteilung im Normalspectrum, *Annalen der Physik* **309**, 553 (1901).
- [20] J. Klaers, Bose-Einstein-Kondensation von paraxialem Licht, Ph.D. thesis, Universität Bonn, 2011.
- [21] J. Klaers, J. Schmitt, F. Vewinger und M. Weitz, Bose-Einstein condensation of photons in an optical microcavity, *Nature* **468**, 545 (2010).
- [22] J. Klaers, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger und M. Weitz, Bose-Einstein condensation of paraxial light, *Applied Physics B* **105**, 17 (2011).
- [23] J. Marelic und R. A. Nyman, Experimental evidence for inhomogeneous pumping and energy-dependent effects in photon bose-einstein condensation, *Physical Review A* **91**, 033813 (2015).
- [24] W. Pauli, Über den Zusammenhang des Abschlusses der Elektronengruppen im Atom mit der Komplexstruktur der Spektren, *Zeitschrift für Physik* **31**, 765 (1925).
- [25] C. J. Pethick und H. Smith, Bose-Einstein Condensation in Dilute Gases, Cambridge University Press, Cambridge (2002).

- [26] A. Griffin, D. W. Snoke und S. Stringari (Editoren), Bose-Einstein Condensation, 1 ed., Cambridge University Press, Cambridge (1996).
- [27] V. Bagnato und D. Kleppner, Bose-Einstein condensation in low-dimensional traps, *Physical Review A* **44**, 7439 (1991).
- [28] A. Einstein, Zur Quantentheorie der Strahlung, *Physikalische Zeitschrift* **18**, 121 (1917).
- [29] M. R. Andrews, C. G. Townsend, H.-J. Miesner, D. S. Durfee, D. M. Kurn und W. Ketterle, Observation of Interference Between Two Bose Condensates, *Science* **275**, 637 (1997).
- [30] M. Saba, T. A. Pasquini, C. Sanner, Y. Shin, W. Ketterle und D. E. Pritchard, Light Scattering to Determine the Relative Phase of Two Bose-Einstein Condensates, *Science* **307**, 1945 (2005).
- [31] A. Öttl, S. Ritter, M. Köhl und T. Esslinger, Correlations and Counting Statistics of an Atom Laser, *Physical Review Letters* **95**, 090404 (2005).
- [32] W. Ketterle und H.-J. Miesner, Coherence properties of Bose-Einstein condensates and atom lasers, *Physical Review A* **56**, 3291 (1997).
- [33] E. A. Burt, R. W. Ghrist, C. J. Myatt, M. J. Holland, E. A. Cornell und C. E. Wieman, Coherence, Correlations, and Collisions: What One Learns about Bose-Einstein Condensates from Their Decay, *Physical Review Letters* **79**, 337 (1997).
- [34] R. G. Dall, A. G. Manning, S. S. Hodgman, W. RuGway, K. V. Kheruntsyan und A. G. Truscott, Ideal n-body correlations with massive particles, *Nature Physics* **9**, 341 (2013).
- [35] M. Naraschewski und R. J. Glauber, Spatial coherence and density correlations of trapped bose gases, *Physical Review A* **59**, 4595 (1999).
- [36] S. M. Barnett und P. M. Radmore, *Methods in Theoretical Quantum Optics*, Oxford University Press, Oxford (2005).
- [37] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Oxford University Press, Oxford (2000).
- [38] R. J. Glauber, The Quantum Theory of Optical Coherence, *Physical Review* **130**, 2529 (1963).
- [39] M. Fox, *Quantum Optics: An Introduction*, Oxford University Press, Oxford (2006).
- [40] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser*, Teubner (2005).

- [41] E. Hecht, Optics, Pearson Education, Harlow (2008).
- [42] L. Mandel und E. Wolf, Selected Papers on Coherence & Fluctuations of Light, Dover Publications, New York (1970).
- [43] R. Hanbury Brown und R. Q. Twiss, A Test of a New Type of Stellar Interferometer on Sirius, *Nature* **178**, 1046 (1956).
- [44] G. Baym, The physics of Hanbury Brown-Twiss intensity interferometry: from stars to nuclear collisions, *Acta Physica Polonica B* **29**, 1839 (1998).
- [45] Y. Nambu und G. Jona-Lasinio, Dynamical Model of Elementary Particles Based on an Analogy with Superconductivity. I, *Physical Review* **122**, 345 (1961).
- [46] J. Goldstone, Field theories with “Superconductor“ solutions, *Il Nuovo Cimento* **19**, 154 (1961).
- [47] D. R. Tilley und J. Tilley, Superfluidity and Superconductivity, Institute of Physics Publishing, London (1990).
- [48] P. W. Higgs, Broken Symmetries and the Masses of Gauge Bosons, *Physical Review Letters* **13**, 508 (1964).
- [49] W. Heisenberg, Zur Theorie des Ferromagnetismus, *Zeitschrift für Physik* **49**, 619 (1928).
- [50] A. Imamoğlu, M. Lewenstein und L. You, Inhibition of Coherence in Trapped Bose-Einstein Condensates, *Physical Review Letters* **78**, 2511 (1997).
- [51] M. Lewenstein und L. You, Quantum Phase Diffusion of a Bose-Einstein Condensate, *Physical Review Letters* **77**, 3489 (1996).
- [52] M. Naraschewski, A. Schenzle und H. Wallis, Phase diffusion and the output properties of a cw atom-laser, *Physical Review A* **56**, 603 (1997).
- [53] A.-W. de Leeuw, E. C. I. van der Wurff, R. A. Duine und H. T. C. Stoof, Phase diffusion in a Bose-Einstein condensate of light, *Physical Review A* **90**, 043627 (2014).
- [54] R. M. Ziff, G. E. Uhlenbeck und M. Kac, The ideal Bose-Einstein gas, revisited, *Physics Reports* **32**, 169 (1977).
- [55] I. Fujiwara, D. ter Haar und H. Wergeland, Fluctuations in the population of the ground state of Bose Systems, *Journal of Statistical Physics* **2**, 329 (1970).
- [56] M. Holthaus, E. Kalinowski und K. Kirsten, Condensate Fluctuations in Trapped Bose Gases: Canonical vs. Microcanonical Ensemble, *Annals of Physics* **270**, 198 (1998).

- [57] C. Weiss und M. Wilkens, Particle number counting statistics in ideal Bose gases, *Optics Express* **1**, 272 (1997).
- [58] M. Fierz, Über die statistischen Schwankungen in einem kondensierenden System, *Helvetica Physica Acta* **29**, 47 (1956).
- [59] D. ter Haar, „1 - The Occupation Number Representation“, Lectures on Selected Topics in Statistical Mechanics (D. ter Haar, Editor), Pergamon Press, Oxford, 1 (1977).
- [60] P. Navez, D. Bitouk, M. Gajda, Z. Idziaszek und K. Rzażewski, Fourth Statistical Ensemble for the Bose-Einstein Condensate, *Physical Review Letters* **79**, 1789 (1997).
- [61] J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, J. Klaers und M. Weitz, Observation of Grand-Canonical Number Statistics in a Photon Bose-Einstein Condensate, *Physical Review Letters* **112**, 030401 (2014).
- [62] J. Klaers, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger und M. Weitz, Statistical Physics of Bose-Einstein-Condensed Light in a Dye Microcavity, *Physical Review Letters* **108**, 160403 (2012).
- [63] J. M. Blatt, K. W. Böer und W. Brandt, Bose-Einstein Condensation of Excitons, *Physical Review* **126**, 1691 (1962).
- [64] S. A. Moskalenko, Reversible optico-hydrodynamic phenomena in a non ideal exciton gas, *Physics of the Solid State (Fizika Tverdogo Tela)* **4**, 276 (1962).
- [65] E. Hanamura und H. Haug, Condensation effects of excitons, *Physics Reports* **33**, 209 (1977).
- [66] S. A. Moskalenko und D. W. Snoke, Bose-Einstein condensation of excitons and biexcitons: and coherent nonlinear optics with excitons, Cambridge University Press, Cambridge (2000).
- [67] H. Deng, D. Press, S. Götzinger, G. S. Solomon, R. Hey, K. H. Ploog und Y. Yamamoto, Quantum Degenerate Exciton-Polaritons in Thermal Equilibrium, *Physical Review Letters* **97**, 146402 (2006).
- [68] M. Richard, J. Kasprzak, R. André, R. Romestain, L. S. Dang, G. Malpuech und A. Kavokin, Experimental evidence for nonequilibrium Bose condensation of exciton polaritons, *Physical Review B* **72**, 201301 (2005).
- [69] J. D. Plumhof, T. Stöferle, L. Mai, U. Scherf und R. F. Mahrt, Room-temperature Bose-Einstein condensation of cavity exciton-polaritons in a polymer, *Nature Materials* **13**, 247 (2014).

- [70] A. Imamog̃lu, R. J. Ram, S. Pau und Y. Yamamoto, Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers, *Physical Review A* **53**, 4250 (1996).
- [71] M. Wouters und I. Carusotto, Excitations in a Nonequilibrium Bose-Einstein Condensate of Exciton Polaritons, *Physical Review Letters* **99**, 140402 (2007).
- [72] J. Kasprzak, D. D. Solnyshkov, R. André, L. S. Dang und G. Malpuech, Formation of an Exciton Polariton Condensate: Thermodynamic versus Kinetic Regimes, *Physical Review Letters* **101**, 146404 (2008).
- [73] J. Kasprzak, M. Richard, A. Baas, B. Deveaud, R. André, J.-Ph. Poizat und L. S. Dang, Second-Order Time Correlations within a Polariton Bose-Einstein Condensate in a CdTe Microcavity, *Physical Review Letters* **100**, 067402 (2008).
- [74] J. R. Lakowicz, Principles of Fluorescence Spectroscopy, Kluwer Academic Publishers, New York (1999).
- [75] A. Penzkofer und Y. Lu, Fluorescence quenching of rhodamine 6G in methanol at high concentration, *Chemical Physics* **103**, 399 (1986).
- [76] J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, J. Klaers und M. Weitz, Thermalization kinetics of light: From laser dynamics to equilibrium condensation of photons, *Physical Review A* **92**, 011602 (2015).
- [77] H. Yokoyama und S. D. Brorson, Rate equation analysis of microcavity lasers, *Journal of Applied Physics* **66**, 4801 (1989).
- [78] A. E. Siegman, Lasers, University Science Books, Sausalito (1986).
- [79] P. W. Milonni und J. H. Eberly, Lasers, Wiley, New York (1988).
- [80] D. Gloge und D. Marcuse, Formal Quantum Theory of Light Rays, *Journal of the Optical Society of America* **59**, 1629 (1969).
- [81] K. H. Drexhage, Structure and Properties of Laser Dyes, vol. 1, 144–193, Springer, Berlin, 1973.
- [82] K. H. Drexhage, T. W. Hänsch, E. P. Ippen, F. P. Schäfer, C. V. Shank und B. B. Snavely, Topics in applied physics volume 1: Dye lasers, vol. 1, Springer, Berlin (1973).
- [83] G. G. Stokes, On the Change of Refrangibility of Light, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* **142**, 463 (1852).
- [84] M. Kasha, Characterization of electronic transitions in complex molecules, *Discussions of the Faraday Society* **9**, 14 (1950).

- [85] E. H. Kennard, On The Thermodynamics of Fluorescence, *Physical Review* **11**, 29 (1918).
- [86] E. H. Kennard, The excitation of fluorescence in fluorescein, *Physical Review* **29**, 466 (1927).
- [87] B. I. Stepanov, A universal relation between the absorption and luminescence spectra of complex molecules, Soviet Physics Doklady, vol. 2, 1957, 81.
- [88] B. I. Stepanov und L. P. Kazachenko, Universal relationship between absorption and emission spectra taking the solvent effect into account, *Journal of Applied Spectroscopy* **14**, 596 (1971).
- [89] D. A. Sawicki und R. S. Knox, Universal relationship between optical emission and absorption of complex systems: An alternative approach, *Physical Review A* **54**, 4837 (1996).
- [90] D. E. McCumber, Einstein Relations Connecting Broadband Emission and Absorption Spectra, *Physical Review* **136**, A954 (1964).
- [91] L. O. Bjourn und G. S. Bjourn, Studies on energy dissipation in phycobilisomes using the Kennard-Stepanov relation between absorption and fluorescence enussuib spectra, *Photochemistry and Photobiology* **44**, 535–542 (1986).
- [92] L. Szalay, G. S. Singhal, E. Tombácz und L. Kozma, Light absorption and fluorescence of highly diluted chlorophyll solutions, *Acta Physica Academiae Scientiarum Hungaricae* **34**, 341–350 (1973).
- [93] G. S. Singhal und J. Hevesi, The correlation between the absorption and the fluorescence energy spectra, and the quantum yield of chlorophyll a in different solvents, *Photochemistry and Photobiology* **14**, 509–514 (1971).
- [94] R. S. Knox, Excited-state equilibration and the fluorescence-absorption ratio, *Acta Physica Polonica A* **95**, 85–103 (1999).
- [95] J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klaers, Thermalization of a two-dimensional photon gas in a polymeric host matrix, *New Journal of Physics* **14**, 075019 (2012).
- [96] T. Ihara, S. Maruyama, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer und K. W. West, Thermal-equilibrium relation between the optical emission and absorption spectra of a doped semiconductor quantum well, *Physical Review B* **80**, 033307 (2009).
- [97] P. Moroshkin, L. Weller, A. Saß, J. Klaers und M. Weitz, Kennard-Stepanov Relation Connecting Absorption and Emission Spectra in an Atomic Gas, *Physical Review Letters* **113**, 063002 (2014).

- [98] U. Vogl und M. Weitz, Laser cooling by collisional redistribution of radiation, *Nature* **461**, 70 (2009).
- [99] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller und E. Teller, Equation of state calculations by fast computing machines, *The Journal of Chemical Physics* **21**, 1087 (1953).
- [100] D. P. Landau und K. Binder, A Guide to Monte Carlo Simulations in Statistical Physics, Cambridge University Press, Cambridge (2009).
- [101] R. W. Boyd, Nonlinear Optics, Academic Press, Burlington (2008).
- [102] T. Fließbach, Quantenmechanik: Lehrbuch zur Theoretischen Physik III, Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg (2008).
- [103] H. Kogelnik und T. Li, Laser Beams and Resonators, *Applied Optics* **5**, 1550 (1966).
- [104] E. P. Gross, Structure of a quantized vortex in boson systems, *Il Nuovo Cimento Series 10* **20**, 454 (1961).
- [105] L. P. Pitaevskii, Vortex lines in an imperfect Bose gas, *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics* **13**, 451 (1961).
- [106] Z. Hadzibabic und J. Dalibard, Two-dimensional Bose fluids: An atomic physics perspective, *arXiv:0912.1490* (2009).
- [107] F. Dalfovo, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii und S. Stringari, Theory of Bose-Einstein condensation in trapped gases, *Review of Modern Physics* **71**, 463 (1999).
- [108] Z. Hadzibabic, P. Krüger, M. Cheneau, S. P. Rath und J. Dalibard, The trapped two-dimensional Bose gas: from Bose-Einstein condensation to Berezinskii-Kosterlitz-Thouless physics, *New Journal of Physics* **10**, 045006 (2008).
- [109] D. S. Petrov, D. M. Gangardt und G. V. Shlyapnikov, Low-dimensional trapped gases, *Journal de Physique IV*, vol. 116, 2004, 5.
- [110] J. Klaers, F. Vewinger und M. Weitz, Thermalization of a two-dimensional photonic gas in a “white wall” photon box, *Nature Physics* **6**, 512 (2010).
- [111] C. R. Monroe, E. A. Cornell, C. A. Sackett, C. J. Myatt und C. E. Wieman, Measurement of Cs-Cs elastic scattering at $T = 30 \mu\text{K}$, *Physical Review Letters* **70**, 414 (1993).
- [112] D. W. Snoke und J. P. Wolfe, Population dynamics of a Bose gas near saturation, *Physical Review B* **39**, 4030 (1989).

- [113] C. Freed und H. A. Haus, Photoelectron statistics produced by a laser operating below and above the threshold of oscillation, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **2**, 190 (1966).
- [114] A. De Angelis, F. De Martini und P. Mataloni, Microcavity quantum superradiance, *Journal of Optics B: Quantum and Semiclassical Optics* **2**, 149 (2000).
- [115] L. C. Andreani, G. Panzarini und J.-M. Gérard, Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory, *Physical Review B* **60**, 13276 (1999).
- [116] P. T. Kristensen, C. Van Vlack und S. Hughes, Generalized effective mode volume for leaky optical cavities, *Optics Letters* **37**, 1649 (2012).
- [117] P. Kirton und J. Keeling, Nonequilibrium Model of Photon Condensation, *Physical Review Letters* **111**, 100404 (2013).
- [118] P. Kirton und J. Keeling, Thermalization and breakdown of thermalization in photon condensates, *Physical Review A* **91**, 033826 (2015).
- [119] N. B. Abraham und S. R. Smith, Stimulated versus spontaneous emission as a cause of photon correlations, *Physical Review A* **15**, 421 (1977).
- [120] D. N. Sob'yanin, Hierarchical maximum entropy principle for generalized superstatistical systems and Bose-Einstein condensation of light, *Physical Review E* **85**, 061120 (2012).
- [121] Y. Castin, Private Diskussion (2012).
- [122] M. O. Scully, *Quantum Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (1997).
- [123] M. Lax, Formal Theory of Quantum Fluctuations from a Driven State, *Physical Review* **129**, 2342 (1963).
- [124] A. L. Schawlow und C. H. Townes, Infrared and Optical Masers, *Physical Review* **112**, 1940 (1958).
- [125] A. O'Keefe und D. A. G. Deacon, Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources, *Review of Scientific Instruments* **59**, 2544 (1988).
- [126] C. Wahl, Phase Dynamics of a Statistically Flickering Photon Bose-Einstein Condensate, Ph.D. thesis, Universität Bonn, 2014.
- [127] H. Du, R.-C. A. Fuh, J. Li, L. A. Corkan und J. S. Lindsey, PhotochemCAD: A Computer-Aided Design and Research Tool in Photochemistry, *Photochemistry and Photobiology* **68**, 141 (1998).

- [128] F. Fennel und S. Lochbrunner, Long distance energy transfer in a polymer matrix doped with a perylene dye, *Physical Chemistry Chemical Physics* **13**, 3527 (2011).
- [129] D. Magde, R. Wong und P. G. Seybold, Fluorescence Quantum Yields and Their Relation to Lifetimes of Rhodamine 6G and Fluorescein in Nine Solvents: Improved Absolute Standards for Quantum Yields, *Photochemistry and Photobiology* **75**, 327 (2002).
- [130] G.. Seybold und G.. Wagenblast, New perylene and violanthrone dyestuffs for fluorescent collectors, *Dyes and Pigments* **11**, 303 – 317 (1989).
- [131] A. M. Brouwer, Standards for photoluminescence quantum yield measurements in solution (IUPAC Technical Report), *Pure and Applied Chemistry* **83**, 2213 (2011).
- [132] http://www.hamamatsu.com/resources/pdf/sys/SHSS0016E_C10910s.pdf.
- [133] R. M. Wellek, R. D. Mitchell und J. W. Moore, Diffusion coefficients of ethylene glycol and cyclohexanol in the solvents ethylene glycol, diethylene glycol, and propylene glycol as a function of temperature, *Journal of Chemical & Engineering Data* **16**, 57 (1971).
- [134] H. R. Carleton und W. T. Maloney, A Balanced Optical Heterodyne Detector, *Applied Optics* **7**, 1241 (1968).
- [135] T. M. Aminabhavi und B. Gopalakrishna, Density, Viscosity, Refractive Index, and Speed of Sound in Aqueous Mixtures of N,N-Dimethylformamide, Dimethyl Sulfoxide, N,N-Dimethylacetamide, Acetonitrile, Ethylene Glycol, Diethylene Glycol, 1,4-Dioxane, Tetrahydrofuran, 2-Methoxyethanol, and 2-Ethoxyethanol at 298.15 K, *Journal of Chemical & Engineering Data* **40**, 856 (1995).
- [136] G. Cennini, G. Ritt, C. Geckeler und M. Weitz, All-Optical Realization of an Atom Laser, *Physical Review Letters* **91**, 240408 (2003).
- [137] I. Bloch, T. W. Hänsch und T. Esslinger, Atom Laser with a cw Output Coupler, *Physical Review Letters* **82**, 3008 (1999).
- [138] P. R. Rice und H. J. Carmichael, Photon statistics of a cavity-QED laser: A comment on the laser-phase-transition analogy, *Physical Review A* **50**, 4318 (1994).
- [139] P. L. Liu, L. Fencil, J. S. Ko, I. P. Kaminow, T. P. Lee und C.A. Burrus, Amplitude fluctuations and photon statistics of InGaAsP injection lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **19**, 1348 (1983).
- [140] T. Damm, J. Schmitt, D. Dung, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klaers, Zu veröffentlichen.

- [141] H. G. Schild, Poly(n-isopropylacrylamide): experiment, theory and application, *Progress in Polymer Science* **17**, 163 (1992).
- [142] D. Dung, T. Damm, J. Schmitt, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klaers, Zu veröffentlichen.
- [143] V. L. Berezinskiĭ, Destruction of Long-range Order in One-dimensional and Two-dimensional Systems having a Continuous Symmetry Group I. Classical Systems, *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics* **32**, 493 (1971).
- [144] J. M. Kosterlitz und D. J. Thouless, Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **6**, 1181 (1973).
- [145] Z. Hadzibabic, P. Kruger, M. Cheneau, B. Battelier und J. Dalibard, Berezinskii-Kosterlitz-Thouless crossover in a trapped atomic gas, *Nature* **441**, 1118 (2006).
- [146] L. Néel, Propriétés magnétiques des ferrites; ferrimagnétisme et antiferromagnétisme, *Annales de Physique (Paris)* **3**, 137 (1948).
- [147] E. Sela, A. Rosch und V. Fleurov, Condensation of photons coupled to a Dicke field in an optical microcavity, *Physical Review A* **89**, 043844 (2014).
- [148] R. Y. Chiao, Bogoliubov dispersion relation for a 'photon fluid': Is this a superfluid?, *Optics Communications* **179**, 157 (2000).
- [149] J. Keeling und P. Kirton, Spatial dynamics, thermalization, and gain clamping in a photon condensate, *arXiv:1506.00280* (2015).

Danksagung

In erster Linie gilt mein Dank **Prof. Dr. Martin Weitz**, der mir die Möglichkeit gegeben hat, meine Promotion an diesem spannenden Experiment in seiner Arbeitsgruppe durchzuführen. Für die Übernahme des Korrektorats und die langjährige Betreuung im Rahmen der Bonn-Cologne Graduate School of Physics and Astronomy (BCGS) möchte ich **Prof. Dr. Dieter Meschede** und **Prof. Dr. Achim Rosch** danken.

Ganz besonders möchte ich mich für die langjährige Zusammenarbeit bei **Dr. Jan Klärs** bedanken, der erstmals eine Bose-Einstein-Kondensation von Photonen experimentell realisieren konnte und damit in meinen Augen ein höchst variables, neues Arbeitsfeld zur Untersuchung statistischer Physik eröffnet hat und von dessen physikalischem Verständnis ich durch die gemeinsame Arbeit enorm profitieren durfte. Weiterhin bin ich **Dr. Frank Vewinger** für die großartige Kommunikation und die zahlreichen wissenschaftlichen Diskussionen „inner- und außerhalb des Labors“ dankbar. Besonderer Dank richtet sich auch an meine Kollegen des Photonen-BEC-Teams **Tobias Damm**, **David Dung** und **Christian Wahl**, mit denen ich im Laufe meiner Doktorarbeit zusammengearbeitet habe. Vielen Dank an die gesamte Arbeitsgruppe „heißer“ und „kalter“ Atome, die Verwaltung und die Werkstätten.

Für die immerwährende Unterstützung und das unerschöpfliche Verständnis danke ich von Herzen meinen **Eltern**, **Maximiliane**, und meinem Bruder **David**.