

# **Kalorimetrie und Phasenkorrelationen eines zweidimensionalen Photonengases**

Dissertation  
zur  
Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)  
der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der  
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

von  
**Tobias Damm**  
aus  
Marburg

Bonn, 11.05.2017

Dieser Forschungsbericht wurde als Dissertation von der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Bonn angenommen und ist auf dem Hochschulschriftenserver der ULB Bonn [http://hss.ulb.uni-bonn.de/diss\\_online](http://hss.ulb.uni-bonn.de/diss_online) elektronisch publiziert.

1. Gutachter: Prof. Dr. Martin Weitz  
2. Gutachter: Prof. Dr. Michael Köhl

Tag der Promotion: 24.07.2017  
Erscheinungsjahr: 2017

# Zusammenfassung

---

Phasenübergänge spielen in der Physik eine bedeutende Rolle. Es entspricht unserer Alltagserfahrung, dass Materie ihre Eigenschaften in Abhängigkeit von äußeren Parametern wie Volumen, Druck oder Temperatur bei Überschreiten gewisser Phasengrenzen grundlegend ändern kann. Eine solche Grenze stellt der Übergang eines klassischen Gases von Teilchen mit ganzzahligem Spin hin zu einem entarteten Quantengas dar: Die Bose-Einstein-Kondensation. Bei gegebener Dichte führt das kollektive Verhalten der Teilchen durch den Überlapp ihrer quantenmechanischen Wellenpakete unterhalb einer bestimmten Temperatur zu einer makroskopischen Besetzung nur eines Zustandes, sodass das Gesamtsystem durch nur eine Wellenfunktion beschrieben werden kann. Im Zusammenspiel mit Wechselwirkungen zwischen den Teilchen lassen sich dann Quanteneffekte wie die Suprafluidität oder auch die Supraleitung in Systemen makroskopischer Größe beobachten. Auch die Kondensation als solche ist ein rein quantenstatistischer Effekt, basierend auf der grundlegenden Ununterscheidbarkeit bosonischer Teilchen, und somit unabhängig von der Existenz jeglicher Wechselwirkungen. Die experimentelle Realisierung eines idealen, d.h. nicht-wechselwirkenden Bosegases in atomaren Systemen gestaltet sich jedoch als prinzipiell schwierig. Supraflüssiges  $^4\text{He}$  ist beispielsweise sehr weit von einem solchen idealen System entfernt. Selbst in stark verdünnten Alkaligasen bei sehr geringen Temperaturen verbleibt der Einfluss ihrer schwachen Wechselwirkung.

Es ist naheliegend, aufgrund der intrinsisch wechselwirkungsfreien Natur des Lichts ein Gas aus Photonen hinsichtlich seines Kondensationsverhaltens zu untersuchen. Die Schwarzkörperstrahlung als Beispiel für ein thermisches Photonengas zeigt jedoch keinen Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat, da die Teilchenzahl direkt an die Temperatur des Systems gekoppelt ist. Bei dem Versuch, die Teilchendichte zu erhöhen, indem man die Temperatur des Schwarzkörpers absenkt, verschwinden die Photonen zwangsläufig in den Wänden. Für einen Tieftemperatur-Phasenübergang ist es daher notwendig, einen Prozess zu finden, der es erlaubt, die Teilchenzahl zu variieren und gleichzeitig die Thermalisierung des Photonengases ermöglicht, beispielsweise Photon-Photon-Stöße in einem nichtlinearen optischen Medium. Ein anderer, auch experimentell gewählter Ansatz ist es, die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Exziton-Polariton-Quasiteilchen zu nutzen, jedoch bilden auch diese Systeme aufgrund der wechselwirkenden, exzitonischen Materieanteils kein ideales Bosegas.

Das in dieser Arbeit untersuchte zweidimensionale, harmonisch gefangene Photonengas in einem Farbstoff-Mikroresonator ist der Schwarzkörperstrahlung sehr ähnlich, unterscheidet sich jedoch in einem zentralen Punkt: Der verwendete Fluoreszenzfarbstoff kann, anders als die Wände des Schwarzkörpers, nicht thermisch angeregt werden, da die Anregungsenergie des elektronischen Übergangs um mehr als eine Größenordnung oberhalb der thermischen Energie liegt. Weiter muss der Farbstoff ein zuvor absorbiertes Photon zwangsläufig wieder emittieren, wobei es dem angeregten Farbstoffmolekül erlaubt ist, durch Stöße mit Lösungsmittelmolekülen Energie auszutauschen. Durch wiederholte Absorptions- und Reemissions-Prozesse koppelt das Photonengas so an das durch den Farbstoff gebildete Wärmebad und thermalisiert bei Raumtemperatur. Zudem beschränkt der Mikroresonator das Photonengas durch

Festhalten des longitudinalen Wellenvektors auf seine beiden transversalen Freiheitsgrade. Dies führt zu einem nicht-trivialen Grundzustand mit einer unteren Abschneidefrequenz, sodass sich das Photonengas formal äquivalent zu einem Gas aus massiven bosonischen Teilchen verhält. Letzteres spiegelt sich auch in dem quadratischen Verlauf der Dispersionsrelation wider, welcher charakteristisch für ein massives Gas ist. Bei Erhöhung der Teilchenzahl kann der Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat beobachtet werden, indiziert durch die makroskopische Besetzung des Grundmoden im harmonischen Fallenpotential.

Zentrales Thema der vorliegenden Arbeit ist die experimentelle Untersuchung der Ordnungsparameter des Photonengases beim Übergang aus der klassischen, vollständig durch die Boltzmann-Statistik beschriebenen thermischen Phase hin zum quantenentarteten Bose-Einstein-Kondensat. Zunächst erfolgt eine Bestimmung der kalorischen Eigenschaften des Systems, insbesondere der inneren Energie, der spezifischen Wärme und der Entropie anhand von spektroskopischen Messungen der Photonenzahlverteilung im Mikroresonator. Dabei zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit den Erwartungen gemäß der Theorie des idealen Bosegases. Im Grenzfall hoher Temperaturen (geringer Teilchenzahlen) verhält sich das Photonengas wie ein klassisches einkomponentiges Gas, dessen Gesamtenergie gemäß des Äquipartitionstheorems mit der Temperatur und der Anzahl an Freiheitsgraden skaliert. Für tiefe Temperaturen (hohe Teilchenzahlen) strebt der Energieinhalt pro Teilchen des kondensierten Systems gegen 0, was gleichbedeutend ist zu einer unendlich großen Kompressibilität, wie sie für das ideale Bosegas zu erwarten ist. Der Phasenübergang wird besonders eindrucksvoll durch den spitzen Verlauf der spezifischen Wärme sichtbar, ähnlich dem bekannten  $\lambda$ -Übergang von flüssigem  $^4\text{He}$  in seine suprafluide Phase.

In einem weiteren Schritt erfolgt eine interferometrische Untersuchung der Korrelationen erster Ordnung, die als direkte Indikatoren für den Grad an Ordnung im System dienen. In der thermischen Phase fällt die transversale Kohärenz auf einer von der thermischen de Broglie Wellenlänge vorgegebenen Längenskala ab. Dabei zeigt diese sowohl eine quantitative Übereinstimmung mit der Erwartung für ein Teilchen mit einer Masse, die der effektiven Photonenmasse im Resonator entspricht, als auch die erwartete Skalierung mit der Temperatur. Es konnte somit im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstmalig die tatsächliche thermische de Broglie Länge eines photonischen Systems vermessen werden. Überdies konnte gezeigt werden, dass der Phasenübergang zum Kondensat einsetzt, sobald die theoretisch erwartete Phasenraumdichte erreicht ist. Die Annahme, dass die Quantennatur der Teilchen genau dann eine dominierende Rolle einnimmt, wenn ihre Wellenpakete überlappen, konnte somit für ein photonisches System verifiziert werden. Mit Einsetzen der Kondensation wächst die Kohärenz rasch an, sodass eine das gesamte System umfassende, langreichweitige Ordnung etabliert wird. In der Gesamtbetrachtung zeigt sich, dass das harmonisch gefangene, zweidimensionale Photonengas im farbstoffgefüllten Mikroresonator der Realisierung eines idealen Bosegases unerreicht nahe kommt.

## Publikationen

Veröffentlichungen des Autors mit besonderem Bezug auf die in dieser Dissertation behandelten Themen:

- 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*, **7**, 11340 (2016)
- T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, J. Schmitt und M. Weitz, First-order spatial coherence measurements in a thermalized two-dimensional photonic quantum gas, *Nature Communications*, zur Veröffentlichung angenommen (2017)

Weitere im Rahmen der Arbeiten zu dieser Dissertation entstandene Veröffentlichungen:

- J. Klärs, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger und 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. Klärs, J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, F. Vewinger und M. Weitz, Bose-Einstein condensation of photons in a microscopic optical resonator: towards photonic lattices and coupled cavities, *SPIE Proceedings* **8600**, 86000L (2013)
- 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)
- 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, F. Vewinger, J. Klärs und M. Weitz, Bose-Einstein Condensation of Photons versus Lasing and Hanbury Brown-Twiss Measurements with a Condensate of Light, *ICOLS Proceedings XXII*, 85-96 (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*, **116**, 033604 (2016)



# Inhaltsverzeichnis

---

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einführung</b>   | <b>1</b>  |
| 1.1      | Ideales Bosegas . . . . .   | 4         |
| 1.1.1    | Thermisches Photonengas in einem Schwarzkörper . . . . .  | 5         |
| 1.1.2    | Bose-Einstein-Kondensation . . . . .  | 7         |
| 1.2      | Thermodynamik und Phasenübergänge . . . . .   | 9         |
| 1.2.1    | Ordnungsparameter der Bose-Einstein-Kondensation . . . . .  | 13        |
| 1.2.2    | Tiefemperaturverhalten von flüssigem $^4\text{He}$ . . . . .  | 15        |
| 1.3      | Korrelationen und Kohärenz . . . . .  | 17        |
| 1.3.1    | Phasenkorrelationen eines atomaren Bosegas . . . . .  | 18        |
| 1.3.2    | Optische Korrelationen und Kohärenz . . . . .   | 19        |
| 1.4      | Experimentelles Umfeld . . . . .  | 24        |
| 1.5      | Photonengas im farbstoffgefüllten optischen Mikroresonator . . . . .                                      | 25        |
| <b>2</b> | <b>Thermodynamik eines zweidimensionalen photonischen Bosegas</b>   | <b>29</b> |
| 2.1      | Thermalisierung des Photonengases . . . . .   | 29        |
| 2.1.1    | Physik organischer Fluoreszenzfarbstoffe . . . . .  | 29        |
| 2.1.2    | Thermisches Gleichgewicht und Kennard-Stepanov-Relation . . . . .   | 34        |
| 2.2      | Photonen im optischen Mikroresonator . . . . .  | 37        |
| 2.2.1    | Dispersionsrelation . . . . .   | 37        |
| 2.2.2    | Bose-Einstein-Kondensation . . . . .  | 39        |
| 2.3      | Thermodynamik des Photonengases . . . . .   | 42        |
| 2.3.1    | Zustandsgrößen des Phasenüberganges . . . . .   | 42        |
| 2.3.2    | Effekte der endlichen Systemgröße . . . . .   | 46        |
| <b>3</b> | <b>Experimente zur Thermodynamik eines idealen Bosegas aus Photonen</b>                                   | <b>49</b> |
| 3.1      | Apparativer Aufbau . . . . .  | 49        |
| 3.2      | Dispersionsrelation des Photonengases . . . . .   | 53        |
| 3.3      | Kalorimetrie eines Bose-Einstein-kondensierten Photonengases . . . . .                                    | 55        |
| 3.3.1    | Spektrale Intensitätsverteilung und Besetzungsgrad . . . . .  | 56        |
| 3.3.2    | Innere Energie, spezifische Wärme und Entropie . . . . .  | 57        |
| <b>4</b> | <b>Experimente zur Bestimmung der Korrelationen erster Ordnung</b>  | <b>63</b> |
| 4.1      | Phasenkorrelationen des idealen zweidimensionalen Photonengases in einer Falle . . . . .                  | 63        |
| 4.1.1    | Interferometrische Bestimmung der Kohärenz, räumliche Intensitätsverteilung und Phasenraumdicke . . . . . | 64        |
| 4.1.2    | Räumliche Korrelationen erster Ordnung . . . . .  | 68        |
| 4.1.3    | Zeitliche Korrelationen erster Ordnung . . . . .  | 72        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 4.2      | Apparativer Aufbau . . . . .   | 75         |
| 4.2.1    | Mikroresonator und Interferometeranordnung . . . . .   | 76         |
| 4.2.2    | Vermessung des räumlichen Auflösungsvermögens . . . . .  | 79         |
| 4.3      | Korrelationen des thermischen Photonengases . . . . .  | 80         |
| 4.3.1    | Thermische Korrelationszeit . . . . .  | 80         |
| 4.3.2    | Thermische de Broglie Wellenlänge des idealen Photonengases . . . . .                            | 83         |
| 4.3.3    | Temperaturabhängigkeit der thermischen Korrelationen . . . . .                                   | 85         |
| 4.4      | Bestimmung der kritischen Phasenraumdichte . . . . .   | 87         |
| 4.5      | Korrelationen des Bose-Einstein-Kondensats . . . . .   | 88         |
| 4.5.1    | Bestimmung der räumlichen Kohärenzlänge . . . . .  | 90         |
| 4.5.2    | Verhalten der Kohärenz an der Kondensationsschwelle . . . . .                                    | 93         |
| <b>5</b> | <b>Ausblick</b>  | <b>95</b>  |
|          | <b>Literatur</b>   | <b>97</b>  |
| <b>A</b> | <b>Retardierte Wechselwirkungen, Thermo-optische Effekte und Nichtgleichgewichtsercheinungen</b> | <b>105</b> |
| <b>B</b> | <b>Auflistung relevanter formaler Zusammenhänge und experimenteller Parameter</b>                | <b>111</b> |

## Einführung

---

*Wolf, who apart from you is interested in coherence? Leave the chapter out and send the manuscript to the printers.*

— Max Born an Emil Wolf<sup>1</sup>

Die Beobachtung und Beschreibung von Wechselbeziehungen zwischen Ereignissen, messbaren Größen und Merkmalen, und die Rückschlüsse und Folgerungen, die man aus diesen zieht, sind essentieller Bestandteil der Entwicklung intelligenten Lebens. Sind zwei Ereignisse stark miteinander korreliert, d.h. ist die Wechselbeziehung zwischen ihnen besonders groß, gehen wir meist intuitiv von einem Kausalzusammenhang aus. So fällt es uns beispielsweise leicht, als Ursache von körperlicher Erschöpfung die vorangegangene belastende Arbeit auszumachen oder aber den leeren Tank auf die Fahrt mit dem Auto zurückzuführen. Diese kausalen Zusammenhänge liegen besonders nahe, da wir einfache und direkt nachprüfbare Relationen der Form „Je härter ich arbeite, desto erschöpfter bin ich“ bzw. „Je länger ich fahre, desto leerer wird der Tank“ aufstellen können. Die direkte Verknüpfung von Korrelation und Kausalität ist jedoch nicht immer gegeben. Obgleich eine kalte Witterung mit dem vermehrten Auftreten von Knieverletzungen korreliert ist, ist keine direkte Kausalität etwa der Form „Tiefe Temperaturen führen zu Kreuzbandrissen“ gegeben. Vielmehr wird dieser Scheinzusammenhang über weitere Bezugsgrößen hergestellt, in diesem Fall über die Jahreszeit und die ihr entsprechenden sportlichen Aktivitäten.

Korrelationen sind für die Wissenschaft von besonderer Bedeutung, bildet doch hier die Verknüpfung von Ursache und Wirkung den wichtigsten Zugang zum Gewinn neuer Erkenntnisse. In den Natur- und anderen deterministischen Wissenschaften sind Korrelationen in der Regel eindeutig über Experimente bestimmbar. Hat eine Änderung der Versuchsanordnung eine Auswirkung auf den Ausgang des Experiments, sind der veränderte Faktor und der gemessene Faktor nicht nur korreliert, sondern (z.B. über Naturgesetze) auch kausal verbunden. Der Grad der Korrelation, d.h. die Stärke der Beziehung, ist dabei im Allgemeinen nicht konstant und insbesondere keine digitale, d.h. auf ihre maximalen Ausprägungen *keine Korrelation* und *perfekte Korrelation* beschränkte Größe. In den Sozial- und Geisteswissenschaften sowie auch in der Medizin treten dagegen meist Studien an die Stelle von Experimenten, deren Interpretation, insbesondere bezüglich des Auffindens kausaler Zusammenhänge, sich als deutlich schwieriger erweist [3]. Losgelöst vom vollständigen Verständnis des kausalen Zusammenhangs kann die Messung der Korrelationen verschiedenster Parameter eines Systems aber Schlüsse auf dessen weitere Entwicklung zulassen. So bedient sich beispielsweise die Versicherungs- und Finanzwirtschaft auf Korrelationen basierender

---

<sup>1</sup> Max Born schrieb diese Zeilen in einem Brief an Emil Wolf als Antwort auf dessen Nachricht, dass er noch am Kapitel über Kohärenz des gemeinsamen Buches schreibe [1]. *Principles of Optics* erschien 1959, einige Monate vor Erfindung des Lasers - inklusive des Kapitels über die Kohärenz von Licht [2].

statistischer Methoden zur Risikoabschätzung und -minimierung. Portfolios gelten im Kapitalmarkt demnach als umso sicherer, je unkorrelierter die einzelnen in ihm gehaltenen Werte sind, da so der Gesamtwert unabhängig von Fluktuationen einzelner Werte möglichst stabil bleibt.

Eine besondere Ausprägung von Korrelationen in physikalischen Systemen ist die Kohärenz elektromagnetischer Wellen. Zwei Teilwellen gelten als kohärent, wenn ihre oszillierenden elektrischen Felder eine feste Phasenbeziehung zueinander haben und das Superpositionsprinzip somit uneingeschränkt angewendet werden kann [4]. In realen Systemen existiert eine feste Phasenbeziehung, auch bei der Betrachtung der Emission nur eines Emitters, nur über einen begrenzten zeitlichen Abstand, der *Kohärenzzeit* oder auch (*longitudinalen*) *Kohärenzlänge*. Während die Emission einer thermischen Lichtquelle lediglich über den Zeitraum einiger hundert Femtosekunden kohärent ist, lassen sich z.B. in Lasern feste Phasenbeziehungen noch nach Millisekunden und mehr messen. In einem Ensemble vieler Emittter kann man im thermischen Bereich annehmen, dass Korrelationen und somit auch die intrinsische *transversale Kohärenzlänge* zwischen den Emitttern sehr kurzreichweitig sind und daher im Allgemeinen keine feste Phasenbeziehung zu erwarten ist. Dennoch lassen sich auch mit ausgedehnten klassischen Lichtquellen Interferenzerscheinungen z.B. am Young'schen Doppelspalt beobachten, da die Überlagerung der statischen Interferenzmuster jedes Emitters zunächst nur von den geometrischen Positionen und nicht von den relativen Phasen bestimmt wird [5]. Der maximale Abstand der Emittter, bei dem noch bei den jeweiligen geometrischen Verhältnissen ein Interferenzkontrast zu beobachten ist, wird in diesem Zusammenhang ebenfalls als transversale Kohärenzlänge bezeichnet.

Ein weiteres allgegenwärtig zu beobachtendes Phänomen ist der abrupt in Erscheinung tretende Übergang des makroskopischen Zustands eines - meist homogenen - Stoffes bei Änderung einer Zustandsgröße, wie Druck, Volumen oder Temperatur. Während Änderungen des Aggregatzustands, z.B. die Kondensation von Wasserdampf zu Wassertropfen an kalten Oberflächen, trivial erscheinen, so gelten deren grundlegende Konzepte auch für wesentlich ungewöhnlichere Phasenübergänge: Die spontane Magnetisierung eines Stoffes ohne äußeres Magnetfeld unterhalb einer diskreten Temperatur (Ferromagnetismus) oder das Auftreten einer Phase zwischen Kristall und Flüssigkeit (Flüssigkristall), die seit Jahrzehnten in LCDs (Liquid Crystal Display) eine Anwendung findet [6, 7]. Verändert man eine Zustandsgröße eines Systems soweit, dass sich für das Gesamtsystem eine Neukonfiguration, bspw. eine Änderung der Anordnung in einem Gitter als energetisch günstig erweist, wird der Stoff in diese neue Phase übergehen. Für weitere Ausführungen wird sich diese Arbeit hauptsächlich auf die Temperatur als veränderte Zustandsgröße beschränken, da diese auch aus experimenteller Sicht den einfachsten Zugang gewährt. Entzieht man einem System thermische Energie durch Absenken der Temperatur, nimmt die Ordnung innerhalb des Systems zu. Besonders deutlich ist dieses Verhalten bei der Betrachtung von Phasenübergängen sichtbar, etwa beim Erstarren von Wassermolekülen in ein Kristallgitter. Um Phasenübergänge auch quantitativ zu erfassen, hat es sich bewährt, makroskopische Größen zu betrachten, die sich in charakteristischer Weise am Übergangspunkt ändern. Diese Systemgrößen, entsprechend als *Ordnungsparameter* bezeichnet, sind etwa die spezifische Wärme eines Systems, dessen Entropie, die Korrelationslänge, aber auch systemspezifischere Größen wie die Magnetisierung.

Diese allgemeinen Überlegungen zu Phasenübergängen behalten ihre Gültigkeit ebenfalls in Temperaturbereichen, in denen sich ein System nicht mehr klassisch beschreiben lässt und Quanteneffekte eine dominierende Rolle spielen. Zur Abschätzung der Quantennatur eines Systems vergleicht man die Größe der den beteiligten Teilchen zugeordneten de Broglie Wellenlänge (Materiewellenlänge) mit anderen charakteristischen Längen des Systems. In einem System im thermischen Gleichgewicht etwa ist die

---

thermische de Broglie Wellenlänge gegeben durch

$$\lambda_{\text{th}} = \sqrt{\frac{h^2}{2\pi m k_B T}}, \quad (1.1)$$

mit der Masse  $m$  der betrachteten Teilchen und der Temperaturen  $T$ . Wenn die thermische de Broglie Wellenlänge für kleine Temperaturen vergleichbar groß mit dem mittleren Teilchenabstand wird, überlappen die quantenmechanischen Wellenpakete und das System ist quantenentartet [8]. Die genaue Ausprägung der Quantenentartung ist bestimmt durch die bosonische oder fermionische Quantenstatistik des jeweiligen Systems [9–11].

Für ein ideales Gas aus Bosonen, Teilchen mit ganzzahligem Spin, ist der korrespondierende Phasenübergang zur Quantenentartung die *Bose-Einstein-Kondensation* [12, 13]. Die Symmetrie der Wellenfunktionen unter Vertauschung führt dazu, dass Bosonen den gleichen Zustand besetzen können. In der kondensierten Phase, in der ein makroskopischer Anteil der Teilchen des Systems gemäß der Bose-Einstein-Statistik den energetischen Grundzustand besetzt, sich also im selben quantenmechanischen Zustand befindet, sind demnach alle Teilchen des Kondensats delokalisiert. Als Folge dessen lässt sich das Vielteilchenkondensat über eine einzige Einteilchenwellenfunktion beschreiben und bildet somit ein makroskopisch ausgedehntes Quantenobjekt. Die experimentelle Beobachtung eines Bose-Einstein-Kondensats gelang zunächst in verdünnten atomaren Gasen aus Alkaliatomen, später auch mit Wasserstoff, Elementen der seltenen Erden und Molekülen aus Paaren fermionischer Teilchen [14–19]. Nimmt man für die Teilchendichte dieser Gase eine Größenordnung von typischerweise  $10^{13} - 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  an, so erwartet man für den Phasenübergang Temperaturen im Bereich 100 nK bis einige  $\mu\text{K}$  (vgl. Gl. (1.1)), welche erst mit aufwändigen Kühltechniken realisiert werden konnten. In aktuelleren Arbeiten konnte auch die Bose-Einstein-Kondensation von optisch angeregten Elektron-Loch-Paaren, sogenannten Exziton-Polaritonen, experimentell realisiert und charakterisiert werden [20–23].

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit dem Übergang eines Bosegases aus Licht von einem klassischen, durch seine thermischen Einteilcheneigenschaften beschriebenen Photonengas hin zur quantenentarteten Phase. Obgleich Photonen einen grundlegenden experimentellen Zugang gewähren und auch theoretisch als elementares Austauschboson des Standardmodells umfassend behandelt sind, gelang es erst 2010 ein Bose-Einstein-Kondensat aus Licht zu realisieren [25–28]. Da die Emission eines Schwarzkörpers bei Absenkung seiner Temperatur abnimmt, die Teilchenzahl eines solchen Systems also nicht erhalten ist, war erst die Verwendung eines farbstoffgefüllten, optischen Mikroresonators zielführend. Photonen bewegen sich darin in einem harmonischen Fallenpotential und bilden ein nahezu ideales, zweidimensionales Gas massiver Teilchen. In früheren Arbeiten wurden bereits die statistische Physik dieses Systems, die Dynamik des Thermalisierungsprozesses sowie die auftretenden Teilchenzahlfluktuationen (Korrelationen zweiter Ordnung), welche durch die Kopplung des Photonengases an das Molekülreservoir entstehen, untersucht [29–34].

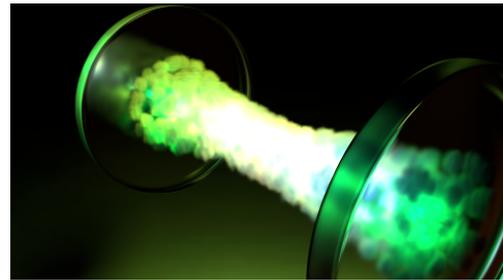


Illustration des optischen Mikroresonators [24].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass sich die Ordnungsparameter dieses Systems am Phasenübergang in guter Näherung gemäß den Vorhersagen für ein ideales, d.h. wechselwirkungsfreies, Bosegas verhalten. Die untersuchten Ordnungsparameter der thermodynamischen

Zustandsgrößen umfassen dabei den Anteil an Photonen im Kondensat in Relation zur Gesamtteilchenzahl (Besetzungsgrad), die innere Energie, die spezifische Wärme und die Entropie [35]. Der dabei beobachtete spitze Verlauf der spezifischen Wärme bei Unterschreiten der kritischen Temperatur erinnert dabei stark an den aufgrund seiner charakteristischen Form als  $\lambda$ -Punkt bekannten Übergang von flüssigem  $^4\text{He}$  in seine suprafluide Phase bei 2,18 K [36, 37]. Weiter wurden Korrelationen in Form der Ordnungsparameter Kohärenzzeit und transversaler Kohärenzlänge auf beiden Seiten des Phasenübergangs experimentell quantifiziert. Es konnte dabei beobachtet werden, wie die Korrelationen beim Übergang in die kondensierte Phase rasch ansteigen und das System eine langreichweitige Ordnung ausbildet. Dabei wurde erstmals die tatsächliche thermische de Broglie Wellenlänge eines zweidimensionalen photonischen Systems im nicht-kondensierten Bereich direkt beobachtet, welche schließlich dazu genutzt wurde, die Phasenraumdichte bei Einsetzen der Kondensation zu bestimmen [38].

In diesem einführenden Kapitel werden die bereits vorgestellten Konzepte der Bose-Einstein-Kondensation, der thermodynamischen Zustandsgrößen beim Phasenübergang und der Korrelationen erster Ordnung (Phasenkohärenz) vertieft und die im weiteren Verlauf dieser Arbeit benötigten wichtigen Relationen zusammengefasst. Daran anschließend erfolgt eine Übersicht über die grundlegenden physikalischen Prozesse, welche innerhalb eines optisch gepumpten, farbstoffgefüllten Mikroresonators zum Auftreten eines zweidimensionalen Photonengases im thermischen Gleichgewicht führen. Kapitel 2 thematisiert die statistische Physik dieses harmonisch gefangenen, zweidimensionalen Systems sowie das zu erwartende Verhalten der thermodynamischen Zustandsgrößen im Bereich des Phasenübergangs. Daran anschließend wird in Kapitel 3 auf die durchgeführten experimentellen Arbeiten zur Bestimmung der thermodynamischen Zustandsgrößen (Kalorimetrie) im Bereich des Phasenübergangs eingegangen. Das darauf folgende Kapitel 4 behandelt, gestützt durch numerische Berechnungen, die Experimente bezüglich der Phasenkorrelationen sowohl im klassischen als auch im kondensierten Bereich. Eine Zusammenfassung der in der vorliegenden Arbeit erzielten Ergebnisse sowie ein Ausblick auf zukünftige Arbeiten erfolgt in Kapitel 5.

## 1.1 Ideales Bosegas

Bei der Betrachtung idealer Quantengase hat es sich als zielführend erwiesen, sich dem Gesamtsystem ganz grundlegend über die einzelnen Konstituenten dieses Vielteilchensystems zu nähern. So sind die Eigenfunktionen eines Systems aus zwei Teilchen  $a$  und  $b$  über die jeweiligen Eigenfunktionen  $\Psi_a$  und  $\Psi_b$  der Teilchen bestimmt:

$$\Psi_{\pm}(X_1, X_2) = C [\Psi_a(X_1)\Psi_b(X_2) \pm \Psi_a(X_2)\Psi_b(X_1)] \quad (1.2)$$

$X_i$  steht hierbei für alle Orts-, Impuls- und Spinoperatoren des  $i$ -ten Teilchens mit dem Normierungsfaktor  $C$ . Quantensysteme lassen sich unterteilen in zwei fundamental unterschiedliche Klassen: Die der Bosonen (ganzzahliger Spin), in der nur die symmetrischen Wellenfunktionen  $\Psi_+(X_1, X_2)$  auftreten beim Austausch zweier beliebiger Teilchen, und die der Fermionen (halbzahliger Spin) mit nur antisymmetrischen Wellenfunktionen  $\Psi_-(X_1, X_2)$ . Aus Gl. (1.2) ist direkt ersichtlich, dass die Mehrfachbesetzung eines Zustands durch identische Fermionen  $\Psi_- \equiv 0$  liefert und somit das Pauli-Verbot begründet [39]. Diese Einschränkung gilt nicht für Bosonen, deren makroskopische Besetzung des Ein-Teilchen-Grundzustands im Bereich tiefer Temperaturen Gegenstand dieser Arbeit ist.

Die Statistik des Quantensystems ergibt sich aus der Betrachtung der Verteilung der Teilchen in die Zustände des Vielteilchensystems. Jeder Mikrozustand  $r$  wird über die Anzahl der Teilchen  $n_i$  in jedem

Einteilchenzustand  $\Psi_i$  definiert:

$$r = (n_0, n_1, n_2, \dots) \quad (1.3)$$

In bosonischen Systemen kann dabei jeder Zustand durch beliebig viele Teilchen besetzt sein. Die Energie des Mikrozustands ergibt sich dann aus der Summation der Produkte aus Einteilchenenergien  $\epsilon_i$  und ihrer Besetzungszahl:

$$E_r = \sum_i \epsilon_i n_i \quad (1.4)$$

Ist die Teilchenzahl  $N_r = \sum_i n_i$  eines Systems nicht fest vorgegeben, zieht man die großkanonische Zustandssumme  $Y(T, V, \mu)$  zur Bestimmung des mikroskopischen Gleichgewichtszustandes heran, in der alle möglichen Realisierungen des Mikrozustands  $r$  gemäß ihres Boltzmann-Faktors bei gegebener Temperatur  $T$  gewichtet werden:

$$Y(T, V, \mu) = \sum_r \exp\left(-\frac{E_r(V, N_r) - \mu N_r}{k_B T}\right) \quad (1.5)$$

Das hier auftretende chemische Potential  $\mu$  lässt sich allgemein als die Abhängigkeit der thermodynamischen Energiegrößen von der Zusammensetzung des Systems interpretieren. Für die hier vorgenommene Betrachtung eines einkomponentigen Quantengases ist das chemische Potential gleich der molaren Gibbs-Energie (freie Enthalpie) und entspricht der Änderungsrate der freien Energie eines thermodynamischen Systems bei Änderung der Teilchenzahl.

Die mittlere Besetzungszahl  $\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon)$  jedes bosonischen Einteilchenzustands in Gl. (1.3) lässt sich mit Hilfe der Zustandssumme ausdrücken als:

$$\begin{aligned} \bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) &= \frac{1}{Y} \sum_r n_i \exp[-E_r(V, N_r) - \mu N_r / k_B T] \\ &= \frac{1}{e^{(\epsilon - \mu)/k_B T} - 1} \end{aligned} \quad (1.6)$$

Gleichung (1.6) ist die Bose-Einstein-Verteilung für ein ideales Quantengas aus Bosonen im thermischen Gleichgewicht. Die mittlere Gesamtteilchenzahl

$$\bar{N} = \sum_{\epsilon} \bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \quad (1.7)$$

wird demnach unmittelbar über die Temperatur und das chemische Potential bestimmt. Umgekehrt stellt sich bei festgelegter Teilchenzahl und Temperatur im Gleichgewichtszustand ein chemisches Potential ein, welches die Randbedingungen aus Gl. (1.7) erfüllt. Da für physikalische Systeme  $\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \geq 0$  gelten muss, folgt aus Gl. (1.6)  $\mu \leq \epsilon_0$ , mit der Grundzustandsenergie  $\epsilon_0$ . Im Bereich hoher Temperaturen können Quanteneffekte für gewöhnlich vernachlässigt werden, für  $\mu \ll -k_B T$  geht die Bose-Einstein-Verteilung in die Boltzmann-Verteilung über.

### 1.1.1 Thermisches Photonengas in einem Schwarzkörper

Eine besondere Klasse von bosonischen Quantensystemen bilden Photonengase im thermischen Gleichgewicht. Das wohl bekannteste dieser Systeme ist der Planck'sche Schwarzkörperstrahler, in dem Materie der Temperatur  $T$  mit der elektromagnetischen Strahlung im Gleichgewicht steht [12, 40]. Die Wände

eines solchen Hohlraumresonators sind ideal absorbierend im gesamten elektromagnetischen Spektrum, geben gleichzeitig aber auch Wärmestrahlung ab, deren spektrale Verteilung rein von der Temperatur abhängt. Beispiele, die durch ein solches ideales System näherungsweise beschrieben werden können, sind etwa das Plasma der Sonnenoberfläche oder auch die kosmische Hintergrundstrahlung. Im Folgenden soll gezeigt werden, warum die Photonen der Schwarzkörperstrahlung keinen Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat zeigen.

Die Emission und Absorption von Photonen in den Atomen der Wände des Hohlkörpers, also die Umwandlung zwischen Wärme- und Strahlungsenergie, hat zur Folge, dass die Zahl der Photonen keiner Randbedingung wie in Gl. (1.7) unterliegt, sondern sich als Funktion der Temperatur einstellt. Sowohl der Hamiltonoperator des Systems als auch die Energieeigenwerte sind unabhängig von der Photonenzahl  $N_{\text{Ph}} \neq \text{konst.}$  und es gilt:

$$\mu = \frac{\partial E_r}{\partial N_{\text{Ph}}} = 0 \quad (1.8)$$

In einem dreidimensionalen Hohlraum des Volumens  $V$  gibt es unendlich viele mögliche Photonen-Eigenzustände und die Summe zur Bestimmung der Gesamtenergie in Gl. (1.4) lässt sich durch ein Integral ausdrücken:

$$E(T, V) = \sum_i \epsilon_i \bar{n}_{T, \mu=0}(\epsilon_i) = \frac{2V}{(2\pi)^3} \int d^3 k \frac{\hbar c k}{e^{\frac{\hbar c k}{k_B T}} - 1} \quad (1.9)$$

Für die Eigenenergien der Photonen gilt  $\epsilon_i = \hbar \omega_i = \hbar c k_i$ , mit Frequenz  $\omega$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$  und der Wellenzahl  $k$ . Schreibt man die Energie als Funktion der Frequenz  $\omega$ , erhält man aus dem Vergleich mit Gl. (1.9) direkt die spektrale Verteilung der Energiedichte  $u(\omega, T)$  (Planck'sches Strahlungsgesetz) und die mittlere spektrale Besetzungszahl  $\bar{n}(\omega, T) = u(\omega)/\hbar\omega$ :

$$E(T, V) = \int_0^\infty d\omega u(\omega)$$

$$u(\omega, T) = \frac{\hbar}{\pi^2 c^3} \frac{\omega^3}{\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1} \quad (1.10)$$

$$\bar{n}(\omega, T) = \frac{1}{\pi^2 c^3} \frac{\omega^2}{\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1} \quad (1.11)$$

Um auf das Temperaturverhalten der Photonen schließen zu können, bietet es sich an, über alle Frequenzen der spektralen Verteilung zu integrieren. Mit Gl. (1.11) gilt für die Photonendichte  $n = \bar{N}/V$ :

$$n = \int_0^\infty \bar{n}(\omega, T) d\omega = \frac{2 \zeta(3) k_B^3}{\pi^2 (\hbar c)^3} T^3 \rightarrow 0 \quad (T \rightarrow 0) \quad (1.12)$$

Der Koeffizient  $\zeta(\alpha = 3) \approx 1.20$  ist durch die Riemann'sche Zeta-Funktion gegeben. Gleichung (1.12) verdeutlicht, warum in einem solchen System keine Bose-Einstein-Kondensation stattfindet. Für sinkende Temperaturen nimmt die Teilchendichte des Systems ab und eine makroskopische Besetzung des Grundzustands wird verhindert. Die mittlere Teilchenzahl wird im Schwarzkörper direkt über die thermische Energie eingestellt. Verringert man letztere, verschwinden die Photonen in den Wänden des Hohlraums, die Teilchenzahl ist also nicht erhalten.

Gleichung (1.12) beinhaltet die Zustandsdichte  $g(\omega)$ , aus der sich allgemein die Anzahl der Zustände in einem Frequenzintervall  $d\omega$  berechnen lässt, die für ein Teilchen zur Besetzung verfügbar sind. Für die

spektrale Zustandsdichte pro Volumen gilt hier:

$$\tilde{g}(\omega) d\omega = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3} d\omega \quad (1.13)$$

Obwohl die Schwarzkörperstrahlung keinen Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat zeigt, ist ihre Quantennatur implizit über die Quantisierung der Eigenenergien in den hergeleiteten Relationen für die Besetzungszahl enthalten. Weiter lassen sich die Teilchen des Photonengases als (thermische) Wellenpakete mit einer endlichen Ausdehnung beschreiben. So gilt für die thermische de Broglie Wellenlänge eines Systems mit Dimensionalität  $n$  und einer Energie-Impuls-Beziehung (Dispersionsrelation) der Art  $E = a * p^s$  [41]:

$$\lambda_{\text{th}} = \frac{h}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{a}{k_B T} \right)^{\frac{1}{s}} \left[ \frac{\Gamma(\frac{n}{2} + 1)}{\Gamma(\frac{n}{s} + 1)} \right]^{\frac{1}{n}} \quad (1.14)$$

$$= \frac{c h}{2\pi^{1/3} k_B T} \quad (\text{Hohlraumstrahlung}) \quad (1.15)$$

Die thermische Wellenlänge der Schwarzkörperstrahlung in drei Dimensionen in Gl. (1.15) wurde hierbei aus Gl. (1.14) mit der Euler'schen Gammafunktion  $\Gamma(n + 1) = n!$  über die relativistische Dispersionsrelation masseloser Teilchen  $E = \hbar c k = c p$  hergeleitet. Betrachtet man den langwelligen Teil des Emissionsspektrums, so lässt sich dieser „klassisch“ über das Rayleigh-Jeans-Gesetz beschreiben. Für Emissionswellenlängen kleiner  $\lambda \approx \lambda_{\text{th}}$  ist dagegen das Spektrum nur mit dem quantisierten Planck'schen Strahlungsgesetz vollständig bestimmt, so auch das sichtbare Spektrum des Sonnenlichts ( $\lambda_{\text{th}}(T \approx 6000 \text{ K}) \approx 800 \text{ nm}$ ).

### 1.1.2 Bose-Einstein-Kondensation

Bosonische Systeme mit nicht verschwindendem chemischen Potential, in denen Teilchenzahl und Temperatur also getrennt voneinander eingestellt werden können, können bei tiefen Temperaturen einen Phasenübergang hin zum Bose-Einstein-Kondensat zeigen. Da die grundlegende Statistik über die Bose-Einstein-Verteilung in Gl. (1.6) gegeben ist, müssen die Dimensionalität und die Art des verwendeten Fallenpotentials über die Zustandsdichte in die Verteilung der mittleren Besetzungszahl  $\bar{n}$  eingehen (vgl. Gl. (1.11) und (1.13) für den Fall der Schwarzkörperstrahlung). Letztere lässt sich allgemein schreiben als:

$$\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) = \frac{g(\epsilon)}{e^{(\epsilon-\mu)/k_B T} - 1}, \quad \text{mit} \quad (1.16)$$

$$g(\epsilon) = C_\alpha \epsilon^{\alpha-1} \quad (1.17)$$

In einem freien, homogenen System mit Dimensionalität  $d$  ist  $\alpha = d/2$ , unter der Anwesenheit eines harmonischen Fallenpotentials ist  $\alpha = d$ ,  $C_\alpha$  ist eine Konstante [42]. Im thermodynamischen Grenzfall lässt sich zur analytischen Bestimmung der Teilchenzahl nach Gl. (1.7) die Summe der Entartung der Eigenenergien  $\sum_\epsilon g(\epsilon)$  in ein Integral über die Zustandsdichte  $\int g(\epsilon) d\epsilon$  überführen:

$$\bar{N} = \int_0^\infty \frac{g(\epsilon)}{e^{(\epsilon-\mu)/k_B T} - 1} d\epsilon \quad (1.18)$$

Aus Gl. (1.18) ist direkt ersichtlich, dass die Teilchenzahl für größer werdende  $\mu$  steigt. Aus vorherigen Überlegungen ist der Maximalwert für das chemische Potential durch  $\mu = \epsilon_0 = 0$  mit der Grundzustandsenergie  $\epsilon_0$  gegeben, woraus scheinbar eine maximale Teilchenzahl für das Quantensystem bei gegebener Temperatur  $T$  folgt:

$$\bar{N}(T, \mu = 0) = \int_0^\infty \frac{g(\epsilon)}{e^{(\epsilon/k_B T)} - 1} d\epsilon \quad (1.19)$$

$$= C_\alpha (k_B T)^\alpha \int_0^\infty dx \frac{x^{\alpha-1}}{e^x - 1} = C_\alpha \Gamma(\alpha) \zeta(\alpha) [k_B T]^\alpha \quad (1.20)$$

Im letzten Schritt wurde das Integral mit der dimensionslosen Variable  $x = \epsilon/k_B T$  ausgedrückt. Eine maximale Teilchenzahl wäre aber insofern paradox, als dass es im Allgemeinen möglich sein sollte, die Teilchenzahl eines Systems weiter zu erhöhen, bzw. bei gegebener Teilchenzahl die Temperatur weiter abzusenken.

Die Auflösung dieses Paradoxons liegt in der Überführung der diskreten Summe über die Zustandsdichte in ein Integral in Gl. (1.18). Die Besetzung des Grundzustands  $\epsilon_0 = 0$  divergiert für  $\mu \rightarrow 0$ , alle überzähligen Teilchen besetzen also den energetisch niedrigsten Eigenzustand des Quantensystems und formen das Bose-Einstein-Kondensat. Die Besetzung  $\bar{N}_0$  des Grundzustands des Systems muss somit getrennt von den Teilchen in angeregten Zuständen  $\bar{N}_+ = \sum_{\epsilon>0} n_{\mu,T}(\epsilon)$  betrachtet werden, sodass näherungsweise gilt:

$$\bar{N}(\mu, T) = \bar{N}_0 + \bar{N}_+ \simeq C_\alpha \left( \frac{1}{e^{-\mu/k_B T} - 1} + \int_0^\infty \frac{\epsilon^{\alpha-1}}{e^{(\epsilon-\mu)/k_B T} - 1} d\epsilon \right) \quad (1.21)$$

Für  $\mu = 0$  entspricht  $\bar{N}_+$  gerade Gl. (1.20), sodass darüber die kritische Teilchenzahl  $\bar{N}_c = \bar{N}_{+, \mu \rightarrow 0}$  des Phasenübergangs zum Bose-Einstein-Kondensat gegeben ist. Durch Auflösen von Gl. (1.20) nach der Temperatur findet sich die kritische Temperatur  $T_c$  bei gegebener Teilchenzahl zu:

$$k_B T_c = \frac{\bar{N}^{1/\alpha}}{[C_\alpha \Gamma(\alpha) \zeta(\alpha)]^{1/\alpha}} \quad (1.22)$$

Weiter lässt sich die Phasenraumdichte  $\bar{\omega}$  definieren als die Teilchenzahl innerhalb eines von der thermischen de Broglie Wellenlänge (vgl. Gln. (1.1) und (1.14)) vorgegebenen Volumens:

$$\bar{\omega} = \frac{\bar{N}}{V} \lambda_{\text{th}}^d \quad (1.23)$$

Beim Phasenübergang entspricht diese einem Wert, der sich in harmonisch gefangenen Systemen gerade zu  $\bar{\omega}_c = \zeta(\alpha)$  ergibt. Hierbei bezeichnet  $\bar{\omega}_c$  die kritische Phasenraumdichte.

### Ideales atomares Bosegas

In Tabelle (1.1) sind die Gamma-Funktion  $\Gamma(\alpha)$  und die Riemann'sche Zeta-Funktion  $\zeta(\alpha)$  für die experimentell relevanten Systeme aufgeführt. Für ein atomares Bosegas in einer dreidimensionalen Box des Volumens  $V$  ergeben sich die Konstante  $C_{\alpha=3/2}$ , die Zustandsdichte, kritische Teilchenzahl und

| $\alpha$ | Beispielsystem                     | $\Gamma(\alpha)$           | $\zeta(\alpha)$         |
|----------|------------------------------------|----------------------------|-------------------------|
| 1        | 2-Dimensional, homogen (frei)      | 1                          | $\infty$                |
| 1,5      | 3-Dimensional, homogen (frei)      | $\sqrt{\pi} \approx 0,886$ | 2,612                   |
| 2        | 2-Dimensional, harmonisch gefangen | 1                          | $\pi^2/6 \approx 1,645$ |
| 3        | 3-Dimensional, harmonisch gefangen | 2                          | 1,202                   |

**Tabelle 1.1:** Werte der Gamma-Funktion  $\Gamma(\alpha)$  und Riemann'schen Zeta-Funktion  $\zeta(\alpha)$  für verschiedene Systeme charakterisiert durch  $\alpha$ . Zweidimensionale, homogene Systeme zeigen keine Bose-Einstein-Kondensation bei Temperaturen  $T > 0$ .

kritische Temperatur aus den Gln. (1.17), (1.20) und (1.22) zu:

$$\begin{aligned}
 C_{3/2} &= \frac{Vm^{3/2}}{\sqrt{2}\pi^2\hbar^3} & g(\epsilon) &= \frac{Vm}{\sqrt{2}\pi^2\hbar^3}\sqrt{m\epsilon} \\
 \bar{N}_c &= \frac{\zeta(3/2)V}{\hbar^3} \left(\frac{mk_B T}{2\pi}\right)^{3/2} & T_c &= \frac{2\pi}{k_B m} \left(\frac{\hbar^3 N}{\zeta(3/2)V}\right)^{3/2} \quad (\text{homogen, 3D}) \quad (1.24)
 \end{aligned}$$

Die Übergangstemperatur nach Gl. (1.24) hat auch im thermodynamischen Limes für  $N \rightarrow \infty$ ,  $V \rightarrow \infty$  Bestand, da die Dichte  $\rho = \frac{N}{V}$  konstant bleibt.

Im Gegensatz zum dreidimensionalen System zeigt das zweidimensionale, homogene Bosegas ( $\alpha = 1$ ) keinen Phasenübergang bei einer endlichen Temperatur. Die Zustandsdichte  $g(\epsilon) = Am/\pi\hbar^2$  mit der Fläche  $A$  ist unabhängig von der Energie und durch  $\zeta(1) = \infty$  divergiert die kritische Teilchenzahl für endliche Temperaturen. Für den Fall eines idealen Bosegases in einer harmonischen Falle ( $\alpha = 2$ ) ist die Bose-Einstein-Kondensation jedoch möglich [43–46]. Die Zustandsdichte skaliert in diesem Fall linear mit der Energie und die kritische Teilchenzahl und Temperatur nehmen endliche Werte an. Gegenstand dieser Arbeit ist ein solches zweidimensionales, harmonisch gefangenes System aus Photonen. Die statistische Physik dieses Photonengases wird in Kapitel 2 im Detail diskutiert.

## 1.2 Thermodynamik und Phasenübergänge

Der Übergang von der statistischen Physik eines Systems, also seiner zugrunde liegenden mikroskopischen Beschreibung nach Gl. (1.2), hin zur thermodynamischen Betrachtung von Zustandsgrößen wurde im vorangegangenen Abschnitt explizit am Beispiel der Bose-Einstein-Kondensation vollzogen. Im Allgemeinen ist der tatsächlich vorliegende Mikrozustand  $r$  eines Systems nur von nachrangiger Bedeutung und in real existierenden Systemen aufgrund der hohen Zahl an Konstituenten ohnehin unmöglich zu benennen. Zudem unterliegen die Mikrozustände fortlaufend extrem schnellen Zustandsänderungen  $r \rightarrow r'$ , deren exakter Verlauf physikalisch schwer zu erfassen ist. Relevant ist dagegen die Frage, welche Mikrozustände überhaupt auftreten, und mit welchem statistischen Gewicht. Der Zustand eines Systems lässt sich probabilistisch über die zugrunde liegenden Wahrscheinlichkeiten  $P_r$  für die Realisierung der Mikrozustände mit Energien  $E_r$  beschreiben. Ein solcher Zustand, auch Makrozustand genannt, wird durch ein statistisches Ensemble repräsentiert, welches neben den jeweils vorzugebenden Parametern  $x = V, N, \dots$  auch über die Annahme der Verteilung der Mikrozustände charakterisiert ist. Zur Beschreibung von idealen Quantengasen wurde in Abschnitt 1.1 beispielsweise das großkanonische Ensemble gewählt, welches bei vorgegebener Temperatur, Volumen und chemischen Potential eine Boltzmann-Verteilung der Zustände

annimmt. Aus der Zustandssumme  $\Omega$  des Ensembles lassen sich schließlich die thermodynamischen Zustandsgrößen ableiten, welche als Ensemble-Mittel zu interpretieren sind und auch nur in der Betrachtung des gesamten Ensembles Bestand haben. Zusammengefasst lässt sich also eine Abfolge definieren, die ausgehend vom Hamiltonoperator  $H$  eines Systems zu dessen Zustandsgrößen  $X = S, T, \dots$  führt:

$$H(x) \rightarrow E_r(x) \rightarrow \Omega(E, x) \rightarrow S(E, x), T(E, x), X(E, x) \quad (1.25)$$

### Thermodynamische Zustandsgrößen

In Abgrenzung zu den Prozessgrößen, wie der Arbeit  $W$  und der Wärme  $Q$ , die den Verlauf einer Zustandsänderung betreffen, lässt sich mit Zustandsgrößen der Gleichgewichtszustand eines Systems vollständig thermodynamisch beschreiben. Die für die Beschreibung der Bose-Einstein-Kondensation wichtigsten Größen sind die innere Energie  $E$ , die Temperatur  $T$ , die Entropie  $S$ , die spezifische Wärme  $c$  und das chemische Potential  $\mu$ . Da in einem harmonisch gefangenen System der Druck  $p$  und das Volumen  $V$  über ihre jeweiligen harmonischen Größen ausgedrückt werden müssen, erfolgt eine gesonderte Betrachtung dieser in Abschnitt 2.3.1.

Die innere Energie  $E$  eines Systems berücksichtigt alle Energieformen, die in dem jeweils betrachteten System eine Rolle spielen. Dazu zählt die kinetische Energie (Translation, Rotation und Vibration) der beteiligten Massen, die potentielle Energie der Teilchen in äußeren Feldern oder auch die Energie der chemischen Bindungen. Die für diese Arbeit besonders wichtige innere Energie eines photonischen Systems ist durch die quantisierte Energie jedes beteiligten Photons gegeben. Die Energie eines geschlossenen Systems ist konstant (1. Hauptsatz der Thermodynamik), d.h. sie lässt sich nur von außen durch Zuführen von Wärme bzw. Verrichten von Arbeit ändern:  $dE = \delta Q + \delta W$ . In einem idealen Gas verteilt sich die innere Energie gemäß des Äquipartitionstheorems auf seine Freiheitsgrade  $f$ . Für ein Gas aus  $N$  Teilchen gilt:

$$E = \frac{f}{2} N k_B T \quad (1.26)$$

Diese Verteilung ist ebenfalls für Quantengase im klassischen Bereich hoher Temperaturen gültig.

Entropie  $S$  und Temperatur  $T$  eines Systems sind miteinander verknüpft und definiert als:

$$S = k_B \ln \Omega(x) \quad (1.27)$$

$$\frac{1}{T} = \frac{\partial S}{\partial E} \quad (1.28)$$

Die Entropie ist ein Maß für die Anzahl energetisch gleichwertiger Mikrozustände, die einem Makrozustand zugänglich sind. Je höher die Entropie eines Makrozustands, desto wahrscheinlicher ist dessen Realisierung. Dieses hat zur Folge, dass Zustandsänderungen, die ein System ins Gleichgewicht überführen, die Entropie maximieren, es gilt:  $\Delta S \geq 0$  (2. Hauptsatz der Thermodynamik) und  $S = \text{maximal}$ . Die Abhängigkeit der Entropie von den äußeren Parametern  $x$  erlaubt die Definition verallgemeinerter Kräfte  $X_i = \partial S(x) / \partial x_i$ . Nach Gl. (1.28) ist die inverse Temperatur treibende „Kraft“ für den Wärmeaustausch. Da die Definition in Gl. (1.27) explizit über die Zustandssumme erfolgt, welche wiederum konzeptionell nur in Gleichgewichtsverteilungen Bestand hat, lässt sich der Entropie auch nur in einem solchen System eine Messgröße zuordnen. So ist die Temperatur, welche die verfügbare Energie pro Freiheitsgrad darstellt, nicht für ein einzelnes Teilchen zu definieren, wohl aber für ein Ensemble aus Teilchen. Für ein quantenmechanisches System, in dem es genau einen Zustand mit niedrigstmöglicher Energie  $E_0$

gibt, wird  $1/k_B T \rightarrow \infty$  für  $E \rightarrow E_0$  entsprechend Gl. (1.28) und die Entropie strebt gegen einen festen Grenzwert für  $T = 0$  K:

$$S \xrightarrow{T \rightarrow 0} 0 \quad (3.\text{Hauptsatz; Nernstsches Theorem}) \quad (1.29)$$

Das chemische Potential  $\mu$  ist die verallgemeinerte Kraft, die sich der Teilchenzahl  $N$  zuordnen lässt. Wie in Abschnitt 1.1 bereits angedeutet, wird in einem großkanonischen Ensemble anstatt der Teilchenzahl lediglich das chemische Potential vorgegeben. Bei Veränderung der weiteren äußeren Parameter (Temperatur oder Volumen) verändert sich auch die Teilchenzahl des Systems. Voraussetzung für eine Beschreibung in diesem Ensemble ist der Kontakt des betrachteten Systems zu einem Reservoir, mit dem ein Austausch von Teilchen erfolgen kann. Ist die Teilchenzahl dagegen vorgegeben, etwa in einem atomaren Quantengas, ergibt sich das chemische Potential aus den jeweiligen eingestellten äußeren Parametern. Bei konstantem Volumen,  $dV = 0$ , gilt:

$$dE = T dS + \mu dN \quad (1.30)$$

$$\mu = -T \left( \frac{\partial S}{\partial N} \right)_{E,V} = \left( \frac{\partial E}{\partial N} \right)_{S,V} \quad (1.31)$$

Der erste Ausdruck in Gl. (1.31) entspricht der Definition der verallgemeinerten Kraft. Der zweite Ausdruck beschreibt das chemische Potential als die Energie, die nötig ist, um dem System ein Teilchen hinzuzufügen. Das chemische Potential entspricht also der Änderungsrate der freien Energie des Systems bei Änderung der Teilchenzahl. Weiter gilt für das chemische Potential im Gleichgewichtszustand des Systems:

$$\mu = \text{minimal} \quad (1.32)$$

Eine weitere, gerade im Zusammenhang mit Phasenübergängen gerne betrachtete Zustandsgröße ist die Wärmekapazität  $C$  bzw. die spezifische Wärmekapazität  $c = C/N$  eines Systems. Sie ist ein Maß für die Fähigkeit eines Systems thermische Energie zu speichern und definiert als das Verhältnis aus zugeführter Wärme  $\Delta Q$  und daraus resultierender Temperaturänderung  $\Delta T$ :

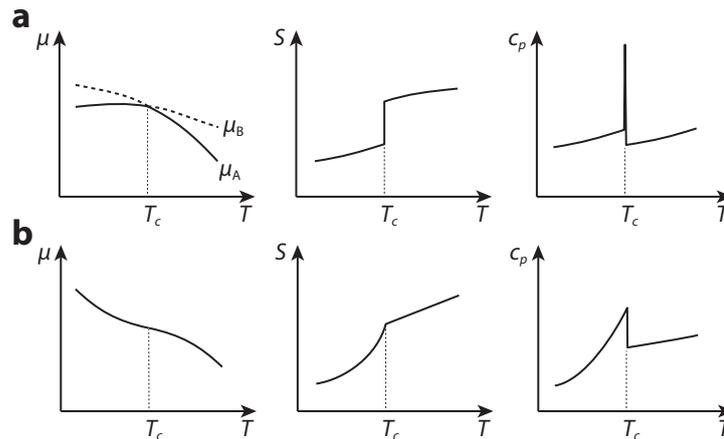
$$C = \lim_{T \rightarrow 0} \frac{\Delta Q}{\Delta T} = T \frac{\partial S}{\partial T} \quad (1.33)$$

Jeder Satz vorgegebener äußerer Parameter resultiert in einer eigenen Wärmekapazität. So unterscheiden sich im Allgemeinen die Wärmekapazitäten bei konstantem Volumen  $C_V$  (aus  $S(T, V, \mu)$ ) und bei konstantem Druck  $C_P$  (aus  $S(T, P, \mu)$ ).

## Phasenübergänge

Als Ausgangspunkt für die Betrachtung von Phasenübergängen hat es sich bewährt, das Verhalten des chemischen Potentials genauer zu beleuchten. Betrachtet man ein System mit zwei möglichen Phasen A und B mit den jeweiligen chemischen Potentialen  $\mu_A$  und  $\mu_B$ , gilt auf Grund der Gleichgewichtsbedingung des Zustands in Gl. (1.32):

$$\mu(T, x) = \begin{cases} \mu_A(T, x) & \text{falls } \mu_A \leq \mu_B \\ \mu_B(T, x) & \text{falls } \mu_B \leq \mu_A \end{cases} \quad (1.34)$$



**Abbildung 1.1:** Verlauf des chemischen Potentials  $\mu$ , der Entropie  $S$  und der spezifischen Wärmekapazität  $c_p$  bei einem Phasenübergang  $A \leftrightarrow B$  (a) erster und (b) zweiter Ordnung. Das sprunghafte Verhalten der Entropie in (a) impliziert eine divergierende Wärmekapazität. Eine Zufuhr von Wärmeenergie schlägt sich nicht in einer Temperaturerhöhung nieder, bis die gesamte Stoffmenge des Systems umgewandelt wurde (Umwandlungsenthalpie).

Da  $\mu(T, x)$  stetig ist, muss am Phasenübergang gelten:

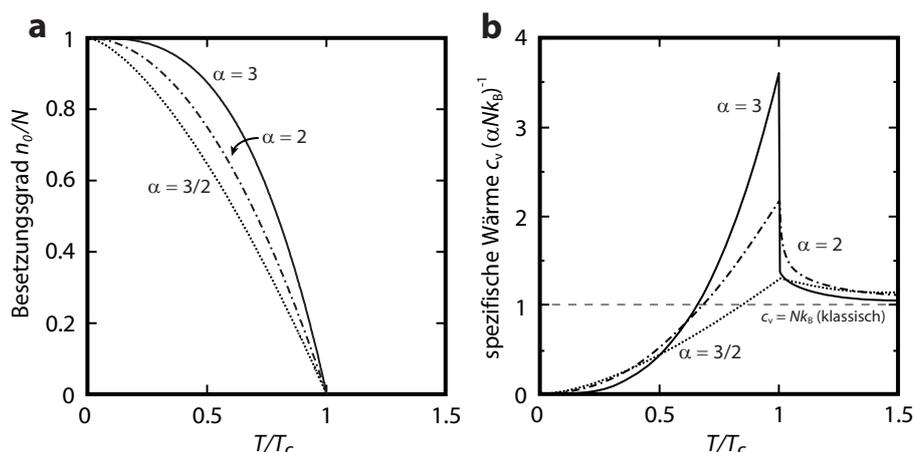
$$\mu_A(T, x) = \mu_B(T, x) \quad (\text{Phasengleichgewicht}) \quad (1.35)$$

Die Wertepaare der äußeren Parameter  $T$  und  $x$ , für die Gl. (1.35) erfüllt ist, formen die Grenzlinie des Phasenübergangs des entsprechenden Phasendiagramms. Da sich die Struktur der Phasen im Allgemeinen unterscheidet, sind auch  $\mu_A(T, x)$  und  $\mu_B(T, x)$  verschiedene Funktionen. Daraus folgt, dass die  $n$ -te Ableitung am Punkt des Phasenübergangs eine Unstetigkeit aufweisen kann:

$$\left. \frac{\partial^n \mu}{\partial T^n} \right|_{T_c^+} \neq \left. \frac{\partial^n \mu}{\partial T^n} \right|_{T_c^-} \quad (1.36)$$

Hierbei bezeichnet  $T_c^\pm$  eine Temperatur unmittelbar oberhalb bzw. unterhalb der kritischen Temperatur des Phasenüberganges. Eine mögliche Klassifizierung von Phasenübergängen erfolgt anhand der auftretenden Unstetigkeiten: Tritt sie erstmals in der  $n$ -ten Ableitung des chemischen Potentials auf, handelt es sich um einen Phasenübergang  $n$ -ter Ordnung (Einteilung nach Ehrenfest [47]).

Abbildung 1.1(a) zeigt den Verlauf des chemischen Potentials, der daraus abgeleiteten Entropie  $S = -(\partial\mu/\partial T)_p$  und der spezifischen Wärmekapazität  $c_p = T/N(\partial S/\partial T)_p$  für einen typischen Phasenübergang erster Ordnung. Das sprunghafte Verhalten der Entropie impliziert eine Umwandlungsenthalpie. Dem System wird Wärme zugeführt, welche sich nicht in einer Temperaturerhöhung niederschlägt; ein Phänomen, welches sich etwa beim Schmelzen und Sieden von Wasser beobachten lässt. Ein Phasenübergang zweiter Ordnung ist exemplarisch in Abb. 1.1(b) dargestellt. In diesem Fall zeigt sich die Unstetigkeit am Phasenübergang erst in der spezifischen Wärmekapazität. Die Klassifizierung der Phasenübergänge erfolgt heutzutage in der Regel über die Betrachtung des Verhaltens von sogenannten Ordnungsparametern  $\Psi$ , in diesem Fall der spezifischen Wärme. Ein Übergang erster (zweiter) Ordnung



**Abbildung 1.2:** Verlauf der Ordnungsparameter (a) Besetzungsgrad  $n_0/N$  und (b) spezifische Wärme  $c_v$  in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur  $T/T_c$  für verschiedene, durch Dimensionalität und Fallenpotential gegebene Systemparameter  $\alpha$ . Im klassischen Bereich hoher Temperaturen ist der Besetzungsgrad  $n_0/N = 0$  und die spezifische Wärme nähert sich der Erwartung  $c_v = \alpha N k_B$  nach dem Äquipartitionstheorem.

liegt vor, wenn sich der Ordnungsparameter unstetig (stetig) verhält:

$$\bar{\Psi} = \begin{cases} \text{unstetig} & \rightarrow \text{Übergang 1. Ordnung} \\ \text{stetig} & \rightarrow \text{Übergang 2. Ordnung} \end{cases} \quad (1.37)$$

### 1.2.1 Ordnungsparameter der Bose-Einstein-Kondensation

Messungen zur Kalorimetrie von atomaren Bose-Einstein-Kondensaten in dreidimensionalen Fallenpotentialen zeigen ein kontinuierliches Verhalten der Ordnungsparameter beim Phasenübergang und signalisieren somit definitionsgemäß einen Übergang zweiter Ordnung [48–50]. Obgleich dieses Verhalten für alle Ordnungsparameter gilt, werden im Folgenden zunächst lediglich die drei thermodynamischen Ordnungsparameter Kondensatanteil  $\bar{n}_0/\bar{N}$ , spezifische Wärmekapazität  $c$  und Entropie  $S$  betrachtet.

#### Kondensatanteil

Unterhalb der kritischen Temperatur  $T_c$  ( $\rightarrow \mu = 0$ ) ist die Anzahl der Teilchen in angeregten Zuständen  $\bar{N}_+(T)$  gegeben durch Gl. (1.20), wobei die für die Kondensation notwendige Bedingung  $\alpha > 1$  als erfüllt angenommen werden soll.  $\bar{N}_+$  ist dabei unabhängig von der Gesamtzahl  $N$  der Teilchen im System und lässt sich über den in Gl. (1.22) gefundenen Ausdruck für  $T_c$  schreiben als:

$$\bar{N}_+(T) = \bar{N} \left( \frac{T}{T_c} \right)^\alpha \quad (1.38)$$

Mit  $\bar{n}_0(T) = \bar{N} - \bar{N}_+(T)$  nach Gl. (1.21) lässt sich dieses weiter umformen zu:

$$\frac{\bar{n}_0}{\bar{N}} = 1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^\alpha \quad (1.39)$$

Dieser Ausdruck für den Kondensatanteil ist nur gültig, wenn  $T < T_c$  erfüllt ist, sich das System also in der kondensierten Phase befindet. Im klassischen Bereich  $T > T_c$  gilt im thermodynamischen Limes  $\lim_{\bar{N} \rightarrow \infty} \bar{n}_0/\bar{N} = 0$ . Gleichung (1.39) ist eine weitere Veranschaulichung dafür, dass der Phasenübergang nicht zwangsläufig durch eine Änderung der Temperatur als äußerer Parameter erfolgen muss. Bei konstanter Temperatur  $T = \text{konst.}$  führt eine Erhöhung der Gesamtteilchenzahl zu einem Anstieg der kritischen Temperatur  $T_c$ . Werden dem System genügend Teilchen zugefügt, übersteigt die kritische Temperatur schließlich die tatsächliche Temperatur und das System kondensiert<sup>2</sup>. Unabhängig von der Wahl des äußeren Kontrollparameters in der tatsächlichen Realisierung des Quantensystems bietet es sich an, die reduzierte Temperatur  $T/T_c$  als variierende Größe zu nutzen. Abbildung 1.2(a) zeigt den Kondensatanteil als Funktion der reduzierten Temperatur in Abhängigkeit von der Systemgröße  $\alpha$ .

### Wärmekapazität und Entropie

Die Energie des Grundzustands wurde in der bisherigen Betrachtung der Bose-Einstein-Kondensation als  $\epsilon_0 = 0$  gesetzt. Demzufolge tragen lediglich die angeregten Zustände zur Energie des Gesamtsystems bei, welche sich in der kondensierten Phase  $T/T_c < 1$  ( $\mu \rightarrow 0$ ) mit den Gln. (1.4) und (1.16)-(1.20) als Integral schreiben lässt:

$$E = C_\alpha \int_0^\infty d\epsilon \frac{\epsilon}{e^{\epsilon/k_B T} - 1} = C_\alpha \Gamma(\alpha + 1) \zeta(\alpha + 1) (k_B T)^{\alpha+1} \quad (1.40)$$

In einem System mit konstantem Volumen lassen sich daraus nach Gl. (1.33) die Wärmekapazität  $C_V = \partial E / \partial T$  und die Entropie bestimmen:

$$C = (\alpha + 1) \frac{E}{T} \quad (1.41)$$

$$S = \frac{C}{\alpha} = \frac{\alpha + 1}{\alpha} \frac{E}{T} \quad (1.42)$$

Da nur Teilchen in angeregten Zuständen zur Energie beitragen, lässt sich Gl. (1.40) über die kritische Temperatur und die Gesamtteilchenzahl ausdrücken (vgl. Gl. 1.22). Mit der Relation  $\Gamma(\alpha + 1) = \alpha \Gamma(\alpha)$  lassen sich Energie, Wärmekapazität und Entropie aus den Gln. (1.41) und (1.42) schreiben als:

$$E = \alpha \frac{\zeta(\alpha + 1)}{\zeta(\alpha)} N k_B \frac{T^{\alpha+1}}{T_c^\alpha} \quad (T \leq T_c) \quad (1.43)$$

$$C = \alpha(\alpha + 1) \frac{\zeta(\alpha + 1)}{\zeta(\alpha)} N k_B \left(\frac{T}{T_c}\right)^\alpha \quad (T \leq T_c) \quad (1.44)$$

$$S = (\alpha + 1) \frac{\zeta(\alpha + 1)}{\zeta(\alpha)} N k_B \left(\frac{T}{T_c}\right)^\alpha \quad (T \leq T_c) \quad (1.45)$$

---

<sup>2</sup> Bose-Einstein-Kondensate in atomaren Systemen bei Raumtemperatur sind dennoch nicht möglich, da die benötigten hohen Teilchendichten die eines Festkörpers deutlich übersteigen würden.

Im Bereich hoher Temperaturen ist zu erwarten, dass die Energiezustände entsprechend der Boltzmann-Statistik besetzt sind. Nach partieller Integration von  $E = C_\alpha \int_0^\infty d\epsilon \epsilon^\alpha e^{\mu-\epsilon/k_B T}$  erhält man für die Gesamtenergie und die Wärmekapazität im klassischen Fall:

$$E = \alpha N k_B T \quad C = \alpha N k_B \quad (T \gg T_c) \quad (1.46)$$

Vergleicht man dieses Ergebnis mit den Erwartungen nach dem Äquipartitionstheorem in Gl. (1.26) ist die direkte Verknüpfung des Systemparameters  $\alpha$  mit den Freiheitsgraden des Systems  $f = 2\alpha$  offensichtlich.

Für den Bereich knapp oberhalb von  $T_c$  lässt sich im Allgemeinen kein exakt analytisches Verhalten der thermodynamischen Ordnungsparameter angeben. Der allgemeine Ausdruck für die Gesamtzahl der Teilchen nach Gl. (1.18) lässt sich aber unter der Annahme, dass die mittleren Besetzungszahlen klein sind, mit  $(e^x - 1)^{-1} \simeq e^{-x} + e^{-2x}$  entwickeln und näherungsweise angeben als:

$$N \simeq C_\alpha \int_0^\infty d\epsilon \epsilon^{\alpha-1} \left[ e^{(\mu-\epsilon)/k_B T} + e^{2(\mu-\epsilon)/k_B T} \right] \quad (1.47)$$

$$\rightarrow E \simeq C_\alpha \int_0^\infty d\epsilon \epsilon^\alpha \left[ e^{(\mu-\epsilon)/k_B T} + e^{2(\mu-\epsilon)/k_B T} \right] \quad (1.48)$$

Nach Auflösen von Gl. (1.47) nach  $e^{\mu/k_B T}$  und anschließender Elimination von  $\mu$  lässt sich Gl. (1.48) umschreiben in eine Funktion von  $T_c$ :

$$\frac{E}{\alpha N k_B T} \simeq 1 - \frac{\zeta(\alpha)}{2^{\alpha+1}} \left( \frac{T_c}{T} \right)^\alpha \quad (1.49)$$

Die Wärmekapazität knapp oberhalb der kritischen Temperatur ergibt sich somit zu:

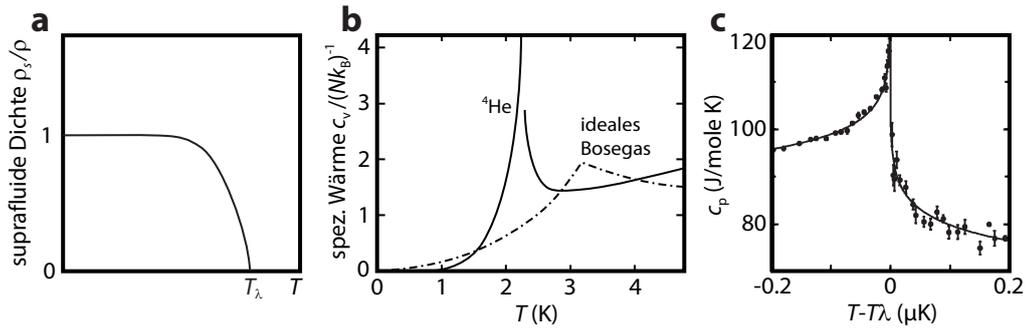
$$C \simeq \alpha N k_B \left[ 1 + (\alpha + 1) \frac{\zeta(\alpha)}{2^{\alpha+1}} \left( \frac{T_c}{T} \right)^\alpha \right] \quad (1.50)$$

Abbildung 1.2(b) zeigt das Verhalten der spezifischen Wärme am Phasenübergang für verschiedene Systemparameter  $\alpha$ . Für  $\alpha > 2$  zeigt sich ein sprunghafter Anstieg beim Phasenübergang, welcher durch die in Gl. (1.47) genutzte Näherung für kleine Besetzungszahlen bei Vergleichen der Gln. (1.50) und (1.44) für  $T = T_c$  nicht exakt wiedergegeben wird. Unter Ausnutzung der Relationen  $\Delta C = C(T_c^+) - C(T_c^-) = \alpha N \left. \frac{\partial \mu}{\partial T} \right|_{T=T_c^+}$  und  $\left( \frac{\partial \mu}{\partial T} \right)_N = - \left( \frac{\partial N}{\partial T} \right)_\mu \left( \frac{\partial N}{\partial \mu} \right)_T^{-1}$  findet man für die Diskontinuität:

$$\Delta C = -\alpha^2 \frac{\zeta(\alpha)}{\zeta(\alpha-1)} N k_B \quad (\alpha > 2) \quad (1.51)$$

### 1.2.2 Tieftemperaturverhalten von flüssigem $^4\text{He}$

Schon lange vor der ersten Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats in dünnen atomaren Gasen konnten die in den vorangegangenen Abschnitten beschriebenen Konzepte der bosonischen Quantengase experimentell am Tieftemperaturverhalten von Helium überprüft werden. Obwohl Helium unter Normaldruck auch für  $T \rightarrow 0$  flüssig bleibt, zeigt  $^4\text{He}$  in seiner flüssigen Phase (Siedepunkt bei 4,2 K) einen weiteren Phasenübergang bei einer Temperatur von  $T_\lambda = 2,177$  K. Helium II ( $T < T_\lambda$ ) zeigt gegenüber



**Abbildung 1.3:** Tieftemperaturverhalten von flüssigem  $^4\text{He}$ . (a) Die relative suprafluide Dichte  $\rho_s/\rho$  zeigt unterhalb der kritischen Temperatur  $T_\lambda$  einen kontinuierlichen Anstieg, vergleichbar mit dem Anstieg des Kondensatanteils eines idealen Bosegas. (b) Die spezifische Wärme zeigt ebenfalls eine qualitative Ähnlichkeit zum idealen Bosegas, weicht aber quantitativ aufgrund der vorhandenen starken Wechselwirkungen ab. (c) Der infolge seines charakteristischen Aussehens  $\lambda$ -Übergang genannte Phasenübergang von He I zu He II gehört zu den kalorisch am präzisesten vermessenen Übergängen in Quantensystemen (aus [37]).

He I ( $T > T_\lambda$ ) die Eigenschaft der Suprafluidität, einen Fluss ohne messbare Viskosität auch entlang senkrechter Wände (Onnes-Effekt) [36, 51]. Namensstiftend für den  $\lambda$ -Übergang ist der Verlauf der spezifischen Wärme bei  $T = T_\lambda$ , welcher an den griechischen Buchstaben  $\lambda$  erinnert (Abb. 1.3(c)).

Obwohl die Wechselwirkungen zwischen He-Atomen in der flüssigen Phase vergleichsweise stark sind, lässt sich der  $\lambda$ -Übergang im Sinne einer Bose-Einstein-Kondensation verstehen [52, 53]. Grundlegend für quantenmechanische „Supereigenschaften“, wie Supraleitung und Suprafluidität, ist die makroskopische Besetzung einer Einteilchenwellenfunktion, ein Zustand der nur von Bosonen erreicht werden kann. Die He II Phase tritt daher zunächst auch nur für das bosonische  $^4\text{He}$  und nicht für das fermionische  $^3\text{He}$  Isotop auf<sup>3</sup>. Analog zur Verteilung der Teilchen auf Grund- und angeregte Zustände im idealen Bosegas lässt sich He II durch ein Zweiflüssigkeitsmodell beschreiben, also der Aufteilung in einen suprafluiden und einen normalen Anteil ohne jegliche räumliche Trennung, mit dem Verhältnis der jeweiligen Dichten  $\rho_s/\rho$  als Analogon zum Besetzungsgrad  $\bar{n}_0/\bar{N}$  bei der Bose-Einstein-Kondensation.

Das qualitative Verhalten ist dem des idealen (d.h. wechselwirkungsfreien) Bosegas ähnlich, quantitativ aber aufgrund der Wechselwirkungen sowohl beim Phasenübergang als auch bei tiefen Temperaturen verschieden. Unterhalb des  $\lambda$ -Punkts steigt der Anteil der suprafluiden Dichte kontinuierlich an (Abb. 1.3(a)). Verglichen mit dem Verlauf des Besetzungsgrades des idealen Bosegas (Abb. 1.2) zeigt sich jedoch eine abweichende Temperaturskalierung. Für  $T \rightarrow 0$  befinden sich lediglich 8 % der He-Atome im Grundzustand. Abbildung 1.3(b) vergleicht die spezifische Wärmekapazität von He II mit den Erwartungen für ein ideales Bosegas entsprechend Abschnitt 1.2.1. Die Temperatur des Phasenübergangs weicht von der für  $m = m_{\text{He}}$  erwarteten Übergangstemperatur von  $\approx 3,1\text{ K}$  ab. Auch das beobachtete Auftreten einer Singularität (Abb. 1.3(c)) ist für den hier vorliegenden Fall mit  $\alpha = 3/2$  nicht mit der Theorie des idealen Bosegas zu erklären.

<sup>3</sup> Im Falle von  $^3\text{He}$  sei angemerkt, dass auch das fermionische Helium-Isotop bei deutlich niedrigeren Temperaturen ( $\approx 2,7 \cdot 10^{-3}\text{ K}$ ) suprafluide Eigenschaften aufweist. Dieses Verhalten lässt sich als Kopplung von zwei  $^3\text{He}$ -Atomen zu einem bosonischen Quasi-Teilchen interpretieren, ähnlich der Bildung von Cooper-Paaren bei der Supraleitung.

### 1.3 Korrelationen und Kohärenz

Aus dem Verhalten der thermodynamischen Ordnungsparameter eines Quantensystems bei Bose-Einstein-Kondensation lässt sich noch keine direkte Aussage über die eingangs diskutierte langreichweitige Ordnung treffen. Mit der makroskopischen Besetzung des Grundzustandes ist nach dem Penrose-Onsager-Kriterium für  $\lim_{\bar{N} \rightarrow \infty} \bar{n}_0/\bar{N} > 0$  jedoch bereits eine hinreichende Bedingung für das Auftreten einer langreichweitigen Ordnung erfüllt [53]. Der ansteigende Grad an Ordnung ist nicht nur in der sinkenden Entropie des Systems sichtbar, sondern auch in einer Zunahme von Korrelationen zwischen den Teilchen. Korrelationen haben den Vorteil, dass sie sich auch experimentell gut erfassen lassen. In Strahlungsfeldern lassen sie sich in Experimenten zur optischen Kohärenz eindrucksvoll demonstrieren, etwa mit Hilfe des Young'schen Doppelspaltexperiments, aber auch in photonischen Kondensaten [21, 27, 33, 54–56]. Andersartige Interferenzexperimente konnten ebenfalls genutzt werden, um Korrelationen in atomaren Bose-Einstein-Kondensaten nachzuweisen und zu quantifizieren [57–60]. Das ideale Bosegas lässt sich in seinen Korrelationseigenschaften analog zur optischen Kohärenz erfassen, womit sich eine Beschreibung der physikalischen Eigenschaften, also der Eigenwerte der Feldoperatoren, über Korrelationsfunktionen anbietet [61, 62].

Die Betrachtung des Bosegases erfolgt als quantisiertes Feld  $\hat{\Psi}(\vec{r}, t)$ , welches die Kommutatorrelationen  $[\hat{\Psi}(\vec{r}, t), \hat{\Psi}^\dagger(\vec{r}', t)] = \delta(\vec{r}, \vec{r}')$  und  $[\hat{\Psi}(\vec{r}, t), \hat{\Psi}(\vec{r}, t)] = 0$  für gleiche Zeiten  $t$  befolgt. Die Korrelationsfunktionen  $n$ -ten Grades lauten dann:

$$\langle \hat{\Psi}^\dagger(\vec{r}_1, t_1) \dots \hat{\Psi}^\dagger(\vec{r}_n, t_n) \hat{\Psi}(\vec{r}'_n, t_n) \dots \hat{\Psi}(\vec{r}'_1, t_1) \rangle \quad (1.52)$$

Für die weitere Betrachtung werden zeitliche und räumliche Koordinaten in  $r \equiv (\vec{r}, t)$  vereint. Für die Korrelationsfunktion erster und zweiter Ordnung erhält man nach Gl. (1.52):

$$G^{(1)}(r, r') = \langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}(r') \rangle \quad (1.53)$$

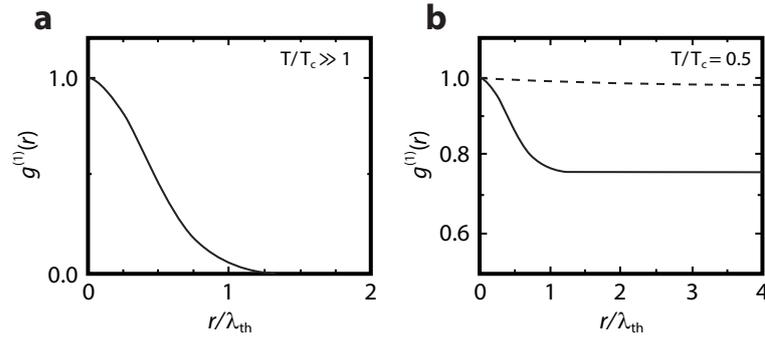
$$G^{(2)}(r, r') = \langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}^\dagger(r') \hat{\Psi}(r') \hat{\Psi}(r) \rangle \quad (1.54)$$

Die Korrelationsfunktion erster Ordnung aus Gl. (1.53) beschreibt die Phasenkorrelation des Feldes zwischen zwei Koordinaten  $r$  und  $r'$  und beschreibt somit den messbaren Kontrast eines Interferenzexperiments. Für ein Quantensystem lässt sich die Korrelationsfunktion erster Ordnung auch als die Fouriertransformierte der Wignerfunktion, dem quantenmechanischen Analogon zur klassischen Phasenraumverteilung, formulieren:

$$G^{(1)}(r, r') = \int dp e^{-ip(r-r')/\hbar} W\left(p, \frac{r+r'}{2}\right), \quad \text{mit} \quad (1.55)$$

$$W(p, q) = \frac{1}{(2\pi\hbar)^3} \int dr e^{-ipr/\hbar} \left\langle \hat{\Psi}^\dagger\left(q - \frac{r}{2}\right) \hat{\Psi}\left(q + \frac{r}{2}\right) \right\rangle \quad (1.56)$$

Die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung aus Gl. (1.54) gibt die Wahrscheinlichkeit an, jeweils ein Teilchen bei den Koordinaten  $r$  und  $r'$  zu finden. Sie ist also ein Maß dafür, wie verteilt oder gehäuft die Teilchen in einem System auftreten. Zur quantitativen Betrachtung von Kohärenz bietet es sich an, die Korrelationsfunktionen in ihrer normierten Form zu nutzen. Der Kohärenzgrad erster und zweiter



**Abbildung 1.4:** Erwarteter Kohärenzgrad erster Ordnung eines harmonisch gefangenen idealen Bose-gases in Abhängigkeit der räumlichen Separation zweier Teilchen  $r \equiv |\vec{r} - \vec{r}'|$ , volumenintegriert über alle Punkte des Systems [62]. (a) Im klassischen Bereich  $T \gg T_c$  ist die Kohärenzlänge durch die thermische de Broglie Wellenlänge  $\lambda_{\text{th}}$  vorgegeben. (b) In der kondensierten Phase  $T \leq T_c$  weist die Kohärenz langreichweitige Ordnung auf, charakterisiert durch  $g^1(r > \lambda_{\text{th}}) > 0$  (durchgezogene Linie). Der nicht-integrierte Kohärenzgrad im Zentrum der Falle ( $\vec{r} = 0$ , gestrichelte Linie) veranschaulicht die perfekte Kohärenz des Grundzustands.

Ordnung ist definiert als:

$$g^{(1)}(r, r') = \frac{G^{(1)}(r, r')}{[G^{(1)}(r, r) G^{(1)}(r', r')]^{1/2}} \quad (1.57)$$

$$g^{(2)}(r, r') = \frac{G^{(2)}(r, r')}{G^{(1)}(r, r) G^{(1)}(r', r')} \quad (1.58)$$

Die Kohärenzgrade charakterisieren also die lokalen Fluktuationen der (im Allgemeinen komplexen) Feldamplitude (erste Ordnung;  $g^{(1)}$ ) bzw. der Teilchenzahl (zweite Ordnung;  $g^{(2)}$ ).

In Kapitel 4 der vorliegenden Arbeit werden die räumlichen und zeitlichen Phasenkorrelationen eines thermalisierten Photonengases untersucht. Auf eine detailliertere Ausarbeitung der Korrelationen zweiter (und höherer) Ordnungen wird daher an dieser Stelle verzichtet. Eine ausgiebige Diskussion der Teilchenzahlfluktuationen eines Bose-Einstein-Kondensats aus Photonen im kanonischen und großkanonischen Ensemble findet sich in früheren Arbeiten [29–31, 33, 34].

### 1.3.1 Phasenkorrelationen eines atomaren Bose-gases

Zur Veranschaulichung der Korrelationen erster Ordnung in einem Bosegas bietet es sich an, die Phasenkohärenz eines atomaren Gases in einem externen harmonischen Fallenpotential exemplarisch zu behandeln. Wie schon in der thermodynamischen Untersuchung des Phasenübergangs ist auch hier eine getrennte Betrachtung des klassischen Bereichs und der kondensierten Phase hilfreich. Abbildung 1.4 zeigt das qualitative Verhalten der räumlichen Kohärenz in beiden Bereichen [62].

Im klassischen Bereich hoher Temperaturen ( $T/T_c \gg 1$ ) sind alle Einteilchenzustände der Quantenzahl  $i$  unabhängig voneinander besetzt. Die Korrelationsfunktion erster Ordnung ergibt sich mit den zugehörigen

Eigenzuständen  $u_i(r)$  zu:

$$G_{\text{th}}^{(1)}(r, r') \stackrel{(1.53)}{=} \langle \hat{\Psi}^\dagger(r) \hat{\Psi}(r') \rangle = \sum_i u_i^*(r) u_i(r') \langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \rangle \quad (1.59)$$

Der mittlere Besetzungsgrad  $\bar{n}_i$  jedes Zustands entspricht gerade dem Erwartungswert  $\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \rangle$ , mit den Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperatoren  $\hat{a}_i^\dagger$  und  $\hat{a}_i$ . Für das angenommene harmonische Fallenpotential und eine Besetzung der Energieniveaus entsprechend der Boltzmann-Verteilung gilt für den räumlichen Kohärenzgrad erster Ordnung:

$$g_{\text{th}}^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}') = e^{-\pi(\vec{r}-\vec{r}')^2/\lambda_{\text{th}}^2} \quad (1.60)$$

Die Phasenkorrelationen zerfallen im Bereich hoher Temperaturen demnach auf einer räumlichen Skala, die durch die thermische Wellenlänge  $\lambda_{\text{th}}$  nach Gl. (1.1) vorgegeben ist (vgl. Abb. 1.4). Für die Grenzwerte des Kohärenzgrades gilt nach Gl. (1.60):

$$g_{\text{th}}^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}) = 1 \quad \text{und} \quad \lim_{|\vec{r}-\vec{r}'| \rightarrow \infty} g_{\text{th}}^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}') = 0 \quad (1.61)$$

Die Überlegungen zur Phasenkorrelation für hohe Temperaturen haben auch im kondensierten Bereich  $T \leq T_c$  Bestand. Die makroskopische Besetzung des Grundzustands des Systems, und die daraus resultierende langreichweitige Kohärenz des Kondensats, modifiziert jedoch die Korrelationsfunktionen des Gesamtsystems. Ähnlich wie in der Betrachtung der Gesamtteilchenzahl in Gl. (1.21) setzt sich die Korrelationsfunktion erster Ordnung aus Beiträgen der angeregten Zustände  $G_{\text{th}}^{(1)}$  nach Gl. (1.59) und des Grundzustands (Wellenfunktion  $\psi_0(r)$ ) zusammen:

$$G^{(1)}(r, r') = \psi_0^*(r) \psi_0(r') + G_{\text{th}}^{(1)}(r, r') \quad (1.62)$$

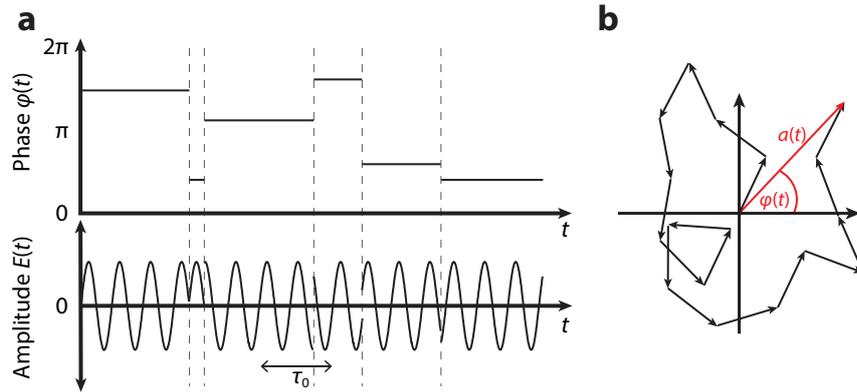
Die Grenzwerte des Kohärenzgrades erster Ordnung im kondensierten Bereich unterscheiden sich damit von denen für das nicht-kondensierte Gas in Gl. (1.61) durch eine räumlich langreichweitige Ordnung:

$$g^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}) = 1 \quad \text{und} \quad \lim_{\Delta\vec{r} \rightarrow \infty} g^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}') = \frac{\psi_0^*(\vec{r}) \psi_0(\vec{r}')}{\sqrt{G^{(1)}(\vec{r}, \vec{r})} \sqrt{G^{(1)}(\vec{r}', \vec{r}')}} \quad (1.63)$$

Im kondensierten Bereich übersteigt die Kohärenzlänge die thermische de Broglie Wellenlänge  $\lambda_{\text{th}}$ . In einem homogenen System erstreckt sie sich über das gesamte System, in Anwesenheit eines Fallenpotentials ist sie durch den Kondensatanteil vorgegeben, siehe Abb. 1.4(b). Die Kohärenzlänge  $l_c$  ist somit ein geeigneter Ordnungsparameter zur Beschreibung der Bose-Einstein-Kondensation, und damit auch für die Thermodynamik eines idealen Bosegas.

### 1.3.2 Optische Korrelationen und Kohärenz

Das im vorigen Abschnitt am Beispiel atomarer Felder erarbeitete Konzept zur Charakterisierung von Ordnung in Quantensystemen lässt sich auch auf optische Felder übertragen. Im Falle hoher Temperaturen  $T \gg T_c$ , in dem die Quanteneigenschaften eines betrachteten Ensembles aus Emittlern keinen Einfluss auf die Korrelationen haben, spricht man für gewöhnlich von thermischen bzw. chaotischen Lichtquellen. Die Emission des in der vorliegenden Arbeit behandelten Photonengases im thermischen Gleichgewichtszustand verhält sich für  $T/T_c \gg 1$  in vielen Aspekten identisch zu einem solchen



**Abbildung 1.5:** (a) Amplitude  $E(t)$  und Phase  $\varphi(t)$  des elektrischen Feldes eines von einem Atom emittierten Wellenzuges. Die vertikalen Linien symbolisieren Kollisionen mit anderen Atomen des Ensembles, welche Phasensprünge zufälliger Stärke mit einer mittleren Rate von  $1/\tau_0$  induzieren. (b) Das Argand-Diagramm zeigt Amplitude und Phase des resultierenden Gesamtfeldstärke-Vektors (rot) eines *random walk* von Einheitsvektoren mit zufälliger Phasenlage, welche jeweils für die Emission ausgehend von einem Atom des Ensembles stehen [63].

klassischen Lichtfeld<sup>4</sup>. An dieser Stelle bietet es sich daher an, die klassische Theorie optischer Felder und ihrer Detektion mittels Interferenzexperimenten aufzugreifen [61, 63].

Wir betrachten dazu ein atomares Ensemble aus  $N$  Teilchen, in dem jedes Atom kontinuierlich Licht einer festen Frequenz  $\omega_0$  emittiert. Der Einfluss der endlichen Lebensdauer und Dopplerverbreiterung sind also zunächst zu vernachlässigen. Jedes Atom kollidiert nach einer mittleren Zeit  $\tau_0$  mit einem weiteren Atom des Ensembles, wodurch die Emission kurzfristig unterbrochen wird und anschließend mit einer neuen, zufällig gewählten Phase neu startet. Abbildung 1.5(a) zeigt beispielhaft einen entsprechenden Wellenzug und die zugehörige Phase  $\varphi(t)$  eines einzelnen Emitters. Summiert man nun über die Felder jedes einzelnen Emitters  $E_k(t) = E_0 \exp[-i\omega_0 t + i\varphi_k(t)]$  mit konstanter Feldstärke  $E_0$ , aber individueller Phase  $\varphi_i(t)$ , erhält man das resultierende Gesamtfeld des Ensembles:

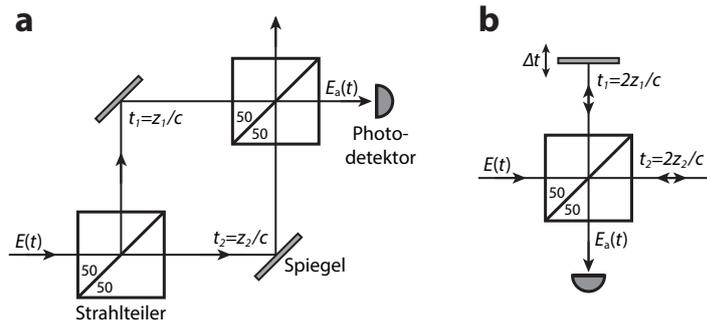
$$E(t) = \sum_{k=0}^N E_k(t) = E_0 e^{-i\omega_0 t} \sum_{k=0}^N e^{i\varphi_k(t)} = E_0 e^{-i\omega_0 t} a(t) e^{i\varphi(t)} \quad (1.64)$$

Die Summe über die zufällig verteilten Phasen einzelner Emitters lässt sich zu einem Gesamtphasor  $a(t) \exp[i\varphi(t)]$  zusammenfassen, welcher eine Zufallsbewegung (engl. *random walk*) in der komplexen Ebene ausführt (siehe Abb. 1.5(b)). Da die Amplitude  $a(t)$  zufällig moduliert ist, gilt dieses Verhalten auch für den Zeitverlauf der gemessenen Intensität:

$$I(t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 c |E(t)|^2 = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E_0^2 a(t)^2 \quad (1.65)$$

Die Kohärenzzeit  $\tau_c$  ist in einem solchen System über die inverse Stoßrate  $\tau_0$  (mittlerer zeitlicher Abstand der Phasensprünge) definiert. Für die longitudinale Kohärenzlänge gilt hier  $\lambda_c = c\tau_c$ .

<sup>4</sup> Diesem Umstand ist es u.a. geschuldet, dass im Kontext des nicht-kondensierten Photonengases das System auch als „klassisch“ oder „thermisch“ bezeichnet wird.



**Abbildung 1.6:** Schematische Darstellungen des (a) Mach-Zehnder- und (b) Michelson-Interferometers. Das eingestrahelte Lichtfeld  $E(t)$  verzweigt sich am Strahlteilerwürfel polarisationsunabhängig in zwei Teilstrahlen gleicher Amplitude. Beide Teilstrahlen werden beim Durchlaufen des zweiten Strahlteilers, bzw. beim erneuten Durchlaufen des ersten Strahlteilers im Falle des Michelson-Aufbaus, recombiniert und deren Intensität bei Superposition detektiert. Der resultierende Interferenzkontrast bei Variation der Laufzeitverzögerung  $\tau = t_2 - t_1$  der Teilstrahlen gibt Aufschluss über die longitudinale Kohärenzlänge (Kohärenzzeit).

### Interferometrische Messmethode

Der Kohärenzgrad erster Ordnung von Licht lässt sich durch interferometrische Messmethoden quantitativ erfassen. Unabhängig von der tatsächlich gewählten Versuchsanordnung wird dabei immer das zu analysierende Lichtfeld mit sich selbst (homodyn) oder mit einem externen Feld (heterodyn) auf einem Photodetektor überlagert und das resultierende Interferenzmuster räumlich und zeitlich analysiert [4, 63]. Abbildung 1.6 zeigt zwei der gebräuchlichsten Konfigurationen zur Aufteilung und anschließenden Rekombination mittels Strahlteilerwürfeln. Sowohl Mach-Zehnder- als auch Michelson-Interferometer können genutzt werden, um den Kohärenzgrad des Photonengases zu vermessen. Letzterer Typus bietet einen einfacheren experimentellen Zugang zu variablen Weglängendifferenzen zwischen den Teilpfaden und eignet sich daher besonders zur Vermessung der zeitlichen Kohärenz. Beide Typen sind jedoch in ihrer theoretischen Betrachtung identisch.

Am Ausgang der Interferometer gilt für die Superposition der beiden Teilstrahlen bei Verwendung von Strahlteilern mit einem 50:50 Teilungsverhältnis der Intensität:

$$E_a(t) = \frac{1}{2} |E(t_1) + E(t_2)| \quad (1.66)$$

Hierbei sind die betrachteten Zeiten  $t_{1,2} = t - (z_{1,2}/c)$  über die Weglängendifferenz  $\Delta z = z_2 - z_1$  bzw. die Zeitdifferenz  $\tau = t_2 - t_1$  miteinander verknüpft. Nach Gl. (1.65) erhält man unter der Annahme, dass die Messperiode  $T$  des Detektors deutlich größer ist als die Kohärenzzeit  $T \gg \tau_c$ , für die gemessene mittlere Intensität:

$$\langle I_a(t) \rangle = \frac{1}{2} \epsilon_0 c \langle |E_a(t)|^2 \rangle = \frac{1}{8} \epsilon_0 c \left[ \langle |E(t_1)|^2 \rangle + \langle |E(t_2)|^2 \rangle + 2 \operatorname{Re} \langle E^*(t_1) E(t_2) \rangle \right] \quad (1.67)$$

Die ersten beiden Terme in Gl. (1.67) repräsentieren die mittlere Intensität der beiden Teilstrahlen im isolierten Zustand, also bei Abwesenheit des jeweils anderen Strahls. Die beobachtbaren Interferenzeffekte sind Folge des dritten Terms, welcher die Korrelationsfunktion erster Ordnung aus Gl. (1.53) für das Feld

zu den Zeiten  $t_1 \equiv t$  und  $t + \tau$  enthält:

$$\langle E^*(t)E(t + \tau) \rangle = \frac{1}{T} \int_T dt E^*(t)E(t + \tau) \quad (1.68)$$

Die Ausgangsintensität des Interferometers nach Gl. (1.67) lässt sich also in Abhängigkeit des Kohärenzgrades  $g^{(1)}(\tau)$  in Gl. (1.57) ausdrücken durch:

$$\langle I_a(t) \rangle = \frac{1}{2} \langle I(t) \rangle \left[ 1 + \text{Re} \left( g^{(1)}(\tau) \right) \right] \quad \text{mit} \quad \langle I(t) \rangle = \frac{1}{2} \epsilon_0 c \langle |E(t)|^2 \rangle \quad (1.69)$$

### Kohärenzgrad thermischer Lichtquellen

Der funktionale Verlauf des Kohärenzgrades erster Ordnung einer thermischen Lichtquelle ist in erster Linie bestimmt durch die Art der auftretenden Dekohärenzmechanismen. Für die in den letzten Abschnitten beispielhaft herangezogene stoßverbreiterte Lichtquelle lässt sich etwa annehmen, dass zwei unterschiedliche Emittoren im zeitlichen Mittel vollkommen unabhängig voneinander mit anderen Atomen des Ensembles kollidieren. Die Korrelationsfunktion erster Ordnung des Gesamtsystems enthält daher lediglich Korrelationen identischer Emittoren zu unterschiedlichen Zeiten und lässt sich mit Gl. (1.64) schreiben als:

$$\langle E^*(t)E(t + \tau) \rangle = E_0^2 e^{-i\omega_0\tau} \sum_{k=0}^N \left\langle e^{i[\varphi_k(t+\tau) - \varphi_k(t)]} \right\rangle \quad (1.70)$$

$$= N \langle E_k^*(t)E_k(t + \tau) \rangle \quad (1.71)$$

Die Korrelationsfunktion der einzelnen Emittoren ist wiederum proportional zu der Wahrscheinlichkeit, dass die Zeit zwischen zwei Kollisionen größer ist als  $\tau$ . Für ein stoßverbreitetes Gas folgt [63]:

$$\langle E_k^*(t)E_k(t + \tau) \rangle = E_0^2 e^{-i\omega_0\tau - \tau/\tau_c} \quad (1.72)$$

$$\text{bzw.} \quad g^{(1)}(\tau) = e^{-i\omega_0\tau - \tau/\tau_c} \quad (1.73)$$

Setzt man dieses Ergebnis in Gl. (1.69) ein, erhält man eine explizite Form für die Intensität am Ausgang des Interferometers:

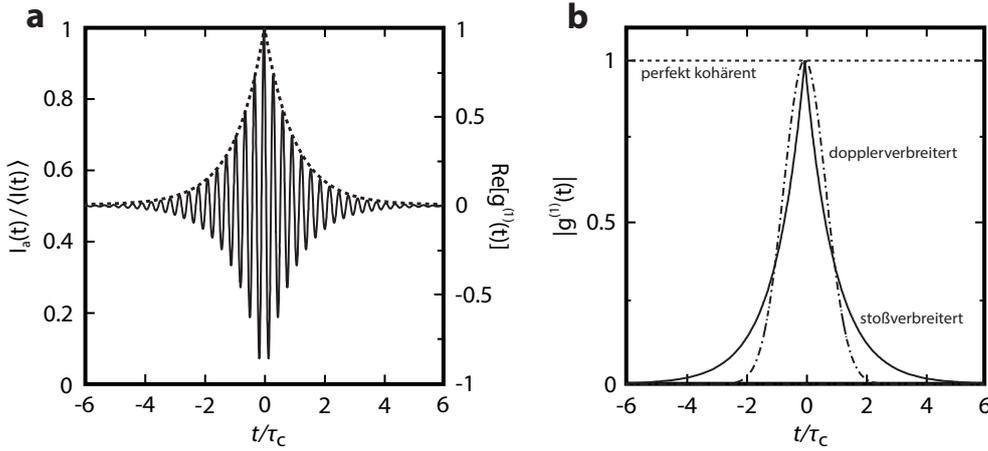
$$\langle I_a(t) \rangle = \frac{1}{2} \langle I(t) \rangle \left[ 1 + e^{-\tau/\tau_c} \cos(\omega_0\tau) \right] \quad (1.74)$$

Der zweite Term der Klammer beschreibt eine Oszillation mit abklingender Amplitude für relative zeitliche Verzögerungen  $\tau$  wie in Abb. 1.7(a) gezeigt. Die Einhüllende dieser Kurve wird als Interferenzkontrast  $K$  (engl.: *interference visibility*) bezeichnet:

$$K(\tau) = e^{-\tau/\tau_c} = \left| g^{(1)}(\tau) \right| \quad (1.75)$$

Für die quantitative Evaluierung der optischen Korrelationen wird der Interferenzkontrast aus den gemessenen (oszillierenden) Interferenzmustern extrahiert. Man ermittelt dazu lokale Maxima  $I_{\max}(\tau_1)$  und Minima  $I_{\min}(\tau_2)$  des Interferenzmusters und gibt den lokalen Interferenzkontrast an als:

$$K((\tau_1 + \tau_2)/2) = \frac{I_{\max}(\tau_1) - I_{\min}(\tau_2)}{I_{\max}(\tau_1) + I_{\min}(\tau_2)} \quad (1.76)$$



**Abbildung 1.7:** Zeitlicher Verlauf des Kohärenzgrades erster Ordnung. (a) Der als Intensität  $I_a$  am Ausgang des Interferometers messbare Realteil des Kohärenzgrades  $g^{(1)}(t)$  eines optischen Lichtfeldes mit einem Lorentz-verteilten Frequenzspektrum oszilliert gemäß Gl. (1.73) mit abfallender Amplitude. Aus den Extrema der Oszillation lässt sich der Kontrast  $K \in [0 : 1]$  als Maß für die zeitabhängige Amplitudenmodulation bestimmen (gestrichelte Linie). (b) Beispielhafter Verlauf der Amplitude des Kohärenzgrades für verschiedene Verbreiterungsmechanismen des Frequenzspektrums.

Analog zur obigen Betrachtung für ein rein stoßverbreitertes Gas lässt sich der Kohärenzgrad auch für ein System berechnen, welches durch Dopplerverbreiterung als primärer Dekohärenzprozess zu beschreiben ist. Hierbei sind die Emissionsfrequenzen im Allgemeinen zeitabhängig, die Phase eines Emitters aber konstant, wenn auch zufällig für jeden Emitters einzeln gewählt. Aus dem Gesamtfeld  $E(t) = E_0 \sum_{k=0}^N \exp(-i\omega_k t + i\varphi_k)$  und der Annahme einer Normalverteilung der dopplerverschobenen Frequenzen ergibt sich für den Kohärenzgrad erster Ordnung:

$$g^{(1)}(\tau) = e^{-\omega_0 \tau - \frac{\pi}{2} (\tau/\tau_c)^2} \quad (1.77)$$

Abbildung 1.7(b) zeigt die Verläufe der Amplitude des experimentell erfassbaren Realteils des Kohärenzgrades  $|g^{(1)}|$  exemplarisch für ein stoßverbreitertes und ein dopplerverbreitertes System nach Gln. (1.73) und (1.77). Ein perfekt kohärentes Lichtfeld (z.B. ein monochromatischer Laser) zeigt erwartungsgemäß eine konstante Amplitude. Die zeitliche Komponente des Kohärenzgrades erster Ordnung eines Lichtfeldes lässt sich auch über die spektrale Leistungsdichte  $f(\omega) = \frac{|E_T(\omega)|^2}{T}$  bestimmen. Das normierte Spektrum  $F(\omega)$  ist nach dem Wiener-Chintchin-Theorem mit der Autokorrelationsfunktion  $g^{(1)}(\tau)$  verknüpft [64]:

$$F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau g^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau} \quad (1.78)$$

Dieser Abschnitt hat sich auf die Zeitkoordinate des elektrischen Feldes beschränkt. Die räumlichen Korrelationen eines Lichtfeldes lassen sich aber analog behandeln. Neben der Auswertung der räumlichen Verteilung des Interferenzkontrastes ist es hier möglich, den Kohärenzgrad aus dem normierten Impulsspektrum  $F(k)$  zu erhalten:

$$F(k) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx g^{(1)}(x) e^{ikx} \quad (1.79)$$

In Kapitel 4 dieser Arbeit wird das hier gezeigte Konzept explizit auf den räumlichen Kohärenzgrad erster Ordnung des Photonengases übertragen.

## 1.4 Experimentelles Umfeld

Das Verhalten der Ordnungsparameter eines Bosegases am Phasenübergang zur Quantenentartung wurde experimentell in einer Vielzahl von Arbeiten untersucht [37, 48, 50, 57–59, 65]. Das bereits in Abschnitt 1.2.2 angesprochene  $^4\text{He}$  zeigt dabei eine Vielzahl charakteristischer Eigenschaften, die mit der makroskopischen Besetzung eines Einteilchenzustands einhergehen. Aufgrund der starken Wechselwirkungen in diesem flüssigen atomaren Ensemble führt eine quantitative Beschreibung als ideales Bosegas jedoch zu stark abweichenden Ergebnissen [37, 42, 53].

Mit der Realisierung von Bose-Einstein-Kondensaten in verdünnten atomaren Gasen ließen sich auch erstmals Systeme untersuchen, die nicht durch Wechselwirkungseffekte dominiert werden und somit auch quantitativ ein Verhalten nahe dem des idealen Bosegases zeigen. So ist die Reichweite der räumlichen Korrelationen im nicht-kondensierten Bereich bestimmt durch die thermische de Broglie Wellenlänge, wächst mit Einsetzen der Kondensation aber schlagartig an, bis sie sich über das gesamte System erstreckt [57–59, 65]. Die kalorischen Ordnungsparameter hingegen sind experimentell in diesen Systemen nur vergleichsweise unpräzise erfasst [49, 50, 66]. Die innere Energie wird hier in der Regel über die Vermessung der Geschwindigkeitsverteilung der Atome im Ensemble bestimmt, welche gerade im Bereich des Phasenübergangs das erwartete Verhalten nicht eindeutig reproduziert. Ein dem  $\lambda$ -Übergang ähnliches Verhalten der spezifischen Wärme konnte zuletzt in einem System aus stark wechselwirkenden Fermionen weit unterhalb der Fermitemperatur gezeigt werden [67].

### Licht-Materie Quasiteilchen

Zur experimentellen Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats in einem idealen Bosegas bietet es sich an, Teilchen zu nutzen, die nur schwache Wechselwirkungen untereinander aufweisen. Die in Abschnitt 1.1.1 getroffene Aussage, dass das thermische Photonengas der Schwarzkörperstrahlung gerade keinen Tieftemperaturphasenübergang zeigt, gilt nicht per se für alle photonischen Systeme. Notwendig für den Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat ist ein nicht verschwindendes chemisches Potential, sodass die Teilchenzahl bei Veränderung äußerer Zustandsgrößen zur Erhaltungsgröße werden kann. Im folgenden Abschnitt wird detailliert auf die Realisierung eines solchen, unter Temperaturänderungen photonenzahlerhaltenden, bosonischen Quantensystems in einem farbstoffgefüllten Mikroresonator eingegangen. An dieser Stelle sei aber zunächst eine weitere Klasse von Experimenten vorgestellt, welche die Präparation eines makroskopisch besetzten Licht-Materie-Mischzustands ermöglicht: Exziton-Polaritonen.

Ein Polariton bezeichnet ein Quasiteilchen, welches durch die starke Kopplung eines Lichtfeldes an einen elektrischen (oder magnetischen) Dipol entsteht. Die Kopplung an ein gebundenes Elektron-Loch-Paar (Exziton) formt ein Exziton-Polariton Quasiteilchen, welches zusammengesetzt ist aus zwei, durch die elektrostatische Coulomb-Kraft zusammengehaltenen, Fermionen (Elektron und Loch), und einem Boson (Photon), und daher ebenfalls bosonischer Natur ist. Das Exziton selbst kann als (bosonische) Elementaranregung eines Festkörpers verstanden werden und ist somit für sich genommen schon ein Kandidat für die Bose-Einstein-Kondensation [68–72]. Erzeugt werden Exzitonen durch Absorption

eines Photons innerhalb eines Halbleiters oder Isolators. Die erfolgte Anregung eines Elektrons aus dem Valenzband in das Leitungsband hinterlässt eine positiv geladene, lokalisierte Fehlstelle. Die repulsive Coulomb-Kraft der umliegenden Elektronen des Festkörpers auf das Elektron im Leitungsband führt zu einer Bindung des Elektrons an das Loch. Die hohe dielektrische Konstante von Halbleitermaterialien führt zu einer vergleichsweise starken Abschwächung der Coulomb-Wechselwirkung, sodass Elektron-Loch-Paare in diesen Materialien besonders kleine Bindungsenergien ( $\approx 10$  meV), aber große Ausdehnungen ( $\approx 10 - 100$  Å) besitzen können. Diese Wannier-Mott Exzitonen sind besonders geeignet, um kohärent an ein externes Lichtfeld zu koppeln, typischerweise innerhalb eines Mikroresonators.

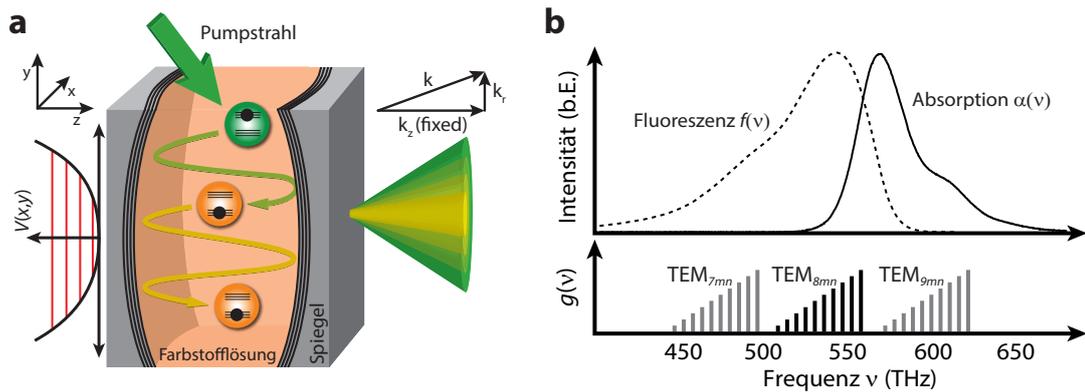
Meist werden Halbleiter-Mikroresonatoren genutzt, in denen eingestrahktes Pumplicht kohärent mit dem Halbleitermaterial koppelt und Energie austauscht. Bei starker Kopplung führt die Licht-Materie-Wechselwirkung zur Bildung neuer Eigenzustände des Exziton-Polaritons. Diese Mischzustände besitzen eine parabolische Dispersion und eine deutlich geringere Masse als die Exzitonen ( $m_{\text{Pol.}}/m_{\text{Exz.}} \approx 10^{-4}$ ), was zu einer deutlichen Vergrößerung der thermischen de Broglie Wellenlänge führt und die Bose-Einstein-Kondensation bei entsprechend höheren Temperaturen erlaubt. Das System aus Exziton-Polaritonen thermalisiert über Stöße des exzitonischen Anteils untereinander sowie über Wechselwirkungen der Polaritonen mit Anregungen des Kristallgitters (Phononen) [73]. Experimentell wurde gezeigt, dass es oberhalb einer kritischen Polaritonendichte zu einer makroskopischen Besetzung eines einzelnen Impulszustandes kommt [21–23].

Unter anderem bedingt durch die kurze Lebensdauer der Polaritonen ( $\tau \approx 10$  ps) und Inhomogenitäten im Halbleitermaterial ist ein Exziton-Polariton-System kein Gleichgewichtssystem im engeren Sinne [74–76]. Zwar bildet sich bei Erreichen einer kritischen Teilchendichte eine spontane, langreichweitige Phasenkohärenz aus, diese erstreckt sich aber in der Regel nicht homogen über die gesamte Ausdehnung des Systems [21, 22, 54, 55, 60, 77]. Die thermodynamischen Ordnungsparameter weichen ebenfalls teils stark von den Vorhersagen des idealen Bose-gases ab, was auf die zahlreichen Wechselwirkungseffekte des exzitonischen Anteils zurückzuführen ist [78].

## 1.5 Photonengas im farbstoffgefüllten optischen Mikroresonator

In den im vorigen Abschnitt behandelten Experimenten mit Exziton-Polaritonen koppelt das Licht stark an das Festkörpermedium, sodass hybride Quasiteilchen, die Polaritonen entstehen. Ein weiterer Ansatz zur Erzeugung eines photonischen Quantengases nutzt einen organischen Fluoreszenzfarbstoff als katalysierendes Medium eines teilchenzahlerhaltenden Thermalisierungsprozesses [28, 79]. Bevor in den folgenden Kapiteln dieser Arbeit die Thermodynamik und Korrelationen eines solchen Systems sowohl theoretisch behandelt als auch experimentell untersucht werden, soll an dieser Stelle ein Überblick über die Grundprinzipien der Bose-Einstein-Kondensation von Photonen in einem farbstoffgefüllten Mikroresonator gegeben werden.

Abbildung 1.8(a) zeigt schematisch den optischen Mikroresonator, welcher eine Lösung des Fluoreszenzfarbstoffs Rhodamin 6G in Ethylenglykol umschließt und dem Photonen mittels eines Pumpasers extern zugeführt werden können. Bei Raumtemperatur stoßen die Moleküle des Farbstoffs fortlaufend mit den umgebenden Lösungsmittelmolekülen, bei einer typischen Konzentration von 1 mmol/L auf einer Zeitskala im Bereich einiger Femtosekunden [80]. Dies hat zur Folge, dass der Rotations- und Vibrationszustand eines Farbstoffmoleküls laufend geändert wird und die Verteilung der rovibronischen Anregungen der Farbstoffmoleküle einer (thermischen) Boltzmann-Verteilung entspricht. Dieser rovibronische Relaxationsprozess tritt sowohl im elektronischen Grund- sowie angeregten Zustand auf.



**Abbildung 1.8:** (a) Schematische Darstellung des farbstoffgefüllten Mikroresonators. Die hochreflektiven, sphärisch gekrümmten Resonatorspiegel umschließen einen Tropfen des Fluoreszenzfarbstoffs Rhodamin 6G gelöst in Ethylenglykol. Die dem System durch optisches Pumpen zugeführten Photonen werden von den Farbstoffmolekülen absorbiert und anschließend reemittiert. Dieser Prozess ist anregungszahlerhaltend und thermalisiert das Photonengas entsprechend der experimentell einstellbaren Temperatur des umgebenden Farbstoffs ( $T \approx 300 - 390$  K). Die Spiegelkrümmung induziert ein harmonisches Fallenpotential für das Photonengas (links). Je höher die transversale Anregung, desto größer ist die räumliche Divergenz bei Verlassen des Resonators (rechts). (b) Der kurze Abstand  $D_0 = q \frac{\lambda_0}{2n}$  der Spiegel hat zur Folge, dass der freie Spektralbereich des Resonators  $\Delta\nu_{\text{FSR}}(q = 8) \approx 65$  THz vergleichbar ist mit der Emissionsbandbreite des Farbstoffs, dessen Spektren hier gezeigt sind (oben). Die Zustandsdichte  $g(\omega)$  (unten) zeigt die für ein solches harmonisch gefangenes, zweidimensionales System erwartete linear mit der Energie ansteigende Entartung (Balken), vgl. Gl (1.17).

Wird ein Farbstoffmolekül also durch Absorption eines Photons elektronisch angeregt, relaxiert das Molekül in einen thermisch equilibrierten, rovibronischen Zustand, noch bevor es zur Reemission des Photons kommt [32, 80]. Als Konsequenz dessen lassen sich Absorption  $\alpha$  und Fluoreszenz  $f$  über den Boltzmann-Faktor miteinander verknüpfen:

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \omega^3 \exp(-\hbar\omega/k_B T) \quad (1.80)$$

Nach wiederholter Absorption und Reemission ist das Photonengas selbst thermisch: Die Farbstofflösung dient den Photonen als Wärmebad. Anders als im Falle der Exziton-Polaritonen koppeln die Photonen dabei nicht stark an das Medium. Die zahlreichen Stöße des angeregten Farbstoffmoleküls lassen hier jegliche Kohärenz der Licht-Materie-Wechselwirkung verlieren und das Bosegas ist somit in sehr guter Näherung rein photonischer Natur.

Der verwendete Fluoreszenzfarbstoff ist optisch aktiv in einem Wellenlängenbereich von  $\lambda \approx 500 - 600$  nm, die Emission eines Photons als Folge einer thermischen Anregung ist somit praktisch ausgeschlossen ( $k_B T \ll hc/\lambda$ ). In Verbindung mit der hohen Quanteneffizienz organischer Farbstoffe ( $\eta_{\text{Rh6G}} > 97\%$ ) genügt dieser Thermalisierungsprozess der Bedingung der Teilchenzahlerhaltung bei Veränderung äußerer Parameter, das chemische Potential verschwindet also, im Kontrast zur Schwarzkörperstrahlung, nicht. In vorangegangenen experimentellen Arbeiten konnte gezeigt werden, dass bereits ein Zyklus erfolgter Reabsorption und anschließender Reemission ausreichend ist, um das Photonengas zu thermalisieren [32]. Um eine Verweildauer der Photonen im Resonator zu garantieren, die größer ist als die mittlere Reabsorptionszeit, werden Spiegel mit einer Reflektivität  $R > 99,9985\%$  im entsprechenden Spektralbereich

des Farbstoffs verwendet. Weiter wird eine möglichst hohe Farbstoffkonzentration gewählt, bei der strahlungslose Desaktivierung gerade noch nicht auftritt [81–83].

Der geringe Abstand  $D_0 = q\lambda_0/2n_0 \approx 1,4 - 1,6 \mu\text{m}$  der Spiegel auf der optischen Achse des Mikroresonators entspricht einem Vielfachen  $q$  der halben Wellenlänge  $\lambda_0$  im Medium mit Brechungsindex  $n_0$  (Stehwellenbedingung). Für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden Halbwellenzahlen von  $q = 7$  bzw.  $q = 8$  gewählt, woraus sich ein Frequenzabstand zwischen den Longitudinalmoden des Resonators von  $\Delta\nu \approx 65 - 75 \text{ THz}$  ergibt. Der freie Spektralbereich ist somit vergleichbar mit der Emissionsbandbreite des Farbstoffs (Abb. 1.8(b)). Die Emission der Photonen erfolgt also praktisch ausschließlich innerhalb eines Longitudinalmoden des Resonators. Das Ausfrieren des longitudinalen Bewegungsfreiheitsgrades durch Festlegen der Halbwellenzahl  $q = \text{konst.}$  reduziert die Dimensionalität des Systems und modifiziert die spektrale Zustandsdichte für die Photonen insofern, dass lediglich transversale Anregungen mit Quantenzahlen  $(m, n)$  verfügbar sind. Das Photonengas wird effektiv zweidimensional und erhält überdies noch einen nicht-trivialen Grundzustand der Energie  $E_0 = \hbar\omega_0 = h\lambda_0/c$ , entsprechend dem Resonatormoden  $\text{TEM}_{q00}$  ohne transversale Anregungen.

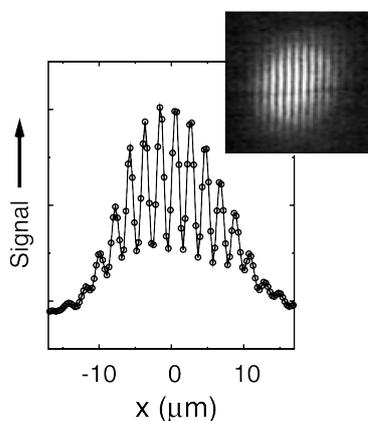
Um eine Bose-Einstein-Kondensation in zwei Dimensionen zu realisieren (siehe Abschnitt 1.1), sind die Resonatorspiegel sphärisch gekrümmt, was ein harmonisches Fallenpotential für das Photonengas induziert. Der Grundzustand des Systems befindet sich im Zentrum der Falle, Photonen in diesem Zustand propagieren also auf der optischen Achse, siehe Abb. 1.8(a). Mit zunehmender transversaler Anregung wächst auch die räumliche Divergenz der propagierenden Teilchen bei Verlassen des Resonators. Die Zustandsdichte dieses Systems skaliert linear mit der Energie der Teilchen, womit die kritische Teilchenzahl des Phasenübergangs zur Bose-Einstein-Kondensation einen endlichen Wert annimmt. Die Entartung der Eigenzustände transversaler Anregungen in den Resonatormoden  $\text{TEM}_{qmn}$  ist in Abb. 1.8(b, unten) skizziert. Formal verhält sich das gefangene Photonengas analog zum zweidimensionalen, harmonischen Oszillator der Quantenmechanik, mit einer effektiven Photonenmasse  $m_{\text{ph}} = \hbar\omega_0/(c/n_0)^2$ . Die Fallenfrequenz  $\Omega = (c/n_0)(D_0R/2)^{-1/2}$  ergibt sich aus der Krümmung der Spiegel mit Radius  $R$ . Die erwartete Besetzung der Photonen in den Eigenzuständen des zweidimensionalen Systems entspricht der Bose-Einstein-Verteilung, wie in vorangegangenen Arbeiten experimentell bestätigt werden konnte [26, 28, 32, 79]. Für steigende Gesamtteilchenzahlen des Photonengases, realisiert durch Anheben der Pumpleistung, geht die klassische Boltzmann-Verteilung in eine Verteilung mit gesättigten transversalen Energieniveaus und einem makroskopisch besetzten Grundzustand über [26, 27]. Die Besetzung der angeregten Transversalzustände zeigt dabei die erwartete Temperaturabhängigkeit: Mit Anheben der Temperatur als externe Zustandsgröße, realisiert über ein Aufheizen der Farbstofflösung, werden höherenergetische Zustände des Systems proportional stärker besetzt [79].

Die Farbstofflösung kann neben ihrer Funktion als Wärmebad, was durch stetigen Austausch von Energie eine Thermalisierung ermöglicht, auch ein Teilchenreservoir für das Photonengas darstellen. Die Absorption eines Photons aus und die Reemission in das optische Quantengas kann im Sinne einer (photo)chemischen Reaktion verstanden werden, welche ein Photon und ein Molekül im Grundzustand in ein angeregtes Molekül umwandelt. Allen drei daran beteiligten Spezies lässt sich ein chemisches Potential zuordnen, welches im Gleichgewichtszustand identisch ist, vgl. auch Abschnitt 1.2. Thermisches und chemisches Gleichgewicht stellen sich in der Regel auf unterschiedlichen Zeitskalen ein [32, 34]. Während typischerweise ein Absorptions- Emissionszyklus ausreicht, um das Photonengas zu thermalisieren, stellt sich das chemische Gleichgewicht erst auf einer deutlich längeren Zeitskala ( $\approx 0,1 - 1 \text{ ns}$ ) ein. Bei typischen experimentellen Parametern beträgt die mittlere Lebensdauer  $\tau_{\text{ph}}$  eines Teilchens vor einer erneuten Reabsorption einige 10 ps, während die charakteristische Zerfallszeit  $\tau_{\text{exc}}$  der Fluorophore einige Nanosekunden beträgt. Im stationären Zustand ist das Verhältnis zwischen Teilchen im Photonengas  $\bar{n}_{\text{ph}}$  und

Teilchen gespeichert als Anregungen der Farbstoffmoleküle  $\bar{M}_{\text{exc}}$  gegeben durch das inverse Verhältnis ihrer Lebensdauern  $\bar{M}_{\text{exc}}/\bar{n}_{\text{ph}} = \tau_{\text{ph}}/\tau_{\text{exc}}$ . Im Mittel befinden sich also deutlich mehr Teilchen als gespeicherte molekulare Anregungen im System als Photonen im eigentlichen Gas. Durch Variation der Frequenz des Grundzustands und damit einhergehend der mittleren Lebensdauer und Anzahl der Photonen im Quantengas, lässt sich die effektive Reservoirgröße im Vergleich zur Photonenzahl einstellen. Somit ist es möglich, sowohl kanonische als auch großkanonische thermodynamische Ensemblebedingungen zu realisieren [29–31, 33, 34].

Der leichte Zugang zur Energieverteilung des Systems durch Spektroskopie des aus dem Resonator transmittierten Lichts erlaubt eine detaillierte Untersuchung der thermodynamischen Ordnungsparameter. Die Möglichkeit, optische Spektren sehr präzise zu vermessen, ist ein erheblicher Vorteil bei der Bestimmung der kalorischen Zustandsgrößen am Phasenübergang zur Bose-Einstein-Kondensation. Zusammen mit der wechselwirkungsfreien Natur des photonischen Quantensystems ist ein Verhalten gemäß des idealen Bosegases zu erwarten. Erste qualitative Messungen zur Wärmekapazität des Photonengases sind in der Masterarbeit von Qi Liang beschrieben [84]. Im Rahmen dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass sich das Photonengas im Fall kleiner Teilchendichten ( $T \gg T_c$ ) wie ein klassisches, einkomponentiges Gas verhält. Für ansteigende Teilchendichten wird im Verhalten der untersuchten Ordnungsparameter zunächst die beginnende Quantenentartung sichtbar, bevor schließlich der Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat zu beobachten ist. Für sehr hohe Teilchendichten ( $T < T_c$ ) strebt der Energieinhalt sowie die Entropie des Gesamtsystem gegen 0, wie es nach dem 3. Hauptsatz der Thermodynamik zu erwarten ist.

Die Bestimmung der räumlichen Korrelationen erster Ordnung wird, analog zu Exziton-Polariton Experimenten, über interferometrische Messungen erzielt [21, 55, 56, 60]. Bereits in vorangegangenen Arbeiten konnte phänomenologisch gezeigt werden, dass sowohl der räumliche als auch der zeitliche Grad



**Abbildung 1.9:** Interferenzmuster des Photonengases aus [27]

der Phasenkohärenz mit Erreichen der kondensierten Phase stark ansteigt [27]. Abbildung 1.9 zeigt das Interferenzmuster am Ausgang eines Michelson-Interferometers mit einem Pfadlängenunterschied von etwa 15 mm, was einer Zeitverzögerung von etwa 0,5 ns entspricht. Die räumliche Ausdehnung der Interferenz indiziert die sich eingestellte, langreichweitige Ordnung im System. In jüngerer Zeit wurden von Marelic et al. die räumlichen Korrelationen erster Ordnung in einem Photonengas im Nichtgleichgewichtszustand untersucht [56]. Auch dort konnte ein signifikanter Anstieg der Ordnung mit Einsetzen der Kondensation festgestellt werden, die jedoch quantitativ stark von den Erwartungen für ein ideales Bosegas abweicht. Im Rahmen der vorliegenden Doktorarbeit wurde der Verlauf der räumlichen Phasenkorrelationen vom Regime des klassischen Gases bis tief in die Bose-Einstein-kondensierte Phase hinein im Detail untersucht. Dabei konnte erstmals in einem photonischen System gezeigt werden, dass im Bereich weit unterhalb

der kritischen Teilchendichte ( $T \gg T_c$ ) die Kohärenzlänge durch die thermische de Broglie Wellenlänge gegeben ist [38], inklusive der erwarteten Temperaturskalierung  $\lambda_{\text{th}} \propto T^{-1/2}$ . Mit Erreichen der kritischen Phasenraumdichte ( $T > T_c$ ) steigt die Kohärenzlänge schnell an, bis sie schließlich das gesamte System umfasst. Über homodyne Interferometrie konnte ebenfalls die Kohärenzzeit erster Ordnung des klassischen Systems vermessen werden, um, zusammen mit im Umfeld dieser Arbeit erzielten Ergebnissen zum Verhalten der Phasensprungrate des Kondensats [33, 34], ein vollständiges Bild der Kohärenzeigenschaften des Photonengases in einem farbstoffgefüllten Mikroresonator zu erhalten.

# Thermodynamik eines zweidimensionalen photonischen Bosegases

---

Aufbauend auf den im vorherigen Kapitel erarbeiteten Konzepten zur Beschreibung idealer bosonischer Quantengase im thermodynamischen Gleichgewichtszustand sollen diese nun auf das Photonengas im farbstoffgefüllten optischen Mikroresonator übertragen werden. Sowohl die Rolle des Farbstoffs als Wärmebad und Teilchenreservoir als auch die charakterisierende Auswirkung der Resonatorgeometrie auf das Photonengas werden diskutiert. Das Verhalten der thermodynamischen Ordnungsparameter des harmonisch gefangenen, zweidimensionalen Systems nicht-wechselwirkender Bosonen beim Übergang von der klassischen in die Bose-Einstein-kondensierte Phase wird ebenfalls dargestellt.

## 2.1 Thermalisierung des Photonengases

Der teilchenzahlerhaltende Energieaustausch mit den Molekülen der Farbstofflösung führt dazu, dass das photonische Quantengas die thermodynamische Temperatur der Umgebung annimmt ( $T \approx 300$  K, Raumtemperatur). Da die Thermalisierung der Teilchen des Photonengases wegen der fehlenden direkten Wechselwirkung nicht wie etwa in atomaren Quantengasen über Stöße untereinander erfolgen kann, wird der Farbstoff als „katalysierendes“ Medium benötigt. Der Austausch zwischen Photonengas und Reservoir erfolgt radiativ über wiederholte Absorption und Emission von Photonen; durch die schnellen Stöße der Moleküle untereinander geschieht der Energieaustausch jedoch inkohärent. Das hier beschriebene Quantengas ist demnach rein photonischer Natur, im Gegensatz etwa zu Exziton-Polariton-Systemen, in denen der exzitonische Materieanteil einen großen Einfluss auf das Verhalten des Gesamtsystems hat. Im Folgenden wird der fluoreszenzinduzierte Thermalisierungsprozess sowohl auf mikroskopischer Ebene als auch im Rahmen der statistischen Physik detailliert betrachtet. Die Verknüpfung der Absorptions- und Emissionsspektren des Farbstoffs über den Boltzmann-Faktor nimmt dabei eine zentrale Rolle ein.

### 2.1.1 Physik organischer Fluoreszenzfarbstoffe

Die definierende Eigenschaft eines lumineszenten Stoffes ist es, die ihm neu zugeführte Energie ganz oder teilweise in Form eines emittierten Photons an die Umgebung abzugeben. Von besonderer Bedeutung für die vorliegende Arbeit ist die Unterart der photolumineszenten Fluorophore, d.h. chemische (meist organische)

Verbindungen, die durch Absorption eines Photons aktiviert werden und deren radiative Desaktivierung hauptsächlich auf einer Zeitskala im Nanosekundenbereich stattfindet. Neben dem zugänglichen optischen Frequenzspektrum ist vor allem die Effizienz dieses Absorptions- Reemissionsprozesses von Bedeutung. Diese *Quanteneffizienz*, auch als Fluoreszenzausbeute  $\eta_{\text{fl}} = \frac{N_{\text{fl}}}{N_{\text{abs}}}$  bezeichnet, mit der Zahl  $N_{\text{fl}}$  ( $N_{\text{abs}}$ ) emittierter (absorbierter) Photonen, wird von vielen Faktoren beeinflusst und ist in realen Systemen immer  $< 1$ . Obgleich mehrere Fluoreszenzfarbstoffe zur Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats aus Photonen eingesetzt wurden [25, 30], wird im Folgenden der hier ausschließlich verwendete Fluorophor Rhodamin 6G diskutiert [85, 86]. Gelöst in Ethylenglykol erreicht dieses eine Quanteneffizienz von  $\eta \approx 95\%$ <sup>1</sup> [87].

Abbildung 2.1(a) zeigt in Form eines Jablonski-Diagramms das Energieschema des Farbstoffs sowie die relevanten Relaxations- und Konversionsprozesse innerhalb des Moleküls. Im absoluten Ruhezustand ( $T = 0$ ) zeigt der Fluorophor diskrete Spektrallinien, deren Frequenz gerade der Energielücke zwischen zwei elektronischen Anregungszuständen entspricht. Der Abstand zwischen dem elektronischen Grundzustand  $S_0$  und dem ersten angeregten Zustand  $S_1$  wird auch als *Null-Phononen-Linie* (engl.: *zero-phonon line*) bezeichnet. Die Komplexität des Farbstoffs bedingt eine sehr hohe Zahl möglicher Rotations- und Vibrationszustände des Moleküls, welche für  $T > 0$  zur Ausbildung einer Bandstruktur der Anregungszustände führen. Die Energie  $E$  eines Zustands lässt sich dabei als die Summe der elektronischen, vibronischen und rotatorischen Einzelanregungen auffassen:  $E = E_{\text{el}} + E_{\text{vib}} + E_{\text{rot}}$ . Die typische Größenordnung der molekularen Schwingungszustände, und somit die Breite der Energiebänder, beträgt  $10^{-2} - 10^{-1}$  eV (vibronisch, in der Abbildung blau), bzw.  $10^{-3} - 10^{-2}$  eV (rotatorisch, rot hinterlegt). Der Abstand der Bänder ist äquivalent zum Abstand der elektronischen Anregungen. Für im sichtbaren Bereich aktive Farbstoffe beträgt dieser einige Elektronenvolt, was thermische Anregungen des Farbstoffs vom elektronischen Grundzustand  $S_0$  in hohe elektronische Niveaus  $S_{n>0}$  bei Raumtemperatur ( $T = 300$  K) praktisch ausschließt. Für Rhodamin 6G erhält man:

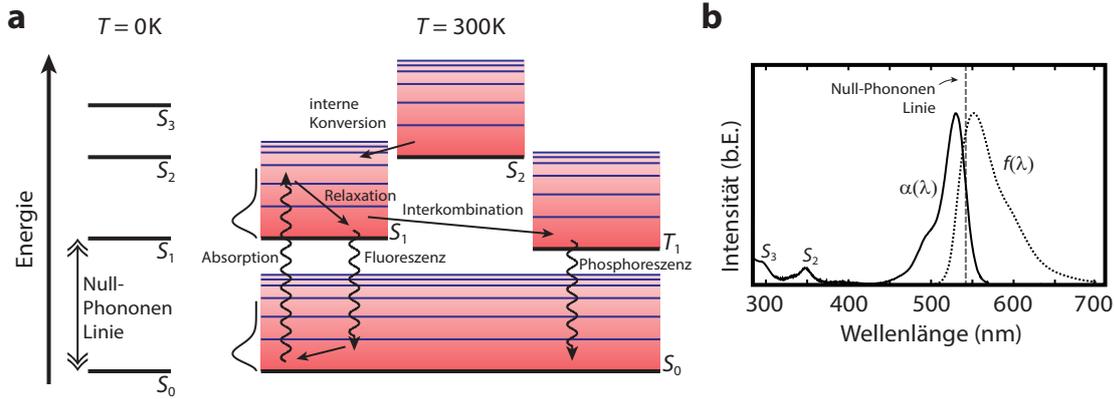
$$E_{\text{abs}} \approx 2,34 \text{ eV} \quad \rightarrow \quad e^{\frac{E_{\text{abs}}}{k_{\text{B}}T}} \approx 5 \cdot 10^{-40} \quad (2.1)$$

Die beobachteten kontinuierlichen spektralen Verteilungen von Absorption und Fluoreszenz sind in Abb. 2.1(b) gezeigt.

Bei der Absorption eines Photons wird innerhalb des Moleküls ein Elektron aus dem höchsten besetzten Molekülorbital (HOMO, engl.: highest occupied molecular orbit) in das niedrigste unbesetzte Molekülorbital (LUMO) überführt. Die elektronische Dynamik dieses Prozesses ist dabei wesentlich schneller ( $\approx 10^{-15}$  s) als die durch die elektronische Zustandsänderung induzierten Kernbewegungen innerhalb des Moleküls ( $\approx 10^{-13}$  s). Die Kernkonfiguration direkt nach erfolgter Anregung lässt sich also als identisch zur Ausgangskonfiguration annehmen. Ein HOMO-LUMO-Übergang ist umso wahrscheinlicher, je größer der räumliche Überlapp der Wellenfunktion im Grundzustand mit der Wellenfunktion eines rovibronischen Zustands des elektronisch angeregten Moleküls ist. Klassisch lässt sich argumentieren, dass eine solche Bedingung der stationär gleichen Bindungslängen gerade an den Wendepunkten einer Kernschwingung erfüllt ist. Eine Folge dieses sogenannten Franck-Condon-Prinzips ist, dass die Absorption eines Photons den Farbstoff in einen sowohl elektronisch als auch rovibronisch angeregten Zustand überführt [88, 89]. Die Intensität eines spezifischen rovibronischen Übergangs aus dem Grundzustand  $\Psi_{\text{g}}$  in den angeregten

---

<sup>1</sup> Eine übersichtliche Auflistung aller relevanten formalen Zusammenhänge und im Experiment genutzten Parameter findet sich in tabellarischer Form im Anhang B dieser Arbeit.



**Abbildung 2.1:** (a) Jablonski Diagramm und (b) spektrale Verteilung von Absorption  $\alpha(\lambda)$  und Fluoreszenz  $f(\lambda)$  des Farbstoffs Rhodamin 6G gelöst in Ethylenglykol. Die komplexe Molekülstruktur des Rhodamins führt zur Ausbildung von Rotations- (rot) und Vibrationsanregungen (blau) für Temperaturen  $T > 0\text{ K}$ . Schnelle Konversions- und Relaxationsprozesse lassen Absorption und Emission eines Photons immer aus einem thermisch equilibrierten, rovibronischen Zustand erfolgen. Radiative Desaktivierung findet nur über den Fluoreszenzübergang  $S_1 \rightarrow S_0$  und den verbotenen, und somit langlebigen, Phosphoreszenzübergang  $T_1 \rightarrow S_0$  statt. Das Spektrum veranschaulicht einige der universellen Eigenschaften von Farbstoffen: Die Spiegelbild-Regel, die Stokes-Verschiebung und die Regel von Kasha.

Zustand  $\Psi_a$  ist proportional zum Übergangsdipolmoment  $M_{ag}$ :

$$M_{ag} = |\langle \Psi_a | M | \Psi_g \rangle|^2 \quad (2.2)$$

$$= \underbrace{|\langle \Psi_{a,el} | \mu | \Psi_{g,el} \rangle|^2}_{\text{Auswahlregel}} \underbrace{|\langle \Psi_{a,rovib} | \Psi_{g,rovib} \rangle|^2}_{\text{Franck-Condon-Faktor}} \quad (2.3)$$

Das Dipolmoment  $\mu = \sum_i e \vec{r}_i$  ist nur von den relativen Lagen  $\vec{r}_i$  der Elektronen zum Ladungsmittelpunkt abhängig. Die Separation der Wellenfunktion  $\Psi = \Psi_{el} \Psi_{vib} \Psi_{rot}$  in ihren elektronischen und rovibronischen Anteil geschieht hier im Sinne der Born-Oppenheimer-Näherung [90]. Der erste Term in Gl. (2.3) entspricht der Wahrscheinlichkeitsamplitude entsprechend der Auswahlregel des Übergangs, der zweite Term entspricht dem Überlapp der vibronischen Anteile und wird Franck-Condon-Faktor genannt. Da die rovibronische Niveaustuktur des angeregten Zustands sehr ähnlich zu der des Grundzustands ist, trifft dies auch auf die Franck-Condon-Faktoren für Absorption ( $S_0 \rightarrow S_1$ ) und Fluoreszenz ( $S_1 \rightarrow S_0$ ) zu. Entsprechend erscheinen Absorptions- und Emissionsspektren zueinander gespiegelt (Spiegelbild-Regel; Abb. 2.1(b)).

Bei näherer Betrachtung der Farbstoffspektren fällt auf, dass zwar eine Absorption in elektronisch hoch angeregte Zustände ( $S_0 \rightarrow S_{n \geq 2}$ ) stattfinden kann, die Emission aber lediglich aus dem ersten Singulettzustand erfolgt ( $S_1 \rightarrow S_0$ ). Grund hierfür sind Konversionsprozesse zwischen elektronischen Zuständen, die nahezu ausschließlich strahlungslos stattfinden. Die Energiedifferenz zwischen aufeinanderfolgenden Bändern elektronischer Singulettzustände nimmt mit steigender Anregungsenergie ab und lässt die Energiebänder schließlich überlappen. Übergänge  $S_n \rightarrow S_{n-1}$  mit  $n \geq 2$  erfolgen vergleichsweise schnell auf einer Zeitskala von  $10^{-12} - 10^{-10}$  s, womit schließlich, unabhängig vom Grad der Anregung, lediglich der elektronisch niedrigste angeregte Zustand  $S_1$  bevölkert wird. Da diese Art strahlungsloser Übergänge

nur zwischen Zuständen gleicher Spin-Multiplizität erfolgt, wird sie als *interne Konversion* (engl.: *internal conversion*) bezeichnet. Diese Übergänge findet man dementsprechend auch zwischen Triplettzuständen ( $T_n \rightarrow T_{n-1}$ ). Erst die vergleichsweise große Bandlücke zwischen dem elektronischen Grundzustand  $S_0$  und dem ersten angeregten Zustand  $S_1$  macht Fluoreszenz in einem solchen System möglich, da nur hier die freie Fluoreszenzlebensdauer  $\tau_{\text{fl}} \approx 4$  ns mit den Zeitskalen der nichtstrahlenden Prozesse in Konkurrenz treten kann [91].

Jedes Farbstoffmolekül stößt fortwährend mit den Molekülen des umgebenden Lösungsmittels, wobei jede Kollision eine dekohärente Neukonfiguration der rovibronischen Anregungen zur Folge hat. Durch diese Stöße unterliegen die Moleküle einem Energieaustausch mit der Umgebung, sodass die rovibronischen Anregungen im Gleichgewichtszustand entsprechend thermisch verteilt sind. Nach erfolgter Absorption sowie interner Konversion, befindet sich das Farbstoffmolekül typischerweise in einem rovibronisch hoch angeregten Zustand. Die überschüssige Energie wird durch diese stoßinduzierte *Vibrationsrelaxation* auf einer Pikosekundenskala an die Umgebung dissipiert. Interne Konversionsprozesse sowie radiative Prozesse (Absorption, Fluoreszenz und Phosphoreszenz) erfolgen daher aus einem thermisch equilibrierten Zustand der rovibronischen Anregung heraus. Dieser Umstand ist maßgeblich dafür verantwortlich, dass auch das Photonengas im Mikroresonator eine Verteilung gemäß der thermodynamischen Temperatur der Umgebung annimmt, wie in Abschnitt 2.1.2 genauer beschrieben wird. Im Zusammenspiel mit den Franck-Condon-Faktoren sorgt er weiter dafür, dass die Schwerpunkte von Absorption und Fluoreszenz gegenüber der Null-Phononen Linie zu höheren bzw. niedrigeren Energien hin verschoben sind (Stokes-Verschiebung) [92]. Eine weitere Konsequenz der internen Konversion und Vibrationsrelaxation ist, dass sowohl die Fluoreszenz als auch die Quantenausbeute unabhängig von der Energie der absorbierten Photonen sind (Regel von Kasha bzw. Regel von Vavilov) [93], das Verhalten des Farbstoff-Resonator-Systems ist somit unabhängig von der Energie und den Kohärenzeigenschaften des Pumplichtes.

### **Triplettzustände, Fluoreszenzlöschung und thermo-optische Effekte**

Neben den Konversionsprozessen gleicher Spin-Multiplizität treten auch Übergänge zwischen Zuständen unterschiedlicher Multiplizität, etwa Singulett  $S_n$  zu Triplett  $T_n$ , auf. Das formale Verbot solcher *Interkombinationsprozesse* (engl.: *intersystem crossing*) durch die Dipol-Auswahlregeln wird im Molekülsystem durch Spin-Bahn-Kopplung und Kopplung der jeweiligen vibronischen Anregungszustände teilweise aufgehoben. Ein solcher Prozess ist dennoch eher unwahrscheinlich und entsprechend langsam ( $> 10^{-8}$  s). Die Besetzung der Triplettzustände erfolgt hauptsächlich durch Interkombination hoch angeregter Zustände und praktisch nicht als direkte Anregung aus dem  $S_0$  Zustand des Moleküls. Die Auswahlregeln der elektronischen Dipolstrahlung verbieten auch hier einen direkten Übergang, sodass Phosphoreszenz als radiative Desaktivierung über einen langen Zeitraum stattfindet (1  $\mu$ s – 1 s). Moleküle in einem Triplettzustand nehmen somit nicht am fluoreszenzinduzierten Thermalisierungsprozess teil. Bei fortlaufender Absorption und Reemission von Photonen gelangt eine steigende Zahl von Farbstoffmolekülen in den Triplettzustand  $T_1$ , ein Phänomen, das als *Triplett sättigung* (engl.: *triplet saturation*) bekannt ist [85, 86]. Anders als in Farbstofflasern ist im hier diskutierten Experiment keine fortlaufende Erneuerung des Farbstoffs möglich, sodass ein kontinuierlicher Betrieb des farbstoffgefüllten Mikroresonators bei Pumpleistungen, die zur Erzeugung der kritischen Teilchenzahl für die Bose-Einstein-Kondensation im Resonator nötig sind, nicht möglich ist.

In Bezug auf die Quanteneffizienz eines gelösten Farbstoffs sind neben den intramolekularen Effekten (Interne Konversion, Vibrationsrelaxation und Interkombination) auch Wechselwirkungen zwischen einzelnen Molekülen von Bedeutung. Es ist dabei unerheblich, ob identische Moleküle beteiligt sind oder

ob der Fluorophor mit den Molekülen des Lösungsmittels wechselwirkt. Intermolekulare Desaktivierungsprozesse verlaufen praktisch ausschließlich nichtstrahlend und unter Abgabe der vollständigen Energie des absorbierten Lichtquants, sie werden daher auch als *Fluoreszenzlöschung* (engl.: *fluorescence quenching*) bezeichnet. Man unterteilt die Vielzahl an auftretenden Wechselwirkungsprozessen grundsätzlich in solche, die den Fluorophor in seiner Struktur verändern und die Fluoreszenzeigenschaften stark mindern oder vollständig einschränken (statische Prozesse) und solche, die den Fluorophor strahlungslos in seinen Grundzustand zurückführen (dynamische Prozesse).

Die relevantesten Prozesse in Bezug auf den organischen Farbstoff Rhodamin 6G sind der statische Prozess des Photobleichens und der dynamische Prozess des Fluoreszenz-Resonanz-Energie-Transfers (FRET), auch Förster-Effekt genannt [94]. Photobleichen bezeichnet eine Vielzahl photochemischer Prozesse, die alle eine irreversible strukturelle Änderung des Farbstoffs auf molekularer Ebene als Folge der photonischen Anregung bewirken. Der Fluorophor verliert dabei seine Fluoreszenzeigenschaft und stellt, falls es nicht jegliche optische Aktivität einbüßt, als Absorber einen Verlustkanal für das Photonengas dar. Da eine längere Verweildauer des Moleküls im angeregten Zustand die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Photobleichen erhöht, tritt dieser Prozess insbesondere in Verbindung mit der Besetzung von langlebigen Triplettzuständen auf. Frühere Arbeiten zur Bose-Einstein-Kondensation von Photonen, mit Rhodamin 6G eingebettet in einer Polymer-Hostmatrix, zeigten eine sehr kurze Lebensdauer des Mediums aufgrund von Photobleichen [95, 96]. In flüssiger Lösung tritt dieser Effekt deutlich vermindert auf und kann experimentell durch Wahl eines geeigneten Pumpzyklus weitestgehend vermieden werden.

Der Zusammenhang zwischen Lebensdauer und Quantenausbeute eines Fluorophors wird bei Betrachtung der Übergangsraten der Desaktivierungsprozesse offensichtlich. Neben der Rate  $k_r$  der radiativen Prozesse lassen sich Konversion, Interkombination und Fluoreszenzlöschung zu einer Rate  $k_{nr}$  der nichtstrahlenden Prozesse zusammenfassen. Aus der Kinetik des Desaktivierungsprozesses folgt für die Zahl  $N(t)$  angeregter Moleküle:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -(k_r + k_{nr})N(t) \quad (2.4)$$

$$\rightarrow N(t) = N_0 e^{-(k_r + k_{nr})t} \quad (2.5)$$

Die Fluoreszenzlebensdauer  $\tau_{fl}$  eines Moleküls ist die mittlere Zeit, die ein Molekül im angeregten Zustand verbleibt. Da der Anteil angeregter Moleküle proportional zur experimentell messbaren Fluoreszenzintensität  $I_{fl}(t) = I_{fl,0} e^{-t/\tau_{fl}}$  ist, gilt für die Fluoreszenzlebensdauer nach Vergleich mit Gl. (2.5):

$$\tau_{fl} = \frac{1}{k_r + k_{nr}} \quad (2.6)$$

Die Quantenausbeute  $\eta_{fl} = \frac{N_{fl}}{N_{abs}}$  lässt sich damit direkt über die Desaktivierungsraten ausdrücken:

$$\eta_{fl} = \frac{k_r}{k_r + k_{nr}} = \frac{\tau_{fl}}{\tau_r} \quad \text{mit} \quad \tau_r = \frac{1}{k_r} \quad (2.7)$$

Steigt die Rate der nichtstrahlenden Desaktivierungsprozesse, sinkt die Quanteneffizienz. Eine Folge dessen ist, dass der thermische Kontakt des Photonengases an sein Wärmebad der Farbstofflösung schwächer wird bzw. vollständig abreißt und dieses somit seinen thermischen Gleichgewichtszustand nicht mehr erreichen kann. Auch ungeachtet der grundsätzlich nicht perfekten Quantenausbeute wird Energie im Verlauf des Thermalisierungsprozesses in der Farbstofflösung deponiert und verbleibt als

Wärme im System. Ein Aufheizen des Systems wiederum führt über den thermo-optischen Effekt zu einer Änderung des Brechungsindex der Farbstofflösung gemäß dem thermo-optischen Koeffizienten  $\frac{dn}{dT} \approx -2,6 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  [97]. Diese ist für das Photonengas gleichbedeutend mit einer Veränderung der Resonatorgeometrie, etwa einer Verkürzung des optischen Weges (bei Aufheizung) oder einer Veränderung des Fallenpotentials bei inhomogener Temperaturverteilung. Dieser Effekt wird auch als *thermischer Linseneffekt* bezeichnet, und beschreibt eine zeitlich retardierte Wechselwirkung des Photonengases [25, 26]. Eine gezielte thermo-optische Modulation des Fallenpotentials ist ebenfalls möglich und Gegenstand aktueller Forschung zu photonischen Bose-Einstein-Kondensaten in Gitterstrukturen [98, 99].

### 2.1.2 Thermisches Gleichgewicht und Kennard-Stepanov-Relation

Da Absorptions- und Emissionsprozesse in der Farbstofflösung immer aus einem thermisch equilibrierten rovibronischen Anregungszustand stattfinden, sind die Spektren der Absorption, mit dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\omega)$ , und der Fluoreszenz, mit der mittleren emittierten Energie pro Frequenzintervall  $f(\omega)$ , über den Boltzmann-Faktor miteinander verknüpft:

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \omega^3 e^{-\hbar\omega/k_B T} \quad (2.8)$$

Dieser Zusammenhang ist wesentlich zum Verständnis der thermischen Kopplung des Photonengases an die Umgebung und wurde ursprünglich von Kennard beschrieben [100, 101]. Offenbar unabhängig davon wurde er 40 Jahre später von Stepanov wiederentdeckt und ist seitdem bekannt als die Kennard-Stepanov-Relation [102–104]. Die folgende Herleitung anhand der im letzten Abschnitt behandelten Prozesse (vgl. Abb. 2.2 rechts) orientiert sich im Wesentlichen an Referenz [105].

Für einen Grundzustand  $S_0$  im Energieintervall  $[\epsilon_0, \epsilon_0 + d\epsilon_0]$  und einen elektronisch angeregten Zustand  $S_1$  im Energieintervall  $[\epsilon_1, \epsilon_1 + d\epsilon_1]$  lassen sich die Fluoreszenz- und Absorptionsstärke als Integral über die rovibronischen Energieniveaus schreiben. Mit den Einstein-Koeffizienten  $A(\epsilon_1, \omega)$  und  $B(\epsilon_0, \omega)$  und den jeweiligen rovibronischen Zustandsdichten  $g_{0,1}(\epsilon)$  in Grund- und angeregtem Zustand gilt dann:

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{\int d\epsilon_1 g_1(\epsilon_1) A(\epsilon_1, \omega) p_1(\epsilon_1)}{\int d\epsilon_0 g_0(\epsilon_0) B(\epsilon_0, \omega) p_0(\epsilon_0)} \quad (2.9)$$

Die Verteilung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $p(\epsilon)$  in einem rovibronischen Subniveau der Energie  $\epsilon$  entspricht aufgrund der stoßinduzierten Thermalisierung in beiden elektronischen Niveaus einer Boltzmann-Verteilung:

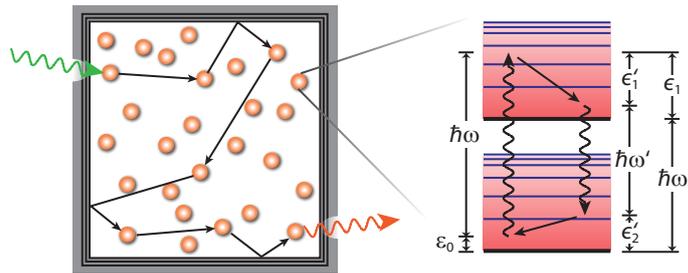
$$p_0(\epsilon) = p_1(\epsilon) \equiv p(\epsilon) = e^{-\epsilon/k_B T} \quad (2.10)$$

Da die Energie erhalten ist, gilt für einen Absorptions-Emissionsprozess nach Abb. 2.2 folgende Bedingung:

$$\begin{aligned} \hbar\omega + \epsilon_0 &= \epsilon'_1 + \hbar\omega' + \epsilon'_2 = \hbar\omega_0 + \epsilon_1 \\ \rightarrow \epsilon_1 &= \hbar(\omega - \omega_0) + \epsilon_0 \end{aligned} \quad (2.11)$$

Mit der  $A$ - $B$ -Relation der Einstein'schen Koeffizienten gilt somit:

$$g_1(\epsilon_1) A(\epsilon_1, \omega) d\epsilon_1 = \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} g_0(\epsilon_0) B(\epsilon_0, \omega) d\epsilon_0 \quad (2.12)$$



**Abbildung 2.2:** Schema des Thermalisierungsvorgangs in einer „Photonen-Box“ aus perfekt reflektierenden Wänden. Durch wiederholte Absorption und Emission steht das Fluoreszenzlicht im thermischen Kontakt mit der Farbstofflösung. Am Ende dieses Prozesses entspricht die Energieverteilung des Photonengases einem thermischen Spektrum. Das Jablonski-Diagramm (rechts) eines Absorptions-Emissionszyklus veranschaulicht die Energiedissipation aus dem Lichtfeld in die Farbstofflösung.

Einsetzen der Gln. (2.10)-(2.12) in Gl. (2.9) liefert das Gesetz von Kennard und Stepanov:

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} e^{-\frac{\hbar(\omega-\omega_0)}{k_B T}} \quad (2.13)$$

Die Gültigkeit dieser Relation ist im Allgemeinen abhängig von den chemischen und physikalischen Prozessen innerhalb eines Mediums, und kann somit als eine Materialeigenschaft aufgefasst werden. Neben flüssigen Farbstofflösungen [79, 106, 107] und farbstoffdotierten Polymermatrizen [95] wurde die thermische Verknüpfung von Absorption und Emission auch in Halbleitern [108] und ultradichten Rubidiumgasen [109, 110] beobachtet.

### Thermalisierung des Photonengases durch stochastische Zustandsänderungen

Die Auswirkungen wiederholter Absorptions- und Reemissionsprozesse innerhalb der Farbstofflösung lassen sich anhand eines Gedankenexperiments verdeutlichen. Abbildung 2.2 zeigt eine „Photonen-Box“, in die Photonen eingestreut werden und auch wieder entkommen können. Im Gegensatz zum Hohlraumstrahler (Abschnitt 1.1.1) sind die Wände hier perfekt reflektierend, und der Körper vollständig mit einer Farbstofflösung gefüllt, welche die Kennard-Stepanov-Relation hinreichend erfüllt. Nach einigen Absorptions-Fluoreszenz-Zyklen wird das eingestreuete, monochromatische Licht die Box wieder verlassen. Durch den Kontakt mit der Farbstofflösung verschiebt dieser Prozess die Energie der gestreuten Photonen hin zu einer Verteilung, die der Schwarzkörperstrahlung mit der Temperatur der Box entspricht. Analysiert man das austretende Licht nun spektral, wird man eine Rotverschiebung und eine spektrale Breite der Verteilung der Größenordnung  $k_B T$  beobachten können.

Die Entwicklung des Photonengases lässt sich durch wiederholte zufällige Umkonfiguration der Besetzung der Einteilchenzustände des Strahlungsfeldes modellieren. Analog zur allgemeinen Betrachtung des idealen Bosegases in Abschnitt 1.1 ist ein solcher Mikrozustand definiert über die Population  $n_i$  des  $i$ -ten Zustands (Moden). Die Absorption eines Photons aus dem Moden  $i$  und anschließende Emission in den Moden  $j$  führt zu einer Neukonfiguration der Art:

$$|p\rangle = (n_0, n_1, \dots, n_i, \dots, n_j, \dots) \rightarrow |q\rangle = (n_0, n_1, \dots, n_i - 1, \dots, n_j + 1, \dots) \quad (2.14)$$

Die Übergangsraten zwischen den Konfigurationen  $R(p \rightarrow q)$  bzw.  $R(q \rightarrow p)$  werden durch Absorption sowie spontane und stimulierte Emission eingestellt:

$$R(p \rightarrow q) \propto n_i \alpha(\omega_i) (n_j + 1) \frac{f(\omega_j)}{\hbar \omega_j \tilde{g}(\omega_j)} \quad (2.15)$$

$$R(q \rightarrow p) \propto (n_j + 1) \alpha(\omega_j) n_i \frac{f(\omega_i)}{\hbar \omega_i \tilde{g}(\omega_i)} \quad (2.16)$$

Die Normierung  $\hbar \omega \tilde{g}(\omega)$  mit der spektralen Zustandsdichte  $\tilde{g}(\omega) = \omega^2 / (\pi^2 c^3)$  ist nötig zur Bestimmung der Übergangsrates in einen einzelnen Moden.

Unter der Annahme, dass der Übergang in eine Folgekonfiguration lediglich von der Ausgangskonfiguration abhängt, lässt sich der Gesamtprozess analog zu einem *random walk* behandeln, vgl. Abschnitt 1.3.2. Diese zeitlich diskrete Markow-Kette lässt sich als Mastergleichung modellieren, also als Aufstellung aller Zu- und Abflüsse der Wahrscheinlichkeit  $p_K(t)$  das System zum Zeitpunkt  $t$  in der Konfiguration  $K$  anzutreffen:

$$p_K(t+1) - p_K(t) = \sum_{K'} p_{K'}(t) R(K' \rightarrow K) - \sum_{K'} p_K(t) R(K \rightarrow K') \quad (2.17)$$

Führen die Zustandsänderungen ins thermische Gleichgewicht so gilt für die Mastergleichung im Fall großer Zeiten:

$$\begin{aligned} p_K(t) &= e^{-\frac{\epsilon_K}{k_B T}} \\ \rightarrow 0 &= \sum_{K'} e^{-\frac{\epsilon_{K'}}{k_B T}} R(K' \rightarrow K) - \sum_{K'} e^{-\frac{\epsilon_K}{k_B T}} R(K \rightarrow K') \end{aligned} \quad (2.18)$$

Gleichung (2.18) ist dann erfüllt, wenn es keinen Netto-Wahrscheinlichkeitsfluss zwischen beliebigen Konfigurationen gibt, alle Summanden also für sich verschwinden. Das Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten erfüllt dann die Bedingung des *detaillierten Gleichgewichts* (engl.: *detailed balance*), der Markow-Prozess überführt das System also in einen thermisch equilibrierten Gleichgewichtszustand:

$$\rightarrow \frac{R(K \rightarrow K')}{R(K' \rightarrow K)} = e^{-\frac{\Delta \epsilon}{k_B T}}, \quad \text{mit } \Delta \epsilon = \epsilon_{K'} - \epsilon_K \quad (2.19)$$

Das Verhältnis der Übergangsraten in der Photon-Box (Gln. (2.15) und (2.16)) ist unabhängig von der Besetzung der einzelnen Moden. Mit dem Kriterium des detaillierten Gleichgewichts aus Gl. (2.19) erhält man somit:

$$\frac{R(p \rightarrow q)}{R(q \rightarrow p)} = \frac{f(\omega_j) \alpha(\omega_i) \omega_i^3}{\alpha(\omega_j) f(\omega_i) \omega_j^3} \stackrel{!}{=} e^{-\frac{\hbar(\omega_j - \omega_i)}{k_B T}} \forall i, j \quad (2.20)$$

Erfüllt die Farbstofflösung also die Kennard-Stepanov-Relation, wird das Photonengas ins thermische Gleichgewicht streben. Eine vollständige Thermalisierung im Sinne des eingangs beschriebenen Gedankenexperiments würde bedeuten, dass die Energie des Photonengases, entsprechend der Schwarzkörperstrahlung bei Raumtemperatur, emittierte Wellenlängen im Infrarotbereich nach sich zieht. Experimentell würde die Thermalisierung an dem Punkt abbrechen, an dem die Energie eines Fluoreszenzphotons nicht mehr ausreicht, um den Farbstoff anzuregen. Die Bedingung des detaillierten Gleichgewichts ist dann nicht mehr erfüllt, das Photonengas verliert also den thermischen Kontakt und ist unvollständig thermalisiert.

## 2.2 Photonen im optischen Mikroresonator

Zur Thermalisierung des Lichtfeldes ist es nach den Erkenntnissen des vorangegangenen Abschnitts nötig, dass sich die verfügbaren Einteilchenzustände des Systems auf den spektral verfügbaren Bereich des Farbstoffs beschränken. Die bereits in Abschnitt 1.5 vorgestellte Idee ist, das Photonengas innerhalb eines Mikroresonators propagieren zu lassen, welcher durch Ausfrieren des longitudinalen Freiheitsgrades die Dimensionalität reduziert und einen nicht-trivialen Zustand kleinster Energie bereitstellt. Die hohe Reflektivität der Resonatorspiegel garantiert eine große Lebensdauer der Photonen im Resonator, was der Bedingung großer Zeiten im Sinne des Markow-Prozesses genügt.

Das Modenspektrum eines Resonators aus zwei sphärisch gekrümmten Spiegeln im Abstand  $D_0$  und mit identischen Krümmungsradien  $R$  ergibt sich aus der paraxialen Wellengleichung in Abhängigkeit von longitudinaler ( $q$ ) und transversaler ( $m, n$ ) Modenzahl zu [111]:

$$\nu = \Delta\nu_{\text{long}} \left[ (q + 1) + \Delta\nu_{\text{trans}} / \Delta\nu_{\text{long}} (m + n + 1) \right] \quad \text{mit} \quad (2.21)$$

$$\Delta\nu_{\text{long}} = \frac{c}{2D_0} \quad \text{und} \quad \Delta\nu_{\text{trans}} = \frac{c}{2D_0} \arccos \left( 1 - \frac{D_0}{R} \right) \quad (2.22)$$

Die Entartung der transversalen Anregung steigt gemäß  $(m+n+1)$  linear an, der Modenabstand bleibt dabei konstant. Um einen freien Spektralbereich der longitudinalen Resonatormoden der Größenordnung der spektralen Breite der Fluoreszenz von Rhodamin 6G ( $\Delta\nu_{\text{Rh6G}} \approx 70$  THz) zu erhalten, sind Spiegelabstände  $D_0 \leq 2 \mu\text{m}$  nötig. Für die in dieser Arbeit genutzten Spiegel mit Krümmungsradien  $R = 1$  m ergibt sich daraus nach Gl. (2.22) ein transversaler Modenabstand von  $\Delta\nu_{\text{trans}} \approx 50$  GHz  $\approx c^{-1} \times 50$  pm. Verglichen mit dem longitudinalen Modenabstand kann die transversale Modendichte somit als quasikontinuierlich angenommen werden.

### 2.2.1 Dispersionsrelation

Die optische Dispersionsrelation verknüpft die Energie  $E$  eines Photons mit seinem Impuls, ausgedrückt über den Betrag des Wellenvektors  $k$ . Für ein freies Photon in einem Medium mit Brechungsindex  $n$  gilt:

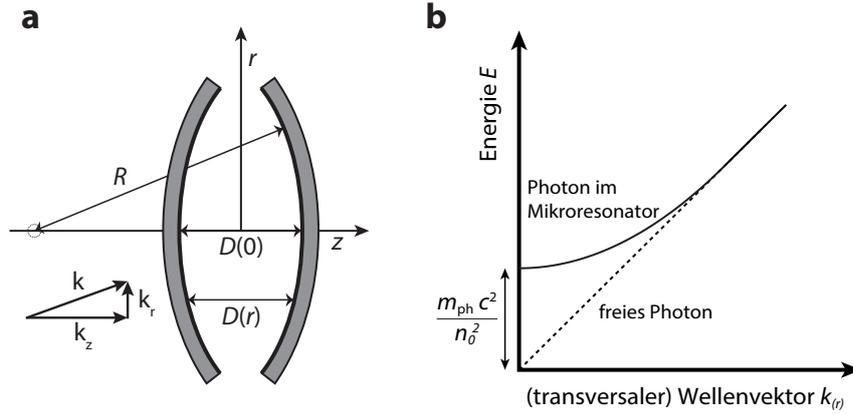
$$E(k) = \frac{\hbar c}{n} |\vec{k}| = \frac{\hbar c}{n} \sqrt{k_r^2 + k_z^2} \approx \frac{\hbar c}{n} \left( k_z + \frac{k_r^2}{2k_z} \right) \quad (2.23)$$

Hierbei wurde zunächst der Wellenvektor in seine longitudinale Komponente  $k_z$  und seine transversale Komponente  $k_r$  zerlegt und schließlich die Näherung für paraxiales Licht ( $k_r \ll k_z$ ) vollzogen. Aus der Stehwellenbedingung für den transversal angeregten Resonatormoden lässt sich die longitudinale Komponente des Wellenvektors geometrisch als Funktion des Spiegelabstands  $D(r)$  bei transversaler Position  $r$  ableiten, siehe dazu auch Abb. 2.3(a):

$$k_z(r) = \frac{q\pi}{D(r)} \quad \text{mit} \quad (2.24)$$

$$D(r) = D_0 - 2R \left( 1 - \sqrt{1 - \left( \frac{r}{R} \right)^2} \right) \approx D_0 - \frac{r^2}{R} \quad (2.25)$$

Die longitudinale Wellenzahl  $q$  bezeichnet hier die Anzahl der Halbwellen im Resonator, welche bei kleinem Spiegelabstand entsprechend der möglichen Emissionswellenlänge über die Farbstofffluoreszenz



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der (a) Resonatorgeometrie und (b) modifizierten Dispersion im Mikroresonator. Die sphärisch gekrümmten Spiegel (Krümmungsradius  $R$ ) generieren ein harmonisches Fallenpotential für das Photonengas. Bei ausgefrorener Longitudinalkomponente  $k_z$  des Wellenvektors lässt sich dem Photonengas eine Masse  $m_{\text{ph}}$  zuordnen, die invers mit dem Abstand  $D(0)$  der Spiegel skaliert. Im Kontrast zur linearen Dispersion des freien Photons in drei Dimensionen ( $E \propto k^2$ ) verhält sich das Photon im Resonator wie ein massives Teilchen in einer Falle ( $E \propto k_r^2$ ).

festgelegt ist. Da der Abstand von der optischen Achse wesentlich kleiner ist als der Krümmungsradius der Spiegel, ist die Entwicklung des Wurzelterms in Gl. (2.25) für  $r \ll R$  gerechtfertigt.

Setzt man Gl. (2.24) in die Näherung der Dispersionsrelation aus Gl. (2.23) ein, erhält man:

$$E(k_r) \simeq \frac{\hbar c}{n} \left( \frac{q\pi}{D(r)} + \frac{D(r)}{2q\pi} k_r^2 \right) \quad (2.26)$$

$$\simeq \frac{\hbar c}{n} \left( \frac{q\pi}{D_0} + \frac{q\pi}{RD_0^2} r^2 + \frac{D_0}{2q\pi} k_r^2 \right) \quad (2.27)$$

In Gl. (2.27) wurde der Spiegelabstand  $D(r)$  wieder entsprechend für kleine Entfernungen von der optischen Achse  $r^2/R$  entwickelt. Analog zur Dispersionsrelation eines massiven Teilchens lässt sich die Dispersionsrelation des Photonengases mit effektiver Masse  $m_{\text{ph}}$  innerhalb eines zweidimensionalen harmonischen Potentials mit Fallenfrequenz  $\Omega$  schreiben als:

$$E(k_r) \simeq m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n^2} + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{1}{2m_{\text{ph}}} \hbar^2 k_r^2 \quad \text{mit} \quad (2.28)$$

$$m_{\text{ph}} := \frac{\pi q \hbar n}{c D_0} \quad \text{und} \quad \Omega := \frac{c}{n} \sqrt{\frac{2}{D_0 R}} \quad (2.29)$$

Im Gegensatz zur Dispersionsrelation eines frei propagierenden Photons verschwindet die Energie nicht in der Abwesenheit von Anregungen, siehe Abb. 2.3(b). Der erste Term, der ansonsten quadratisch verlaufenden Dispersionsrelation aus Gl. (2.28), entspricht einer effektiven Ruheenergie  $E_{q00} = \hbar \omega_0$ , der sich eine „Abschneidfrequenz“  $\omega_0$  bzw. „Abschneidewellenlänge“  $\lambda_0$  zuordnen lässt.

Für die in dieser Arbeit genutzten Parameter  $q = 8$  und  $\lambda_0 = 583 \text{ nm}$  erhält man eine effektive

Photonenmasse von  $m_{\text{ph}} \approx 7,76 \cdot 10^{-36}$  kg, was in etwa  $10^{-5}$  der Elektronenmasse  $m_e$  bzw.  $10^{-10}$  der Masse von  $^{87}\text{Rb}$  entspricht sowie eine Fallenfrequenz von  $\Omega \approx 37$  GHz. Die transversale Anregungszahl  $k_{\text{B}}T/\hbar\Omega \approx 10^2$ , also das Verhältnis aus thermischer Energie zum Abstand der Transversalmoden, ist vergleichbar mit der in Experimenten mit atomaren Gasen. Die Temperatur und Fallenfrequenz des Photonengases im Mikroresonator sind dabei jeweils um einen Faktor  $10^9$  größer als in Systemen dünner atomarer Gase.

Die Analogie zu Systemen massiver Teilchen wird auch bei Betrachtung der thermischen de Broglie Wellenlänge deutlich. Die Energie skaliert nach Gl. (2.28) mit dem Impuls  $p = \hbar k$  gemäß  $E = \frac{1}{2m_{\text{ph}}}p^2$ . Die thermische de Broglie Wellenlänge des zweidimensionalen Systems ergibt sich dann nach Gl. (1.14) zu:

$$\lambda_{\text{th}} = \frac{h}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{1}{2m_{\text{ph}}k_{\text{B}}T} \right)^{1/2} \left[ \frac{\Gamma(2)}{\Gamma(2)} \right]^{1/2} \quad (2.30)$$

$$= \sqrt{\frac{h^2}{2\pi m_{\text{ph}}k_{\text{B}}T}} \quad (2.31)$$

Somit entspricht auch die Ausdehnung des photonischen Wellenpakets der eines massiven Teilchen mit Masse  $m_{\text{ph}}$  in Gl. (1.1).

### 2.2.2 Bose-Einstein-Kondensation

Analog zur allgemeinen Betrachtung der Bose-Einstein-Kondensation in Abschnitt 1.1.2 wird hier die statistische Physik eines zweidimensionalen Photonengases mit der im vorigen Abschnitt entwickelten Dispersionsrelation näher diskutiert. Nach Gl. (2.28) sind die diskreten Energie-Eigenzustände  $E_{n_x, n_y}$  zusammengesetzt aus der Ruheenergie und ihrer transversalen Anregungsenergie. Mit den transversalen Quantenzahlen  $n_x$  und  $n_y$  lässt sich schreiben:

$$E_{n_x, n_y} = m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n_0^2} + \hbar\Omega(n_x + n_y + 1) \quad (2.32)$$

Zur weiteren Betrachtung bietet es sich an, die absoluten Energien auf die transversalen Anregungsenergien im harmonischen Fallenpotential zu reskalieren. Das transversale Anregungsspektrum  $u$  erhält man durch Subtraktion der Grundzustandsenergie  $E_0 + \hbar\Omega$ :

$$u_{n_x, n_y} = E_{n_x, n_y} - E_0 - \hbar\Omega = \hbar\Omega(n_x + n_y) \quad (2.33)$$

Die linear ansteigende Entartung der transversalen Anregungsenergien und die inhärente zweifache Polarisationsentartung des Lichtfeldes führen somit zu einer Zustandsdichte für die gilt:

$$g(u) = 2 \left( \frac{u}{\hbar\Omega} + 1 \right) \quad (2.34)$$

Die mittlere Besetzungszahl eines Zustands der transversalen Anregungsenergie  $u$  entspricht der Zustandsdichte, gewichtet mit der Bose-Einstein-Verteilung. Analog zu Gl. (1.16) ergibt sich diese somit für

eine thermodynamische Gleichgewichtstemperatur  $T$ :

$$n_{T,\mu}(u) = \frac{g(u)}{e^{(u-\mu)/(k_B T)} - 1} \quad (2.35)$$

Das chemische Potential  $\mu$  stellt hierbei die mittlere Teilchenzahl  $\bar{N}$  des Photonengases ein. Unter Vorgabe der Temperatur ergibt sich die Randbedingung aus Gl. (1.18) zu:

$$\bar{N} = \sum_{u=0, \hbar\Omega, 2\hbar\Omega, \dots} n_{T,\mu}(u) \quad (2.36)$$

Im Falle kleiner Gesamtteilchenzahlen geht Gl. (2.35) wegen  $\mu/k_B T \ll 0$  in die klassische Boltzmann-Verteilung über. Für steigende Phasenraumdichten nähert sich das chemische Potential der Grundzustandsenergie an; reskaliert auf die transversale Anregungsenergie  $u$  geht  $\mu \rightarrow 0^-$  und die Besetzung des Grundzustandes divergiert. Analog zu Abschnitt 1.1.2 muss in der diskreten Summe in Gl. (2.36) die Besetzung des Grundzustandes  $n_{T,\mu=0}(u=0) = \bar{n}_0$  getrennt von der Besetzung höherer Energieniveaus behandelt werden:

$$\bar{N} = \bar{n}_0 + \sum_{u=\hbar\Omega, 2\hbar\Omega, \dots} \bar{n}_{T,\mu=0}(u) \quad (2.37)$$

Da die transversalen Anregungen als quasi-kontinuierlich ( $\hbar\Omega \ll k_B T$ ) angesehen werden können, lässt sich die Summe durch ein Integral über alle Energien  $u > 0$  ersetzen. Am Phasenübergang zur Bose-Einstein-Kondensation können diese Zustände keine weiteren Teilchen aufnehmen, sodass eine weitere Erhöhung der Photonenzahl eine makroskopische Besetzung des Grundzustands nach sich zieht. Abbildung 2.4 zeigt die experimentell gemessene spektrale und räumliche Verteilung des Photonengases unterhalb und oberhalb der kritischen Teilchenzahl  $\bar{N}_c$  des Phasenübergangs. Letztere entspricht gerade dem Integral über die Besetzung der Zustände mit transversaler Anregung:

$$\bar{N}_c = \frac{1}{\hbar\Omega} \int \frac{2(u/\hbar\Omega + 1)}{e^{u/k_B T} - 1} du \simeq 2 \left( \frac{k_B T}{\hbar\Omega} \right)^2 \int_0^\infty \frac{x}{e^x - 1} dx \quad (2.38)$$

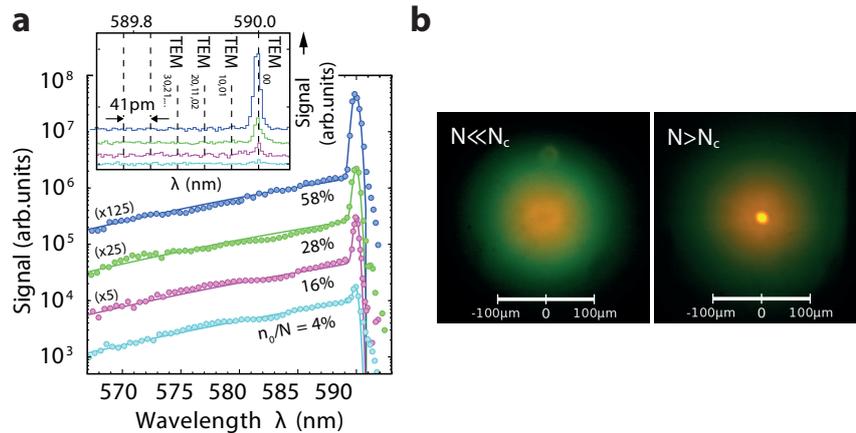
Die Substitution  $x := u/k_B T$  wurde zur Lösung des Integrals vorgenommen, welche durch die Riemann'sche Zeta-Funktion  $\zeta(2) = \pi^2/6$  gegeben ist. Für die kritische Teilchenzahl sowie die kritische Temperatur  $T_c$  erhält man somit:

$$\bar{N}_c = \frac{\pi^2}{3} \left( \frac{k_B T}{\hbar\Omega} \right)^2 \quad T_c = \frac{\sqrt{3}}{\pi} \frac{\hbar\Omega}{k_B} \sqrt{\bar{N}} \quad (2.39)$$

Dies entspricht den Vorhersagen für ein zweidimensionales, harmonisch gefangenes ideales Bosegas gemäß den Gln. (1.20) und (1.22), mit  $C_{\alpha=2} = 1/(\hbar\Omega)^2$  und einer zweifachen Polarisationsentartung, welche die nötige Teilchenzahl zur Kondensation effektiv verdoppelt.

### Abgrenzung zum Farbstofflaser

Die mikroskopischen Prozesse, die bei der Bose-Einstein-Kondensation von Licht auftreten, zeigen große Ähnlichkeit mit der Operation eines Farbstofflasers [86]. Das Schema des Absorptions- und Reemissions-Zyklus entspricht in guter Näherung dem 4-Niveau-System eines klassischen Lasermediums, vgl. dazu auch den rechten Teil von Abb. 2.2. Die im Vergleich zur Lebensdauer des  $S_1$ -Zustands schnelle



**Abbildung 2.4:** (a) Spektrale und (b) räumliche Verteilungen von Photonen unter und oberhalb der kritischen Teilchenzahl  $\bar{N}_c$  bei Raumtemperatur  $T = 300$  K, aus Referenzen [26, 30]. Unterhalb der Kondensationsschwelle sind die transversalen Zustände entsprechend einer Boltzmann-Verteilung besetzt. Mit Erreichen der kritischen Teilchenzahl sättigen die Energieniveaus der „thermischen Wolke“ und der Grundzustand im Zentrum der Falle wird makroskopisch bevölkert. Die beobachtete spektrale Breite des Grundzustands entspricht hier dem Auflösungsvermögen des Spektrometers. Eine detailliertere spektrale Untersuchung mittels eines Doppelmonochromators (Auflösung  $\approx 6$  pm) zeigt die makroskopische Besetzung nur eines Eigenzustandes (Inset in (a)).

Relaxation in den rovibronischen Gleichgewichtszustand, sowohl des elektronisch angeregten als auch des elektronischen Grundzustandes, führt zu einer schnellen Be- und Entvölkerung der Anfangs- und Endzustände des eigentlichen Emissionsübergangs. Obwohl auch die makroskopische Besetzung eines Zustands im Bose-Einstein-kondensierten Photonengas durch stimulierte Prozesse herbeigeführt wird, unterscheidet sich das hier behandelte Photonengas grundlegend vom Farbstofflaser. Die drei wichtigsten Unterscheidungsmerkmale sind:

- Im Gegensatz zum klassischen Laser strebt das Photonengas in einen thermischen Gleichgewichtszustand, welcher bereits nach einem erfolgten Absorptions-Reemissions-Zyklus erreicht ist [32]. Insbesondere liegt im farbstoffgefüllten Mikroresonator keine Besetzungszahlinversion vor, sobald sich das Gleichgewicht eingestellt hat.
- Die makroskopische Besetzung des Photonengases findet nicht zwangsläufig in dem Resonatormoden statt, der die höchste Verstärkung aufweist. Aufgrund der spektralen Eigenschaften des Fluorophors wäre eine Emission in Moden höherer transversaler Anregungsenergie sogar eher bevorzugt. Lediglich bei unzureichendem thermischen Kontakt zwischen Photonengas und Farbstofflösung lässt sich eine makroskopische Besetzung abseits des Grundmoden beobachten [32].
- Da die Kopplung an die Farbstofflösung über einen stetigen Teilchenaustausch zwischen Photonengas und Reservoir geschieht, lässt sich das System im Allgemeinen als großkanonisches Ensemble beschreiben. Dies resultiert in einer abweichenden Photonenzahlstatistik zwischen Laser (Poisson-Statistik,  $g^{(2)}(0) = 1$ ) und Bose-Einstein-Kondensat (Bose-Einstein-Statistik,  $g^{(2)}(0) = 2$ ). Insbesondere konnten Teilchenzahlfluktuationen der Größenordnung der gesamten Kondensatteilchenzahl beobachtet werden ( $\Delta n \approx \bar{n}$ ) [30]. Durch Variation der Größe des Reservoirs im Vergleich zur Kondensatgröße lassen sich gezielt Photonenzahlstatistiken einstellen, die den gesamten Bereich

zwischen einer laserartigen Poisson-Verteilung und einer thermischen Bose-Einstein-Verteilung umfassen.

## 2.3 Thermodynamik des Photonengases

Die im vorigen Abschnitt entwickelte mittlere Besetzungsverteilung der transversalen Anregungszustände  $n_{T,\mu}(u)$  entspricht gerade einem thermodynamischen Makrozustand, wie er in Abschnitt 1.2 behandelt wurde. In diesem Abschnitt werden die Zustandsgrößen, die diesen Makrozustand definieren, abgeleitet und das Verhalten der thermodynamischen Ordnungsparameter des Photonengases am Phasenübergang zum Kondensat untersucht.

Um das harmonisch gefangene Photonengas überhaupt einer entsprechenden thermodynamischen Betrachtung unterziehen zu können, muss zunächst sichergestellt sein, dass es sich auch formal um einen Gleichgewichtsphasenübergang handelt. Eine notwendige Bedingung ist es, dass die kritische Temperatur  $T_c$  gerade im thermodynamischen Limes einen endlichen Wert beibehält. Ausgedrückt über die geometrischen Resonatorparameter lässt sich Gl. (2.39) schreiben als:

$$\bar{N}_c = \frac{\pi^2}{6} \left( \frac{n_0 k_B T}{c \hbar} \right)^2 D_0 R \quad T_c = \frac{\sqrt{6} \hbar c}{\pi k_B n_0} \sqrt{\frac{1}{D_0} \frac{\bar{N}}{R}} \quad (2.40)$$

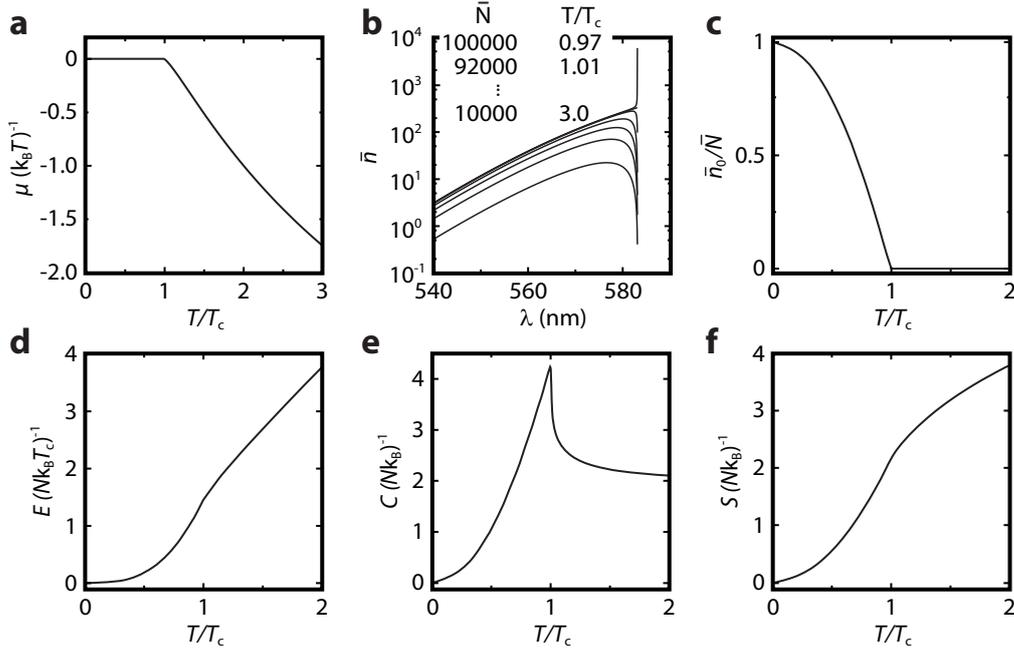
Das Volumen  $V$  des harmonischen Fallenpotentials ist durch den Krümmungsradius  $R$  sowie den longitudinalen Abstand  $D_0$  der Spiegel vorgegeben. Gleichzeitiges Vergrößern von Teilchenzahl  $\bar{N} \rightarrow \infty$  und Volumen  $R \rightarrow \infty$  bzw.  $D_0 \rightarrow \infty$ , bei Beibehaltung der Teilchendichte ( $\bar{N}/R = \text{konst.}$  bzw.  $\bar{N}/D_0 = \text{konst.}$ ), hält gemäß Gl. (2.40) die Übergangstemperatur konstant. Eine Veränderung des Spiegelabstands führt jedoch dazu, dass das System seine Zweidimensionalität verlieren würde, daher ist der Parameter  $D_0$  ungeeignet zur Einstellung des Volumens und wird in der weiteren Betrachtung konstant gehalten.

### 2.3.1 Zustandsgrößen des Phasenüberganges

Die im Experiment variierte Zustandsgröße des Systems ist die mittlere Teilchenzahl  $\bar{N}$  des gesamten Photonengases. Im Gegensatz zu Experimenten mit atomaren Bosegasen, in denen zusätzlich die Temperatur als Kontrollparameter dient, ist die thermodynamische Temperatur des farbstoffgefüllten Mikroresonators durch die Temperatur des Farbstoffs vorgegeben ( $T = 300$  K). Im Sinne der Vergleichbarkeit bietet es sich daher an, das Verhalten der thermodynamischen Zustandsgrößen in Abhängigkeit der reduzierten Temperatur  $T/T_c$  zu betrachten, da diese sowohl direkt mit der Temperatur als auch, über  $T_c \propto \sqrt{\bar{N}}$  nach Gl. (2.39), mit der Teilchenzahl skaliert. So lässt sich etwa der Kondensatanteil, also das Verhältnis der Zahl der Teilchen im Grundzustand zur Gesamtzahl der Teilchen im System, analog zu Gl. (1.39) schreiben als:

$$\frac{\bar{n}_0}{\bar{N}} = 1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^2 \quad (T < T_c) \quad (2.41)$$

Abbildung 2.5 zeigt numerische Berechnungen der spektralen Verteilung sowie der Zustandsgrößen chemisches Potential  $\mu$ , Besetzungsgrad  $\bar{n}_0/\bar{N}$ , innere Energie  $E$ , spezifische Wärme  $C$  und Entropie  $S$  am Phasenübergang. Das stetige Verhalten der Ordnungsparameter signalisiert einen Phasenübergang



**Abbildung 2.5:** Verhalten der Zustandsgrößen und Ordnungsparameter eines harmonisch gefangenen, zweidimensionalen Photonengases als Funktion der reduzierten Temperatur  $T/T_c$ . (a) Bei vorgegebener Geometrie und Temperatur stellt sich das chemische Potential gemäß der Gesamtteilchenzahl ein. Aus diesem ergeben sich (b) die spektrale Besetzungsverteilung  $\tilde{n}(\lambda)$  und (c) der Besetzungsgrad des Kondensats  $\tilde{n}_0/\tilde{N}$ . Aus der spektralen Verteilung lässt sich (d) die innere Energie  $E$ , (e) die spezifische Wärme  $c = \frac{\partial E}{\partial T}$  als Ableitung der inneren Energie sowie (f) die Entropie  $S = \int_0^T c(T')/T' dT'$  als Integral der spezifischen Wärme über die reduzierte Temperatur bestimmen. Mit Ausnahme der in (b) gezeigten Spektren mit  $\tilde{N}_c = 94\,000$ , entsprechen die gezeigten Verteilungen denen eines idealen Systems im thermodynamischen Grenzfall ( $\tilde{N}_c \rightarrow \infty$ ).

2. Ordnung. Bei vorgegebener Teilchenzahl stellt sich gemäß Gl. (2.36) das chemische Potential  $\mu$  ein, aus dem sich die Verteilung auf die transversalen Anregungszustände nach Gl. (2.35) ergibt. Für steigende Teilchenzahlen (sinkende reduzierte Temperatur) wächst das chemische Potential stetig an. Mit Erreichen der kritischen Teilchenzahl  $\tilde{N}_c$  verschwindet das chemische Potential  $\mu \rightarrow 0^-$  und die spektrale Verteilung weist einen makroskopisch besetzten Grundzustand auf.

Aus der spektralen Verteilung lässt sich die innere Energie  $E$  des Systems durch Integration über alle Energiezustände gewinnen. Reskaliert man die Energien entsprechend des vorherigen Abschnitts durch Subtraktion der Ruheenergie auf ihre transversalen Anregungen, so steigt die innere Energie mit Erreichen der Kondensationsschwelle nicht weiter an. Da jedes zusätzlich hinzugefügte Photon in den Zustand der Energie  $u = 0$  gelangt, sinkt die Energie pro Teilchen  $E/\tilde{N} \rightarrow 0$  für  $T/T_c \rightarrow 0$ . Die spezifische Wärme  $C$  zeigt das charakteristische sprunghafte Verhalten am Phasenübergang, ohne jedoch eine Unstetigkeit bei  $T/T_c = 1$  aufzuweisen, wie sie in harmonisch gefangenen, dreidimensionalen Systemen zu finden ist. Für den kondensierten Bereich erhält man mit  $\xi = \zeta(3)/\zeta(2) \approx 0,73$  aus den Gln. (1.43)-(1.45) die innere Energie, spezifische Wärme und Entropie pro Teilchen eines zweidimensionalen, harmonisch gefangenen

idealen Bosegases [112–114]:

$$\frac{E}{\bar{N}k_{\text{B}}T_{\text{c}}} = 2\xi\left(\frac{T}{T_{\text{c}}}\right)^2 \quad (T \leq T_{\text{c}}) \quad (2.42)$$

$$\frac{C}{\bar{N}k_{\text{B}}} = 6\xi\left(\frac{T}{T_{\text{c}}}\right)^2 \quad (T \leq T_{\text{c}}) \quad (2.43)$$

$$\frac{S}{\bar{N}k_{\text{B}}} = 3\xi\left(\frac{T}{T_{\text{c}}}\right)^2 \quad (T \leq T_{\text{c}}) \quad (2.44)$$

Im klassischen Bereich hoher Temperaturen ( $T/T_{\text{c}} \gg 1$ ) skalieren die Energie und spezifische Wärme gemäß des Äquipartitionstheorems:  $E = 2\bar{N}k_{\text{B}}T$  und  $C = 2\bar{N}k_{\text{B}}$ . Der Bereich knapp oberhalb der kritischen Temperatur lässt sich analog zu Abschnitt 1.2.1 nur näherungsweise analytisch berechnen. In dieser Arbeit wird daher das theoretische Verhalten der thermodynamischen Zustandsgrößen durch numerische Methoden über den gesamten Temperaturbereich ermittelt.

### Zustandsgrößen in einer harmonischen Falle

Der erste Hauptsatz der Thermodynamik verbindet die Energie eines Systems mit der an ihm geleisteten Arbeit:  $dE = Q + p dV$ . Energie und Wärme sind auch im Kontext eines harmonisch gefangenen Quantengases klar fassbare Größen. Die thermodynamisch konjugierten Variablen Volumen  $V$  (extensiv) und Druck  $p$  (intensiv) eines Ensembles in einer harmonischen Falle hingegen sind klassisch nicht im Sinne einer globalen, d.h. positionsunabhängigen, Zustandsgröße greifbar. In konventionellen Systemen wird Arbeit an den Wänden des Systems verrichtet, etwa bei Änderung des Volumens. Das harmonische Fallenpotential hat jedoch keine Wände, vielmehr ist die Kraft, die auf jedes Teilchen wirkt, abhängig von der Position des Teilchens. Die Thermodynamik solcher inhomogenen Systeme führt in der Regel zu einer positionsabhängigen Beschreibung der Zustandsgrößen, was die thermodynamischen Relationen in Differentialgleichungen überführt.

Um die Thermodynamik eines Systems in einem harmonischen Fallenpotential dennoch über globale Zustandsgrößen zu behandeln, wurde vorgeschlagen, die Fallenfrequenz für eine Definition des *harmonischen Volumens* zu nutzen [50, 115, 116].

$$\mathcal{V} = \omega^{-\alpha} \stackrel{2\text{D}}{=} \Omega^{-2} \quad (2.45)$$

Diese Definition ist unter anderem dadurch motiviert, dass obwohl das Volumen für das Gas unendlich groß ist, bei einer gegebenen Temperatur  $T$  der Hauptteil der Teilchen im Volumen  $k_{\text{B}}T/m_{\text{ph}}\Omega^2$  zu finden ist. Sie ist auch kompatibel mit der Bedingung im thermodynamischen Limes: Für  $\bar{N} \rightarrow \infty$  und  $\Omega \rightarrow 0$  bleibt  $T_{\text{c}} \propto \sqrt{\bar{N}}\Omega = \text{konst.}$ , vgl. Gl. (2.39). Unter der Annahme von großkanonischen Ensemblebedingungen finden sich das thermodynamische Potential  $\hat{\Omega}$  und die innere Energie  $E$  zu:

$$\hat{\Omega}(\mu, T, \omega) = -k_{\text{B}}T \left( \frac{k_{\text{B}}T}{\hbar\Omega} \right)^2 g_3(\mu/k_{\text{B}}T) \quad (2.46)$$

$$E = 2k_{\text{B}}T \left( \frac{k_{\text{B}}T}{\hbar\Omega} \right)^2 g_3(\mu/k_{\text{B}}T) \quad (2.47)$$

Hierbei bezeichnet  $g_n(\alpha)$  die Bose-Funktionen nach:

$$g_n(\alpha) = \frac{1}{\Gamma(n)} \int_0^\infty dx x^{n-1} \frac{1}{\alpha^{-1} e^x - 1} \quad (2.48)$$

Als konjugierte Größe zum extensiven harmonischen Volumen dient der *harmonische Druck*  $\mathcal{P}$  als intensive Zustandsgröße. Obwohl keine der beiden harmonischen Zustandsgrößen formal die richtige physikalische Einheit besitzt, liefert deren Produkt eine Energie und genügt so dem ersten Hauptsatz der Thermodynamik.  $\mathcal{P}$  und  $\mathcal{V}$  bilden einen vollständigen Satz an Zustandsgrößen mit thermodynamischer Zustandsgleichung  $\mathcal{P} = \mathcal{P}(N/\mathcal{V}, T)$  und sind globale Variablen. Beide sind über das großkanonische Potential in Gl. (2.46) miteinander verknüpft:

$$\mathcal{P} = - \left( \frac{\partial \hat{\Omega}}{\partial \mathcal{V}} \right)_{T, \mu} = \frac{(k_B T)^3}{\hbar^2} g_3(\mu/k_B T) \quad (2.49)$$

$$\stackrel{2.47}{=} \frac{1}{2} U \Omega^2 \quad (2.50)$$

Das Verhalten der inneren Energie  $U(T/T_c)$  in Abb. 2.5(d) lässt sich somit auch in Einheiten des harmonischen Drucks  $\mathcal{P}(T/T_c)$  für ein gegebenes harmonisches Volumen angeben. In der kondensierten Phase ( $\mu = 0$ ) folgt weiter, dass bei gleichbleibender Temperatur die Kompressibilität  $\kappa$  des Photonengases unendlich groß wird:

$$\kappa = - \frac{1}{\mathcal{V}} \left( \frac{\partial \mathcal{P}}{\partial \mathcal{V}} \right)_{T, \mu=0}^{-1} = \infty \quad (2.51)$$

Bei Änderung des harmonischen Volumens ändert sich die Teilchenzahl, die benötigt wird, um die kritische Temperatur konstant zu halten. Da jedes weitere hinzugefügte (oder entfernte) Teilchen den Zustand der transversalen Energie  $u = 0$  be- bzw. entvölkert, wird am System keine Arbeit verrichtet. Dieses Verhalten ist prinzipiell nur in einem (nicht fluktuierenden) idealen Bosegas zu beobachten.

### Spektrale Temperatur

In der thermodynamischen Beschreibung des Photonengases wurde implizit die Temperatur des Photonengases mit der Temperatur der Farbstofflösung gleichgesetzt. Diese Annahme besitzt aber keine universelle Gültigkeit. Der in Abschnitt 2.1 betrachtete Thermalisierungsprozess überführt das Photonengas zwar in einen thermischen Gleichgewichtszustand, dieser wird im Allgemeinen aber nicht notwendigerweise durch die thermodynamische Temperatur des Wärmebades charakterisiert.

Erfüllt die Farbstofflösung die Kennard-Stepanov-Relation, strebt das Photonengas in einen Zustand, der über das detaillierte Gleichgewicht bestimmt ist. Löst man Gl. (2.20) nach  $T$  auf und setzt  $\Delta\omega = \omega_j - \omega_i$ , erhält man einen Ausdruck für die *spektrale Temperatur*  $T_{\text{spek}}$  [105]:

$$T_{\text{spek}}(\omega, \Delta\omega) = \frac{\hbar \Delta\omega}{k_B \ln \left( \frac{\alpha(\omega+\Delta\omega)f(\omega) (\omega+\Delta\omega)^3}{\alpha(\omega)f(\omega+\Delta\omega) \omega^3} \right)} \quad (2.52)$$

$$\xrightarrow{\Delta\omega \rightarrow 0} T_{\text{spek}}(\omega) = \frac{\hbar}{k_B} \left( \frac{\partial}{\partial \omega} \ln \left( z^{-1} \alpha(\omega) f(\omega)^{-1} \omega^3 \right) \right)^{-1} \quad (2.53)$$

Der Faktor  $z$  normiert dabei das Argument des Logarithmus und macht ihn dimensionslos.

Die spektrale Temperatur der organischen Farbstoffe ist in der Regel größer als die thermodynamische Temperatur ihres Lösungsmittels [117]. Die meisten Farbstoffe zeigen dabei einen deutlichen Unterschied zwischen beiden Temperaturen. Eine mögliche Erklärung dafür bietet die in der Literatur stark vertretene Annahme, dass jedes Molekül des Farbstoffs geringfügig verschieden konfiguriert ist, und es somit zu einer inhomogenen Verbreiterung der optischen Spektren kommt [118, 119]. Eine ausführliche Besprechung dieses Aspekts, auch in Bezug auf Experimente im optischen Mikroresonator, findet sich in [25]. Der in dieser Arbeit genutzte Fluorophor Rhodamin 6G weist im genutzten optischen Spektrum eine spektrale Temperatur auf, die kaum von der thermodynamischen Temperatur abweicht [27, 31]. Der Ansatz  $T_{\text{spek}}(\omega) \equiv T$  ist daher gerechtfertigt.

Die Tatsache, dass sich das Photonengas im thermischen Kontakt mit der Farbstofflösung befindet, sich die spektrale Temperatur der Photonen aber von der thermodynamischen Temperatur des Wärmebades im Allgemeinen unterscheidet, steht nicht zwangsläufig im Gegensatz zum zweiten Hauptsatz der Thermodynamik. Die Quanteneffizienz gelöster organischer Fluorophore ist immer  $\eta < 1$ , das Photonengas verrichtet demnach im Mittel einen endlichen Betrag an Arbeit am System.

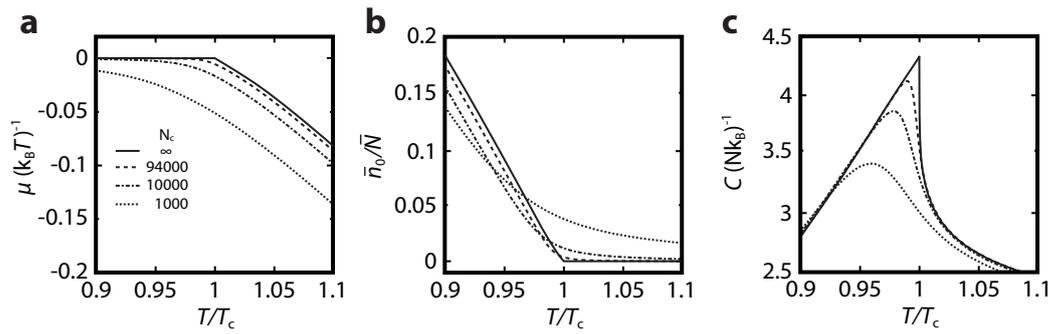
### 2.3.2 Effekte der endlichen Systemgröße

Die Bose-Einstein-Kondensation ist, wie jeder andere Phasenübergang auch, nur im thermischen Limes, d.h. in unendlich großen System, definiert. Wie in Abschnitt 1.2 diskutiert, tritt ein Phasenübergang gerade an der Stelle der Zustandsgleichung auf, bei der das chemische Potential eine Unstetigkeit aufweist. Die Zustandssumme im kanonischen Ensemble, aus der die thermodynamischen Zustandsgleichungen bestimmt werden können, lautet in Anlehnung an Gl. (1.5):

$$Y(T, V, N) = \sum_r \exp\left(-\frac{E_r(V, N)}{k_B T}\right) \quad (2.54)$$

Jeder Term auf der rechten Seite dieser Gleichung ist eine analytische Funktion, welche beliebig oft, etwa nach  $T$ , differenzierbar ist. Es lässt sich zeigen, dass nur eine unendliche Summe über analytische Funktionen eine singuläre Funktion ergeben kann, womit in einem endlichen System kein diskreter Übergang zu beobachten ist [6].

Die Näherung der Zustandsdichte des in diesem Kapitel behandelten Mikroresonators als quasi-kontinuierlich (Gl.(2.37) und Gl. (2.38)) erfüllt nicht diese strikte Bedingung einer unendlichen Summe. Es ist also zu erwarten, dass Effekte der endlichen Größe (engl.: finite-size) auch in diesem System zu finden sind. Die Auswirkungen auf den Verlauf einiger Zustandsgrößen in der Nähe des ursprünglichen Phasenübergangs sind in Abb. 2.6 skizziert. Es zeigt sich das dafür charakteristische „Verschmieren“ von Knicken und Sprüngen zu einem abgerundeten Verlauf. Die typische Größe des Photonengases in dieser Arbeit ( $\bar{N}_c = O(10^5)$  Teilchen) lässt noch einen messbarer Einfluss der endlichen Größe des Systems erwarten. Insbesondere die Reduktion der erwarteten spezifischen Wärmekapazität bei  $T = T_c$  von  $4,38 k_B$  auf  $4,11 k_B$  ist signifikant, siehe Abb. 2.6(c). Eine deutlich ausgeprägtere Auswirkung auf das Systemverhalten ist für Teilchenzahlen der Größenordnung  $\bar{N}_c = O(10^2)$  zu erwarten, wie sie etwa bei der Realisierung von Mikrokondensaten von Licht zu finden sind [99, 120].



**Abbildung 2.6:** Chemisches Potential (a), Wärmekapazität (b) und Kondensatanteil (c) als Funktion der reduzierten Temperatur für verschiedene endliche Systemgrößen. Die Begrenzung der Systemgröße führt generell zu einem Auswaschen des charakteristischen Verhaltens der Zustandsgrößen am Phasenübergang. Insbesondere für die spezifische Wärme am Phasenübergang ( $T/T_c = 1$ ) lässt sich eine signifikante Reduktion von  $4,38 k_B$  (Gl. (2.43)) auf  $4,11 k_B$  für das in dieser Arbeit untersuchte System ( $\bar{N}_c \approx 94\,000$ ) entnehmen. Grundlage dieser Daten sind numerische Berechnungen, durchgeführt mit variabler Systemgröße durch Anpassen der Fallenfrequenz über den Krümmungsradius der Spiegel.



---

## Experimente zur Thermodynamik eines idealen Bosegases aus Photonen

---

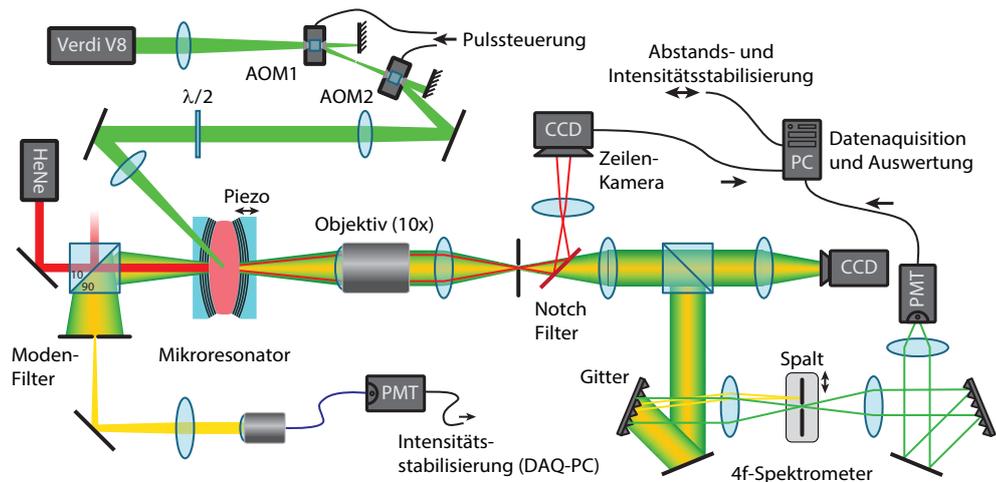
Die Einstufung des harmonisch gefangenen, zweidimensionalen Photonengases als weitgehend wechselwirkungsfreies Quantensystem aus Bosonen wird in diesem Kapitel durch Experimente zur Thermodynamik verifiziert. Der experimentell erfasste thermodynamische Bereich reicht dabei vom Regime sehr kleiner Photonenzahlen, in dem Quanteneffekte noch keine Rolle spielen, bis tief in die kondensierte Phase. Aus Messungen der Besetzungsverteilungen werden die kalorischen Ordnungsparameter extrahiert und mit den Vorhersagen für das ideale Bosegas aus Kapitel 2 verglichen.

### 3.1 Apparativer Aufbau

Der experimentelle Aufbau kann in die drei wesentlichen Bestandteile Pumpquelle, Mikroresonator und Analyseeinheit aufgeteilt werden und ist in Abb. 3.1 schematisch gezeigt. Der Farbstoff im Mikroresonator wird unter einem Winkel von  $\approx 43^\circ$  zur optischen Achse gepumpt, was das erste winkelabhängige Transmissionsmaximum der Spiegelbeschichtung ausnutzt. Der durch die Spiegel transmittierte Anteil des Photonengases wird räumlich und spektral, sowohl energie- als auch impulsaufgelöst, untersucht.

#### Farbstoffgefüllter Mikroresonator

Der Mikroresonator ist das Herzstück des Aufbaus. Er besteht aus zwei sphärisch gekrümmten ( $R = 1$  m), hochreflektiven, dielektrischen Spiegeln der Firma CRD Optics (Typ: 901-0010-0550), die typischerweise für *Cavity-Ring-Down-Spektroskopie* eingesetzt werden [121]. Die maximale Reflektivität von  $\tilde{R} > 0,999985$  wird für den zentralen Bereich um  $\lambda = 550 - 560$  nm erreicht. In der gesamten spektralen Bandbreite von 520 – 590 nm ist die Reflektivität größer als 0,9999, was einer Finesse von  $F > 30\,000$  entspricht und zur vollständigen Thermalisierung ausreichend lange Lebensdauern der Photonen im Mikroresonator garantiert. Durchgeführte Messungen zur Cavity-Ring-Down-Abklingzeit bestätigen die vom Hersteller berechneten Reflektivitäten im Rahmen der Messunsicherheit [122]. Die Herstellerangaben bezüglich der wellenlängenabhängigen Transmission der Spiegel werden genutzt, um die gemessenen spektralen Verteilungen entsprechend zu korrigieren.



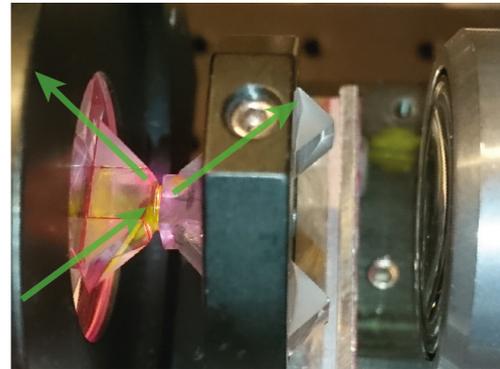
**Abbildung 3.1:** Schematischer Aufbau des Experiments zur Thermodynamik des Photonengases. Der Farbstoff im Mikroresonator wird durch das amplitudenmodulierte Pumplaserlicht angeregt. Die emittierte Mikroresonatorstrahlung wird anschließend räumlich und spektral detektiert und analysiert.

Das auftreffende Lichtfeld wird nicht direkt an der Oberfläche der dielektrischen Schichten der Resonatorspiegel reflektiert. Vorangegangene Messungen für diesen Spiegeltyp zeigten, dass das Lichtfeld im Resonator effektiv etwa 2,3 Halbwellen in die  $\lambda/4$ -Schichten des Spiegels eindringt [25]. Die superpolierten Spiegelsubstrate (Oberflächenrauigkeit  $< 1 \text{ \AA}$ ) der Spiegel liegen zunächst in marktüblicher Geometrie vor (Höhe:  $1/4''$ ; Durchmesser:  $1''$ ). Um die benötigten kleinen Spiegelabstände von  $D_0 = q\lambda_0/2n_0 \approx 1,6 \mu\text{m}$ , entsprechend einem geometrischen Abstand von  $D_{0,\text{geom}} \approx 0,7 \mu\text{m}$ , zu realisieren, werden die Spiegel zunächst in  $5 \times 5 \text{ mm}$  große Teilstücke gesägt. Ein Spiegel des Resonators wird weiter mittels eines Rotationsschleifprozesses konisch auf einen Durchmesser von ca.  $1 \text{ mm}^2$  verkleinert. Um ein streuarmses Pumpen unter einem Winkel von  $\approx 43^\circ$  zu ermöglichen, werden zunächst die Schnittflächen des Spiegelsubstrats poliert (Schleifpapier: Thorlabs Polierfilm für optische Fasern LF5P bis LF03P). Anschließend werden die Spiegelstücke mittig auf ein zusätzliches Quarzsubstrat (Höhe:  $5 \text{ mm}$ ; Durchmesser:  $1''$ ) geklebt und mit zusätzlichen Prismen versehen (Abb. 3.2), sodass ein direkter optischer Zugang gewährleistet ist. Als Klebstoff wird ein UV-aktiver Polymer (Typ: Norland Optical Adhesives NOA61) verwendet, der nach anfänglicher grober Fixierung zur Vermeidung von Lufteinschlüssen über einige Tage langsam unter Sonnenlicht aushärtet. Zum Schutz der Spiegeloberfläche während dieser Vorgänge wird diese mit einem Schutzpolymer (Typ: First Contact<sup>TM</sup>) versehen. Sowohl die Substrate als auch die Prismen sind unbeschichtet.

Um den Spiegelabstand und somit die Abschneidewellenlänge  $\lambda_0$  einstellen zu können, ist einer der Resonatorspiegel auf einem Piezo-Verschiebetisch montiert. Neben der groben, manuellen Einstellung mittels Feingewindeschraube erlaubt dieser auch die spannungsgesteuerte Feinjustage und aktive Stabilisierung in einem Bereich von  $27 \mu\text{m}$ . Auf der optischen Achse wird das Licht eines Helium-Neon-Lasers ( $\lambda_{\text{HeNe}} = 632,8 \text{ nm}$ ) eingestrahlt, für welches die Resonatorspiegel eine stark verminderte Reflektivität aufweisen. Durch die sphärische Krümmung der Spiegel kommt es zur Ausbildung kreisförmiger Interferenzmuster, deren Radien mit dem Abstand der Spiegel variieren. Die Aufnahme des Musters mit einer Zeilenkamera und die anschließende computergestützte Erkennung der Ringradien erlaubt es, eine zur Abweichung zwischen Soll- und Ist-Wert proportionale Span-

nung an den Piezo-Kristall anzulegen. Die Regelbandbreite dieser aktiven Stabilisierung ist durch die vergleichsweise große Masse der Spiegelhalterung begrenzt und beträgt ca. 10 Hz. Veränderungen des Spiegelabstands durch Temperaturschwankungen können auf diese Weise effektiv unterdrückt werden. Zur passiven Dämpfung höherfrequenter mechanischer Schwingungen ist der vollständige Resonatoraufbau auf stoßabsorbierenden Gummi-Füßen (Sorbothan-Isolatoren Typ: TL AV4) gelagert. Im Falle kleiner geometrischer Spiegelabstände  $D_0 \lesssim 1 \mu\text{m}$  sorgt zudem der direkte Kontakt der Ränder der Spiegeloberflächen für eine stark erhöhte passive Stabilität. Die insgesamt erzielte Stabilität der Abschneidewellenlänge in den hier durchgeführten Experimenten führt zu einer mittleren Abweichung vom Sollwert kleiner als 100 pm.

Als Farbstoff wird der bereits in Abschnitt 2.1.1 vorgestellte organische Fluorophor Rhodamin 6G gelöst in Ethylenglykol genutzt. Die Farbstofflösung erfüllt die Kennard-Stepanov-Relation  $B_{21}(\omega)/B_{12}(\omega) \approx \exp(-(\omega - \omega_{\text{NPL}})/k_{\text{B}}T)$  aus Abschnitt 2.1.2. Vor der Einbringung in den Mikroresonator wird die Farbstofflösung gefiltert (Porengröße: 200 nm) und so von ungelösten Rückständen bereinigt. Bei der genutzten Konzentration von  $c = 1 \text{ mmol L}^{-1}$  ist die Fluoreszenzquantenausbeute größer als 95 % [87]. Der molare Absorptionskoeffizient von Rhodamin 6G bei der Pumpwellenlänge  $\lambda = 532 \text{ nm}$  beträgt  $\alpha \approx 114\,000 \text{ mol}^{-1} \text{ cm}$  [123]. Bei einer angenommenen Filmdicke des Farbstoffs im Resonator von  $l \approx 700 \text{ nm}$  wird demnach lediglich etwa 1,8 % des einfallenden Pumplichts absorbiert. Die Temperatur des Farbstoffs entspricht in den hier gezeigten Experimenten der Raumtemperatur von  $T \approx 300 \text{ K}$ .

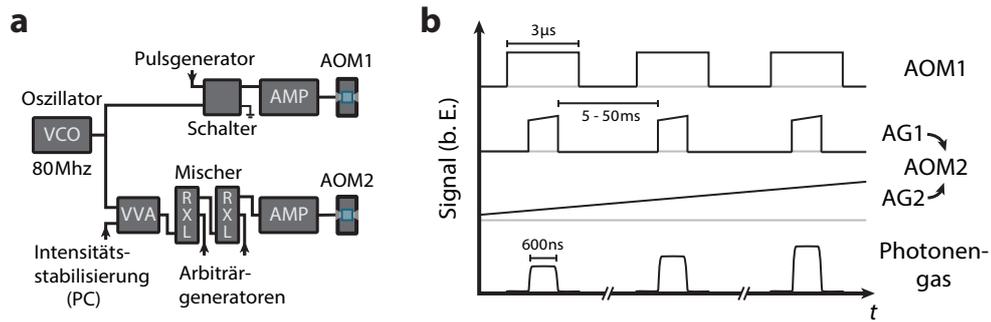


**Abbildung 3.2:** Bild des gepumpten Mikroresonators mit  $1 \text{ mm}^2 \times 1 \text{ mm}^2$  Spiegel (links),  $5 \text{ mm}^2 \times 5 \text{ mm}^2$  Spiegel (mitte) und Objektiv (rechts). Der Farbstofftropfen wird über den skizzierten Pfad gepumpt und reflektiertes sowie nicht absorbiertes Pumplicht verlässt den Resonator (grüne Pfeile).

### Pumpquelle

Als Pumpquelle der Farbstofflösung im Mikroresonator dient ein frequenzverdoppelter, diodengepumpter Nd:YAG-Laser (Typ: Coherent Verdi V8), der Licht bei einer Wellenlänge von  $\lambda_{\text{pump}} = 532 \text{ nm}$  emittiert. Insbesondere die intrinsisch gute Strahlqualität (TEM<sub>00</sub>-Moden;  $M^2 < 1.1$ ), Intensitätsstabilität ( $\pm 2 \%$ ) und das niedrige Rauschlevel ( $< 0,02 \%$  (RMS)) des Lasersystems sind in diesem Experiment von besonderem Nutzen [124]. Für die hier realisierten Teilchenzahlen ist eine Ausgangsleistung von  $\approx 0,1 - 1,5 \text{ W}$  nötig. Aufgrund von Tripletanregungen ist es nicht möglich, den organischen Farbstoff kontinuierlich mit einer zur Kondensation ausreichenden Intensität zu pumpen, siehe Abschnitt 2.1.1. Es werden daher zwei akustooptische Modulatoren (AOM) eingesetzt, um die Amplitude des Pumplichts zeitlich zu modulieren und somit einen gepulsten Betrieb zu ermöglichen. Typischerweise beträgt die Pulsdauer 400 – 1 000 ns bei einer Repetitionsrate von 50 – 400 Hz. Die Pulsdauern sind somit um mindestens zwei Größenordnungen länger als die relevanten Zeitskalen des Farbstoff-Resonator-Systems [32]. Dieses „quasi-kontinuierliche“ Pumpen kompensiert die auftretenden Verluste, sodass sich ein Gleichgewicht einstellt, das über die mittlere Teilchenzahl des Photonengases charakterisiert ist.

In Abb. 3.3 sind der Radiofrequenz-Aufbau der AOM-Treiber sowie die damit realisierten Pulssequenzen skizziert. Da mit nur einem AOM eine hinreichende Unterdrückung des Pumplichts während der



**Abbildung 3.3:** Radiofrequenz-Aufbau der AOM-Treiber (a) und Realisierung der intensitätsmodulierten Pulsfolge (b). Durch Mischen des 80 MHz Trägersignals mit zeitlich modulierten DC-Signalen kann eine Folge von Pulsen erzeugt werden, die sowohl der Akkumulation der Tripletzustände innerhalb eines Pulses entgegenwirkt (Arbiträr-generator 1), als auch die mittlere Teilchenzahl pro Puls moduliert (Arbiträr-generator 2).

Dunkelphasen nicht gewährleistet werden kann ( $\approx 1\%$  Restlicht), schneidet der vorgelagerte AOM1 zunächst einen optischen Puls der Länge  $3\ \mu\text{s}$  heraus. Neben der Einstellung der gewünschten Pulsdauer erlaubt AOM2 auch eine Intensitätsmodulation während des Pumpulses. Da das Farbstoffmolekül auch innerhalb der vergleichsweise kurzen Pulszeiten in Tripletzustände angeregt wird, führt ein Pumpuls konstanter Intensität zu einer zeitlich abfallenden Teilchenzahl im Photonengas. Diesem Effekt kann über eine geeignete, in der Zeit ansteigende, Intensität des Pumpulses entgegengewirkt werden. Weiter ist es möglich, eine Folge von Pumpulsen unterschiedlicher mittlerer Intensität zu generieren, sodass Photonengase verschiedener Teilchenzahlen in kurzer Abfolge erzeugt werden können. Die entsprechenden, von Arbiträr-Funktionsgeneratoren (Typ: Tektronix AFG3252) generierten, elektronischen Regelsignale modulieren das Radiofrequenzsignal zum Betreiben von AOM2. Zur Ansteuerung der Modulationssignale werden zwei Pulsgeneratoren (Typ: Stanford Research Systems DG645) genutzt.

Zusätzlich ist es möglich, die Teilchenzahl im Photonengas aktiv zu stabilisieren. Dazu wird zunächst der Kondensatmoden im Fernfeld mittels einer kreisförmigen Apertur auf der optischen Achse herausgefiltert und dessen Leistung mittels eines Photonenvervielfachers detektiert und schließlich mit einer Sampling-Karte (Typ: NI PCIe-6320 mit BNC-2111) am Computer digitalisiert. Ein zur Soll-Ist-Abweichung proportionales Feedback-Signal liegt an einem spannungsgesteuerten RF-Abschwächer (VVA) an, wodurch ein Regelkreis mit einer Bandbreite von ca. 10 Hz realisiert wird. Die so erfolgte Stabilisierung dient der Kompensation sowohl langsamer Drifts der Position des Pumpstrahls im Resonator als auch der Degradation der Fluoreszenzeigenschaften des Farbstoffs. Der Pumpstrahl wird durch eine Linse der Brennweite  $f = 40\ \text{cm}$  in die Resonatorebene fokussiert. Die Farbstofflösung wird so auf einer näherungsweise kreisrunden Fläche mit Durchmesser  $d_{\text{pump}} \approx 150\ \mu\text{m}$  vergleichsweise homogen angeregt. Da die Spiegeltransmission stark polarisationsabhängig ist, kann der in den Resonator eingekoppelte Anteil des Pumplichts mit einer  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte zusätzlich auch manuell voreingestellt werden.

### Analyseeinheiten

Die Analyse der ausgekoppelten Resonatoremision erfolgt sowohl räumlich als spektral aufgelöst. Da im Rahmen dieser Arbeit lediglich Gleichgewichtsverteilungen untersucht werden, ist eine zeitaufgelöste

Detektion der gepulsten Emission nicht notwendig. Die Aufnahme räumlicher und spektraler Information erfolgt als Mittelung über die Emission eines bzw. mehrerer vollständiger Pulse. Zur Überprüfung des benötigten konstanten Intensitätsverlaufs der Emission ist es jedoch zusätzlich möglich, das primär zur Intensitätsstabilisierung genutzte Signal des Photonenvervielfachers zu verwenden.

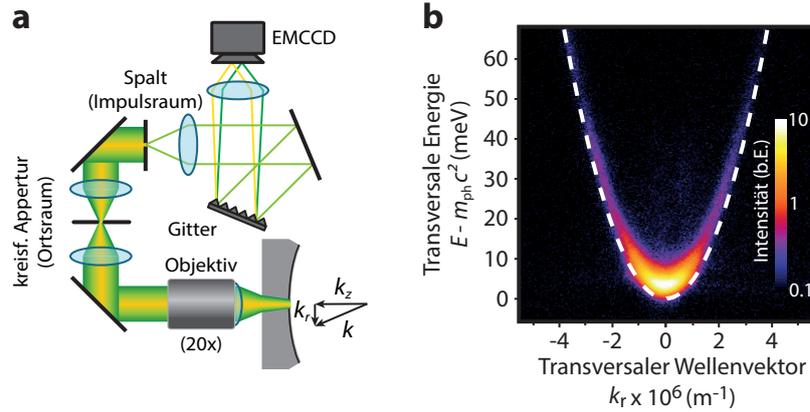
Die stark divergente Resonatorstrahlung wird zunächst mit einem Mikroskopobjektiv (Typ: Mitutoyo M-Plan Apo 10x; Arbeitsabstand: 33,5 mm) kollimiert und auf eine Apertur abgebildet. Nach erfolgter räumlicher Filterung kann das rekollimierte Licht mittels Strahlteilern und Klappspiegeln zur weiteren Analyse aufgeteilt werden. Zur Justage und Beurteilung des Photonengases wird das emittierte Lichtfeld an mehreren Stellen auf Kamerachips abgebildet, wie exemplarisch in Abb. 3.1 gezeigt. Die Bestimmung der Abschneidewellenlänge geschieht über ein kommerzielles, fasergekoppeltes Spektrometer (Typ: m.u.t. Tristan light exUV/VIS/NIR-U-H; Auflösungsvermögen:  $\approx 2$  nm). Spektrometertypen mit verbautem Eintrittsspalt können prinzipbedingt die hohen Transversalzustände des Photonengases aufgrund der zunehmenden Divergenz nicht korrekt wiedergeben. Zudem ist die emittierte Lichtleistung im gepulsten Betrieb ( $\approx 10^{-8}$  W) zu klein, um die geringe Besetzung der energetisch höher liegenden Zustände ausreichend sensitiv aufzulösen. Für die Bestimmung der breitbandigen spektralen Verteilung der Resonatoremission kommt hier ein selbstgebautes Spektrometer in 4f-Bauweise zum Einsatz. Das kollimierte Licht der Mikroresonatoremission wird zunächst mit einem holografischen Gitter (1 200 Striche/mm) spektral aufgefächert und mittels einer Linse ( $f = 100$  mm) auf einen beweglichen Spalt abgebildet. Diese Anordnung gleicht einer Fourier Transformation und bildet die Frequenzen des Lichtfeldes auf transversale Positionen in der Spaltebene ab und dient somit als Monochromator. Nach Passieren des Spaltes bildet die inverse Anordnung bestehend aus einer weiteren Linse sowie einem baugleichen Gitter das Licht auf einen ortsfesten Photonenvervielfacher (Typ: Hamamatsu H10721-210) ab. Bei gleichförmigem Verfahren des Spalts in der Brennebene lässt sich so die spektrale Verteilung als Zeitspur aufnehmen. Aufgrund der hohen Empfindlichkeit des Detektors ist es möglich, mit diesem Aufbau auch die sehr gering besetzten hohen Transversalenergien bis  $u \approx 4 k_B T$  aufzulösen. Die Besetzung noch höher liegender transversaler Energiezustände lässt sich mit dem hier verwendeten Aufbau nicht vermessen, da die entsprechenden großen Divergenzen des Lichts nicht mehr vollständig von den Optiken eingefangen werden können. Die spektrale Auflösung des hier realisierten 4f-Spektrometers beträgt in etwa 0,5 nm.

## 3.2 Dispersionsrelation des Photonengases

Eines der Grundprinzipien der Bose-Einstein-Kondensation von Photonen im optischen Mikroresonator ist das Auftreten einer nicht verschwindenden effektiven Masse der Photonen. Der nicht-triviale energetische Grundzustand des zweidimensionalen Systems bedingt weiter einen quadratischen Verlauf der Energie-Impuls-Beziehung der Resonatorphotonen, vgl. Abschnitt 2.2.1. Die Dispersionsrelation des massiven Photonengases lässt sich experimentell über eine impuls aufgelöste Spektroskopie vermessen [125].

### Positions- und impuls aufgelöste Spektroskopie

In Abb. 3.4 ist der experimentelle Aufbau des dazu eingesetzten Spektrometers gezeigt. Das vom Mikroresonator emittierte Licht wird zunächst durch ein Objektiv (Typ: Mitutoyo M-Plan Apo 20x) kollimiert und auf eine kreisförmige Apertur abgebildet (Durchmesser:  $\approx 0,5$  mm). Die so vorgenommene Filterung im Ortsraum beschränkt den Anteil des transmittierten Lichts auf den Bereich in einem Radius von  $\approx 15$   $\mu$ m um das Fallenzentrum. Effektiv werden hierdurch die Anteile hoher Transversalmoden



**Abbildung 3.4:** (a) Aufbau der positions- und impulsaufgelösten Spektroskopie und (b) gemessene Dispersionsrelation der Resonatorphotonen. Im Ortsraum wird zunächst der analysierte Teil der Resonatoremision auf die inneren  $\varnothing 30 \mu\text{m}$  beschränkt um den quadratischen Verlauf der Dispersionsrelation besser herauszuarbeiten. Die Unsicherheiten in der Bestimmung von Impuls und Energie werden durch die Breite der gestrichelten Linie wiedergegeben, welche dem theoretischen Verlauf gemäß Gl. (3.1) entspricht.

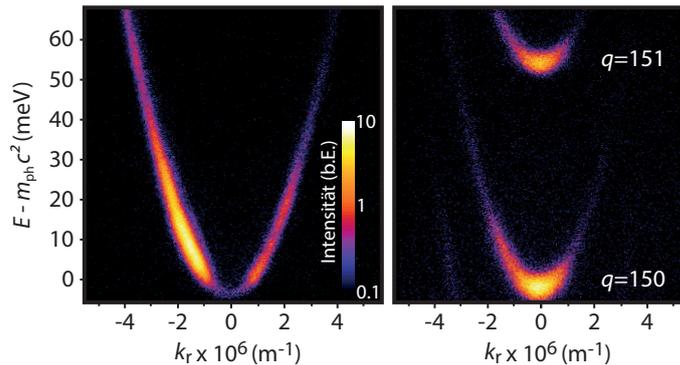
verringert, im Gegenzug die Auflösung des Spektrometers jedoch verbessert, was sich im Hinblick auf die Messung der Dispersionsrelation als vorteilhaft erweist.

Nach erfolgter Rekollimation wird das Licht erneut gefiltert, diesmal jedoch im Impulsraum. Durch Abbilden des dazu genutzten vertikalen Spalts ist die vertikale Achse als Impulsachse festgelegt. Die horizontale Komponente (Spaltbreite  $\approx 50 \mu\text{m}$ ) wird mittels eines holografischen Gitters (2 400 Striche/mm) in ihre Frequenzanteile aufgespalten. Abgebildet entspricht demnach die horizontale Achse der Energie. Zur Bildaufnahme wird eine elektronenvervielfachende CCD-Kamera (EMCCD; Typ: Andor iXon-Ultra A-DU897-UCS-BV) genutzt, die auch bei sehr geringen Lichtleistungen ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis aufweist. Mit dieser ist es möglich, auch die sehr kleine Besetzung hoch angeregter Transversalmoden ortsaufgelöst zu detektieren.

### Vermessung der Dispersionsrelation

Zur Vermessung der Dispersionsrelation wird der Mikroresonator kontinuierlich mit kleiner Leistung gepumpt ( $P_{\text{pump}} \approx 5 \text{ mW}$ ), wodurch ein Photonengas weit unterhalb der kritischen Teilchenzahl erzeugt wird. Die Abschneidewellenlänge  $\lambda_0 = 604 \text{ nm}$  wird zusätzlich so gewählt, dass die Spiegeltransmission möglichst groß wird. In Abb. 3.1(b) ist die so aufgenommene Energie-Impuls-Beziehung des zweidimensionalen Photonengases gezeigt. Die beobachtete Dispersionsrelation entspricht in guter Näherung der eines massiven Teilchens mit einer effektiven Masse  $m_{\text{ph}} = \hbar\omega_0 n^2 / c^2$  des Grundzustands unter Annahme schwacher Kopplung zwischen Farbstoffmolekülen und dem Lichtfeld. Hierbei entspricht  $\hbar\omega_0$  der Photonenenergie im Grundzustand des Resonators. Die Dispersionsrelation folgt dem in Abschnitt 2.2.1 besprochenen Verlauf (gestrichelte Linie):

$$E(k_r) \approx m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n^2} + \hbar^2 k_r^2 / 2m_{\text{ph}} \quad \text{mit} \quad k_r^2 = \frac{E^2 n^2}{\hbar^2 c^2} - k_z^2 \quad (3.1)$$



**Abbildung 3.5:** Impuls aufgelöste Spektroskopie für realisierte Photonengase abseits des zweidimensionalen idealen Bosegases im thermischen Gleichgewicht. Pumpen des Mikroresonators abseits des Fallenzentrums mit gleichzeitig schwachem Kontakt zum Farbstoffreservoir führt zu einer asymmetrischen Besetzung der Eigenzustände (links). Die Vergrößerung des Spiegelabstands auf  $q \approx 150$  führt zur Besetzung vieler Longitudinalmoden, von denen hier exemplarisch zwei benachbarte gezeigt werden (rechts).

Die Kalibrierung der Impulsachse erfolgt über die Relation  $k^2 = k_r^2 + k_z^2$  und Anwendung der elementaren Abbildungsgleichung. Die Energieachse wurde mit Hilfe des kommerziellen Spektrometers kalibriert.

Die gezeigte Messung entspricht dem zweidimensionalen Photonengas unter Gleichgewichtsbedingungen mit einer longitudinalen Halbwellenzahl von  $q = 8$ . Die impuls aufgelöste Spektroskopie lässt sich ebenfalls auf Systeme anwenden, die nicht im thermischen Gleichgewicht sind. Abbildung 3.5 zeigt Messungen der Dispersion für eben solche experimentellen Systemparameter. In Teilabbildung (a) wird der Mikroresonator abseits des Fallenzentrums gepumpt. Der Kontakt zum Farbstoffreservoir ist hier zu gering, um dann noch eine ausreichende Thermalisierung zu gewährleisten [32]. Statt der zu erwartenden symmetrisch um  $k_r = 0$  liegenden Verteilung führt das gezielte Anregen hoher Transversalmoden zu einer Nichtgleichgewichtsbesetzung der Eigenzustände. In Teilabbildung (b) wird der Spiegelabstand auf  $q \approx 150$  Halbwellen vergrößert, sodass der freie Spektralbereich so weit absinkt, dass die Zweidimensionalität des Systems nicht mehr gewahrt ist. Alle innerhalb der Fluoreszenzbandbreite liegenden Longitudinalmoden bilden ihre eigene transversale Substruktur aus. Die Besetzung der Eigenzustände ist dann aber nicht mehr nur durch die Bose-Einstein-Statistik vorgegeben, sondern wird zunehmend durch die Fluoreszenzeigenschaften des Farbstoffmediums (Emissionsspektrum) bestimmt. Insbesondere ist das chemische Potential bei einer solchen Besetzung mehrerer Longitudinalmoden nicht mehr wohl definiert.

### 3.3 Kalorimetrie eines Bose-Einstein-kondensierten Photonengases

In diesem Abschnitt werden Messungen zur Kalorimetrie des Photonengases im farbstoffgefüllten Mikroresonator vorgestellt. Dabei wird das Temperaturverhalten der thermodynamischen Zustandsgrößen Besetzungsgrad, innere Energie, spezifische Wärme sowie Entropie beim Übergang in die Bose-Einstein-kondensierte Phase untersucht. Obgleich die genannten Zustandsgrößen in der kondensierten Phase, mit Ausnahme des Besetzungsgrades, einen kleineren numerischen Wert anstreben, eignen sich diese

Größen dennoch als Ordnungsparameter des Phasenübergangs. Gemäß der Einordnung der Bose-Einstein-Kondensation als Phasenübergang zweiter Ordnung (vgl. Abschnitt 1.2) wird ein kontinuierlicher Verlauf dieser Ordnungsparameter gemäß Abschnitt 2.3.1 erwartet.

Um einen möglichst großen Temperaturbereich  $T/T_c$  abzudecken und diesen gleichzeitig sehr kleinschrittig zu vermessen, wird ein vergleichsweise komplexes Pumpschema genutzt. Viermal pro Sekunde wird eine Folge aus 100 Pumpimpulsen mit ansteigender Intensität erzeugt, welcher jeder für sich eine andere mittlere Teilchenzahl einstellt. Jeder Puls ist dabei  $\approx 400$  ns lang und äquidistant verteilt mit einem Pulsabstand von  $\Delta t = 1/400$  Hz = 2,5 ms. Die so erzielten mittleren Teilchenzahlen im Mikroresonator reichen von  $\approx 30\,000$  bis  $\approx 550\,000$  Photonen innerhalb von 250 ms, was einer minimal erreichten reduzierten Temperatur von  $T/T_c \approx 0,4$  entspricht. Mit dieser Pumpsequenz ist es möglich, durch nur eine Messreihe (Dauer:  $\approx 100$  s) einen großen Bereich reduzierter Temperaturen abzudecken. Diese Methode wurde gewählt, da eine aufeinanderfolgende Vermessung einzelner mittlerer Teilchenzahlen aus Stabilitätsgründen nicht mit der hier notwendigen hohen Präzision möglich ist. Die für diese Messung genutzte Abschneidewellenlänge beträgt  $\lambda_0 = 580$  nm bei einer Halbwellenzahl von  $q = 8$ .

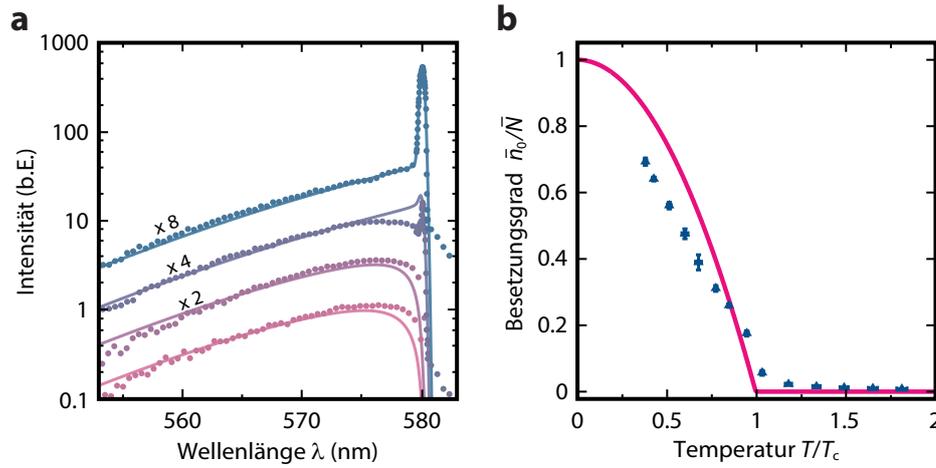
### 3.3.1 Spektrale Intensitätsverteilung und Besetzungsgrad

Experimentelle Grundlage der hier durchgeführten Kalorimetrie des Photonengases sind spektrale Besetzungszahlverteilungen, aus denen sich die vollständige thermodynamische Information extrahieren lässt. Abbildung 3.6(a) zeigt exemplarisch einige der mittels des 4f-Spektrometers aufgenommenen Spektren. Durch Anpassen der theoretischen Verteilungen gemäß Gl. (2.35) für  $T = 300$  K, gefaltet mit einer dem Auflösungsvermögen entsprechenden Gaußverteilung, lässt sich die mittlere Photonenzahl im Resonator bestimmen:  $\bar{N} \approx \{40\,000; 55\,000; 95\,000; 140\,000\}$ , entsprechend einer reduzierten Temperatur  $T/T_c \approx \{1,52; 1,30; 0,99; 0,82\}$  (von unten nach oben). Dies entspricht Realisierungen des Photonengases unterhalb bzw. knapp oberhalb der kritischen Teilchenzahl  $\bar{N}_c \approx 94\,000$  sowie weit in der kondensierten Phase. Die gemessenen Spektren zeigen eine gute Übereinstimmung mit der erwarteten Bose-Einstein-Verteilung. Lediglich im Bereich kleiner transversaler Energien zeigen sich leichte Abweichungen, die durch eine unvollständige Reabsorption zu erklären sind. Die alleinige makroskopische Besetzung des Grundmoden lässt sich mit dem verwendeten Spektrometer nicht auflösen ( $\hbar\Omega \approx hc/40$  pm), wurde in früheren Arbeiten aber bereits bestätigt [34], siehe dazu auch Abb. 2.4(a).

Die mittlere Teilchenzahl  $\bar{N}$  lässt sich aus den Spektren durch Integration über alle Moden entnehmen. Dabei ist zu beachten, dass trotz der großen spektralen Bandbreite, in der die Sensitivität des Spektrometers ausreicht, um die geringe Besetzung der hohen Transversalmoden aufzulösen, nicht die vollständige Verteilung detektiert wird:

$$\bar{N}_{\text{det}} = \int_0^{4k_B T} n_{T,\mu}(u) du \approx 0,95\bar{N} \quad (3.2)$$

Die 5 % der hochenergetischsten Photonen der Transversalmoden können demnach nicht gemessen werden, werden jedoch im Zuge der Auswertung numerisch berücksichtigt. Abbildung 3.6 zeigt den Kondensatanteil  $\bar{n}_0/\bar{N}$  als Funktion der reduzierten Temperatur  $T/T_c = \sqrt{\bar{N}_c/\bar{N}}$ . Die Daten aus 100 Einzelspektren wurden hier zu 14 Messpunkten zusammengefasst. Der größte experimentell erreichte Besetzungsgrad beträgt  $\bar{n}_0/\bar{N} \approx 84$  %. Die bestimmten Besetzungsgrade liegen mit abnehmender Temperatur leicht unterhalb der zu erwartenden, parabelförmigen Kurve nach Gl. (2.41). Dieses Verhalten ist damit zu erklären, dass die Transversalmoden im kondensierten Bereich nicht vollständig sättigen [26, 126]. Für stark kondensierte Systeme (typ.  $\bar{n}_0/\bar{N} > 60$  %) lässt sich bereits eine zusätzliche makroskopische



**Abbildung 3.6:** Spektrale Intensitätsverteilung und Kondensatanteil. (a) Die gemessenen Spektren (Punkte) stimmen über einen weiten Bereich mit der erwarteten Bose-Einstein-Verteilung für  $T = 300$  K (Linien) überein. Zur besseren Sichtbarkeit sind die Spektren vertikal verschoben. (b) Aus der spektralen Verteilung lässt sich der Kondensatanteil  $\bar{n}_0/\bar{N}$  bestimmen und gegen die reduzierte Temperatur  $T/T_c$  auftragen. Die gemessenen Daten weichen im Bereich niedriger Temperaturen leicht von der Erwartung  $\bar{n}_0/\bar{N} = 1 - (T/T_c)^2$  ab.

Besetzung der kleinsten Transversalmoden beobachten. Eine mögliche Ursache dieses Verhaltens ist eine thermo-optisch induzierte, zeitlich retardierte Wechselwirkung, deren Ursache die in Abschnitt 2.1.1 diskutierten nichtstrahlenden Desaktivierungsprozesse innerhalb der Farbstofflösung sind<sup>1</sup> [126]. Der in Abschnitt 2.3.2 diskutierte Einfluss der endlichen Systemgröße führt in dieser Darstellung zu keinen signifikanten Abweichungen.

### 3.3.2 Innere Energie, spezifische Wärme und Entropie

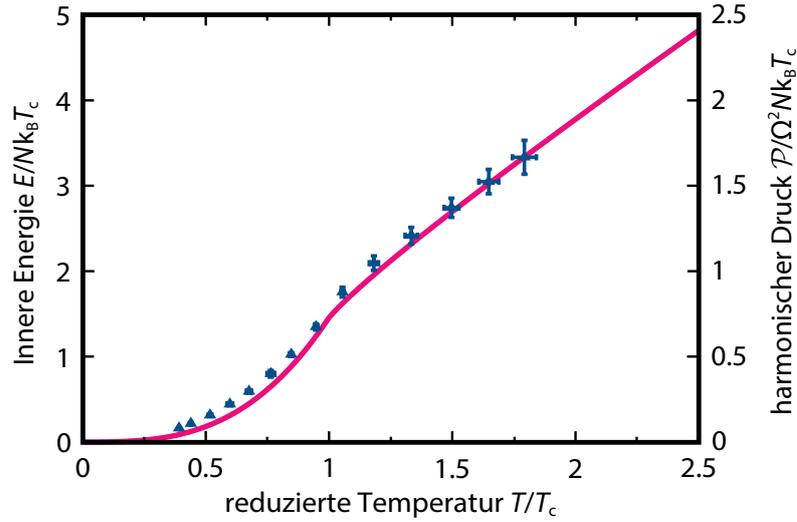
#### Innere Energie und harmonischer Druck

Ausgehend von den gemessenen spektralen Verteilungen  $n_{\text{exp}}(\lambda)$  lassen sich die weiteren thermodynamischen Zustandsgrößen ermitteln. Die mittlere Energie des Photonengases im Mikroresonator ergibt sich durch Integration über die Besetzungsverteilung. Im Sinne der Zweidimensionalität des Photonengases ist es notwendig, die Energie des transversalen Grundzustands  $\hbar\omega_0 = hc/\lambda_0$  als Nullpunkt der Verteilung anzusetzen. Man erhält somit für die gesamte innere Energie des Systems:

$$E \approx a \times \int_{550 \text{ nm}}^{580 \text{ nm}} n_{\text{exp}}(\lambda) hc \left( \frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_0} \right) d\lambda \quad (3.3)$$

Der Faktor  $a$  entspricht der Extrapolation auf den spektralen Bereich unterhalb von 550 nm, deren Besetzung nicht vom Spektrometer detektiert werden kann. Geht man von einer weiterhin Boltzmann-artigen Verteilung in diesem Bereich aus, lässt sich die Energie der nach Gl. (3.2)  $\approx 5\%$  energetischsten

<sup>1</sup> Die Untersuchung dieser Effekte ist Bestandteil aktueller Forschungsarbeiten. Die bisherigen diesbezüglichen Erkenntnisse sind im Anhang A dieser Arbeit zusammengefasst.



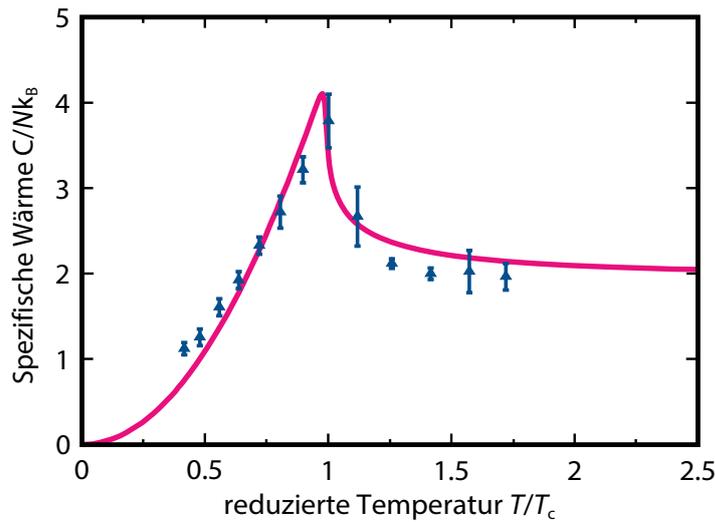
**Abbildung 3.7:** Innere Energie  $E$  pro Photon normalisiert auf die charakteristische Energie  $k_B T_c$  als Funktion der reduzierten Temperatur  $T/T_c$ . Die aus den gemessenen Spektren ermittelte Energie (Dreiecke) zeigt eine gute Übereinstimmung mit der Erwartung für das ideale Bosegas (durchgezogene Linie). Der Phasenübergang äußert sich im Abknicken des Verlaufs bei  $T = T_c$ . Die innere Energie ist verknüpft mit dem harmonischen Druck  $\mathcal{P} = (1/2)\Omega^2 E$ , siehe Abschnitt 2.3.1.

Photonen analytisch bestimmen. Man erhält dann:

$$a = \frac{E}{E(\lambda > 550 \text{ nm})} = \frac{\int_0^\infty n_{T,\mu}(u) u \, du}{\int_{hc/580 \text{ nm}}^{hc/550 \text{ nm}} n_{T,\mu}(u) u \, du} \approx 1,19 \quad (3.4)$$

In Abb. 3.7 ist die aus den experimentell bestimmten Spektren extrahierte innere Energie pro Teilchen  $E/N$  in Einheiten von  $k_B T_c$  gegen die reduzierte Temperatur  $T/T_c$  aufgetragen. Nach Abschnitt 2.3.1 entspricht dies nicht nur der kalorischen Zustandsgleichung  $E = E(T/T_c)$ , sondern auch der thermischen Zustandsgleichung  $\mathcal{P} = \mathcal{P}(T/T_c)$  mit dem harmonischen Druck  $\mathcal{P} = (1/2)\Omega^2 E$ . Analog zur Auswertung des Besetzungsgrades wurden die 100 Einzelspektren zu 14 Messpunkten zusammengefasst. Die Daten zeigen eine gute Übereinstimmung mit dem für das zweidimensionale, harmonisch gefangene ideale Bosegas erwarteten Verlauf (durchgezogene Linie). Im Bereich hoher Temperaturen skaliert die Energie linear mit der Temperatur, entsprechend der klassischen Maxwell-Boltzmann-Statistik. Mit Erreichen der Kondensationsschwelle ( $T = T_c$ ) knickt die Kurve ab und fällt in der kondensierten Phase gemäß Gl. (2.42) proportional zu  $(T/T_c)^2$  ab.

Die bereits in der Betrachtung des Besetzungsgrades (Abb. 3.6(b)) verzeichnete Abweichung der Messwerte von den Erwartungen entsprechend der Theorie des idealen Bosegases ist auch bei der inneren Energie im Bereich kleiner reduzierter Temperaturen zu beobachten. Aufgrund der unvollständigen Sättigung der energetisch niedrigen Transversalmoden ist die innere Gesamtenergie des Photonengases in der kondensierten Phase nicht konstant. Die Energie pro Teilchen bleibt somit auch für  $(T/T_c) \rightarrow 0$  von Null verschieden:  $E/N \rightarrow > 0$  für  $T_c \rightarrow \infty$ . Im Sinne des harmonischen Druckes  $\mathcal{P}$  würde dies auch eine endliche Kompressibilität  $\kappa$  des Photonengases implizieren.



**Abbildung 3.8:** Spezifische Wärme  $C$  pro Photon als Funktion der reduzierten Temperatur  $T/T_c$ . Am Phasenübergang zeigt der Verlauf ein gezacktes Verhalten ähnlich des  $\lambda$ -Übergangs von flüssigem  $^4\text{He}$ . Der Maximalwert beträgt  $C(T_c)/N = 3,8 \pm 0,3 k_B$  und entspricht somit den Erwartungen für ein zweidimensionales, harmonisch gefangenes ideales Bosegas mit einer kritischen Teilchenzahl von  $\bar{N}_c \approx 94\,000$  (durchgezogene Linie). Im Bereich hoher Temperaturen nähert sich die spezifische Wärme dem erwarteten Wert von  $2 k_B$  pro Teilchen.

### Spezifische Wärme

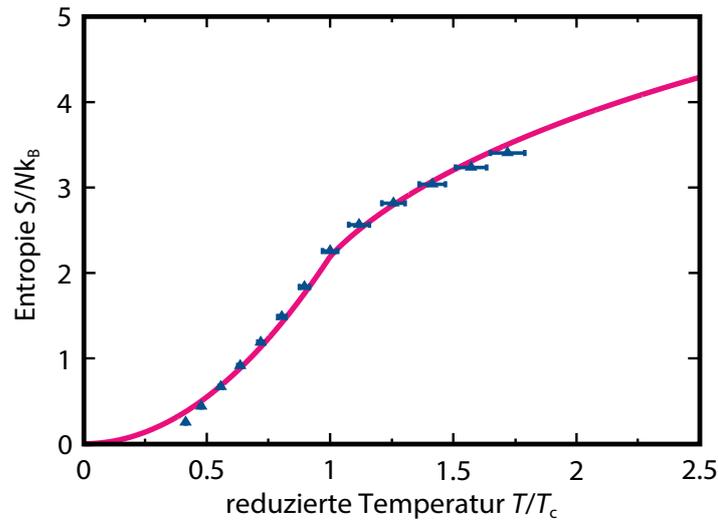
Aus der inneren Energie lässt sich durch Differentiation die Wärmekapazität pro Photon  $C/N$  bestimmen:

$$C = T \left( \frac{\partial S}{\partial T} \right)_V = \frac{\partial E}{\partial T} \quad (3.5)$$

$$= k_B \frac{\partial (E/k_B T_c)}{\partial (T/T_c)} \quad (3.6)$$

Die so erhaltenen Daten sind in Abb. 3.8 zusammen mit dem erwarteten Verlauf für ein System der endlichen Größe  $\bar{N}_c = 94\,000$  aufgetragen. Der bereits in der inneren Energie als Knick ausgeprägte Phasenübergang bei  $T = T_c$  äußert sich hier als  $\lambda$ -förmiger Anstieg.

Im Bereich hoher Temperaturen nähert sich die spezifische Wärme dem Grenzwert  $2 k_B$  pro Teilchen. Dieses entspricht den zwei kinetischen ( $k_x, k_y$ ) und zwei potentiellen ( $x, y$ ) Freiheitsgraden, die nach dem Äquipartitionstheorem jeweils mit  $k_B/2$  beitragen. Die gemessene spezifische Wärme am Phasenübergang beträgt  $C(T_c)/N = 3,8 \pm 0,3 k_B$  und entspricht damit innerhalb der Fehlergrenzen dem erwarteten Wert  $4,1 k_B$  für das System endlicher Größe, siehe Abschnitt 2.3.2. In der kondensierten Phase  $T < T_c$  fällt die spezifische Wärme für sinkende Temperaturen monoton ab. Bei  $T/T_c \approx 0,7$  wird der klassische Wert von  $2 k_B$  unterschritten und strebt gegen Null für  $T_c \rightarrow \infty$ , wie es nach dem dritten Hauptsatz der Thermodynamik zu erwarten ist. Physikalisch bedeutet dies, dass die Temperaturverringerung, die nötig ist, um dem System eine feste Energiemenge zu entziehen, immer größer wird.



**Abbildung 3.9:** Entropie  $S$  pro Photon als Funktion der reduzierten Temperatur  $T/T_c$  (Dreiecke) zusammen mit dem theoretisch erwarteten Verlauf für das ideale Bosegas (durchgezogene Linie). Die Entropie wird monoton kleiner für sinkende Temperaturen und erreicht einen Minimalwert von  $\approx 0,2 k_B$  bei den kleinsten experimentell erreichten reduzierten Temperaturen.

## Entropie

Die Entropie des Photonengases lässt sich schließlich durch Integration über die spezifische Wärme bestimmen:

$$S(T) = \int_0^T \frac{C(T')}{T'} dT' \quad (3.7)$$

$$\rightarrow S(T/T_c) = \int_{0,4}^{T/T_c} \frac{C(T/T_c)}{T/T_c} dT/T_c + S_{\text{konst}} \quad (3.8)$$

Abbildung 3.9 zeigt Messdaten und den erwarteten Verlauf gemäß der Theorie des idealen Bosegases. Da für  $T/T_c < 0,4$  die spezifische Wärme nicht bestimmt wurde, enthält die Entropie einen freien Parameter  $S_{\text{konst}}$  entsprechend der Integrationskonstante. Dieser wurde so angepasst, dass gemessene Daten und theoretischer Verlauf eine gute Übereinstimmung zeigen. Damit bleibt ein möglicher Einfluss der unvollständigen Sättigung der transversalen Modenbesetzung unberücksichtigt.

Die gemessene Entropie fällt für sinkende Temperaturen monoton ab und erreicht einen Wert von  $\approx 0,2 k_B$  für die kleinste erreichte reduzierte Temperatur<sup>2</sup>. Der gezeigte Verlauf ist in Übereinstimmung mit der Erwartung nach dem dritten Hauptsatz der Thermodynamik  $S \rightarrow 0$  für  $(T/T_c \rightarrow 0)$ .

Die Schlussfolgerung aus den in diesem Kapitel gezeigten Messungen ist, dass das Photonengas im farbstoffgefüllten Mikroresonator einem idealen Bosegas sehr nahe kommt. Die gemessenen kalorischen Zustandsgrößen zeigen über einen großen Bereich im Rahmen der Messgenauigkeit eine gute Übereinstimmung mit den Erwartungen nach der Theorie des wechselwirkungsfreien zweidimensionalen Bosegases

<sup>2</sup> Die Entropie pro Teilchen wurde auch in atomaren zweidimensionalen Bosegasen untersucht, wobei ein Wert von minimal  $0,06 \pm 0,01 k_B$  gemessen werden konnte [66].

in einer harmonischen Falle. Während das Photonengas im Bereich hoher reduzierter Temperaturen das Verhalten eines klassischen Gases zeigt, ist der Einfluss der Quantenentartung für steigende Teilchendichten deutlich zu erkennen. Das kritische Verhalten am Phasenübergang zeigt sich in allen beobachteten Größen, insbesondere jedoch in der spezifischen Wärme, deren spitzer Verlauf stark an den  $\lambda$ -Übergang in  $^4\text{He}$  erinnert. Die Auswertung der spektralen Besetzungsverteilung erlaubt eine im Vergleich zu den in Experimenten mit atomaren Bosegasen verwendeten Methoden deutlich präzisere Betrachtung des Verhaltens am Phasenübergang [49, 50, 66], vgl. auch Abschnitt 1.4. Zudem erlauben insbesondere die Ergebnisse zur spezifischen Wärmekapazität des Photonengases eine quantitative Beurteilung des Einflusses von Effekten der endlichen Systemgröße.



---

## Experimente zur Bestimmung der Korrelationen erster Ordnung

---

Der Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat zeigt sich besonders eindrucksvoll in den Korrelationseigenschaften des Bosegases, wie schon in Abschnitt 1.3 am Beispiel atomarer Systeme diskutiert. Wie für die kalorischen Ordnungsparameter wird ebenso für die Korrelationen erster Ordnung ein stetiger Übergang vom klassisch thermischen zum quantenentarteten Regime erwartet. Für Teilchenzahlen weit unterhalb des kritischen Wertes zur Kondensation ist das Photonengas durch die Einteilcheneigenschaften charakterisiert. So ist die Reichweite der räumlichen Korrelationen durch die Ausdehnung des thermischen Wellenpakets eines Teilchens bestimmt. Diese ist durch die thermische de Broglie Wellenlänge gegeben und nimmt bei Raumtemperatur Werte der Größenordnung  $\lambda_{\text{th}} \approx 1,5 \mu\text{m}$  an. Die longitudinale Korrelationszeit thermischer Emitter lässt sich über die thermische Energie zu  $\tau_{\text{th}} \approx \frac{\hbar}{k_{\text{B}}T} \approx \mathcal{O}(10^2 \text{ ps})$  abschätzen [127]. Eine vollständige Charakterisierung der thermischen Korrelationen sollte somit mittels optischer Interferenzexperimente möglich sein.

Für den kondensierten Bereich erwartet man, dass die makroskopisch besetzte Einteilchenwellenfunktion des Grundzustands zu langreichweitiger Ordnung führt, sowohl räumlich als auch zeitlich. Für das gefangene Photonengas konnte dieses experimentell bereits in früheren Arbeiten gezeigt werden [27, 33, 56], für die räumlichen Korrelationen jedoch lediglich phänomenologisch [27] (siehe auch Abb. 1.9) bzw. in einem Nichtgleichgewichtssystem [56]. Die zeitliche Phasenkohärenz des Kondensats wurde im Rahmen einer früheren Dissertation [34], siehe auch [33], mittels Schwebungsmessungen der Emission des Photonenkondensats mit einem phasenstabilen Farbstofflaser untersucht.

In diesem Kapitel wird zunächst die Kohärenzfunktion erster Ordnung  $g^{(1)}(r, r', t, t')$  des zweidimensionalen Photonengases im Hinblick auf den in dieser Arbeit verwendeten, invertierenden Interferometeraufbau entwickelt. Die darauf folgende Präsentation und Diskussion der experimentell erzielten Ergebnisse der Interferenzexperimente zeigen eine gute Übereinstimmung mit den theoretischen Erwartungen.

### 4.1 Phasenkorrelationen des idealen zweidimensionalen Photonengases in einer Falle

In diesem Abschnitt wird die Theorie zur Kohärenz erster Ordnung des idealen zweidimensionalen Photonengases in einer harmonischen Falle entwickelt. Für den durch die klassische Boltzmann-Statistik

beschriebenen Bereich lassen sich sowohl für die zeitliche als auch für die räumliche Domäne analytische Lösungen finden. Im kondensierten Bereich ist dagegen lediglich eine numerische Berechnung der erwarteten Verläufe möglich.

#### 4.1.1 Interferometrische Bestimmung der Kohärenz, räumliche Intensitätsverteilung und Phasenraumdichte

Die quantisierten Feldoperatoren  $\hat{\Psi}^\dagger(\vec{r}, t)$ ,  $\hat{\Psi}(\vec{r}, t)$  des harmonisch gefangenen Photonengases lassen sich in den Eigenfunktionen des harmonischen Oszillators  $\psi_n^*(\vec{r})$ ,  $\psi_n(\vec{r})$  mit den Operatoren  $\hat{a}_n^\dagger$ ,  $\hat{a}_n$  zur Erzeugung bzw. Vernichtung eines Photons im Moden  $n$  entwickeln [62]:

$$\hat{\Psi}^\dagger(r, t) = \sum_n \psi_n^*(r) e^{\frac{i}{\hbar} E_n t} \hat{a}_n^\dagger \quad \text{und} \quad \hat{\Psi}(r', t') = \sum_m \psi_m(r') e^{-\frac{i}{\hbar} E_m t'} \hat{a}_m \quad (4.1)$$

Drückt man die Korrelationsfunktion erster Ordnung  $G^{(1)}(r, r', t, t')$  über die Fouriertransformierte der Wignerfunktion  $W(p, q)$  aus, siehe Abschnitt 1.3, erhält man mit Gl. (4.1):

$$\begin{aligned} G^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}', t, t') &= \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\vec{k} \int d\vec{r}'' e^{i\vec{k}[(\vec{r}-\vec{r}')-\vec{r}'']} \\ &\quad \cdot \sum_{m,n} \psi_n^*\left(\frac{\vec{r}+\vec{r}'-\vec{r}''}{2}\right) e^{-\frac{i}{\hbar} E_n t} \psi_m\left(\frac{\vec{r}+\vec{r}'+\vec{r}''}{2}\right) e^{-\frac{i}{\hbar} E_m t'} \langle \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_m \rangle \\ &= \int d\vec{r}'' \delta((\vec{r}'-\vec{r})-\vec{r}'') \sum_n \psi_n^*\left(\frac{\vec{r}+\vec{r}'-\vec{r}''}{2}\right) \psi_n\left(\frac{\vec{r}+\vec{r}'+\vec{r}''}{2}\right) e^{-\frac{i}{\hbar} E_n \tau} \langle \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_n \rangle \quad (4.2) \end{aligned}$$

$$= \sum_n \psi_n^*(\vec{r}) \psi_n(\vec{r}') e^{-\frac{i}{\hbar} E_n \tau} \langle \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_n \rangle \quad (4.3)$$

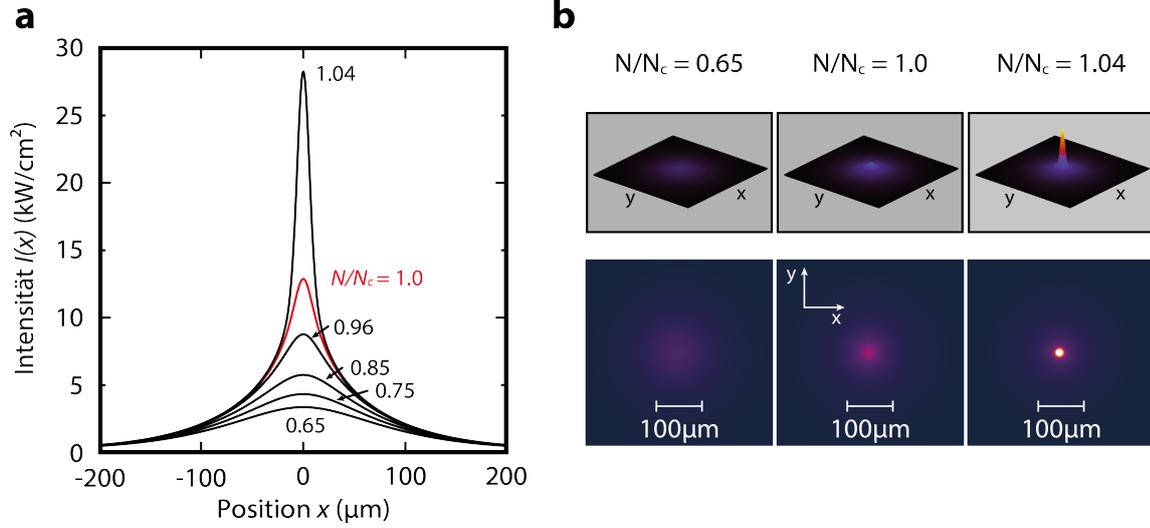
Hierbei wurde die Orthogonalität der Eigenzustände  $\langle \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_m \rangle = \delta_{mn}$  ausgenutzt und die zeitliche Verzögerung  $\tau = t' - t$  eingeführt. Ausgedrückt über die polarisationsentartete mittlere Teilchenzahl  $\bar{n}_n$  im  $n$ -ten Moden erhält man für die Korrelationsfunktion erster Ordnung:

$$G^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}', \tau) = \sum_n \psi_n^*(\vec{r}) \psi_n(\vec{r}') e^{-\frac{i}{\hbar} E_n \tau} \bar{n}_n \quad \text{mit} \quad (4.4)$$

$$\bar{n}_n = \langle \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_n \rangle = \frac{2}{e^{(u_n - \mu)/k_B T} - 1} \quad (4.5)$$

#### Räumliche Intensitätsverteilung

Um Aussagen über die erwarteten Korrelationen des Photonengases treffen zu können, ist es notwendig, die Eigenzustände  $\psi(\vec{r})_n$  aus Gl. (4.4) genauer zu betrachten. Analog zu den Eigenenergien  $E_{n_x, n_y}$  aus Gl. (2.32) lässt sich auch die Wellenfunktion über die transversalen Quantenzahlen  $n_x$  und  $n_y$  charakterisieren:  $\psi_n(\vec{r}) \equiv \psi_{n_x, n_y}(x, y)$ . Auch hier folgt in Analogie zur nicht-relativistischen Quantenmechanik die exakte



**Abbildung 4.1:** Numerisch berechnete räumliche Intensitätsverteilung des zweidimensionalen Photonengases für verschiedene Besetzungsgrade. (a) Die Schnitte entlang der  $x$ -Achse der radialsymmetrischen, zweidimensionalen Verteilungen in (b) zeigen die Sättigung der thermischen Moden abseits des Fallenzentrums mit steigender Teilchendichte. Die Kondensation in den Grundmoden führt zu einer bimodalen Verteilung der Intensität, mit einem Kondensatdurchmesser von  $d_{0,\text{FWHM}} \approx 12,7 \mu\text{m}$  und der thermischen Wolke mit Ausdehnung  $\Delta r \approx 140 \mu\text{m}$ .

Entsprechung im harmonischen Oszillator [128]:

$$\psi_{n_x, n_y}(x, y) = f_{n_x}(x) f_{n_y}(y) \quad (4.6)$$

$$f_n(x) = \sqrt{\frac{1}{2^n n!}} \left( \frac{m_{\text{ph}} \Omega}{\pi \hbar} \right)^{1/4} e^{-\frac{m_{\text{ph}} \Omega x^2}{2\hbar}} H_n \left( \sqrt{\frac{m_{\text{ph}} \Omega}{\hbar}} x \right) \quad (4.7)$$

$f_n(x)$  bezeichnet hier die Lösung des eindimensionalen harmonischen Oszillators mit den Hermite-Polynomen  $H_n(\sigma_a x)$ . Hierbei bezeichnet  $\sigma_a = \sqrt{\hbar/m_{\text{ph}} \Omega} \approx 7,7 \mu\text{m}$  die harmonische Oszillatorlänge als die charakteristische Längenskala des Systems.

Die Intensitätsverteilung der Photonen im Resonator ergibt sich aus der Summation über die Eigenfunktionen und den Eigenenergien, gewichtet mit dem Bose-Einstein-Faktor bei der Temperatur  $T$  und dem chemischen Potential  $\mu$ . Mit der Resonatorumlaufzeit  $\tau_{\text{rt}}$  folgt:

$$I_{T, \mu}(x, y) = \sum_{n_x, n_y} \frac{E_{n_x, n_y}}{\tau_{\text{rt}}} |\psi_{n_x, n_y}(x, y)|^2 2 \left( e^{\frac{\hbar \Omega (n_x + n_y) - \mu}{k_B T}} - 1 \right)^{-1} \quad (4.8)$$

$$\approx \frac{2m_{\text{ph}} c^2}{n_0^2 \tau_{\text{rt}}} \sum_{n_x, n_y} |\psi_{n_x, n_y}(x, y)|^2 \left( e^{\frac{\hbar \Omega (n_x + n_y) - \mu}{k_B T}} - 1 \right)^{-1} \quad (4.9)$$

Die modenabhängige Eigenenergie wurde im letzten Schritt durch die Energie des Grundzustands genähert, da die zusätzlichen transversalen Energien auf einer absoluten Skala vernachlässigbar sind. Im Kontext der durchgeführten Experimente ist die absolute Photonenenergie ohnehin unerheblich, da

die verwendeten Detektoren, identische Detektionseffizienzen vorausgesetzt, nicht zwischen Photonen unterschiedlicher Energie unterscheiden können.

Abbildung 4.1 zeigt die räumliche Intensitätsverteilung des zweidimensionalen Photonengases in Abhängigkeit von der Teilchenzahl in der Nähe der Kondensationsschwelle ( $\bar{N}_c \approx 94\,000$ ). Bei  $\bar{N} = \bar{N}_c$  sättigt der Beitrag der thermischen Eigenzustände ( $u > 0$ ) und lediglich der TEM<sub>q00</sub>-Moden wächst mit steigender Teilchenzahl weiter an. Die Intensitätsverteilung ist dann bimodal zusammengesetzt aus einer weit ausgedehnten thermischen Wolke ( $\Delta r \approx \sqrt{2k_B T/m_{\text{ph}}\Omega^2} \approx 140\ \mu\text{m}$ ) und dem Beitrag des Grundmoden mit einer Halbwertsbreite (engl.: Full Width at Half Maximum, FWHM) von  $d_{0,\text{FWHM}} = 2\sqrt{\hbar \ln(2)}/m_{\text{ph}}\Omega \approx 12,7\ \mu\text{m}$ . Die Intensität im Fallenzentrum am Phasenübergang beträgt für typische im Experiment realisierte Parameter, unter Berücksichtigung der kleinsten 1500 Eigenenergien der Falle<sup>1</sup>, in etwa  $I_c(r=0) \approx 13\ \text{kW cm}^{-2}$ .

### Zweidimensionale Phasenraumdichte

Die grundlegende Universalität der Bose-Einstein-Kondensation zeigt sich auch in der Teilchendichte pro Energieintervall bzw. der Phasenraumdichte  $\bar{\omega}$ . Wie in Abschnitt 1.1.2 gezeigt, nimmt letztere in einem harmonisch gefangenen System einen nur von der Dimensionalität des Systems abhängigen Wert an:  $\bar{\omega}_c = \zeta(\alpha)^{2D} \pi^2/6$ . Im harmonischen Fallenpotential ist die Dichte eine positionsabhängige Größe, analog zu den in Abschnitt 2.3.1 behandelten Zustandsgrößen Druck und Volumen. Die Gesamtzahl an Teilchen innerhalb der thermischen Wolke des Radius  $\Delta r$ , zentriert um den Mittelpunkt der Falle lässt sich allgemein schreiben als:

$$N_{\text{tot}} = \bar{N} = \bar{\rho}_0 \pi \Delta r^2 \quad (4.10)$$

Hierbei bezeichnet  $\bar{\rho}_0$  eine zweidimensionale mittlere Teilchendichte (engl.: *central density*) [130]. Nutzt man das Äquipartitionstheorem für den Fall des zweidimensionalen harmonischen Fallenpotentials, so lässt sich die Zentraldichte des gefangenen Photonengases angeben als:

$$\frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 \Delta r^2 = k_B T \quad (\text{Virialsatz}) \quad (4.11)$$

$$\xrightarrow{(4.10)} \bar{\rho}_0 = \frac{\bar{N} m_{\text{ph}} \Omega^2}{2\pi k_B T} \quad (4.12)$$

Für die zweidimensionale kritische Phasenraumdichte  $\bar{\omega}_c$  folgt dann gemäß Gl. (1.23) mit der thermischen de Broglie Wellenlänge  $\lambda_{\text{th}}$  und der kritischen Temperatur des Phasenübergangs  $T_c = \sqrt{3\bar{N}}\hbar\Omega/\pi k_B$ :

$$\bar{\omega} = \bar{\rho}_0 \lambda_{\text{th}}^2 = \frac{\bar{N} m_{\text{ph}} \Omega^2}{2\pi k_B T} \frac{\hbar^2}{2\pi m_{\text{ph}} k_B T} = \frac{\bar{N} \Omega^2 \hbar^2}{(2\pi k_B T)^2} \quad (4.13)$$

$$(T \rightarrow T_c) \quad \bar{\omega}_c = \frac{\bar{N} \Omega^2 \hbar^2 \pi^2 (2\pi)^2}{(2\pi)^2 3 \hbar^2 \Omega^2 \bar{N}} = \frac{\pi^2}{3} \quad (4.14)$$

Berücksichtigt man den Grad der Polarisationsentartung, entspricht dieses der erwarteten kritischen Phasenraumdichte eines zweidimensionalen idealen Bosegases [45].

<sup>1</sup> Die numerische Berechnung der Beiträge höherer Eigenenergien ( $> 150\ \hbar\Omega$ ) erfordert aufgrund der großen auftretenden Fakultäten eine erweiterte Präzision der genutzten Datentypen. Für die in dieser Arbeit gezeigten Berechnungen wurden dazu die mathematischen Funktionen der Boost-Bibliothek für C/C++ genutzt [129].

### Intensität am Ausgang des invertierenden Interferometers

Die radiale Symmetrie des zweidimensionalen Photonengases um das Zentrum der harmonischen Falle vereinfacht die experimentelle Bestimmung der räumlichen Korrelationen erheblich. Um eine Aussage über die Ausdehnung der Kohärenz zu treffen ist es somit ausreichend, die Korrelation zweier Punkte  $\vec{r}$  und  $\vec{r}'$  des Photonengases zu untersuchen, die sich im gleichen Abstand zum Fallenzentrum  $\vec{r} = 0$  gegenüberliegen ( $\vec{r}' = -\vec{r}$ ). Abbildung 4.2 zeigt eine Möglichkeit dies in einem Interferometerexperiment für alle  $\vec{r}, \vec{r}'$  zu realisieren. In einer abgewandelten Variante des Michelson-Interferometers wird der Planspiegel in einem der optischen Pfade durch einen Retroreflektor ersetzt, der die räumlichen Koordinaten des eintreffenden Lichtfeldes um den Mittelpunkt des Reflektors invertiert  $(x, y) \rightarrow (-x, -y)$ .

Die räumliche Intensitätsverteilung ist nach Gl. (4.4) direkt mit der Korrelationsfunktion verknüpft:

$$I(\vec{r}) \simeq \frac{\hbar\omega_0}{\tau_{\text{rt}}} \sum_n |\psi_n(\vec{r})|^2 \bar{n}_n = \frac{\hbar\omega_0}{\tau_{\text{rt}}} G^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}, 0) = \frac{1}{2} \epsilon_0 c \langle |E(\vec{r}, t)|^2 \rangle \quad (4.15)$$

Damit lässt sich für den Operator des elektrischen Feldes folgender Ansatz motivieren:

$$\hat{E}(\vec{r}, t) = \sqrt{\frac{2\hbar\omega_0}{\epsilon_0 c \tau_{\text{rt}}}} \hat{\Psi}(\vec{r}, t) = \sqrt{\frac{2\hbar\omega_0}{\epsilon_0 c \tau_{\text{rt}}}} \sum_m \psi_m(\vec{r}) e^{-\frac{i}{\hbar} E_m t} \hat{a}_m \quad (4.16)$$

Analog zu Abschnitt 1.3.2 kann somit ein Ausdruck für die Intensität am Ausgang des invertierenden Michelson-Interferometers gefunden werden. Bei Verwendung eines symmetrischen Strahlteilers entspricht die Intensität  $I_a(\vec{r})$  am Punkt  $\vec{r}$  des Detektors gerade der Superposition der elektrischen Felder des „normal“ reflektierenden und des invertierend reflektierenden Interferometerarms:

$$I_a(\vec{r}, \tau) = \frac{1}{2} \epsilon_0 c \langle \left| \frac{1}{2} E(\vec{r}, t) + \frac{1}{2} E(-\vec{r}, t') \right|^2 \rangle \quad (4.17)$$

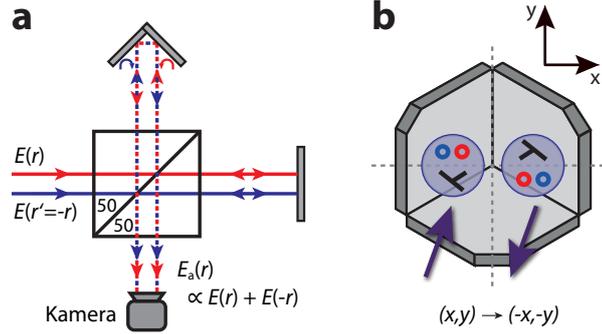
$$= \frac{1}{8} \epsilon_0 c \frac{2\hbar\omega_0}{\epsilon_0 c \tau_{\text{rt}}} \left\{ \sum |\psi_m(\vec{r})|^2 \bar{n}_m + \sum |\psi_m(-\vec{r})|^2 \bar{n}_m + 2 \operatorname{Re} \left[ \sum \psi_m^*(\vec{r}) \psi_m(-\vec{r}) e^{-\frac{i}{\hbar} E_m \tau} \bar{n}_m \right] \right\} \quad (4.18)$$

$$= \frac{1}{4} \left\{ I(\vec{r}) + I(-\vec{r}) + 2\sqrt{I(\vec{r})I(-\vec{r})} \operatorname{Re} \left[ g^{(1)}(\vec{r}, -\vec{r}, \tau) \right] \right\}, \quad \text{mit} \quad (4.19)$$

$$g^{(1)}(\vec{r}, -\vec{r}, \tau) \stackrel{(1.57)}{=} \frac{\sum \psi_m^*(\vec{r}) \psi_m(-\vec{r}) e^{-\frac{i}{\hbar} E_m \tau} \bar{n}_m}{\sqrt{\sum |\psi_m(\vec{r})|^2 \bar{n}_m} \sqrt{\sum |\psi_m(-\vec{r})|^2 \bar{n}_m}} \quad (4.20)$$

Der Realteil der Kohärenzfunktion  $g^{(1)}(\vec{r}, -\vec{r}, \tau)$  entspricht einer amplitudenmodulierten Kosinus-Funktion  $\cos(\Delta\Phi)$ . Erlaubt man zusätzlich zur thermischen Verteilung der Eigenfrequenzen  $\omega_m$  noch einen räumlichen Versatz der Wellenvektoren in den beiden Interferometerarmen  $\Delta k_m$ , enthält die Phase  $\Delta\Phi(\omega_m, \Delta k_m)$  alle Informationen, die zur Interpretation der Intensitätsverteilung am Interferometerausgang notwendig sind. Gleichung (4.19) kann somit geschrieben werden als:

$$I_a(\vec{r}, \tau) = \frac{1}{4} \left\{ I(\vec{r}) + I(-\vec{r}) + 2\sqrt{I(\vec{r})I(-\vec{r})} \left| g^{(1)}(\vec{r}, -\vec{r}, \tau) \right| \cos [\Delta\Phi(\omega_m, \Delta k_m)] \right\} \quad (4.21)$$



**Abbildung 4.2:** (a) Invertierendes Michelson-Interferometer zur vereinfachten Bestimmung der räumlichen Korrelationen  $g^{(1)}(\vec{r}, -\vec{r})$ . In einem der Interferometerarme wird der Planspiegel durch einen in Teilabbildung (b) dargestellten Retroreflektor ersetzt, der das einfallende Lichtfeld punktsymmetrisch spiegelt. Jedes aufgenommene Bild zeigt die Überlagerung der Lichtfelder an den Positionen  $\vec{r}$  und  $-\vec{r}$ .

Der Kohärenzgrad erster Ordnung lässt sich dann aus dem Interferenzkontrast experimentell gemäß Gl. (1.76) bestimmen:

$$K(\vec{r}, \tau) = \frac{2\sqrt{I(\vec{r})I(-\vec{r})}}{I(\vec{r}) + I(-\vec{r})} \left| g^{(1)}(\vec{r}, -\vec{r}, \tau) \right| \quad (4.22)$$

#### 4.1.2 Räumliche Korrelationen erster Ordnung

Der analytische Ausdruck der Korrelationsfunktion erster Ordnung nach Gl. (4.4) legt nahe, dass räumliche und zeitliche Korrelationen insofern getrennt voneinander betrachtbar sind, als dass lediglich die Amplitude der räumlichen Korrelationen für  $\tau > 0$  abnimmt. Abseits davon sind für das ideale Bosegas keine Effekte zu erwarten, die zu einer zeitlichen Änderung der räumlichen Korrelationen führen würden, etwa zeitlich propagierende Inseln erhöhter Kohärenz, wie sie im Falle wechselwirkender Polariton-Systeme beobachtet wurden [60]. Sowohl für die weitere analytische Betrachtung als auch im Hinblick auf die experimentelle Vermessung der Korrelationen erster Ordnung ist es daher ausreichend folgende Grenzfälle zu behandeln:

$$G^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}', \tau = 0) \quad (\text{räumliche Korrelationen ohne Zeitverzögerung}) \quad (4.23)$$

$$G^{(1)}(\vec{r} = \vec{r}' = 0, \tau) \quad (\text{zeitliche Korrelationen im Zentrum der Falle}) \quad (4.24)$$

Mit dem in Abschnitt 4.1.1 entwickelten Ausdruck der Wellenfunktion  $\psi_n(\vec{r})$  lässt sich die räumliche Korrelationsfunktion nach Gl. (4.23) schreiben als:

$$G^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{x}', \tilde{y}') = \frac{m_{\text{ph}}\Omega}{\pi\hbar} \sum_{n_x, n_y} \frac{2}{e^{(u_{n_x, n_y} - \mu)/k_B T} - 1} e^{-\frac{\tilde{x}^2 + \tilde{x}'^2}{2}} e^{-\frac{\tilde{y}^2 + \tilde{y}'^2}{2}} \cdot \frac{1}{2^{n_x} n_x!} \frac{1}{2^{n_y} n_y!} H_{n_x}(\tilde{x}) H_{n_x}(\tilde{x}') H_{n_y}(\tilde{y}) H_{n_y}(\tilde{y}') \quad \text{mit} \quad (4.25)$$

$$\tilde{x} = \sqrt{\frac{m_{\text{ph}}\Omega}{\hbar}} x \quad \text{und} \quad \tilde{y} = \sqrt{\frac{m_{\text{ph}}\Omega}{\hbar}} y \quad (4.26)$$

### Kohärenz des thermischen Photonengases

In der thermischen Phase ( $\mu \ll -k_B T$ ) folgt die transversale Besetzung der Energieniveaus der Boltzmann-Verteilung:  $\bar{n}_n \simeq 2e^{\frac{\mu}{k_B T}} e^{-\frac{\hbar\Omega}{k_B T}(n_x+n_y)}$ . Mit den Parametern  $A := \frac{2m_{\text{ph}}\Omega}{\pi\hbar} e^{\frac{\mu}{k_B T}}$  und  $\xi := e^{-\frac{\hbar\Omega}{k_B T}}$  ergibt sich Gl. (4.25) zu:

$$G^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{x}', \tilde{y}') = A e^{-\frac{\tilde{x}^2+\tilde{x}'^2}{2}} \sum_{n_x} \frac{\xi^{n_x}}{2^{n_x} n_x!} H_{n_x}(\tilde{x}) H_{n_x}(\tilde{x}') \cdot e^{-\frac{\tilde{y}^2+\tilde{y}'^2}{2}} \sum_{n_y} \frac{\xi^{n_y}}{2^{n_y} n_y!} H_{n_y}(\tilde{y}) H_{n_y}(\tilde{y}') \quad (4.27)$$

Der so gewonnene Ausdruck lässt sich unter Ausnutzen der Relation für die Summe über die Hermite-Polynome noch weiter vereinfachen [131]:

$$e^{-(\tilde{x}^2, \tilde{y}^2)} \sum_n \frac{\xi^n}{2^n n!} H_n(\tilde{x}) H_n(\tilde{y}) = \frac{1}{\sqrt{1-\xi^2}} e^{-\frac{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2-2\tilde{x}\tilde{y}\xi}{1-\xi^2}} \quad (4.28)$$

$$\rightarrow G^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{x}', \tilde{y}') = A e^{\frac{\tilde{x}^2+\tilde{x}'^2+\tilde{y}^2+\tilde{y}'^2}{2}} \frac{1}{1-\xi^2} e^{-\frac{\tilde{x}^2+\tilde{x}'^2-2\tilde{x}\tilde{x}'\xi}{1-\xi^2}} e^{-\frac{\tilde{y}^2+\tilde{y}'^2-2\tilde{y}\tilde{y}'\xi}{1-\xi^2}} \quad (4.29)$$

Der Kohärenzgrad erster Ordnung folgt daraus nach Gl. (1.57) direkt zu:

$$g^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{x}', \tilde{y}') = \exp\left[-\frac{\xi}{1-\xi^2} \left((\tilde{x}-\tilde{x}')^2 + (\tilde{y}-\tilde{y}')^2\right)\right] \quad (4.30)$$

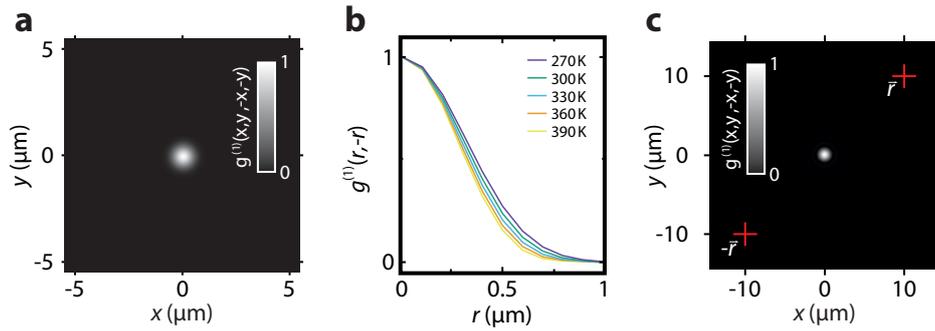
$$\rightarrow g^{(1)}(x, y, x', y') = \exp\left[-\pi \frac{(\vec{r}-\vec{r}')^2}{\lambda_{\text{th}}^2}\right] \quad (4.31)$$

Im letzten Schritt wurden die oben definierten Parameter wieder resubstituiert. Die Kohärenz des zweidimensionalen, harmonisch gefangenen Photonengases fällt demnach auf einer räumlichen Skala ab, die der thermischen de Broglie Wellenlänge  $\lambda_{\text{th}}$  entspricht. Im invertierenden Michelson-Interferometer ergibt sich Gl. (4.31) mit  $r = |\vec{r}| = |-\vec{r}'|$  zu:

$$g^{(1)}(r) = \exp\left[-\frac{4\pi r^2}{\lambda_{\text{th}}^2}\right] \quad (4.32)$$

In Abb. 4.3 sind numerische Berechnungen der räumlichen Korrelationen nach Gl. (4.25) des zweidimensionalen Photonengases im Grenzfall kleiner Teilchenzahlen, d.h. weit unterhalb der Schwelle zur Quantenentartung, gezeigt. Um die Vergleichbarkeit mit den in Kapitel 4 experimentell erzielten Ergebnissen zu gewährleisten, wurden hier bereits die Randbedingungen des invertierenden Interferometers ausgenutzt ( $\vec{r}' = -\vec{r}$ ). Der so entstehende, zweidimensionale Graph von  $g^{(1)}(x, y, -x, -y)$ , auch *Kohärenzkarte* genannt, zeigt das radialsymmetrische Abfallen der Kohärenz auf einer durch die thermische de Broglie Wellenlänge vorgegebenen Längenskala. Bei Variation der Temperatur bei konstant gehaltener Teilchenzahl zeigt sich die entsprechende Veränderung der transversalen Ausbreitung der Kohärenz. Gemäß  $\lambda_{\text{th}} \propto T^{-1/2}$  und Gl. (4.32) verringert sich die Kohärenzlänge bei Erwärmung des Systems.

Die thermodynamischen Zustandsgrößen eines Systems im Gleichgewichtszustand sind an jeder Stelle des Systems identisch. Diese Ergodizität zeigt sich insbesondere auch bei Betrachtung der Kohärenz des Photonengases. Das System in der hier betrachteten, rein thermischen Phase, lässt sich vollständig



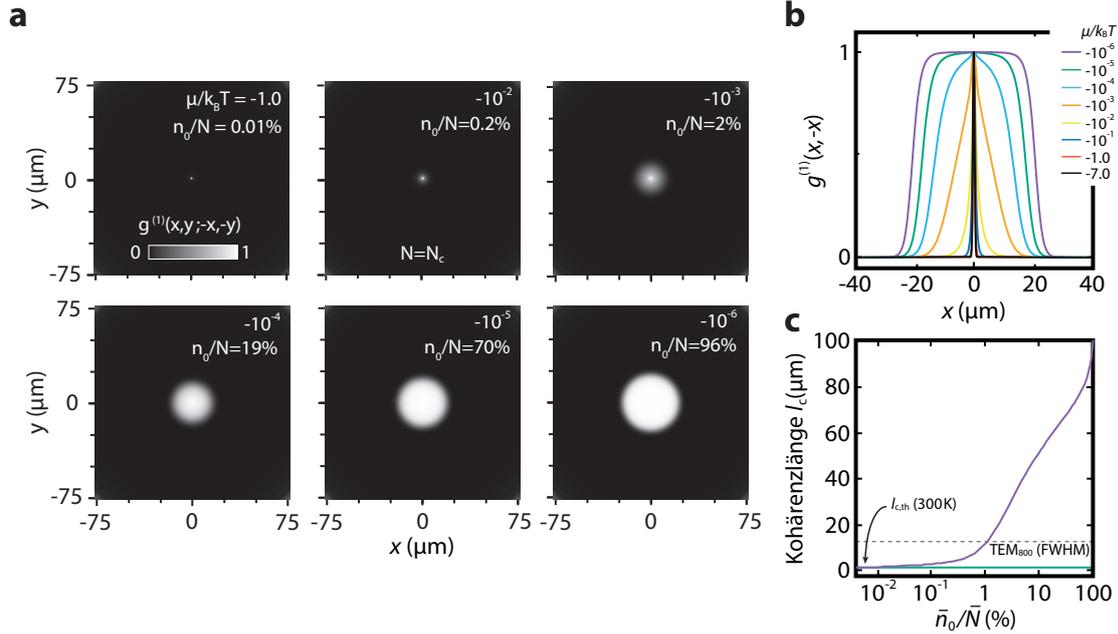
**Abbildung 4.3:** (a) Numerisch berechnete räumliche Korrelationen erster Ordnung weit unterhalb der kritischen Phasenraumdichte ( $\mu = -7,0 k_B T \rightarrow \bar{N} \approx 60$ ). (b) Die Schnitte entlang der x-Achse der räumlichen Verteilung zeigen die Änderung der Kohärenzlänge bei Veränderung der Temperatur. Im Gegensatz zur kondensierten Phase ist die Kohärenz der thermischen Wolke unabhängig von der betrachteten Position  $(x, y)$ . (c) Bei räumlich deplatzierte Überlagerung der Teilpfade des Interferometers zeigt sich ein zum nicht verschobenen Fall identisches Kohärenzverhalten. Der Abstand der beiden Mittelpunkte (Kreuze) der Verteilungen ist hier  $\vec{r} - \vec{r}' = (20 \mu\text{m}, 20 \mu\text{m})$ .

über Einteilcheneigenschaften beschreiben. So wird die Kohärenz durch die thermische de Broglie Wellenlänge charakterisiert. Da sowohl die Masse als auch die Temperatur global, d.h. überall im System, gleich groß sind, gilt dies somit auch für die Korrelationseigenschaften. Abbildung 4.3(c) zeigt die Numerik der Intensität am Interferometerausgang bei dezentraler Überlagerung der Teilpfade, welche ein identisches Kohärenzverhalten zur zentralen Überlagerung aufweist. Ein solches Verhalten ist nur für ein vollständig thermalisiertes System zu erwarten. Entsprechende Experimente mit dezentraler Überlagerung der Teilpfade lassen also insbesondere eine Überprüfung der räumlichen Thermalisierung des Photonengases zu.

### Langreichweitige Ordnung der kondensierten Phase

Die numerische Berechnung der räumlichen Korrelationen nutzt die über die Bose-Einstein-Verteilung bestimmten Energiespektren und Intensitätsverteilungen des Photonengases, siehe Gl. (4.25). Durch Variation des chemischen Potentials, gleichbedeutend zur Variation der mittleren Teilchenzahl bzw. reduzierten Temperatur, lässt sich somit das analytisch nicht vollständig berechenbare Verhalten der Kohärenz beim Phasenübergang untersuchen.

Die numerisch bestimmten räumlichen Kohärenzgrade erster Ordnung für Besetzungsgrade von  $\approx 0\%$  bis nahe  $100\%$  sind in Abb. 4.4 skizziert. Die gezeigten Kohärenzkarten entsprechen auch hier den Randbedingungen des invertierenden Interferometers mit mittig überlagerten Teilfeldern. Für steigende Besetzungsgrade ist das erwartete Einsetzen langreichweitiger Ordnung im dann quantenentarteten System zu beobachten. Insbesondere an den Schnitten entlang einer Achse (Abb. 4.4(b)) zeigt sich, dass der thermische Anteil des Kohärenzgrades um einen steigenden Anteil des makroskopisch besetzten Grundmoden erweitert wird. Mit Erreichen des quantenentarteten Bereichs bis hin zum thermodynamischen Phasenübergang entspricht der Verlauf einer bimodalen Verteilung der zwei charakteristischen Längenskalen für den rein thermischen Bereich ( $\lambda_{\text{th}} \approx 1,48 \mu\text{m}$ ), respektive der harmonischen Oszillatorlänge ( $\sqrt{\hbar/m_{\text{ph}}\Omega} \approx 7,7 \mu\text{m}$ ). In diesem Bereich sind die niedrigsten transversalen Eigenzustände vergleichbar stark besetzt, sodass diese Situation der eines quantenentarteten, zweidimensionalen Systems



**Abbildung 4.4:** Numerisch berechnete räumliche Korrelationen erster Ordnung für ansteigende chemische Potentiale  $\mu = -1,0$  bis  $-10^{-6} k_B T$ . (a) Die Kohärenzkarten und die in Teilabbildung (b) gezeigten korrespondierenden Schnitte entlang einer Achse zeigen den zunehmenden Einfluss des makroskopisch besetzten Grundmoden. (c) Die (transversale) Kohärenzlänge, aufgetragen gegen den Besetzungsgrad, zeigt in der Nähe der kritischen Teilchenzahl ( $\bar{N}_c \approx 94\,000$ ,  $n_0/\bar{N} \approx 0,2\%$ ) einen schnellen Anstieg und übersteigt bereits bei  $\approx 2\%$  die Halbwertsbreite des Grundmoden (gestrichelte Linie). Im rein thermischen Bereich ist die Kohärenzlänge durch die thermische de Broglie Wellenlänge charakterisiert (grüne Linie).

ohne Fallenpotential ähnelt. Das Verhalten des Kohärenzgrades lässt sich dort als exponentiell abfallend beschreiben [132]. Für weiter steigende Besetzungsgrade bildet sich aus der zunächst spitz zulaufenden Verteilung ein vollständig durch den Grundmoden dominiertes Plateau perfekter Kohärenz aus.

Zur quantitativen Erfassung des räumlichen Kohärenzgrades erster Ordnung bietet es sich an, die (transversale) Kohärenzlänge  $l_c$  als Halbwertsbreite der Kohärenz zu definieren:

$$g^{(1)}(|\vec{r} - (-\vec{r})| = l_c) \stackrel{!}{=} 0,5 \quad (4.33)$$

Die Kohärenzlänge in Abhängigkeit des Besetzungsgrades, wie in Abb. 4.4(c) dargestellt, lässt sich in drei Bereiche unterteilen:

- Der klassische Bereich, in dem die Kohärenzlänge  $l_{c,th} = \lambda_{th} \sqrt{\ln 2/4\pi} \approx 0,69 \mu\text{m}$ , siehe Gl. (4.32), durch die thermische de Broglie Wellenlänge charakterisiert ist.
- Die kondensierte Phase, in der bereits ab einem Besetzungsgrad von  $\approx 2\%$  die Kohärenzlänge die Halbwertsbreite des Grundmoden überschreitet und für Besetzungsgrade  $\bar{n}_0/\bar{N} \rightarrow 100\%$  die Kohärenzlänge divergiert, die Korrelationen sich also über das gesamte System erstrecken.
- Der Zwischenbereich mit Kohärenzlängen größer als im thermischen Bereich, der nicht mehr

ausreichend über Einteilcheneigenschaften beschrieben wird, in dem aber das System im thermodynamischen Sinne noch nicht kondensiert ist. Dieser Bereich ist das Kohärenzäquivalent zum Bereich  $T/T_c \gtrsim 1$  der kalorischen Ordnungsparameter aus Abschnitt 2.3.1.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden insbesondere der kondensierte und der rein thermisch Bereich experimentell untersucht.

### 4.1.3 Zeitliche Korrelationen erster Ordnung

Die zeitlichen Korrelationen erster Ordnung lassen sich analog zu den räumlichen Korrelationen des vorangegangenen Abschnitts erarbeiten. Wie bereits erörtert, ist es dabei ausreichend, die zeitliche Entwicklung der Korrelationen an einer festen Position zu betrachten. Man erhält somit aus Gl. (4.4) sowie den Eigenenergien  $E_{n_x, n_y}/\hbar = \omega_0 + \Omega(n_x + n_y + 1)$  und Eigenfunktionen  $\psi_{n_x, n_y}(x, y)$  aus Abschnitt 4.1.1 die Korrelationsfunktion  $G^{(1)}(\vec{r} = \vec{r}', \tau = t' - t)$  des zweidimensionalen, harmonisch gefangenen Photongases:

$$G^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tau) = \frac{m_{\text{ph}}\Omega}{\pi\hbar} \sum_{n_x, n_y} \frac{2}{e^{(u_{n_x, n_y} - \mu)/k_B T} - 1} e^{-\frac{\tilde{x}^2 + \tilde{y}^2}{2}} e^{-i(\omega_0 + \Omega(n_x + n_y + 1))\tau} \cdot \frac{1}{2^{n_x} n_x!} \frac{1}{2^{n_y} n_y!} H_{n_x}(\tilde{x})^2 H_{n_y}(\tilde{y})^2 \quad (4.34)$$

Die Koordinaten  $\tilde{x} = \sqrt{\frac{m_{\text{ph}}\Omega}{\hbar}}x$  und  $\tilde{y} = \sqrt{\frac{m_{\text{ph}}\Omega}{\hbar}}y$  entsprechen der Definition des vorherigen Abschnitts aus Gl. (4.26).

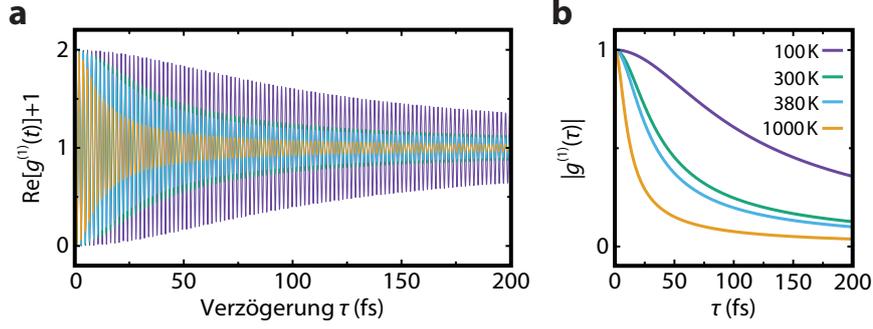
### Thermische Kohärenzzeit

In der thermischen Phase mit entsprechender Boltzmann-Verteilung der Besetzung der transversalen Eigenzustände lässt sich Gl. (4.34) schreiben als:

$$G^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tau) = A e^{-i(\omega_0 + \Omega)\tau} \left[ e^{-\tilde{x}^2} \sum_{n_x} \frac{\xi^{n_x}}{2^{n_x} n_x!} H_{n_x}(\tilde{x})^2 \right] \left[ e^{-\tilde{y}^2} \sum_{n_y} \frac{\xi^{n_y}}{2^{n_y} n_y!} H_{n_y}(\tilde{y})^2 \right] \quad (4.35)$$

Analog zu den räumlichen Korrelationen gilt hier wiederum  $A := \frac{2m_{\text{ph}}\Omega}{\pi\hbar} e^{-\frac{\mu}{k_B T}}$ . Die Zeitabhängigkeit des undefinierten Parameters  $\xi(\tau) := e^{-\left(i\Omega\tau + \frac{\hbar\Omega}{k_B T}\right)}$  wird in dieser Notation nicht explizit aufgeführt, d.h.  $\xi(\tau) \equiv \xi$ . Unter Ausnutzung der bereits verwendeten Relationen für die Hermite-Polynome in Gl. (4.28) erhält man:

$$G^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tau) = A e^{-i(\omega_0 - \Omega)\tau} e^{\tilde{x}^2 + \tilde{y}^2} \frac{1}{1 - \xi^2} e^{-\frac{2(\tilde{x}^2 + \tilde{y}^2)}{1 + \xi}} \quad (4.36)$$



**Abbildung 4.5:** Zeitlicher Verlauf der Korrelationen erster Ordnung weit unterhalb der kritischen Phasenraumdichte in Abhängigkeit von der Temperatur. (a) Der Realteil des zeitlichen Kohärenzgrades nach Gl. (4.41) oszilliert mit einer Periodendauer entsprechend der Frequenz des Lichtfeldes ( $\lambda/c \approx 1,94$  fs). (b) Der in Interferenzexperimenten messbare Kontrast entspricht dem Betrag des Kohärenzgrades. Mit sinkender Temperatur steigt die Ordnung des Systems auch in der Zeitdomäne, was sich in anwachsenden Kohärenzzeiten niederschlägt.

Der Kohärenzgrad erster Ordnung lässt sich daraus gemäß Gl. (1.57) angeben zu:

$$g^{(1)}(r, r') = \frac{G^{(1)}(x, y, t, t')}{\sqrt{G^{(1)}(x, y, t, t)G^{(1)}(x, y, t', t')}} \quad (4.37)$$

$$= e^{-i(\omega_0 - \Omega)\tau} \frac{1 - \tilde{\xi}^2}{1 - \xi^2} \exp\left[-2(\tilde{x}^2 + \tilde{y}^2) \left(\frac{\tilde{\xi} - \xi}{1 + \xi}\right) (1 + \tilde{\xi})\right] \quad (4.38)$$

Die in Gl. (4.37) genutzte Korrelationsfunktion für gleiche Zeiten  $G^{(1)}(x, y, t, t)$  lässt sich leicht aus Gl. (4.36) für verschwindende Zeitunterschiede  $\tau = 0$  konstruieren. Für diese wurde der dann zeitunabhängige Parameter  $\xi(\tau = 0) = e^{-\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} \equiv \tilde{\xi}$  eingeführt, welcher in Gl. (4.38) genutzt wird.

Resubstituiert man die eingeführten Parameter, erhält man aus Gl. (4.38) für den radialsymmetrischen Fall mit  $r^2 = x^2 + y^2$ :

$$g^{(1)}(r, \tau) = e^{-i(\omega_0 - \Omega)\tau} \frac{1 - e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}}}{1 - e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T} - 2i\Omega\tau}} \exp\left[-\frac{2m_{\text{ph}}\Omega}{\hbar} r^2 \left(\frac{1 - e^{-i\hbar\Omega\tau}}{1 + e^{\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} + e^{-i\Omega\tau} + e^{-\frac{\hbar\Omega}{k_B T} - i\Omega\tau}}\right)\right] \quad (4.39)$$

Bei Betrachtung der zeitlichen Korrelationen im Fallenzentrum  $r = 0$ , bestimmt der erste Term in Gl. (4.39) den Kohärenzgrad. Unter Ausnutzung der zeitlichen Symmetrie  $g^{(1)}(\tau) = g^{(1)}(-\tau)$  folgt für den Realteil der im Allgemeinen komplexen Funktion:

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\left(e^{2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} - 1\right) (\cos[(\omega_0 + \Omega)\tau] + i \sin[(\omega_0 + \Omega)\tau])}{e^{2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} - \cos(2\Omega\tau) - i \sin(2\Omega\tau)} \quad (4.40)$$

$$\rightarrow \text{Re} \left[ g^{(1)}(\tau) \right] = \frac{\left(e^{2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} - 1\right) \left(e^{2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} \cos[(\omega_0 + \Omega)\tau] - \cos[(\omega_0 - \Omega)\tau]\right)}{1 + e^{4\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} - 2e^{\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} \cos(2\Omega\tau)} \quad (4.41)$$

Abbildung 4.5(a) zeigt den oszillierenden Verlauf des Realteils des Kohärenzgrades nach Gl. (4.41) als Folge von konstruktiver und destruktiver Interferenz der Teilpfade des Interferometers. Analog zur Betrachtung der räumlichen Korrelationen zeigt sich auch hier ein ansteigender Grad an Ordnung bei Absenkung der Temperatur, der sich in längeren Kohärenzzeiten widerspiegelt. Der in Abb. 4.5(b) gezeigte Kontrast formt die Einhüllende der Oszillation und entspricht dem Betrag von Gl. (4.40):

$$|g^{(1)}(\tau)| = \frac{\left(1 - e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}}\right)}{\sqrt{\left[1 - e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} \cos(2\Omega\tau)\right]^2 + \left[e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} \sin(2\Omega\tau)\right]^2}} \quad (4.42)$$

Die Kohärenzzeit  $\tau_c$ , definiert über den Abfall des Kontrastes auf  $|g^{(1)}(\tau_c)| = 0,5$ , lässt sich mit  $a := \cosh\left(\frac{\hbar\Omega}{k_B T}\right)$  und  $b := \sinh\left(\frac{\hbar\Omega}{k_B T}\right)$  ausdrücken als:

$$\tau_c = \frac{1}{\Omega} \arccos \left[ \frac{\sqrt{-3 + 10a^2 - 3a^4 - 20ab + 12a^3b + 10b^2 - 18a^2b^2 + 12ab^3 - 3b^4}}{(2a - b)} \right] \quad (4.43)$$

$$\approx \sqrt{3} \frac{\hbar}{k_B T} \approx 44 \text{ fs} \quad (T = 300 \text{ K}) \quad (4.44)$$

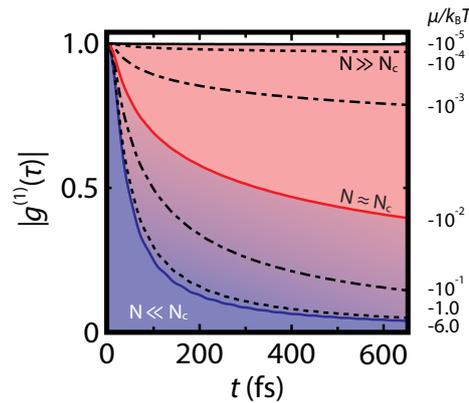
Im letzten Schritt wurde der Ausdruck für  $\tau_c$  in erster Ordnung von  $\hbar\Omega/k_B T \approx 0,007 \ll 1$  entwickelt. Gleichung (4.44) unterscheidet sich somit von der am Anfang dieses Kapitels getroffenen Abschätzung für die Kohärenzzeit  $\tau_c \approx h/k_B T$  um einen Faktor  $2\pi/\sqrt{3}$  [127]. Für die betrachteten räumlichen (transversalen) und zeitlichen Korrelationen im rein thermischen Bereich erhält man für die Temperaturabhängigkeit eine Skalierung gemäß:

$$\tau_c \stackrel{(4.44)}{\propto} \frac{1}{T}, \quad l_c \stackrel{(4.32)}{\propto} \frac{1}{\sqrt{T}} \quad (4.45)$$

Die Gültigkeit dieser Relationen wird in den folgenden Abschnitten explizit experimentell untersucht.

### Kohärenz des Bose-Einstein-Kondensats

Wie im Falle der räumlichen Korrelationen lässt sich auch für das Verhalten der zeitlichen Korrelationen im Bereich um den Phasenübergang keine analytische Näherung für Gl. (4.34) angeben. Die Numerik liefert hier jedoch unter Berücksichtigung der Bose-Einstein-verteilten Besetzungszahl  $\bar{n}_{n_x, n_y} \propto \left[ \exp(-u_{n_x, n_y}/k_B T) - 1 \right]^{-1}$  Ergebnisse für das quantenentartete Photonengas. Abbildung 4.6 zeigt den Anstieg der zeitlichen Korrelationen erster Ordnung im Fallenzentrum mit steigender Teilchenzahl, gleichbedeutend mit einer Zunahme der Ordnung im System auch in der zeitlichen Domäne. Ausgehend vom rein thermischen Regime  $\bar{N} \ll \bar{N}_c$  (blau unterlegter Bereich;  $\tau_c \approx 44$  fs entsprechend Gl. (4.44)) wächst die Kohärenzzeit auf 400 fs am Phasenübergang an, ehe die makroskopische Besetzung des Grundmoden auch die zeitliche Phasenkohärenz sprunghaft ansteigen lässt (rot unterlegter Bereich). Aufgrund der zu erwartenden großen Kohärenzzeiten im kondensierten Bereich ( $\tau_c \gg \mathcal{O}(\text{ns})$ ) ist eine interferometrische Bestimmung mittels der in dieser Arbeit beschriebenen homodynen Methode nicht durchführbar. Die zeitliche Phasenkohärenz des Kondensats wurde in einer früheren Dissertation mittels heterodyner Interferometrie detailliert untersucht [33, 34].



**Abbildung 4.6:** Numerisch berechneter zeitlicher Kohärenzgrad erster Ordnung für ansteigende chemische Potentiale. Weit unterhalb der kritischen Phasenraumdichte (blau hinterlegt) fällt der Kohärenzgrad auf einer thermischen Zeitskala (Gl. (4.44)) ab, ehe sich mit Einsetzen der Kondensation (rote Linie) langreichweitige Ordnung im System zeigt.

## 4.2 Apparativer Aufbau

Zur Bestimmung der räumlichen Ausdehnung der Phasenkorrelationen wird ein räumlich invertierendes Michelson-Interferometer genutzt, welches bereits in Abschnitt 4.1.1 vorgestellt wurde. Abseits dieser Analyseeinheit wird der bereits im vorigen Kapitel erläuterte experimentelle Aufbau genutzt, jedoch mit einem im Detail abweichenden Parametersatz betrieben. Insbesondere der vermessene Bereich reduzierter Temperaturen umfasst nicht mehr den vollständigen Übergangsbereich, sondern lediglich die kondensierte Phase sowie den rein thermischen, d.h. nicht quantenentarteten Bereich.

### Pumpquelle

Der Farbstoff innerhalb des optischen Mikroresonators wird erneut mittels des Verdi V8 bei einer Wellenlänge von  $\lambda_{\text{pump}} = 532 \text{ nm}$  angeregt. Um die in Abschnitt 2.1.1 beschriebenen thermo-optischen Einflüsse möglichst gering zu halten, wird die Repetitionsrate auf 50 Hz herabgesetzt und eine feste Pulsdauer von 600 ns verwendet. Wie in Abschnitt 4.5 gezeigt, können so bis zu einem Besetzungsgrad von  $\bar{n}_0/\bar{N} < 60\%$  Bedingungen aufrechterhalten werden, die zu einer spektralen und räumlichen Besetzungsverteilung gemäß der Theorie des idealen Bosegases führen. Die emittierte Lichtleistung des Pumpasers beträgt für diese Messungen ca. 1 W. Die tatsächlich in den Resonator transmittierte Leistung wird manuell durch Anpassen der Polarisation mittels der  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte entsprechend der benötigten Gesamtphotonenzahl eingestellt und darauffolgend aktiv stabilisiert. Der Amplitudenverlauf des Pumpimpulses wird wie im vorigen Kapitel so geformt, dass während des Pulses die Photonenzahl im Resonator konstant bleibt.

Zur Vermessung der Korrelationen im thermischen Bereich wird vollständig auf eine Modulation der Anregung verzichtet und eine vergleichsweise geringe Lichtleistung von  $\approx 1 \text{ mW}$  in den Resonator transmittiert, was zu einer gemessenen Resonatoremittionsleistung von  $P_{\text{out}} = 10 \text{ nW}$  führt. Daraus ergibt sich eine Gesamtteilchenzahl von  $\bar{N}_{\text{therm}} \approx P_{\text{out}} \tau_{\text{rt}} \cdot 580 \text{ nm} / (T_{580 \text{ nm}} h c) = 18 \pm 2$  Photonen, welche

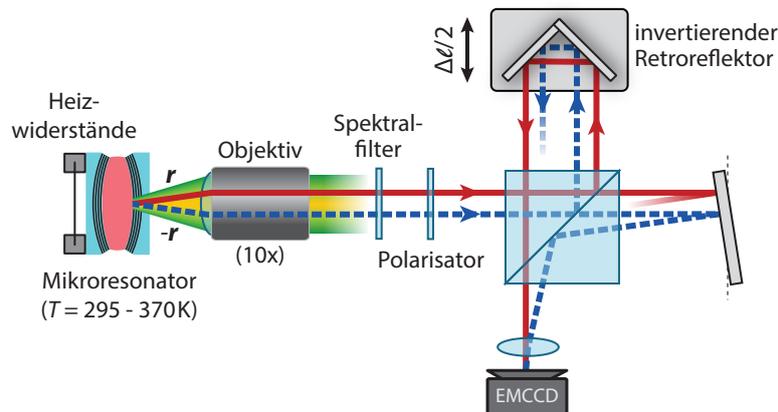
einen kontinuierlichen Betrieb des Photonengases ohne übermäßiges Auftreten nichtradiativer Desaktivierungsprozesse erlaubt. Der Transmissionsgrad der Spiegel bei der mittleren Emissionswellenlänge von 580 nm beträgt  $T_{580\text{nm}} = (2,5 \pm 0,3) \cdot 10^{-5}$ . Eine gepulste Anregung ist zwar auch in diesem Regime möglich, die so erzielte Lichtleistung der Resonatoremision reicht dann aber nicht mehr aus, um eine orts aufgelöste Detektion mittels der verwendeten Kameras zu erzielen. Um das Pumplicht in den Resonator zu fokussieren, wurde für alle in diesem Kapitel durchgeführten Versuche eine Linse der Brennweite  $f = 30$  cm verwendet. Der Farbstoff wird hierbei auf einer Fläche von  $\approx \varnothing 100 \mu\text{m}$  angeregt.

#### 4.2.1 Mikroresonator und Interferometeranordnung

Der verwendete Mikroresonator ist grundsätzlich identisch zu dem im vorigen Kapitel genutzten Aufbau, mit den im Folgenden beschriebenen Änderungen. Die Abschneidewellenlänge wird in allen hier beschriebenen Experimenten auf  $\lambda_0 = 583$  nm bei einer Halbwellenzahl des longitudinalen Modenspektrums von  $q = 8$  festgesetzt. Als Farbstoff wird durchgängig Rhodamin 6G gelöst in Ethylenglykol ( $c = 1 \text{ mmol L}^{-1}$ ) verwendet. Als bauliche Erweiterung zu dem bisherigen Mikroresonataraufbau werden mittels Wärmeleitkleber einseitig zwei Hochlast-Widerstände ( $R = 4,7 \Omega$ ;  $P_{\text{max}} = 5 \text{ W}$ ) an die Halterung der Resonatorspiegel angebracht, skizziert in Abb. 4.7. Durch Anlegen einer variablen Spannung ist es somit möglich, die vollständige Resonatoranordnung um bis zu  $75^\circ\text{C}$  über Raumtemperatur aufzuheizen. Zur Temperaturmessung sind zwei Thermosensoren links bzw. rechts am Glassubstrat nahe der Resonatorspiegel angebracht. Die in Abschnitt 4.3.3 angegebenen Temperaturen entsprechen dem Mittelwert beider gemessener Werte nach einer Einschwingzeit von etwa zehn Minuten bei gleichbleibender Heizleistung. Dies ermöglicht die Bestimmung der Korrelationen des thermischen Photonengases für Temperaturen im Bereich  $295 - 370$  K. Höhere Temperaturen lassen sich zwar prinzipiell erreichen, jedoch ist die mechanische Stabilität des Resonators aufgrund der zunehmenden Evaporation der Farbstofflösung dann nicht mehr ausreichend gewährleistet.

Der zur Bestimmung der Phasenkohärenz genutzte Interferometeraufbau in Abb. 4.7 entspricht dem in Abschnitt 4.1 diskutierten invertierenden Michelson-Interferometer, vgl. Abb. 4.2. Das emittierte Resonatorlicht wird erneut mittels eines Mikroskopobjektivs zunächst kollimiert und zum Interferometer geleitet (nicht in der Skizze enthalten). Das Licht passiert dabei zwei zusätzliche Filteranordnungen: Über optische Kurz- ( $\lambda_{\text{trans}} < 600$  nm; Typ TL FESH-0600) bzw. Langpass-Filter ( $\lambda_{\text{trans}} > 550$  nm; Typ TL FEL-0550) werden gestreutes Pumplicht, die schwache Emission benachbarter Longitudinalmoden ( $q = 7$  bzw.  $q = 9$ ) sowie von den Rändern des kleinen Resonatorspiegels stammende freie Farbstofffluoreszenz effizient herausgefiltert. Darüber hinaus wird mittels eines Glan-Thompson-Polarisators (Abschwächung  $1:10^5$ ; Typ TL GTH5-A) eine lineare Polarisationskomponente selektiert. Aus theoretischer Sicht ist letzteres nicht nötig, da die Polarisationsentartung lediglich einen zusätzlichen Faktor 2 gegenüber dem allgemeinen Bosegas einführt. Beide Polarisierungen sind orthogonal zueinander, sodass kein Beitrag von Mischtermen zu erwarten ist. Im Experiment führt jedoch die Spannungsdoppelbrechung in den Spiegelsubstraten zum Auftreten einer Vorzugsrichtung der Polarisation des Lichtfeldes. In Anbetracht der im Allgemeinen polarisationsabhängigen Lichtlaufzeiten in den verwendeten optischen Elementen lässt sich somit durch gezielte Selektion einer Polarisationsrichtung ein höherer interferometrischer Kontrast erzielen.

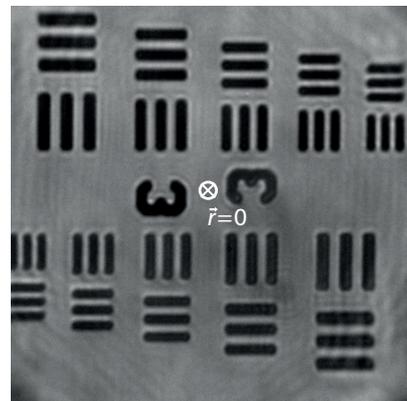
Das Interferometer selbst besteht aus einem 50:50-Strahlteilerwürfel, dem Retroreflektor und einem Planspiegel. Als Retroreflektor (Typ: EdmundOptics H46174) wird eine Anordnung aus drei aluminiumbeschichteten Spiegeln verwendet, die im rechten Winkel zueinander angeordnet sind; ein



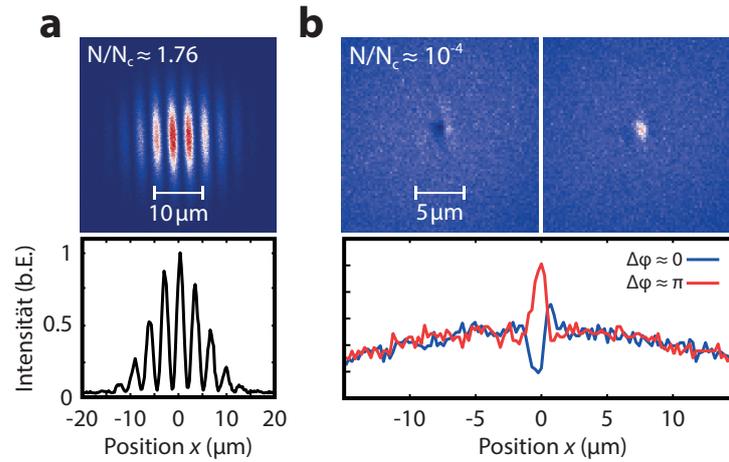
**Abbildung 4.7:** Schematischer Aufbau der interferometrischen Bestimmung der räumlichen Kohärenz erster Ordnung. Heizwiderstände an den Spiegelhaltern erlauben ein kontrolliertes Aufheizen des Mikroresonators auf Temperaturen von 295 – 370 K. Die zwei gezeigten Teilstrahlen (rot und blau) verdeutlichen den optischen Weg zweier Positionen  $\vec{r}$  und  $-\vec{r}$  durch das invertierende Interferometer (vgl. Abb. 4.2). Der Retroreflektor wird abseits der Mitte beschienen, um die Irregularitäten an den Kontaktkanten des Hohlspiegels zu vermeiden, was eine Verkippung des Planspiegels nach sich zieht. Eine Verschiebeplattform erlaubt eine kontrollierte relative Verzögerung zwischen den optischen Pfaden des Interferometers.

sogenannter „Hohlspiegel-Retroreflektor“, „Tripplespiegel-Array“ bzw. „Katzenauge“. Durch die Metallbeschichtung kommt es, anders als in Prismen-Retroreflektoren, zu keiner polarisationsabhängigen Laufzeitverschiebung des Lichtfeldes. Dafür kommt es an den Kanten der Einzelspiegel vermehrt zur Lichtstreuung und Verzerrung der Abbildung, sodass der Retroreflektor in diesem Aufbau nur in den Außenbereichen beschienen wird. Diese Nutzung abseits des Zentrums bewirkt neben der Koordinateninversion auch eine laterale Verschiebung des Lichtfeldes, wie in Abb. 4.7 angedeutet. Dieser muss durch Verkippen des Planspiegels entgegengewirkt werden, um die Mittelpunkte ( $\vec{r} = 0$ ) beider Teilpfade in der Detektorebene zu überlagern.

Zur exakten Justage und Bestimmung der erzielten Vergrößerung des optischen Aufbaus wird der Mikroresonator durch ein Objekt bekannter Größe in der Gegenstandsebene des Objektivs ersetzt. Als ein solches wird eine Auflösungs-Testtafel (engl.: USAF-Resolution Test Target; Typ: TL RSDS1P) verwendet, mit einer minimalen Strichbreite von  $2,19 \mu\text{m}$ . Abbildung 4.8 zeigt das nach Überlagerung beider Teilstrahlen am Interferometerausgang aufgenommene Bild. Zu sehen ist die kleinste Strichgruppe der Testtafel in direkt und invertiert reflektierter (punktgespiegelter) Ausrichtung, welche vollständig aufgelöst werden kann. Eine vollständige Charakterisierung des Auflösungsvermögens wird im nächsten Abschnitt beschrieben. Aus dem Bild lässt sich jedoch die Vergrößerung des Aufbaus entnehmen: Als Skalierungsfaktor findet sich ein für beide Teilstrahlen identischer Wert von  $(0,24 \pm 0,01) \mu\text{m}$  pro



**Abbildung 4.8:** Überlagerung von direkt reflektierter (obere Hälfte) und invertierend reflektierter (untere Hälfte) Auflösungs-Testtafel. Der Kreis zeigt den Mittelpunkt der Inversion ( $\vec{r} = 0$ ).

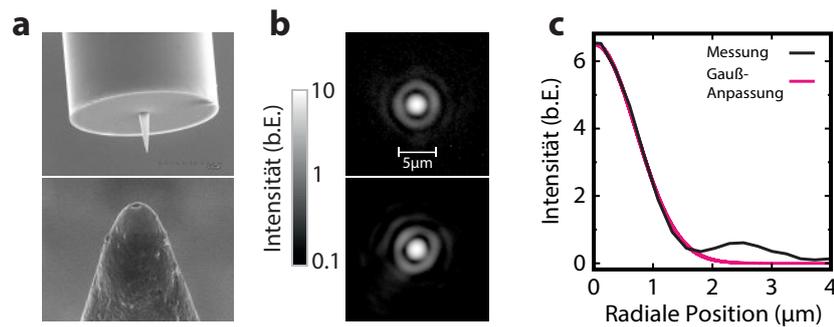


**Abbildung 4.9:** Aufgenommene Interferenzmuster für ein Photonengas (a) oberhalb ( $\bar{N} = (165 \pm 20) \cdot 10^3$ ;  $\bar{N}/\bar{N}_c \approx 1,76$ ) sowie (b) weit unterhalb ( $\bar{N} = 18 \pm 2$ ;  $\bar{N}/\bar{N}_c \approx 10^{-4}$ ) der kritischen Teilchenzahl ( $\bar{N}_c \approx 94\,000$ ) für eine Pfaddifferenz von  $\Delta\ell = 0$ . Das Streifenmuster ist die Folge der Beleuchtung des Retroreflektors abseits der Mitte und der so notwendigen Verkippung des Planspiegels, vgl. auch Abb. 4.7. Aus den Bildern (oben) ist bereits ein deutlicher Unterschied in der Reichweite der Kohärenz zu erkennen. Die horizontalen Schnitte (unten) verdeutlichen den beobachteten Intensitätsverlauf.

Kamerapixel ( $16\ \mu\text{m} \times 16\ \mu\text{m}$ ), was einer Vergrößerung von  $V \approx 65$  entspricht.

Der Retroreflektor ist auf einem Verschiebetisch (Typ: TL MTS25/M-Z8) befestigt, der die Einstellung eines relativen Längenunterschieds der Teilpfade des Interferometers ermöglicht. Der maximale Stellweg von  $\Delta\ell/2 = 25\ \text{mm}$  entspricht einer Laufzeitverzögerung von  $\tau_{\text{max}} = \Delta\ell/c \approx 160\ \text{ps}$ . Aufgrund der zu erwartenden Kohärenzzeiten des Photonengases im klassischen Regime von  $\tau_c = \mathcal{O}(100\ \text{fs})$  wird lediglich ein wesentlich kleinerer Bereich relativer Verzögerungen von  $2 \cdot 90\ \mu\text{m}/c \approx 600\ \text{fs}$  untersucht. In diesem erlaubt der Piezo-getriebene Schrittmotor des Verschiebetisches eine näherungsweise gleichförmige Translation mit einer Geschwindigkeit von etwa  $0,5\ \mu\text{m}\ \text{s}^{-1}$ . Die Datennahme erfolgt mittels der bereits in Abschnitt 3.2 genutzten EMCCD-Kamera. Im Falle der gepulsten Anregung zur Erzeugung des Photonengases in der kondensierten Phase erfolgt die Triggerung der Kamera zeitgleich zum Pumpimpuls. Ein Kamerabild entspricht dann der räumlichen Intensitätsverteilung integriert über die Dauer eines einzelnen Pulses. Bei kontinuierlicher Anregung beträgt die Belichtungszeit etwa  $50\ \text{ms}$ , resultierend in einer Bildrate von ca.  $14\ \text{Hz}$ , während der die Interferometer-Laufzeitverzögerung als konstant betrachtet wird. Unabhängig von der Art der Anregung entspricht die Bildrate einer Abtastrate der Laufzeitverzögerung von etwa  $1/0,2\ \text{fs}$ .

Abbildung 4.9 zeigt die beobachtete räumliche Intensitätsverteilung am Interferometerausgang für ein Photonengas im rein thermischen Bereich sowie weit in der kondensierten Phase. Die relative Pfaddifferenz bei der Aufnahme der Bilder ist  $\approx 0$ , unterscheidet sich für die beiden in (b) gezeigten Aufnahmen jedoch um  $583\ \text{nm}/2c$ . Diese Verzögerung entspricht gerade einem Phasenunterschied von  $\pi$ , was sich in der Ausprägung von konstruktiver (rechts) bzw. destruktiver Superposition der Lichtfelder äußert. Die Ausbildung vertikaler Interferenzstreifen ist eine Folge der gewählten Interferometeranordnung, genauer dem dezentralen Beschießen des Retroreflektors und der dann nötigen Verkippung des Planspiegels. Bei perfekter Überlagerung der Mittelpunkte der Intensitätsverteilung ergeben sich dadurch zwangsläufig



**Abbildung 4.10:** Vermessung der Punktspreizfunktion des optischen Aufbaus. (a) Elektronenmikroskopische Aufnahme von Mantel und Kern der SNOM-Faser (oben) sowie der Spitze des Kerns (unten). Letztere ist mit einem Aluminiumfilm überzogen, welcher lediglich eine  $\varnothing 200$  nm große Apertur ausspart (Bilder aus [133]). (b) Gemessene Beugungsringe (Airy-Scheibchen) der Teilpfade mit Planspiegel (oben) sowie Retroreflektor (unten) in logarithmischer Darstellung. (c) Gemittelte radial integrierte Intensitätsverteilung beider Teilstrahlen (schwarze Linie) und die daran angepasste Gauß-Verteilung mit  $\sigma_{\text{PSF}} = (0,658 \pm 0,002) \mu\text{m}$ .

zwei unterschiedliche Wellenvektoren der Teilpfade, die in horizontaler Richtung auf dem Detektor eine positionsabhängige relative Phase der Lichtfelder einführen. Auffällig ist weiter der deutliche Unterschied in der räumlichen Ausdehnung der beobachteten Interferenzmuster zwischen der rein thermischen und der kondensierten Phase, was auf einen signifikanten Anstieg der Reichweite der Ordnung hindeutet, deren quantitative Untersuchung in den folgenden Abschnitten erfolgt.

#### 4.2.2 Vermessung des räumlichen Auflösungsvermögens

Die erwartete räumliche Ausdehnung der Korrelationen des Photonengases weit unterhalb der kritischen Teilchenzahl ist von derselben Größenordnung wie das räumliche Auflösungsvermögen des verwendeten optischen Aufbaus, insbesondere des Objektivs. Es ist daher notwendig, den genutzten experimentellen Aufbau hinsichtlich seiner Punktspreizfunktion (PSF, engl.: point spread function) zu untersuchen. Letztere gibt an, wie ein ideales punktförmiges Objekt durch das System an Optiken abgebildet wird. Mit ihr ist es möglich, aus einer detektierten Intensitätsverteilung auf die tatsächliche Verteilung zurückzuschließen.

In der Mikroskopie wird typischerweise die Emission eines einzelnen optisch aktiven Moleküls als ideale Punktquelle herangezogen. Zur Charakterisierung des Mikroresonatoraufbaus wird hier stattdessen eine SNOM-Faser (engl: Scanning Nearfield Optical Microscope) herangezogen, wie sie exemplarisch in Abb. 4.10(a) gezeigt ist. Der freiliegende Kern ist an einem Ende der Faser mit einer Aluminiumbeschichtung überzogen, welche lediglich eine kleine Öffnung am konisch zulaufenden Ende aufweist. In das andere Faserende wird das Licht eines Farbstofflasers mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 583$  nm eingekoppelt. Die Apertur des genutzten Fasertyps (LovaLite™ EM50 SMF28) ist kleiner als  $\varnothing 200$  nm, sodass die Emission der Faserspitze ebenfalls eine ideale Punktquelle darstellt ( $\varnothing < \lambda/2$ ). Das Faserende wird in der Gegenstandsebene des Objektivs positioniert, wobei der Mikroresonator durch einen geometrisch identischen Platzhalter ohne hochreflektive Spiegelbeschichtung ersetzt wurde. Durch Verwendung eines Tropfens Ethylenglykol zwischen Faser und Resonatorsubstrat zur Indexanpassung lässt sich so die Punktspreizfunktion des gesamten Aufbaus vermessen.

Abbildung 4.10(b) zeigt die aufgenommenen Beugungsmuster (Airy-Scheibchen) des Lichts für den Interferometerpfad mit Planspiegel bzw. Retroreflektor. Letzteres weist eine leichte Verzerrung gegenüber der erwarteten perfekten Radialsymmetrie auf, welche jedoch in Bezug auf die Breite der zentralen Scheibe vernachlässigbar klein ist. Die für beide Aufnahmen gemittelte Intensitätsverteilung als Funktion des radialen Abstands (kreisintegrierte radiale Intensitätsverteilung) ist in Teilabbildung 4.10(c) aufgetragen. Die Verteilung lässt sich über einen gaußförmigen Abfall nähern:

$$I(r) = I_0 \left( \frac{2J_1(r)}{r} \right)^2 \simeq I_0 \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{r^2}{\sigma_{\text{PSF}}^2}\right) \quad (4.46)$$

$J_1$  bezeichnet hier die Bessel-Funktion erster Gattung der Ordnung 1. Als Breite der Punktspreizfunktion erhält man so  $\sigma_{\text{PSF}} = (0,658 \pm 0,002) \mu\text{m}$ . Als begrenzender Faktor der numerischen Apertur hat sich in den Messungen die Bauweise des Mikroresonator herausgestellt, dessen Substrate unter hohen Divergenzwinkeln das Lichtfeld stärker begrenzen als das verwendete Objektiv, vgl. dazu auch Abb. 3.2.

### 4.3 Korrelationen des thermischen Photonengases

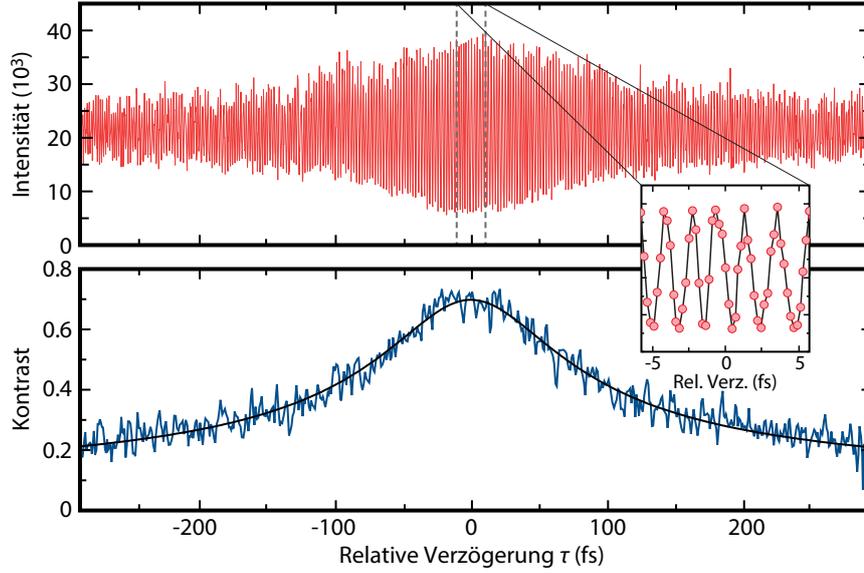
Wie die Experimente zur Thermodynamik (Kapitel 3) gezeigt haben, verhält sich das zweidimensionale Photonengas in der harmonischen Falle analog zu einem System massiver Teilchen. Da die Korrelationseigenschaften eines idealen Bosegases in der rein thermischen Phase ( $\bar{N} \ll \bar{N}_c$ ) durch seine Einteilcheneigenschaften festgelegt sind, wird dieses Verhalten auch für das Photonengas erwartet. Die räumliche Kohärenz wird bestimmt durch die thermische de Broglie Wellenlänge, welche durch die effektive Photonenmasse und die thermodynamische Systemtemperatur bestimmt wird. Die Kohärenzzeit des harmonisch gefangenen Systems ist sogar vollständig durch die Temperatur bestimmt, vgl. Gl. (4.44). Die Temperaturskalierung der räumlichen (zeitlichen) Korrelationen entsprechend  $\propto 1/\sqrt{T}$  ( $\propto 1/T$ ) wird in diesem Abschnitt ebenfalls explizit untersucht.

#### 4.3.1 Thermische Korrelationszeit

Das sich ergebende Interferenzmuster in der Bildebene des Detektors (vgl. Abb. 4.9(b)) variiert mit dem Wegunterschied der Teilpfade des Interferometers. Betrachtet man lediglich die Intensität an einem Punkt der räumlichen Verteilung (ein Pixel des Detektors), während die Länge des Retroreflektorpfads kontinuierlich verändert wird, misst man einen Intensitätsverlauf wie in Abb. 4.11 gezeigt. Die gewählte Bildrate in Kombination mit der Geschwindigkeit der kontinuierlichen Pfadlängenvariation erlaubt eine genaue Detektion der Maxima und Minima der Intensitätsoszillation. Aus diesen lässt sich der Interferenzkontrast bestimmen, der dem Absolutwert des Kohärenzgrades erster Ordnung entspricht:

$$K((\tau_{\min} + \tau_{\max})/2) = \frac{I(\tau_{\max}) - I(\tau_{\min})}{I(\tau_{\max}) + I(\tau_{\min})} = |g^{(1)}(\tau)| \quad (4.47)$$

Der gemessene Verlauf des Kohärenzgrades (Abb. 4.11, unten) entspricht qualitativ den Erwartungen gemäß Gl. (4.42). Der maximale Kontrast wird im Bereich um  $\tau = 0$  gemessen, mit einem symmetrischen Absinken für steigende Zeitverzögerungen  $|\tau| > 0$ . Der Abfall erfolgt auf einer Zeitskala der Größenordnung  $\approx 100$  fs, jedoch werden die in Abschnitt 1.3 postulierten Grenzwerte des Kohärenzgrades eines thermischen Systems ( $g^{(1)}(\tau = 0) = 1$  und  $g^{(1)}(\tau \rightarrow \infty) \rightarrow 0$ ) nicht erreicht. Grund dafür sind technische



**Abbildung 4.11:** Beobachtete Intensität am Interferometerausgang (oben) für eine feste Position ( $\vec{r} = 0$ ) und extrahierter Kontrast (unten), jeweils als Funktion der relativen zeitlichen Verzögerung  $\tau$  der Teilpfade. Die gewählte Bildwiederholrate der EMCCD Kamera erlaubt die Detektion des oszillierenden Intensitätsverlaufs (Inset). Aus den Intensitäts-Extrema lässt sich der Kontrast und somit  $|g^{(1)}(\tau)|$  extrahieren. Die schwarze Kurve entspricht dem erwarteten Verlauf der Kohärenz entsprechend Gl. (4.48).

Limitierungen, allen voran das intrinsische Detektorrauschen des CCD-Sensors bzw. dessen Ausleseelektronik. Der Einfluss systematischer Fehlerquellen, wie etwa ein nicht perfektes Aufspaltungsverhältnis der Lichtintensität in die beiden Teilpfade und die im Vergleich zum Planspiegel leicht reduzierte Reflektivität des Retroreflektors, ist vergleichsweise gering. Um diesen Limitierungen gerecht zu werden, kann Gl. (4.42) um einen Offset-Term  $K_{\text{off}}$  sowie einen Amplitudenfaktor  $A < 1$  erweitert werden:

$$|g^{(1)}(\tau)| = A \frac{\left(1 - e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}}\right)}{\sqrt{\left[1 - e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} \cos(2\Omega\tau)\right]^2 + \left[e^{-2\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} \sin(2\Omega\tau)\right]^2}} + K_{\text{off}} \quad (4.48)$$

Als Offset wird experimentell der Kontrast für große relative Verzögerungszeiten ( $\tau > 400$  fs; nicht in der Abbildung gezeigt) herangezogen, welcher in diesem Bereich einen konstanten Wert von  $K_{\text{off}} \approx 0,13$  annimmt und für jede Messreihe neu bestimmt wird. Die Amplitude verbleibt dann als Faktor für die Anpassung an die experimentellen Daten. Die so modifizierte Funktion für den Absolutwert des Kohärenzgrades ist in der Abbildung gezeigt (schwarze Kurve). Die Auswertung von zehn Messreihen liefert so eine Kohärenzzeit von  $\tau_c = (129 \pm 6)$  fs für eine Temperatur von  $T = 297$  K. Diese ist somit mehr als vier Größenordnungen kleiner als die Kohärenzzeit des kondensierten Photonengases, wie sie in heterodynen Interferenzexperimenten beobachtet wurde [33].

### Einfluss der begrenzten räumlichen Auflösung

Die gemessene Kohärenzzeit des Photonengases im rein thermischen Bereich weicht um etwa einen Faktor 3 von dem nach Gl. (4.44) erwarteten Wert von 44 fs ab. In den theoretischen Betrachtungen in Abschnitt 4.1 wird implizit von einem unendlich großen zeitlichen wie räumlichen Auflösungsvermögen ausgegangen. Während die im Experiment erzielte endliche Zeitauflösung von  $\approx 0,2$  fs dieser Annahme näherungsweise entspricht, modifiziert das endliche räumliche Auflösungsvermögen das gemessene Kohärenzverhalten jedoch deutlich. Die in Abschnitt 4.1.1 hergeleitete theoretische Intensitätsverteilung am Interferometerausgang  $I_a(\vec{r}, \tau)$  sowie die darauf aufbauende Numerik der zeitlichen Korrelationen lassen sich entsprechend erweitern.

Ausgehend von einer radialsymmetrischen Intensitätsverteilung  $I(\vec{r}) = I(-\vec{r})$  lassen sich der Realteil und der Betrag des Kohärenzgrades nach den Gln. (4.21) und (4.22) zunächst schreiben als:

$$\operatorname{Re} \left[ g^{(1)}(\vec{r}, \tau) \right] = \frac{4I_a(\vec{r}, \tau)}{2I(\vec{r})} - 1 \quad \text{und} \quad \left| g^{(1)}(\vec{r}, \tau) \right| = K(\vec{r}, \tau) \quad (4.49)$$

Der im Experiment gewonnene Wert der Intensität an einer Position setzt sich aus den Intensitäten des direkten Umfelds dieser Position zusammen. Die Ausdehnung dieses Umfelds ergibt sich aus dem optischen Auflösungsvermögen der genutzten Apparatur, quantifiziert über die bereits charakterisierte Punktspreizfunktion der Breite  $\sigma_{\text{PSF}}$ . Die über das Umfeld gemittelte Intensität  $\tilde{I}_a$  am Interferometerausgang ergibt sich dann über die Integration über die Fläche der Punktspreizfunktion:

$$\tilde{I}_a(\vec{r}, \tau) = \frac{1}{A} \int_{\text{PSF}} d\vec{r}' I_a(\vec{r}', \tau) \exp \left[ -\frac{(\vec{r} - \vec{r}')^2}{2\sigma_{\text{PSF}}^2} \right] \quad (4.50)$$

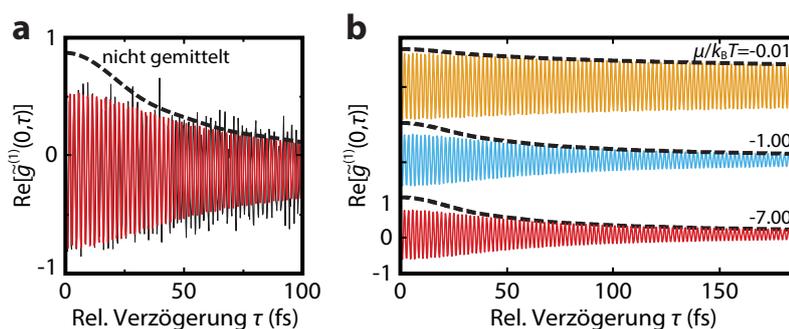
$$= \frac{1}{A} \int_{\text{PSF}} d\vec{r}' \frac{I(\vec{r}', \tau)}{2} \left\{ 1 + \left| g^{(1)}(\vec{r}', -\vec{r}', \tau) \right| \right\} \exp \left[ -\frac{(\vec{r} - \vec{r}')^2}{2\sigma_{\text{PSF}}^2} \right] \quad (4.51)$$

$$\simeq \frac{I(\vec{r}, \tau)}{2} \left\{ 1 + \frac{1}{A} \int_{\text{PSF}} d\vec{r}' \left| g^{(1)}(\vec{r}', -\vec{r}', \tau) \right| \exp \left[ -\frac{(\vec{r} - \vec{r}')^2}{2\sigma_{\text{PSF}}^2} \right] \right\} \quad (4.52)$$

$A$  bezeichnet hier den Normierungsfaktor  $A = \int_{\text{PSF}} d\vec{r}' \exp \left[ -\frac{(\vec{r} - \vec{r}')^2}{2\sigma_{\text{PSF}}^2} \right]$ . Im letzten Schritt wurde  $I(\vec{r}, \tau)$  aus dem Integral herausgezogen, da die Intensitätsverteilung des Photonengases über die Breite der Punktspreizfunktion als konstant angesehen werden kann. Als im Experiment messbaren Betrag des Kohärenzgrades erster Ordnung erhält man dann:

$$\left| \tilde{g}^{(1)}(\vec{r}, \tau) \right| = \frac{2\tilde{I}_a(\vec{r}, \tau)}{I(\vec{r}, \tau)} - 1 \quad (4.53)$$

Die Resultate der numerischen Berechnungen unter Berücksichtigung des endlichen Auflösungsvermögens sind in Abb. 4.12(a) gezeigt. Die Numerik für das rein thermisch besetzte Photonengas ( $\mu \approx k_B T$ ) zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Daten. Der Einfluss der Mittelung ist besonders für kurze Zeitverzögerungen eminent. Im Bereich  $\tau > 50$  fs besteht kein wesentlicher Unterschied zu den Erwartungen für ein perfekt auflösendes System, da der Beitrag zum Kohärenzgrad von Position  $|\vec{r}| > 0$  aufgrund der endlichen Ausdehnung stark abnimmt. Der reduzierte Kontrast für  $\tau \approx 0$  ist jedoch ausreichend, um die Halbwertsbreite der Verteilung, und somit die Kohärenzzeit, um den im Experiment



**Abbildung 4.12:** Realteil des Kohärenzgrades unter Berücksichtigung einer endlichen räumlichen Auflösung als Funktion der Zeitverzögerung  $\tau$  bei  $\vec{r} = 0$ . (a) Experimentell beobachteter (schwarz) und damit gut übereinstimmender, numerisch berechneter (rot) Verlauf für die in Abschnitt 4.2.2 gemessene Breite der Punktspreizfunktion. Im Gegensatz zur Erwartung für ein perfekt auflösendes System (gestrichelte Linie, siehe auch Abb. 4.5) zeigt sich ein niedrigerer Kontrast im Bereich kleiner Zeitverzögerungen. (b) Für steigende Photonenzahlen nimmt der Einfluss der Mittelung ab und ist mit Einsetzen der Kondensation ( $\mu/k_B T \approx -0,01$ ) vernachlässigbar klein.

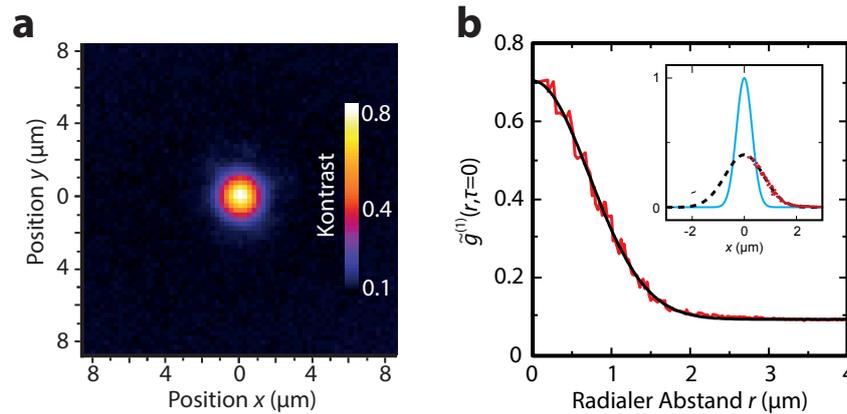
beobachteten Faktor 3 zu vergrößern. Weiter zeigt die Numerik, dass für steigende Photonenzahlen der Einfluss des experimentellen Auflösungsvermögens an Bedeutung verliert (Abb. 4.12(b)). Mit Einsetzen der Kondensation wird der Kohärenzgrad im Wesentlichen durch die Phasenstabilität des makroskopisch besetzten Grundmoden dominiert, dessen Ausdehnung das Auflösungsvermögen deutlich übersteigt. In diesem Bereich sind daher die Abweichungen zur Numerik ohne Mittelung vernachlässigbar.

### 4.3.2 Thermische de Broglie Wellenlänge des idealen Photonengases

Die im letzten Abschnitt hinsichtlich des zeitlichen Verlaufs des Kohärenzgrades untersuchten Messdaten lassen sich auch in Bezug auf die räumlichen Korrelationen auswerten. Für jede Position in der Detektorebene bzw. für jeden Pixel des Kamerachips lässt sich eine Zeitspur wie in Abb. 4.11 gezeigt aus den Kamerabildern ermitteln. In Abbildung 4.13(a) sind die um  $\tau \approx 0$  ermittelten positionsabhängigen Kontraste aufgetragen. Um den Einfluss des Detektorrauschens zu minimieren, wurde der Mittelwert des extrahierten Kontrastes der Oszillationen des Interferenzsignals im Bereich  $|\tau| < 5$  fs verwendet. Die so erstellte Kohärenzkarte zeigt einen radialsymmetrisch abfallenden Kontrast im erwarteten Bereich weniger Mikrometer.

Um aus der Kohärenzkarte die Kohärenzlänge zu extrahieren, wird der Kontrast zunächst radial aufsummiert. Abbildung 4.13(b) zeigt den so erhaltenen Kontrast als Funktion des (radialen) Abstands vom Mittelpunkt der Verteilung. Generell zeigen die Daten eine sehr gute Übereinstimmung mit dem erwarteten gaußförmigen Abfall der Kohärenz (schwarze Kurve). Analog zur Diskussion der Kohärenzzeit muss auch hier die in Abschnitt 4.1.2 erarbeitete analytische Beschreibung der Kohärenzlänge entsprechend der technischen Limitierung durch den Detektor modifiziert werden. Erweitert man Gl. (4.32) um einen Amplitudenfaktor  $A$  sowie einen Offset  $K_{\text{offset}}$  erhält man:

$$\tilde{g}^{(1)}(r) = A \exp\left[-\frac{4\pi r^2}{\sigma_{\text{exp}}^2}\right] + K_{\text{offset}} \quad (4.54)$$



**Abbildung 4.13:** Räumlicher Kohärenzgrad erster Ordnung des rein thermischen Photonengases. (a) Kohärenzkarte mit aus den gemessenen Zeitverläufen (Abb. 4.11) extrahiertem Kontrast um  $\tau \approx 0$  aufgetragen gegen die Position in der Detektorebene. (b) Die radialsymmetrische Ausprägung erlaubt die histogrammische Darstellung des Kontrasts als Funktion des Abstandes vom Mittelpunkt der räumlichen Verteilung. Die experimentellen Daten (rot) zeigen eine hervorragende Übereinstimmung mit dem erwarteten gaußförmigen Verlauf (schwarz). (Inset) Die Faltung (gestrichelt) des analytischen Verlaufs (blau) mit der gemessenen Punktspreizfunktion zeigt auch quantitativ eine sehr gute Übereinstimmung mit den gemessenen Daten.

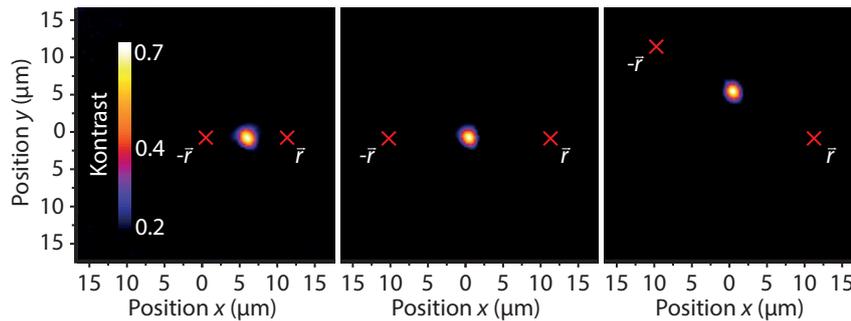
Als Breite der Gaußverteilung wird hier anstatt der thermischen de Broglie Wellenlänge  $\lambda_{\text{th}}$  zunächst der Parameter  $\sigma_{\text{exp}}$  verwendet. Durch Anpassen von Gl. (4.54) an die Daten lässt sich  $\sigma_{\text{exp}}$  bestimmen. Um weiter aus der gemessenen Breite der Verteilung auf die tatsächliche Kohärenzlänge zu schließen, muss erstere entsprechend des räumlichen Auflösungsvermögens korrigiert werden. Entfaltet man Gl. (4.54) mit der genäherten Punktspreizfunktion aus Gl. (4.46) ergibt sich die gemessene thermische de Broglie Wellenlänge  $\lambda_{\text{th,exp}}$  durch quadratische Subtraktion der Breiten der Gaußverteilungen:  $\lambda_{\text{th,exp}}^2 = \sigma_{\text{exp}}^2 - 8\pi\sigma_{\text{PSF}}^2$ . Nach Auswertung derselben zehn Messreihen des vorherigen Abschnitts erhält man mit  $\sigma_{\text{PSF}} = (0,658 \pm 0,002) \mu\text{m}$ :

$$\lambda_{\text{th,exp}} = (1,48 \pm 0,01) \mu\text{m} \quad (4.55)$$

Der gefundene Wert stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem theoretisch für die genutzten Systemparameter erwarteten Wert von  $\lambda_{\text{th}} = (1,482 \pm 0,002) \mu\text{m}$  überein. Somit kann erstmals die tatsächliche thermische de Broglie Wellenlänge eines photonischen Gleichgewichts-Quantensystems verifiziert werden.

### Ergodizität

Die Möglichkeit die thermische de Broglie Wellenlänge so exakt zu vermessen, ist auch dem Umstand geschuldet, dass die thermischen Eigenschaften des Photonengases in der klassischen Phase nicht vom betrachteten Ort abhängen sollten. Ist das System in einem Gleichgewichtszustand, sind die thermodynamischen Zustandsgrößen an jeder Stelle identisch: Das System ist ergodisch. Da die Korrelationseigenschaften hier vollständig durch Temperatur und effektive Masse vorgegeben sind, ist es im Interferenzexperiment unerheblich, ob die Superposition der beiden Teilfelder in der Detektorebene



**Abbildung 4.14:** Kohärenzkarten des Photonengases weit unterhalb der kritischen Teilchenzahl für räumlich verschobene Überlagerungen der Interferometerarme. Die roten Kreuze symbolisieren die Mittelpunkte der Intensitätsverteilungen. Die Kohärenz bildet sich immer radialsymmetrisch in der relativen Mitte aus ( $\vec{r} = -\vec{r} = 0$ ) und fällt auf einer durch die thermischen de Broglie Wellenlänge vorgegebenen Länge ab.

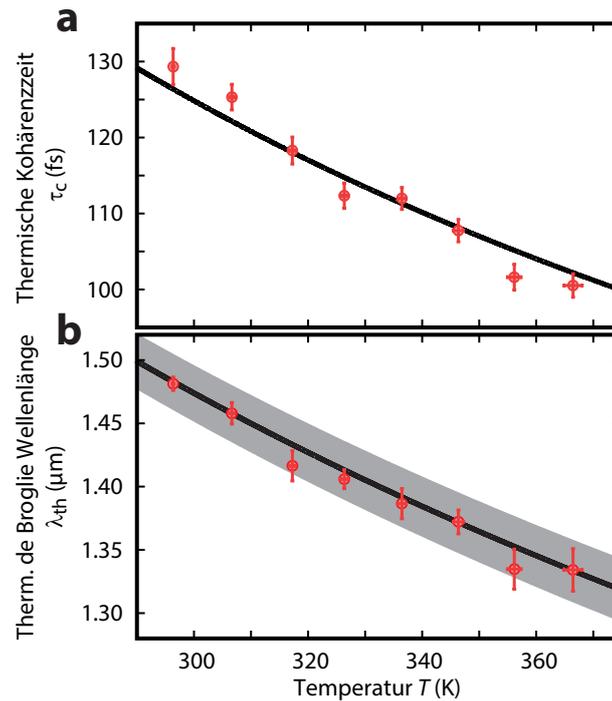
exakt zentriert erfolgt. Tatsächlich wäre letzteres mit dem hier verwendeten experimentellen Aufbau auch nicht mit der dann geforderten Präzision ( $\lesssim 100$  nm) möglich.

Die Ergodizität lässt sich verifizieren, indem die Superposition der Felder der Teilpfade zueinander räumlich verschoben erfolgt, siehe dazu auch die entsprechenden numerischen Berechnungen in Abb. 4.3(c). Im invertierenden Interferometer entspricht dann genau der Ort in der Detektorebene, der einen identischen Abstand zu beiden Mittelpunkten der Intensitätsverteilung hat, der Koordinate  $\vec{r} = 0$ . In Abb. 4.14 sind exemplarisch drei gemessene Kohärenzkarten gezeigt, die einer deplatzierten Überlagerung entsprechen. Der Kontrast erreicht sein Maximum exakt mittig zwischen den Maxima der Intensitätsverteilungen (rote Kreuze). Der Abfall der Kohärenz geschieht radialsymmetrisch auf einer durch die thermische de Broglie Wellenlänge vorgegebenen Längenskala und verhält sich somit identisch zum vorher untersuchten Fall zentraler Überlagerung (Abb. 4.13(a)). Der im direkten Vergleich verminderte Kontrast sowie das beobachtete Verzerren der Radialsymmetrie sind den vergleichsweise geringen Intensitäten im Außenbereich des Photonengases und dem somit stark verringerten Signal-Rausch-Verhältnis geschuldet.

### 4.3.3 Temperaturabhängigkeit der thermischen Korrelationen

Die Temperaturabhängigkeit der Korrelationen des thermischen Photonengases lässt sich im Mikroresonatorexperiment explizit überprüfen. Dazu wird der vollständige Resonatoraufbau, inklusive der darin befindlichen Farbstofflösung, mittels der Heizwiderstände inkrementell in  $\approx 10$  K-Schritten erwärmt. In jeweils zehn Messreihen wird dann sowohl die Kohärenzzeit als auch die transversale Kohärenzlänge bestimmt. Da die Temperatur des thermalisierten Photonengases der Temperatur der Farbstofflösung entspricht, erwartet man eine entsprechende Veränderung der gemessenen Korrelationseigenschaften.

Abbildung 4.15 zeigt die gemessenen thermischen Korrelationszeiten sowie die extrahierten thermischen de Broglie Wellenlängen als Funktion der Temperatur. Beide Größen nehmen als Folge der für steigende Temperaturen abnehmenden Ordnung im System kleinere Werte an. Die Daten zeigen eine gute Übereinstimmung mit der erwarteten Temperaturskalierung (schwarze Kurven). In Teilabbildung 4.15(a) wurde hierfür der in Abschnitt 4.1.3 diskutierte analytische Ausdruck (Gl. 4.44) um einen empirischen



**Abbildung 4.15:** Temperaturabhängigkeit der Kohärenzzeit (a) und transversalen Kohärenzlänge (b) des Photonengases weit unterhalb der kritischen Teilchenzahl. Die gezeigten Messdaten (rot) entsprechen jeweils dem Mittelwert von zehn Messreihen und zeigen eine gute Übereinstimmung mit der erwarteten  $1/T$ - ( $\tau_c$ ) bzw.  $1/\sqrt{T}$ - ( $\lambda_{th}$ ) Skalierung (schwarze Kurven). Der grau hinterlegte Bereich entspricht der Unsicherheit in der Bestimmung des räumlichen Auflösungsvermögens.

Faktor  $\kappa$  erweitert:

$$\tau_c = \kappa \frac{\hbar}{k_B T} \quad \text{mit} \quad \kappa = 4,90 \pm 0,03 \quad (4.56)$$

Der numerische Wert des Faktors  $\kappa$  folgt aus der Anpassung von Gl. (4.56) an die gezeigten Daten unter der Annahme, dass die erwartete  $1/T$ -Skalierung Gültigkeit besitzt. Diese Annahme ist insofern gerechtfertigt, als dass eine Mittelung der Korrelationen verschiedener Orte gleicher Temperatur die explizite Temperaturskalierung nicht beeinflusst. Die Abweichung vom erwarteten Wert  $\kappa = \sqrt{3}$  wird auf das endliche Auflösungsvermögen des Interferometeraufbaus zurückgeführt, wie in Abschnitt 4.3.1 diskutiert. Im Sinne der eigentlich angestrebten Verifizierung der Temperaturskalierung ist diese Argumentation jedoch nicht zielführend. Die Anpassung einer Funktion des Typs  $\tau_c = \kappa \cdot T^\alpha$ , mit  $\kappa$  und  $\alpha$  als zu bestimmende Variablen, an die gemessenen Daten liefert  $\alpha = -1,23 \pm 0,08$ , wobei der angegebene Fehler die statistische Unsicherheit darstellt. Das gemessene Temperaturverhalten der Kohärenzzeit kommt somit der erwarteten  $1/T$ -Skalierung nahe, verifiziert diese aber nicht eindeutig.

Die durchgezogene Linie in Abb. 4.15(b) entspricht der Erwartung für die thermische de Broglie Wellenlänge  $\lambda_{th} = h/\sqrt{2\pi m_{ph} k_B T}$ , mit der effektiven Photonenmasse  $m_{ph} = \hbar\omega_0 n^2/c^2$  bei der eingestellten Abschneidewellenlänge von 583 nm. Der grau hinterlegte Bereich entspricht der systematischen Unsicherheit durch die Bestimmung der Punktspreizfunktion. Die gemessenen Daten stimmen im untersuchten Bereich sehr gut mit den theoretischen Erwartungen überein. Durch Anpassung einer Funktion obigen Typs erhält man eine Temperaturskalierung gemäß  $T^{-0,51 \pm 0,03}$ . Neben der im vorigen Abschnitt

gezeigten quantitativen Übereinstimmung der gemessenen transversalen Kohärenz ist somit auch die Temperaturskalierung verifiziert. Somit ist der Nachweis gelungen, dass die räumlichen Korrelationen des zweidimensionalen, harmonisch gefangenen Photonengases über die thermische de Broglie Wellenlänge, die sich unter der Annahme einer von Null verschiedenen effektiven Photonemasse ergibt, bestimmt sind.

## 4.4 Bestimmung der kritischen Phasenraumdichte

Mit erfolgter Bestimmung der thermischen de Broglie Wellenlänge des Photonengases lässt sich ein weiteres grundlegendes Konzept idealer Bosegase überprüfen: Das Einsetzen des Phasenübergangs zum Bose-Einstein-Kondensat sobald die de Broglie Wellenpakete der Teilchen überlappen. Da die Temperatur im Falle des farbstoffgefüllten Mikroresonators konstant ist - alle weiteren gezeigten Experimente werden wieder bei Raumtemperatur  $T \approx 300$  K durchgeführt - und somit auch die Ausdehnung der Wellenpakete festgelegt ist, verbleibt als freier Parameter der Phasenraumdichte  $\bar{\omega} = \bar{\rho}_0 \lambda_{\text{th}}^2$  lediglich die mittlere zweidimensionale Teilchendichte  $\bar{\rho}_0$ , vgl. Abschnitt 4.1.1.

Experimentell lässt sich die Teilchenzahl im Resonator, und damit die Teilchendichte bei bekannter Geometrie nach Gl. (4.12), sowohl aus einer direkten Leistungsmessung der Resonatoremision als auch aus den gemessenen räumlichen Intensitätsverteilungen bestimmen. Da die Anregung des Farbstoffs für Photonenzahlen im Bereich des Phasenübergangs bereits gepulst erfolgt, ist die direkte Leistungsmessung mit einer vergleichsweise großen Unsicherheit behaftet [26]. An dieser Stelle werden daher die mittels der EMCCD-Kamera aufgenommenen Intensitätsverteilungen eines Photonengases an bzw. knapp unterhalb der Schwelle zur Kondensation herangezogen. Ein solches Bild ist exemplarisch in Abb. 4.16 gezeigt. Der horizontale Schnitt durch den Mittelpunkt des Bildes zeigt eine gute Übereinstimmung mit der erwarteten Intensitätsverteilung für eine Teilchenzahl nahe der Kritikalität ( $\bar{N}/\bar{N}_c \approx 0,993$ , schwarze Kurve). Die Teilchenzahl  $N_{\text{in}}$  im Resonator lässt sich aus der emittierten Teilchenzahl  $N_{\text{emit}}$  pro Puls bestimmen. Letztere lässt sich wiederum anhand der Transmissivität des optischen Aufbaus sowie den dokumentierten Detektor-Eigenschaften aus den gemessenen Pixelwerten (counts)  $C_{\text{det}}$  errechnen:

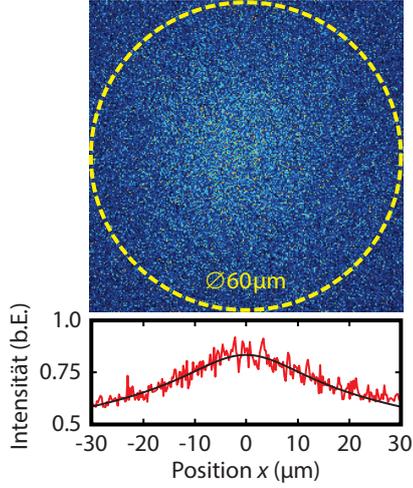
$$N_{\text{in}} = \frac{N_{\text{emit}} \tau_{\text{rt}}}{t_{\text{Puls}} T_{\text{Res}}} \quad \text{mit} \quad (4.57)$$

$$N_{\text{emit}} = \frac{C_{\text{det}} \epsilon}{A_{\text{View}} G_{\text{EM}} \eta_{\text{Det}} T_{\text{Opt}}} \quad (4.58)$$

Die hier benötigten Detektor- und Resonatorparameter sind in Tab. 4.1 aufgeführt. Der in Gl. (4.58) genutzte Flächenfaktor  $A_{\text{View}} = 0.09$  entspricht dem relativen Anteil der zur Auswertung herangezogenen Emission gegenüber dem vollständigen Photonengas. Es werden dazu die Pixelwerte in einem Radius von  $30 \mu\text{m}$  um das Fallenzentrum herum betrachtet, da es in diesem Bereich noch nicht zu Verlusten aufgrund der endlichen numerischen Apertur der verwendeten Abbildungsoptiken kommt.

Die Auswertung der Bilddaten liefert einen Pixelwert von  $C_{\text{det}} = (12,6 \pm 0,2) \cdot 10^6$ , woraus sich nach Gl. (4.57) eine gemessene Photonenzahl im Mikroresonator von  $N_{\text{in}} = (9,0 \pm 1,8) \cdot 10^4$  ergibt. Der Radius  $\Delta r$  der thermischen Wolke lässt sich entsprechend Abschnitt 4.1.1 aus der Resonatorgeometrie errechnen:

$$\Delta r = \sqrt{\frac{2k_{\text{B}} T \lambda_0 c}{h \Omega^2 n^2}} = 140,6 \mu\text{m} \quad (4.59)$$



**Abbildung 4.16:** Gemessene Intensitätsverteilung (oben) und horizontaler Schnitt (unten, rot) des Photonengases sehr nahe an der Kondensationsschwelle (schwarze Kurve:  $\bar{N} = 93\,500 \approx \bar{N}_c$ ). Zur Bestimmung der gemessenen Teilchenzahl werden lediglich die inneren  $\varnothing 60\,\mu\text{m}$  herangezogen (gestrichelter Kreis).

**Tabelle 4.1:** Optische Verluste im Experiment, Kamera-Charakteristiken und Resonatorparameter.

| Transmissivität des optischen Aufbaus |                     |                                       |
|---------------------------------------|---------------------|---------------------------------------|
| Optik                                 | #                   | $T$                                   |
| Objektiv                              | 1                   | $0,85 \pm 0,05$                       |
| Linsen (AR)                           | 6                   | $0,995 \pm 0,002$                     |
| Silberspiegel                         | 11                  | $0,96 \pm 0,01$                       |
| Bandpassfilter                        | 2                   | $0,97 \pm 0,01$                       |
| Strahlteiler                          | 2                   | $0,50 \pm 0,02$                       |
| Gesamt:                               | $T_{\text{Opt}}$    | $0,124 \pm 0,014$                     |
| Detektor-Eigenschaften (aus [134])    |                     |                                       |
| Quanteneffizienz                      | $\eta_{\text{Det}}$ | $0,97 \pm 0,02$                       |
| El. pro Count                         | $\epsilon$          | $15,3 \pm 0,5$                        |
| El.-Verstärkung                       | $G_{\text{EM}}$     | $250 \pm 10$                          |
| Resonatorparameter                    |                     |                                       |
| Pulslänge                             | $t_{\text{Puls}}$   | $(600 \pm 30) \cdot 10^{-9}\text{ s}$ |
| Umlaufzeit                            | $\tau_{\text{rt}}$  | $1,55 \cdot 10^{-14}\text{ s}$        |
| Spiegeltransmission                   | $T_{\text{Res}}$    | $(2,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-5}$         |

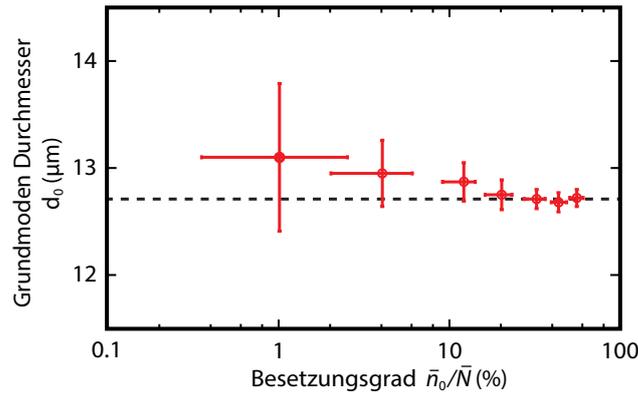
Die Phasenraumdichte folgt dann gemäß Gl. (4.10) aus der mittleren Teilchendichte  $\bar{\rho}_0$ :

$$\bar{\omega}_{c,\text{exp}} = \bar{\rho}_0 \lambda_{\text{th,exp}}^2 = \frac{N_{\text{in}}}{\pi \Delta r^2} \lambda_{\text{th,exp}}^2 = 3,2 \pm 0,6 \quad (4.60)$$

Der gefundene Wert der Phasenraumdichte am Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat stimmt somit innerhalb der Messunsicherheiten sehr gut mit dem erwarteten Wert von  $\bar{\omega}_c = \zeta(\alpha = 2)/2 = \pi^2/3 \approx 3,289$  für ein polarisationsentartetes, zweidimensionales und homogen gefangenes ideales Bosegas überein, vgl. Abschnitt 1.1.2.

## 4.5 Korrelationen des Bose-Einstein-Kondensats

Das Einsetzen der Kondensation ist durch die rasche Zunahme der Ordnung des Systems charakterisiert. Im besonderen Maße macht sich dies durch die Vergrößerung der räumlichen Ausdehnung der Phasenkorrelationen bemerkbar, die eine direkte Folge der makroskopischen Besetzung des Grundzustands ist. Der erwartete Anstieg der transversalen Kohärenzlänge, von den untersuchten thermischen Längenskalen bis hin zu einer langreichweitigen Ordnung, die das gesamte System umfasst, lässt sich prinzipiell mittels des invertierenden Interferometeraufbaus vermessen. Technische Limitierungen, insbesondere das endliche Signal-Rausch-Verhältnis der Kamera gepaart mit der bei diesen Intensitäten nötigen gepulsten Farbstoffanregung, verhindern jedoch eine Untersuchung des Bereichs zwischen der klassischen und der kondensierten Phase. In diesem Zwischenbereich wird bereits ein Anstieg der Kohärenzlänge als Folge der beginnenden Quantenentartung erwartet (Abb. 4.4(c)). Erst mit Einsetzen der makroskopischen



**Abbildung 4.17:** Gemessener Durchmesser (FWHM) des Grundmoden als Funktion des Besetzungsgrades  $\bar{n}_0/\bar{N}$ . Gezeigt ist die mittlere Breite der angepassten Gaußverteilung nach Abzug des als für  $\bar{N} > \bar{N}_c$  gesättigt angenommenen thermischen Untergrunds von der Intensitätsverteilung. Unter Berücksichtigung der Messunsicherheit ist innerhalb des untersuchten Bereichs keine Abweichung von der erwarteten Ausdehnung  $d_{0,\text{FWHM}} = 2\sqrt{\hbar \ln(2)/m_{\text{ph}}\Omega} \approx 12,7 \mu\text{m}$  (gestrichelte Linie) festzustellen.

Modenbesetzung bei  $\bar{N} \gtrsim \bar{N}_c$  sind die Lichtintensitäten groß genug, um die Kamerabilder hinsichtlich der räumlichen Kohärenz auswerten zu können.

Für die durchgeführten Messungen der Kohärenzlänge in der kondensierten Phase wurden Photonengase mit einem Kondensatanteil von  $\bar{n}_0/\bar{N} = \{1\%; 4\%; 12\%; 20\%; 32\%; 43\%; 55\%\}$  (entsprechend  $\bar{N}/\bar{N}_c = \{1,01; 1,04; 1,14; 1,25; 1,47; 1,75; 2,22\}$ ) realisiert. Die Bestimmung der Kondensatanteile erfolgt analog zum vorherigen Kapitel über die Auswertung der mittels des 4f-Spektrometers gemessenen spektralen Besetzungsverteilungen. Typischerweise variiert die Teilchenzahl im Mikroresonator innerhalb der zur Aufnahme der Spektren benötigten Zeit im Mittel um einige tausend Photonen. Im Bereich nahe der Kondensationsschwelle führt dies zu stark schwankenden Besetzungsgraden mit entsprechend großer Auswirkung auf die Kohärenzlänge. Die mittlere Photonenzahl der Messreihen mit kleinen Kondensatanteilen wird daher zusätzlich über die aus den Kamerabildern extrahierten Lichtintensitäten bestimmt. Die für die Besetzungsgrade  $\bar{n}_0/\bar{N} = (1 \pm 1)\%$  und  $\bar{n}_0/\bar{N} = (4 \pm 2)\%$  gezeigten Daten entsprechen Teilmengen der Messreihen mit  $\bar{n}_0/\bar{N} < 10\%$ , deren entsprechende Photonenzahl für die Dauer der interferometrischen Datenaufnahme näherungsweise stabil bleibt.

Um eine unvollständige Sättigung der Transversalmoden mit ansteigender Photonenzahl zu vermeiden, wurde die Pulsrate gegenüber den im vorigen Kapitel beschriebenen Experimenten zur Kalorimetrie des Photonengases deutlich verringert, siehe Abschnitt 4.2. In Abb. 4.17 ist die Abhängigkeit des Durchmessers des Kondensatmoden als Funktion des Besetzungsgrades gezeigt. Die Bestimmung der räumlichen Ausdehnung erfolgt über die für die jeweiligen Photonenzahlen gemessenen Intensitätsverteilungen. Die gleichbleibende räumliche Kondensatausdehnung von  $\varnothing 12,7 \mu\text{m}$  ist ein Indiz dafür, dass thermo-optischen Effekte für die hier verwendeten Parameter im Rahmen der Messunsicherheit keine Abweichungen von den Bedingungen des idealen Bosegases bewirken. Insbesondere ist somit auch ein Ansteigen der gemessenen Kohärenzlänge als Folge einer Kondensatvergrößerung bzw. einer multimodalen makroskopischen Besetzung hier nicht zu erwarten.

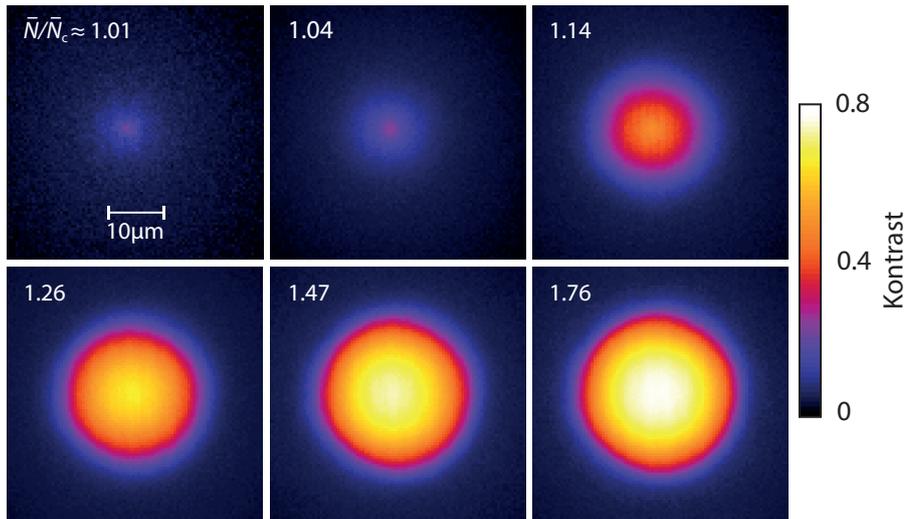
### 4.5.1 Bestimmung der räumlichen Kohärenzlänge

Die Auswertung der aufgenommenen Interferenzmuster der realisierten Photonenkondensate erfolgt analog zu dem zur Bestimmung der thermischen Kohärenzlänge eingesetzten Verfahren. Aufgrund der im Vergleich wesentlich geringeren detektierten Lichtintensitäten der Emission eines einzelnen Kondensatpulses werden zur Steigerung des Signal-Rausch-Verhältnisses die Werte von  $2 \times 2$  Kamerapixeln zusammengefasst. Die so erzielte räumliche Auflösung - die effektive Pixelgröße entspricht in etwa  $0,5 \mu\text{m} \times 0,5 \mu\text{m}$  - ist für die erwarteten Kohärenzlängen ausreichend. Der Beitrag des thermischen Untergrundes im Bereich  $< 1 \mu\text{m}$  lässt sich jedoch nur noch qualitativ erfassen. Weiter wird ein im Vergleich zu den in Abschnitt 4.3 beschriebenen Messungen größerer Bereich relativer Pfadlängendifferenzen des Interferometers um  $|\tau| < 10 \text{ ps}$  zur Ermittlung des mittleren Kontrasts herangezogen.

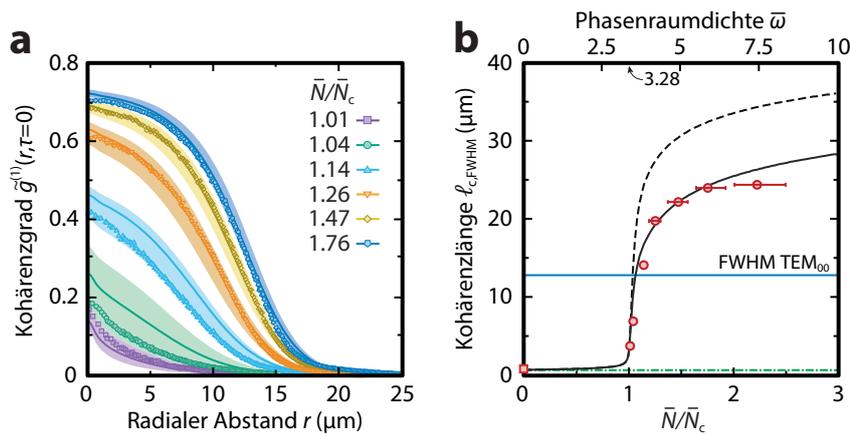
Abbildung 4.18 zeigt die so ermittelten Kohärenzkarten des kondensierten Photonengases für den Bereich zwischen  $\bar{N}/\bar{N}_c \approx 1,01$  bis  $\bar{N}/\bar{N}_c \approx 1,76$ . Auffallend ist die rasche Zunahme der Ausdehnung der Kohärenz nach Erreichen der Kondensationsschwelle. Charakteristisch ist erneut die nahezu perfekte Radialsymmetrie der beobachteten Korrelationen, was die hohe optische Qualität des untersuchten Photonensystems unterstreicht. Es konnten für die beschriebenen Parameter keine Hinweise gefunden werden, die auf eine Abweichung von der idealen Bosegas-Theorie hindeuten würden. Insbesondere wurden keine fragmentierten Korrelationen, stationären Vortices oder propagierende (im Sinne von neuerscheinenden) Korrelationen gefunden, wie sie bspw. in Exziton-Polariton Systemen beobachtet wurden [21, 55, 60].

Die aus den Kohärenzkarten entnommenen, radial integrierten Kohärenzgrade als Funktion des Abstands zum Mittelpunkt der Verteilung (Symbole) sind in Abb. 4.19(a) gezeigt. Die Messungen stimmen unter Berücksichtigung der angesprochenen Unsicherheit in der Bestimmung der absoluten Photonenzahl (farblich hinterlegte Bereiche) sehr gut mit der Erwartung gemäß den numerischen Berechnungen überein (durchgezogene Linien), siehe dazu auch Abschnitt 4.1.2 bzw. Abb. 4.4. Der zunehmend dominierende Einfluss des makroskopisch besetzten Grundmoden bewirkt eine Veränderung des abfallenden Verlaufs des Kohärenzgrades für größer werdende Abstände. Im Bereich kleiner Kondensatbesetzungen entspricht dieser einem exponentiellen Abfall, während sich für größere Besetzungsgrade zunächst ein Plateau ausbildet. Diese Beobachtung wird im folgenden Abschnitt 4.5.2 noch einmal aufgegriffen und diskutiert.

Weiter ist insbesondere die rasche Zunahme der Kohärenzlänge kennzeichnend für die Ausbildung einer langreichweitigen Ordnung im System. In Abb. 4.19(b) ist diese als Funktion von  $\bar{N}/\bar{N}_c$  aufgetragen, inklusive der beobachteten thermischen Kohärenzlänge von  $\ell_{c,\text{th}} = \lambda_{\text{th}} \sqrt{\ln 2/4\pi}$  für  $\bar{N}/\bar{N}_c \approx 10^{-4}$  (Quadrat bzw. grüne punkt-gestrichelte Linie). Bereits für einen gemessenen Besetzungsgrad von  $\bar{n}_0/\bar{n} = 12 \%$  überschreitet die Kohärenzlänge die Ausmaße des TEM<sub>00</sub>-Kondensatmoden (blaue Linie). Die Korrelationen erstrecken sich also bereits kurz nach Überschreiten des Phasenübergangs über einen im Vergleich zu den rein thermischen Korrelationen deutlich größeren Bereich. Die monoton mit der Teilchenzahl ansteigende Kohärenzlänge stimmt auch quantitativ gut mit den Erwartungen unter Einbeziehung der Detektorcharakteristik überein (schwarze durchgezogene Kurve). Auch quantitativ verhält sich demnach das harmonisch gefangene, zweidimensionale Photonengas gemäß den Vorhersagen für das ideale Bosegas.



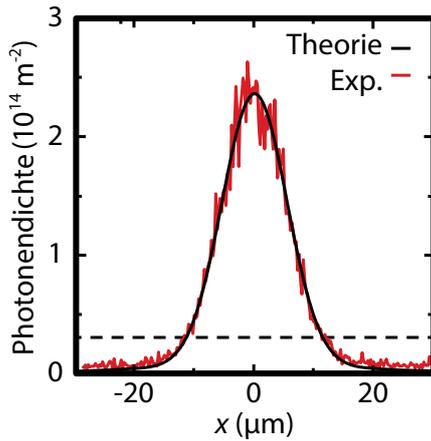
**Abbildung 4.18:** Kohärenzkarten des kondensierten Photonengases für ansteigende Verhältnisse von  $\bar{N}/\bar{N}_c$ . Der rasche Anstieg der räumlichen Korrelationen nach Überschreiten des Phasenübergangs kennzeichnet das Einsetzen langreichweitiger Ordnung im System. Der Anstieg des gemessenen Absolutwertes des Interferenzkontrastes ist eine Folge des mit der Photonenzahl steigenden Signal-Rausch-Verhältnisses.



**Abbildung 4.19:** (a) Gemessener Kohärenzgrad (Symbole) für verschiedene Kondensatbesetzungen als Funktion des radialen Abstands zum Mittelpunkt der Verteilung aus Abb. 4.18 nach Abzug des Offsets. Sie zeigen eine gute Übereinstimmung mit den numerisch berechneten Verläufen (Linien) bei Einbeziehung der Rauschcharakteristik des Detektors sowie der Unsicherheit des bestimmten Besetzungsgrades (farblich unterlegter Bereich). (b) Transversale Kohärenzlängen (Kreise) als Funktion der Kondensatbesetzung (untere Achse) bzw. der Phasenraumdicke (obere Achse), inklusive der in Abschnitt 4.3.2 bestimmten thermischen Kohärenzlänge (Rechteck, punkt-gestrichelte Kurve). Ebenfalls gezeigt ist die Numerik des erwarteten Verlaufs für einen idealen Detektor (gestrichelte Linie, vgl. Abb. 4.4(c)) sowie unter Einbeziehung der technischen Limitierungen (schwarze Kurve). Nach Überschreiten des Phasenübergangs wächst die Kohärenzlänge schnell an und übersteigt bereits für einen Besetzungsgrad von 12 % den Durchmesser (FWHM) des Grundmodens (blaue Linie).

**Einfluss der Detektorcharakteristik auf die Bestimmung des Kontrastes**

Die Abweichung des Absolutwertes des gemessenen Kontrastes in Abb. 4.18 von der erwarteten perfekten Kohärenz für  $r = 0$  sowie dessen Skalierung mit der Teilchenzahl im Kondensat lassen sich als Folge der Rauschcharakteristik des Kamerachips auffassen. Der Effekt dieser technischen Limitierung lässt sich analog zu Abschnitt 4.3 mittels eines zusätzlichen Skalierungsfaktors sowie eines Offsets modellieren, die beide in der in der Abbildung gezeigten Numerik bereits enthalten sind.



**Abbildung 4.20:** Horizontaler Schnitt durch die gemessene (rot) und erwartete (schwarze Kurve) Intensitätsverteilung eines einzelnen Kondensatpulses. Unterhalb einer Photonendichte von  $\approx 3 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$  (gestrichelt) zeigen die Daten eine Abweichung, die der Rauschcharakteristik des Detektors zugeordnet wird.

Da die räumliche Intensitätsverteilung des kondensierten Photonengases jedoch nicht mehr wie im rein thermisch besetzten Bereich als näherungsweise homogen betrachtet werden kann, muss zusätzlich noch ein intensitätsabhängiger Einfluss der Rauschcharakteristik beachtet werden. Während im zentralen Bereich des gaußförmigen Intensitätsverlaufs (siehe dazu auch Abb. 4.1) der Kontrast aufgrund der hohen Lichtleistungen recht zuverlässig bestimmt werden kann, ist dies im Außenbereich der Verteilung deutlich schwieriger. Das endliche Rauschlevel des Kamerachips sorgt dort bei kleinen Lichtleistungen für ein asymmetrisch verrauschtes Signal, da die Kameraelektronik lediglich ein positives Signal ausgibt, der Mittelwert also um einen endlichen Betrag von Null verschieden ist. In Abb. 4.20 ist dieser Effekt anhand der Aufnahme des räumlichen Intensitätsprofils der Resonatoremmission verdeutlicht. Im Bereich um  $x \approx 0$  rauscht das Signal symmetrisch um den Mittelwert. Unterhalb eines Schwellenwertes der Photonendichte von hier  $\approx 3 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$  weicht das Signal jedoch zunehmend asymmetrisch (einseitig positiv) ab.

Für die Auswertung der gemessenen Interferenzmuster bedeutet dieses asymmetrische Rauschniveau  $\delta I$  der Kamera eine effektive Reduktion des gemessenen Kontrastes  $K_{\text{exp}}(\vec{r})$ . Für  $I_{\text{max,min}} \rightarrow I_{\text{max,min}} + \delta I$  lässt sich somit ansetzen:

$$K(\vec{r}) = \frac{I_{\text{max}} - I_{\text{min}}}{I_{\text{max}} + I_{\text{min}}} =: \frac{A}{B} \quad \rightarrow \quad K_{\text{exp}}(\vec{r}) = \frac{A}{B + 2\delta I} \quad (4.61)$$

Entwickelt man diesen Ausdruck nach  $2\delta I$ , erhält man:

$$K_{\text{exp}}(\vec{r}) = K(\vec{r}) \left[ 1 - \frac{\delta I}{\bar{I}(\vec{r})} + \left( \frac{\delta I}{\bar{I}(\vec{r})} \right)^2 - \left( \frac{\delta I}{\bar{I}(\vec{r})} \right)^3 + \dots \right] \quad (4.62)$$

$$= K(\vec{r}) \left( 1 + \frac{\delta I}{\bar{I}(\vec{r})} \right)^{-1} \quad (4.63)$$

Hierbei entspricht  $I_{\text{max}} + I_{\text{min}} \approx 2\bar{I}(\vec{r})$ , mit der mittleren Intensität  $\bar{I}(r)$  in der Umgebung von Position  $\vec{r}$ . Im Grenzfall großer Intensitäten nähert sich der entwickelte Ausdruck den idealen Werten an, während im Bereich kleiner Intensitäten der Kontrast signifikant reduziert ist. Die Verwendung dieses Ausdrucks für die

numerische Berechnung der erwarteten Kohärenz des idealen Bosegases liefert eine gute Übereinstimmung mit den tatsächlich gemessenen Daten, siehe die schwarze Kurve in Abb. 4.19(b).

#### 4.5.2 Verhalten der Kohärenz an der Kondensationsschwelle

Auch wenn es innerhalb der hier vorgestellten Arbeiten zur räumlichen Kohärenz des Photonengases nicht möglich war, den Bereich zwischen der rein thermischen Phase  $\bar{N} \ll \bar{N}_c$  und des Bose-Einstein-Kondensats  $\bar{N} \geq \bar{N}_c$  systematisch zu erfassen, zeigt sich die Signatur der beginnenden Quantenentartung noch in den Messdaten nahe der Kondensationsschwelle. In Abb. 4.21 sind die drei Messreihen mit dem geringsten Besetzungsgrad aus Abb. 4.19(a) in logarithmischer Darstellung erneut gezeigt (Symbole). Begleitet werden diese von numerisch berechneten Verläufen aus Abschnitt 4.1.2, erweitert um die oben diskutierten Effekte des endlichen Rauschniveaus des Kamerachips (durchgezogene Kurven). Die größte Übereinstimmung mit den Daten zeigt sich für angepasste Teilchenzahlen entsprechend  $\bar{N}/\bar{N}_c = \{1,01; 1,02; 1,08\}$ , die jeweils innerhalb der Fehlergrenzen mit der für die jeweilige Messung ermittelten Photonenzahl übereinstimmen. Für den Bereich unterhalb der Schwelle können lediglich die numerischen Verläufe angegeben werden.

Der in Abschnitt 4.3.2 experimentell gezeigte, charakteristische gaußförmige Abfall der Kohärenz auf einer durch die thermische de Broglie Wellenlänge vorgegebenen Längenskala zeigt sich in der Numerik bei Betrachtung des Bereichs  $r < 2 \mu\text{m}$  bis in die kondensierte Phase hinein. Die verringerte räumliche Auflösung erlaubt keine detailliertere experimentelle Untersuchung dieses Bereichs, jedoch zeigen die Daten für  $\bar{N}/\bar{N}_c = 1,01$  (Quadrate) einen übereinstimmenden Verlauf. Für steigende Teilchenzahlen verlieren die thermischen Korrelationen auch im Bereich nahe  $r = 0$  an Bedeutung, da die Kohärenz des zunehmend makroskopisch besetzten Grundmoden dominiert.

Die Numerik zeigt im Zwischenbereich von  $r = 2 - 6 \mu\text{m}$  schon unterhalb der Kondensationsschwelle ( $\bar{N} < \bar{N}_c$ ) einen Anstieg der Kohärenz. In diesem bereits quantenentarteten Bereich mit einer Phasenraumdichte von  $\bar{\omega} = \bar{\rho}_0 \lambda_{\text{th}}^2 > 1$  sind die niederenergetischen Eigenzustände ( $u_{\mathbf{k}} = \hbar^2 k^2 / 2m \ll k_B T$ ), inklusive des Grundmoden, ähnlich stark besetzt, dazu auch noch deutlich stärker als im klassischen Bereich kleiner Gesamtteilchenzahlen. Die Nebenabbildung in Abb. 4.21 verdeutlicht diese Besetzungssituation nahe der Kondensationsschwelle. Formal ähnelt das System dann dem eines zweidimensionalen homogenen Quantengases, in dem für endliche Temperaturen und Teilchenzahlen keine Kondensation auftreten kann. Dort gilt dann näherungsweise für große Phasenraumdichten die Verteilungsfunktion im Impulsraum  $n_{\mathbf{k}}$  [130]:

$$n_{\mathbf{k}} \approx \frac{k_B T}{u_{\mathbf{k}} + |\mu|} = \frac{4\pi}{\lambda_{\text{th}}} \frac{1}{k^2 + k_c^2} \gg 1 \quad \text{für} \quad k^2 \ll 4\pi/\lambda_{\text{th}} \quad (4.64)$$

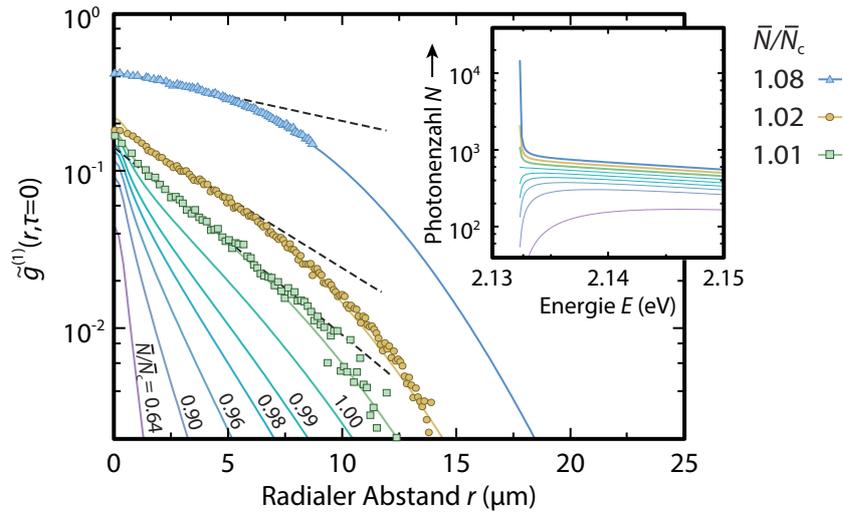
$$\text{mit} \quad k_c = \sqrt{2m|\mu|}/\hbar \quad (4.65)$$

Die Integration der Impulsverteilung entspricht dem Kohärenzgrad erster Ordnung:

$$g^{(1)}(\vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_0^\infty d^2k n_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\vec{r}} \quad (4.66)$$

Lösen von Gl. (4.66) mit der Lorentz-artigen Impulsverteilung aus Gl. (4.64) liefert ein exponentiell abfallendes Verhalten für  $r > \lambda_{\text{th}}$  mit der Kohärenzlänge  $\xi$ :

$$g^{(1)}(\vec{r}) \approx e^{-2|\vec{r}|/\xi} \quad (4.67)$$



**Abbildung 4.21:** Räumliche Korrelationen erster Ordnung in der Umgebung des Phasenübergangs in halblogarithmischer Darstellung. Die gezeigten drei Messreihen mit der geringsten Kondensatbesetzung (Symbole) aus Abb. 4.19(a) zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit dem numerisch berechneten Verlauf der Kohärenz für an die Messdaten angepasste Besetzungsgrade  $\bar{N}/\bar{N}_c = \{1,01; 1,02; 1,08\}$  (durchgezogene Kurven) unter Einbeziehung der Detektorlimitierungen. Für die Ersteren (Quadrate und Kreise) lässt sich der kurzreichweitige, gaußförmige Beitrag der thermischen Korrelationen beobachten, der im Bereich  $r = 2 - 6 \mu\text{m}$  in einen exponentiellen Abfall übergeht, wie er für eine näherungsweise Gleichbesetzung der niedrigsten Energiezustände (siehe Inset) erwartet wird. Im unkondensierten Bereich  $\bar{N} < \bar{N}_c$  sind lediglich die numerischen Simulationen gezeigt. Für Abstände größer der Oszillatorlänge  $\sigma_a \approx 7,7 \mu\text{m}$  fällt die Kohärenz aufgrund der endlichen Kondensatbreite stark ab ( $\bar{N}/\bar{N}_c = 1,08$ ; Dreiecke). Die Anpassung eines exponentiellen Abfalls (gestrichelte Linien) liefert Kohärenzlängen von  $\xi = \{7,4 \pm 0,2; 9,6 \pm 0,5; 21,6 \pm 2,9\} \mu\text{m}$ . (Inset): Die Theorie-Spektren für die entsprechenden gezeigten Werte von  $\bar{N}/\bar{N}_c$  (vertikal verschoben) zeigen die näherungsweise Gleichbesetzung der niedrigsten Energiezustände nahe der Kondensationsschwelle.

Passt man an die experimentellen Daten im Bereich  $r = 2 - 6 \mu\text{m}$  exponentielle Abfälle gemäß Gl. (4.67) an (gestrichelte Linien), erhält man Kohärenzlängen von  $\xi = \{7,4 \pm 0,2; 9,6 \pm 0,5; 21,6 \pm 2,9\} \mu\text{m}$ . Im harmonisch gefangenen System ist ein exponentieller Abfall der Kohärenz nur für Abstände kleiner als die Oszillatorlänge  $r < \sigma_a = \sqrt{\hbar/m_{\text{ph}}\Omega} \approx 7,7 \mu\text{m}$  anzunehmen. Darüber hinaus fällt die Kohärenz aufgrund der endlichen Kondensatausdehnung schnell ab, wie es insbesondere für die gezeigten höheren Besetzungsgrade mit  $\bar{N}/\bar{N}_c = 1,02$  und  $1,08$  (Kreise und Dreiecke) in der Abbildung gezeigt ist.

Abschließend betrachtet, gelang im Rahmen der experimentellen Möglichkeiten die Untersuchung der räumlichen Korrelationseigenschaften beim Übergang des Systems aus der (klassischen) thermischen Phase hin zum Bose-Einstein-Kondensat. Für geringe Phasenraumdichten  $\bar{\omega} \ll 1$  zeigt sich, dass diese allein durch Einteilcheneigenschaften gekennzeichnet sind, und es mit dem Einsetzen kollektiver Effekte im quantenentarteten Bereich nahe der Kondensationsschwelle ( $\bar{\omega} > 1$ ) zur Ausbildung einer quasi-langreichweitigen Ordnung im System kommt. Für weiter steigende Phasenraumdichten ( $\bar{\omega} > \zeta(\alpha = 2)/2$ ) führt die makroskopische Besetzung des Grundmoden dann zu einer echten langreichweitigen Ordnung, die sich über das gesamte System erstreckt.

---

## Ausblick

---

In der vorliegenden Doktorarbeit wurde der Phasenübergang eines harmonisch gefangenen, zweidimensionalen Photonengases hinsichtlich der thermodynamischen Zustandsgrößen sowie der Korrelations- und Kohärenzeigenschaften erster Ordnung untersucht. Dabei wurde gezeigt, dass das untersuchte System vom klassischen, rein thermischen Regime bei sehr kleinen Photonenzahlen bis über weite Teile in den Bose-Einstein-kondensierten Bereich die Erwartungen für ein nahezu ideales Bosegas massiver Teilchen bestätigt. Die gefundenen experimentellen Evidenzen sollen an dieser Stelle, in die drei Bereiche verschiedener Temperaturen gegliedert, zusammengefasst werden:

- Das Ausfrieren der longitudinalen Freiheitsgrade durch das Zusammenspiel aus Farbstoff und Mikroresonator und die somit erreichte Zweidimensionalität des Quantensystems, schafft einen nicht-trivialen Grundzustand für die Photonen. Die damit verknüpfte quadratische Energie-Impuls-Relation konnte experimentell bestätigt werden. Im Bereich kleiner Teilchenzahlen zeigt die Kalorimetrie keine Abweichung vom nach dem Äquipartitionstheorem erwarteten Energieinhalt klassischer Gase von  $1/2k_B T N$  pro Freiheitsgrad. Auch die gemessenen Korrelationen dehnen sich auf einer Längenskala aus, die durch die thermische de Broglie Wellenlänge eines Teilchens der effektiven Photonenmasse bestimmt ist.
- Experimentell konnte verifiziert werden, dass die Kondensation einsetzt, wenn die Wellenpakete des thermalisierten Gases überlappen und die Teilchen somit ununterscheidbar werden. Die gemessene kritische Phasenraumdichte entspricht der theoretischen Vorhersage. Die Ordnungsparameter sind gemäß eines Phasenübergangs 2. Ordnung stetig an der Schwelle zur Kondensation. Insbesondere die spezifische Wärme veranschaulicht durch ihren charakteristischen spitzen Verlauf, vergleichbar mit dem  $\lambda$ -Übergang von flüssigem  $^4\text{He}$ , das kritische Verhalten des Quantengases. Die transversale Kohärenzlänge steigt mit Erreichen der kritischen Teilchenzahl rasch an.
- In der kondensierten Phase erweist sich das Photonengas über weite Teile als ein Modellsystem für die Statistik entarteter, bosonischer Quantensysteme. Die Kalorimetrie zeigt für sinkende reduzierte Temperaturen ein monoton abfallendes spezifische Energie, welches auf ein System unendlich großer Kompressibilität hindeutet. Die räumlichen Korrelationen überspannen in diesem Bereich das vollständige System und demonstrieren so die langreichweitige Ordnung im Bose-Einstein-Kondensat.

Die über weite Teile hervorragende Übereinstimmung mit den Erwartungen legt den Schluss nahe, dass das hier realisierte Photonengas sehr nahe an das ideale Bosegas heranreicht. Interessant im Vergleich zu

Systemen aus verdünnten atomaren Gasen ist insbesondere der Umstand, die Energieverteilung direkt in Form eines optischen Spektrums bei Raumtemperatur vermessen zu können. Dies ermöglicht in Verbindung mit der nur sehr schwachen Wechselwirkung eine Bestimmung der kalorischen Ordnungsparameter in sehr hoher Qualität.

Die vorliegende Arbeit baut auf früheren Experimenten zur Realisierung und Charakterisierung des farbstoffgefüllten optischen Mikroresonators auf, deren Hauptaugenmerk auf der Thermalisierung des Systems sowie den Eigenschaften des Kondensats unter verschiedenen thermodynamischen Ensemblebedingungen lag. So wurden die stationäre Gleichgewichtsverteilung des Photonengases in Abhängigkeit der Teilchenzahl sowie die Thermalisierungsdynamik untersucht [32, 79], aber auch erstmals die Realisierung eines stark besetzten Bose-Einstein-Kondensats mit gleichzeitigem großkanonischem Teilchenaustausch gezeigt [30]. Zusammen mit der bereits im Zuge dieser Arbeiten vollzogenen Charakterisierung der Teilchenzahlstatistik (Korrelationen zweiter Ordnung) des Kondensats zeichnen die Ergebnisse der vorliegenden Doktorarbeit das vollständige Bild der Korrelationen des zweidimensionalen Photonengases im kondensierten und rein thermischen Bereich [33].

In zukünftige Arbeiten wäre eine genaue Untersuchung der Kohärenz erster Ordnung im Bereich um die Kondensationsschwelle für  $t = (T - T_c)/T_c \rightarrow 0$  interessant, da die hervorragende Übereinstimmung der Beobachtungen im Farbstoff-Mikroresonator-System mit der Theorie des idealen Bosegases andeutet, dass mit diesem System die Universalität der kritischen Exponenten gemäß der Ginzburg-Landau-Theorie hinreichend gut zu studieren sein könnte [6]. Die nähere Charakterisierung der dafür notwendigen Wechselwirkung ist aktueller Forschungsgegenstand. Damit zusammenhängend steht die Klärung der Frage, ob die beobachteten thermo-optischen Wechselwirkungen im Bereich großer Kondensatbesetzungen und Wiederholraten groß genug sind, um ein superfluides Verhalten des homogen gefangenen Systems beobachten zu können [135]. Dabei soll auch geklärt werden, inwieweit die Verwendung von Materialien mit einem größeren nichtlinearen Brechungsindex möglich und zielführend ist.

Aus technischer Sicht ist eine Verbesserung der Puls-zu-Puls-Stabilität der mittleren Photonenzahl erstrebenswert. Gerade in der Nähe des Phasenübergangs ist die derzeit erzielte relative Stabilität von  $\approx 0,2\%$  noch nicht ausreichend, um diesen Bereich detaillierter zu untersuchen. Ebenfalls hilfreich wäre die Möglichkeit, längere Pulsdauern bzw. sogar einen kontinuierlichen Betrieb in der Kondensatphase zu erzielen. Als Alternativen zur dazu ungeeigneten Farbstofflösung kämen neuartige Quantenpunkte auf Halbleiterbasis in Betracht, die Quanteneffizienzen von mehr als 70 % erreichen können [136]. Weitere interessante Arbeiten stellen die mögliche Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats aus Photonen im vakuumultravioletten Spektralbereich (VUV) bei einer Wellenlänge von 140 – 170 nm dar, mit Xenon unter hohem Druck als thermalisierendes Medium [109, 110].

Ein großes Feld neuer Forschungsmöglichkeiten tut sich auf durch die Realisierung von Photonengasen in periodischen Potentialen. Durch Hinzufügen eines thermosensitiven Polymers, dessen Brechungsindex sich innerhalb eines gewissen Temperaturfensters stark modulieren lässt, ist es in Verbindung mit einer gezielten, laserinduzierten Wärmedeposition möglich, die Potentialstruktur reversibel anzupassen. Eine weitere Möglichkeit der Gestaltung beliebiger Potentiale bietet die statische Mikrostrukturierung von Spiegeloberflächen. Zuletzt konnte in solchen Systemen das Koppeln zweier Photonenkondensate zwischen zwei benachbarten Potentialtöpfen untersucht werden [99]. Eine Skalierung solcher Systeme zur Realisierung größerer zweidimensionaler Gitterstrukturen könnte die Untersuchung einer Vielzahl interessanter Effekte erlauben, etwa dem topologischen Berezinskii-Kosterlitz-Thouless-Übergang, das antiferromagnetische Verhalten oder auch die direkte Kondensation in verschränkte Zustände [130, 137–140].

# Literatur

---

- [1] E. Wolf, *Early days of coherence theory and the first Rochester conference on coherence*, Journal of the European Optical Society **5**, 10044S (2010).
- [2] M. Born und E. Wolf, *Principles of optics: electromagnetic theory of propagation, interference, and diffraction of light*, Pergamon Press, New York (1959).
- [3] A. L. George und A. Bennet, *Case studies and theory development in the social studies*, MIT Press, Cambridge (2005).
- [4] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser*, Vieweg+Teubner, Wiesbaden (2008).
- [5] W. Demtröder, *Elektrizität und Optik*, Springer, Berlin (2009).
- [6] T. Fließbach, *Statistische Physik*, Elsevier, München (2007).
- [7] O. Lehmann, *Über fließende Kristalle*, Zeitschrift für Physikalische Chemie **4**, 462 (1889).
- [8] K. Huang, *Statistical Mechanics*, Wiley, New York (1987).
- [9] E. Schrödinger, *Quantisierung als Eigenwertproblem*, Annalen der Physik **384**, 489 (1926).
- [10] W. Heisenberg, *Über quantentheoretische Umdeutung kinematischer und mechanischer Beziehungen*, Zeitschrift für Physik **33**, 879 (1925).
- [11] E. Fermi, *Zur Quantelung des idealen einatomigen Gases*, Zeitschrift für Physik **36**, 902 (1926).
- [12] S. Bose, *Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese*, Zeitschrift für Physik **26**, 178 (1924).
- [13] A. Einstein, *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases*, Sitzungsberichte der Preussischen Akademie der Wissenschaften **6**, 261 (1924).
- [14] 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).
- [15] 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).
- [16] 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).
- [17] 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).
- [18] S. Jochim, M. Bartenstein, A. Altmeyer, G. Hendl, S. Riedl, C. Chin, J. Hecker Denschlag und R. Grimm, *Bose-Einstein condensation of molecules*, Science **302**, 2101 (2003).
- [19] 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).

- [20] H. Deng, G. Weihs, C. Santori, J. Bloch und Y. Yamamoto, *Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons*, Science **298**, 199 (2002).
- [21] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymańska, R. André, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud und L. S. Dang, *Bose-Einstein condensation of exciton polaritons*, Nature **443**, 409 (2006).
- [22] R. Balili, V. Hartwell, D. W. Snoke, L. Pfeiffer und K. West, *Bose-Einstein condensation of microcavity polaritons in a trap*, Science **316**, 1007 (2007).
- [23] H. Deng, H. Haug und Y. Yamamoto, *Exciton-polariton Bose-Einstein condensation*, Reviews of Modern Physics **82**, 1489 (2010).
- [24] T. Damm und C. Schilz, *Artists view of a Bose-Einstein condensed photon gas*, 2016.
- [25] J. Klaers, *Bose-Einstein-Kondensation von paraxialem Licht*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2011).
- [26] J. Klaers, J. Schmitt, F. Vewinger und M. Weitz, *Bose-Einstein condensation of photons in an optical microcavity*, Nature **468**, 545 (2010).
- [27] J. Klaers, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger und M. Weitz, *Bose-Einstein condensation of paraxial light*, Applied Physics B: Lasers and Optics **105**, 17 (2011).
- [28] J. Marelic und R. A. Nyman, *Experimental evidence for inhomogeneous pumping and energy-dependent effects in photon Bose-Einstein condensation*, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **91**, 033813 (2015).
- [29] 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).
- [30] 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).
- [31] J. Klaers, *Tutorial: The thermalization, condensation and flickering of photons*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **47**, 243001 (2014).
- [32] 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 - Atomic, Molecular, and Optical Physics **92**, 011602 (2015).
- [33] J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, C. Wahl, F. Vewinger, J. Klaers und M. Weitz, *Spontaneous symmetry breaking and phase coherence of a photon Bose-Einstein condensate coupled to a reservoir*, Physical Review Letters **116**, 033604 (2016).
- [34] J. Schmitt, *Dynamik und Korrelationen eines Bose-Einstein-Kondensats aus Licht*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2015).
- [35] T. Damm, J. Schmitt, Q. Liang, D. Dung, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klaers, *Calorimetry of a Bose-Einstein-condensed photon gas.*, Nature communications **7**, 11340 (2016).
- [36] F. London, *The  $\lambda$ -phenomenon of liquid helium and the Bose-Einstein degeneracy*, Nature **141**, 643 (1938).
- [37] J. A. Lipa, J. A. Nissen, D. A. Stricker, D. R. Swanson und T. C. P. Chui, *Specific heat of liquid helium in zero gravity very near the lambda point*, Physical Review B **68**, 174518 (2003).

- 
- [38] T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, J. Schmitt und M. Weitz, *First-order spatial coherence measurements in a thermalized two-dimensional photonic quantum gas*, submitted for publication (2017).
- [39] W. Pauli, *Über den Zusammenhang des Abschlusses der Elektronengruppen im Atom mit der Komplexstruktur der Spektren*, Zeitschrift für Physik **31**, 765 (1925).
- [40] M. Planck, *Über das Gesetz der Energieverteilung im Normalspectrum*, Annalen der Physik **309**, 553 (1901).
- [41] Z. Yan, *General thermal wavelength and its applications*, European Journal of Physics **21**, 625 (2000).
- [42] C. J. Pethick und H. Smith, *Bose-Einstein condensation in dilute gases*, Cambridge University Press, Cambridge (2008).
- [43] V. Bagnato und D. Kleppner, *Bose-Einstein condensation in low-dimensional traps*, Physical Review A **44**, 7439 (1991).
- [44] F. Dalfovo, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii und S. Stringari, *Theory of Bose-Einstein condensation in trapped gases*, Reviews of Modern Physics **71**, 463 (1999).
- [45] D. S. Petrov, D. M. Gangardt und G. V. Shlypnikov, *Low-dimensional trapped gases*, Journal de Physique IV **116** (2004).
- [46] 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).
- [47] P. Ehrenfest und T. Ehrenfest, *Begriffliche Grundlagen der statistischen Auffassung in der Mechanik*, Enzyklopädie der Mathematischen Wissenschaften **4** (1909).
- [48] J. Ensher, D. Jin, M. Matthews, C. Wieman und E. Cornell, *Bose-Einstein condensation in a dilute gas: Measurement of energy and ground-state occupation*, Physical Review Letters **77**, 4984 (1996).
- [49] P. B. Blakie, E. Toth und M. J. Davis, *Calorimetry of Bose-Einstein condensates*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **40**, 3273 (2007).
- [50] R. F. Shiozaki, G. D. Telles, P. Castilho, F. J. Poveda-Cuevas, S. R. Muniz, G. Roati, V. Romero-Rochin und V. S. Bagnato, *Measuring the heat capacity in a Bose-Einstein condensation using global variables*, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **90**, 043640 (2014).
- [51] D. R. Tilley und J. Tilley, *Superfluidity and superconductivity*, CRC Press, Boca Raton (1990).
- [52] F. London, *On the Bose-Einstein condensation*, Physical Review **54**, 947 (1938).
- [53] O. Penrose und L. Onsager, *Bose-Einstein condensation and liquid helium*, Physical Review **104**, 576 (1956).
- [54] H. Deng, G. S. Solomon, R. Hey, K. H. Ploog und Y. Yamamoto, *Spatial coherence of a polariton condensate*, Physical Review Letters **99**, 126403 (2007).
- [55] K. G. Lagoudakis, M. Wouters, M. Richard, A. Baas, I. Carusotto, R. Andre, L. E. S. I. Dang und B. Deveaud-Pledran, *Quantized vortices in an exciton-polariton condensate*, Nature Physics **4**, 706 (2008).
- [56] J. Marelic, L. F. Zajiczek und R. A. Nyman, *Spatiotemporal coherence of non-equilibrium photon condensates*, New Journal of Physics **18**, 103012 (2016).

- [57] 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).
- [58] I. Bloch, T. W. Hansch und T. Esslinger, *Measurement of the spatial coherence of a trapped Bose gas at the phase transition*, *Nature* **403**, 166 (2000).
- [59] D. E. Miller, J. R. Anglin, J. R. Abo-Shaeer, K. Xu, J. K. Chin und W. Ketterle, *High-contrast interference in a thermal cloud of atoms*, *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **71**, 043615 (2005).
- [60] G. Roumpos, M. Lohse, W. H. Nitsche, J. Keeling, M. H. Szymanska, P. B. Littlewood, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel und Y. Yamamoto, *Power-law decay of the spatial correlation function in exciton-polariton condensates.*, *Proc. Nat. Acad. Sci* **109**, 6467 (2012).
- [61] R. J. Glauber, *The quantum theory of optical coherence*, *Physical Review* **130**, 2529 (1963).
- [62] M. Naraschewski und R. J. Glauber, *Spatial coherence and density correlations of trapped Bose gases*, *Physical Review A* **59**, 4595 (1999).
- [63] R. Loudon, *The quantum theory of light*, Oxford University Press, Oxford (2000).
- [64] A. Chintchin, *Korrelationstheorie der stationären stochastischen Prozesse*, *Mathematische Annalen* **109**, 604 (1934).
- [65] T. Donner, S. Ritter, T. Bourdel, A. Ottl, M. Kohl und T. Esslinger, *Critical behavior of a trapped interacting Bose gas*, *Science* **315**, 1556 (2007).
- [66] T. Yefsah, R. Desbuquois, L. Chomaz, K. J. Günter und J. Dalibard, *Exploring the thermodynamics of a two-dimensional bose gas*, *Physical Review Letters* **107**, 130401 (2011).
- [67] M. J. H. Ku, A. T. Sommer, L. W. Cheuk und M. W. Zwierlein, *Revealing the superfluid lambda transition in the universal thermodynamics of a unitary Fermi gas*, *Science* **335**, 563 (2012).
- [68] J. M. Blatt, K. W. Böer und W. Brandt, *Bose-Einstein condensation of excitons*, *Physical Review* **126**, 1691 (1962).
- [69] S. A. Moskalenko, *Reversible optico-hydrodynamic phenomena in a non ideal exciton gas*, *Soviet Physics Solid State* **4**, 199 (1962).
- [70] E. Hanamura und H. Haug, *Condensation effects of excitons*, *Physics Reports* **33**, 209 (1977).
- [71] S. A. Moskalenko und D. W. Snoke, *Bose-Einstein condensation of excitons and biexcitons*, Cambridge University Press, Cambridge (2000).
- [72] J. P. Eisenstein und A. H. Macdonald, *Bose-Einstein condensation of excitons in bilayer electron systems*, *Nature* **432**, 691 (2004).
- [73] 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).
- [74] A. Imamoglu, R. Ram, S. Pau und Y. Yamamoto, *Nonequilibrium condensates and lasers without inversion: Exciton-polariton lasers*, *Physical Review A* **53**, 4250 (1996).
- [75] 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 - Condensed Matter and Materials Physics* **72**, 201301 (2005).
- [76] M. Wouters und I. Carusotto, *Excitations in a nonequilibrium Bose-Einstein condensate of exciton polaritons*, *Physical Review Letters* **99**, 140402 (2007).

- [77] E. Wertz, L. Ferrier, D. D. Solnyshkov, R. Johne, D. Sanvitto, A. Lemaître, I. Sagnes, R. Grousson, A. V. Kavokin, P. Senellart, G. Malpuech und J. Bloch, *Spontaneous formation and optical manipulation of extended polariton condensates*, Nature Physics **6**, 19 (2010).
- [78] 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).
- [79] 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).
- [80] J. R. Lakowicz, *Principles of fluorescence spectroscopy*, Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York (1999).
- [81] A. Penzkofer und Y. Lu, *Fluorescence quenching of Rhodamine 6G in methanol at high concentration*, Chemical Physics **103**, 399 (1986).
- [82] A. Penzkofer und W. Leupacher, *Fluorescence behaviour of highly concentrated Rhodamine 6G solutions*, Journal of Luminescence **37**, 61 (1987).
- [83] T. Damm, *Entwicklung eines farbstoffdurchflossenen Resonatoraufbaus zur Bose-Einstein-Kondensation von Licht*, Diplomarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2011).
- [84] Q. Liang, *Calorimetry of a Bose-Einstein condensed photon gas*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2014).
- [85] K. H. Drexhage, *Structure and properties of laser dyes*, Springer, Berlin (1973).
- [86] 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*, Springer, Berlin (1973).
- [87] 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**, 604 (2002).
- [88] J. Franck, *Elementary processes of photochemical reactions*, Transactions of the Faraday Society **21**, 536 (1926).
- [89] E. Condon, *A theory of intensity distribution in band systems*, Physical Review **28**, 1182 (1926).
- [90] M. Born und R. Oppenheimer, *Zur Quantentheorie der Molekeln*, Annalen der Physik **389**, 457 (1927).
- [91] W. J. O'Hagan, M. McKenna, D. C. Sherrington, O. J. Rolinski und D. J. S. Birch, *MHz LED source for nanosecond fluorescence sensing*, Measurement Science and Technology **13**, 84 (2001).
- [92] G. G. Stokes, *On the change of refrangibility of light*, Philosophical Transactions of the Royal Society of London **142**, 463 (1852).
- [93] M. Kasha, *Characterization of electronic transitions in complex molecules*, Discussions of the Faraday Society **9**, 14 (1950).
- [94] T. Forster, *Zwischenmolekulare Energiewanderung und Fluoreszenz*, Annalen der Physik **437**, 55 (1948).
- [95] J. Schmitt, *Thermodynamik eines zweidimensionalen Photonengases im Polymerfilm*, Diplomarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2011).
- [96] F. Higuchi und J. Muto, *Photo and thermal bleaching of rhodamine 6G (Rh6G) in the copolymer of methyl methacrylate (MMA) with methacrylic acid (MA)*, Physics Letters A **86**, 51 (1981).

- [97] MEGlobal Companies, *Ethylene glycol product guide*, TMG o, 2008, URL: [http://www.meglobal.biz/media/product\\_guides/MEGlobal\\_MEG.pdf](http://www.meglobal.biz/media/product_guides/MEGlobal_MEG.pdf).
- [98] C. Kurtscheid, *Photon Bose-Einstein condensation and thermo-optical effects in micropotentials*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [99] D. Dung, C. Kurtscheid, T. Damm, J. Schmitt, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klaers, *Variable potentials for thermalized light and coupled condensates*, submitted for publication (2017).
- [100] E. H. Kennard, *On the thermodynamics of fluorescence*, Physical Review **11**, 29 (1918).
- [101] E. H. Kennard, *The excitation of fluorescence in fluorescein*, Physical Review **29**, 466 (1927).
- [102] B. I. Stepanov, *Universal relation between the absorption spectra and luminescence spectra of complex molecules*, Soviet Physics Doklady **2**, 81 (1957).
- [103] 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).
- [104] D. E. McCumber, *Einstein relations connecting broadband emission and absorption spectra*, Physical Review **136**, 16 (1964).
- [105] 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).
- [106] 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 (1973).
- [107] L. O. Bjourn und G. S. Bjourn, *Studies on energy dissipation in phycobilisomes using Kennard-Stepanov relation between absorption and fluorescence spectra*, Photochemistry and Photobiology **44**, 535 (1986).
- [108] 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 - Condensed Matter and Materials Physics **80**, 033307 (2009).
- [109] 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).
- [110] S. Christopoulos, D. Möller, R. Cota, B. Gerwers und M. Weitz, *Verifying thermodynamic equilibrium of molecular manifolds: Kennard-Stepanov spectroscopy of a molecular gas*, Physical Review A **95**, 022510 (2017).
- [111] H. Kogelnik und T. Li, *Laser Beams and Resonators*, Applied Optics **5**, 1550 (1966).
- [112] T. Haugset, H. Haugerud und J. O. Andersen, *Bose-Einstein condensation in anisotropic harmonic traps*, Physical Review A **55**, 2922 (1997).
- [113] B. Klünder und A. Pelster, *Systematic semiclassical expansion for harmonically trapped ideal Bose gases*, The European Physical Journal B **68**, 457 (2009).
- [114] A. Kozhevnikov, *Bose gas in power-like spherically symmetric potential in arbitrary spatial dimensionality*, Acta Physica Polonica B **43**, 2089 (2012).
- [115] V. Romero-Rochín, *Equation of state of an interacting bose gas confined by a harmonic trap: The role of the harmonic pressure*, Physical Review Letters **94**, 130601 (2005).
- [116] M. Ligare, *Classical thermodynamics of particles in harmonic traps*, American Journal of Physics **78**, 815 (2010).

- [117] L. Kozma, L. Szalay und J. Hevesi, *Influence of environment on luminescence of dissolved dye molecules*, Acta Physica et Chemica **10**, 67 (1964).
- [118] Y. T. Mazurenko, *Broadening of electronic-spectra of complex molecules in a polar medium*, Optika i Spektroskopiya **33**, 22 (1972).
- [119] N. A. Nemkovich, A. N. Rubinov und V. I. Tomin, *Inhomogeneous broadening of electronic spectra of dye molecules in solution*, Springer (2002).
- [120] C. Bradley, C. Sackett und R. Hulet, *Bose-Einstein condensation of lithium: Observation of limited condensate number*, Physical Review Letters **78**, 985 (1997).
- [121] M. D. Wheeler, S. M. Newman, A. J. Orr-Erwing und M. N. Ashfold, *Cavity ring-down spectroscopy*, Journal of the Chemical Society **94**, 337 (1998).
- [122] C. Wahl, *Phase dynamics of a statistically flickering photon Bose-Einstein condensate*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2014).
- [123] PhotochemCAD database of the Journal of Photochemistry and Photobiology, 2012, URL: <http://omlc.org/spectra/PhotochemCAD/index.html>.
- [124] Coherent Inc., *Verdi family datasheet*, 2015, URL: <https://cohrcdn.azureedge.net/assets/pdf/Verdi-Family-Data-Sheet.pdf>.
- [125] J. Marelic, B. T. Walker und R. A. Nyman, *Phase-space views into dye-microcavity thermalised and condensed photons*, Physical Review A **94**, 063812 (2016).
- [126] N. Tammuz, R. P. Smith, R. L. D. Campbell, S. Beattie, S. Moulder, J. Dalibard und Z. Hadzibabic, *Can a Bose gas be saturated?*, Physical Review Letters **106**, 230401 (2011).
- [127] L. Mandel und E. Wolf, *Optical coherence and quantum optics*, Cambridge University Press, Cambridge (1995).
- [128] S. Flügge, *Practical quantum mechanics I*, Springer, Heidelberg (1971).
- [129] *boost C++ libraries v1.57*, 2014, URL: [www.boost.org](http://www.boost.org).
- [130] Z. Hadzibabic und J. Dalibard, *Two-dimensional Bose fluids: An atomic physics perspective*, Rivista del Nuovo Cimento **34**, 389 (2011).
- [131] J. J. Sakurai, *Modern quantum mechanics*, Addison-Wesley, New York (1994).
- [132] C. N. Cohen-Tannoudji, *Leçons du Collège de France: Propriétés de cohérence des condensats de Bose-Einstein*, 2000, URL: <http://www.phys.ens.fr/~cct/college-de-france/1999-00/1999-00.htm>.
- [133] SAS LovaLite, *LovaLite scanning nearfield optical microscope fibres*, 2016, URL: <http://lovalite.com/microtips/>.
- [134] Andor Technology, *iXon ultra X-8272 performance sheet*, 2012.
- [135] R. Y. Chiao, *Bogoliubov dispersion relation for a 'photon fluid': Is this a superfluid?*, Optics Communications **179**, 157 (2000).
- [136] D. Dung, *Quantum gas of light in a quantum dot microcavity*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2012).
- [137] V. L. Berezinskii, *Destruction of long-range order in one-dimensional and two-dimensional systems having a continuous symmetry group I. classical systems*, Journal of Experimental and Theoretical Physics **32**, 493 (1971).

- [138] 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).
- [139] L. Néel, *Propriétés magnétiques des ferrites; ferrimagnétisme et antiferromagnétisme*, Annales de Physique (Paris) **3**, 137 (1948).
- [140] I. Carusotto und C. Ciuti, *Quantum fluids of light*, Reviews of Modern Physics **85**, 299 (2013).
- [141] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Burlington (2008).
- [142] E. P. Gross, *Structure of a quantized vortex in boson systems*, Il Nuovo Cimento **20**, 454 (1961).
- [143] L. P. Pitaevskii, *Vortex lines in an imperfect Bose gas*, Soviet Physics JETP **13**, 451 (1961).
- [144] R. A. Nyman und M. H. Szymańska, *Interactions in dye-microcavity photon condensates and the prospects for their observation*, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **89**, 033844 (2014).
- [145] A. W. De Leeuw, H. T. C. Stoof und R. A. Duine, *Schwinger-Keldysh theory for Bose-Einstein condensation of photons in a dye-filled optical microcavity*, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **88**, 033829 (2013).
- [146] J. Kerr, *A new relation between electricity and light: Dielectrified media birefringent*, Philosophical Magazine Series 4 **50**, 337 (1875).
- [147] R. Y. Chiao, S. G. Lukishova, T. K. Gustafson und P. L. Kelley, *Self-focusing of optical beams, in: Self-focusing: Past and present - Fundamentals and prospects*, hrsg. von R. W. Boyd, S. G. Lukishova und Y. R. Shen, Springer, New York (2008).
- [148] M. Drozdowski, Z. Błaszczak, I. Iwaszkiewicz-Kostka, P. Ziobrowski, E. Andrzejewska und M. Andrzejewski, *Molecular dynamics of poly(ethylene glycol)s studied by optical Kerr effect and Brillouin spectroscopy*, Journal of Molecular Structure **614**, 47 (2002).
- [149] P. P. Ho und R. R. Alfano, *Optical Kerr effect in liquids*, Physical Review A **20**, 2170 (1979).
- [150] N. J. Harrison und B. R. Jennings, *Laser-induced Kerr constants for pure liquids*, Journal of Physical and Chemical Reference Data **21**, 157 (1992).
- [151] A. Nag und D. Goswami, *Solvent effect on two-photon absorption and fluorescence of rhodamine dyes*, Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry **206**, 188 (2009).
- [152] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T.-H. Wei, D. J. Hagan und E. W. Van Stryland, *Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam*, IEEE Journal of Quantum Electronics **26**, 760 (1990).

## Retardierte Wechselwirkungen, Thermo-optische Effekte und Nichtgleichgewichtserscheinungen

Die in Kapitel 3 gezeigten Ergebnisse für den Verlauf der kalorischen Ordnungsparameter weisen im Bereich tiefer reduzierter Temperaturen (oberhalb eines Besetzungsgrades  $\bar{n}_0/\bar{N}$  von etwa 60 %) Abweichungen von den Erwartungen für ein ideales Bosegas auf. Die unvollständige Sättigung der Transversalmoden ist mutmaßlich eine Folge von thermo-optischen Effekten innerhalb der Farbstofflösung, welche als eine zeitlich retardierte Wechselwirkung des Photonengases aufgefasst werden kann. Eine detaillierte Untersuchung dieses Themenbereichs ist Bestandteil aktueller Forschungsarbeiten. Der Vollständigkeit halber sollen an dieser Stelle die bisherigen Erkenntnisse zusammengefasst, und die in Bezug auf die Kalorimetrie aber auch die räumlichen Korrelationen erster Ordnung auftretenden Nichtgleichgewichtserscheinungen diskutiert werden.

### Gross-Pitaevskii-Gleichung

In der Betrachtung des statistischen Physik des Photonengases wurde der Brechungsindex des Mediums explizit als konstant angenommen. Der in Abschnitt 2.1.1 beschriebene, zeitlich retardierte thermo-optische Effekt bei Wärmeeintrag in die Farbstofflösung, aber auch der optische Kerr-Effekt, können zu einem intensitätsabhängigen Beitrag zur Dispersionsrelation führen[141]. Formal lässt sich der Gesamtbrechungsindex  $n$  als zusammengesetzt aus einem linearen  $n_0$  und einem ortsabhängigen nichtlinearen Beitrag  $\Delta n(\vec{r}) = n_2 I(\vec{r})$  schreiben, womit die Dispersionsrelation aus Gl. (2.28) einen Wechselwirkungsterm erhält:

$$n = n_0 + n_2 I(\vec{r}) \quad (\text{A.1})$$

$$E(k_r, \vec{r}) \simeq m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n_0^2} + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{1}{2m_{\text{ph}}} \hbar^2 k_r^2 - \frac{m_{\text{ph}} c^2}{n_0^3} n_2 I(\vec{r}) \quad (\text{A.2})$$

Die makroskopische Besetzung des Grundzustands in der Bose-Einstein-kondensierten Phase des harmonisch gefangenen Quantengases zieht hohe Teilchendichten im Grundmoden des Resonators nach sich. Aus Gl. (A.2) lässt sich für den Grundzustand  $\psi_0(\vec{r})$  eine nichtlineare Wellengleichung ableiten, die formal der Gross-Pitaevskii-Gleichung atomarer Kondensate entspricht[142, 143]. Mit der

zweidimensionalen Photonendichte  $|\psi_0(\vec{r})|^2$ , der Energie von  $N_0$  Teilchen im Grundzustand und der Resonatorumlaufzeit  $\tau_{rt} = 2D_0n_0/c = \hbar n_0^2/m_{ph}c^2$  lässt sich die Intensität schreiben als:

$$I(\vec{r}) = N_0 \frac{m_{ph}c^2}{n_0^2\tau_{rt}} |\psi_0(\vec{r})|^2 \quad (\text{A.3})$$

Der Wechselwirkungsterm  $E_{\text{int}}$  der erweiterten Dispersionsrelation in Gl. (A.2) lässt sich somit ausdrücken durch:

$$E_{\text{int}} = -N_0 \frac{m_{ph}^2 c^4}{n_0^5 \tau_{rt}} n_2 |\psi_0(\vec{r})|^2 = N_0 \tilde{g} \frac{\hbar^2}{m_{ph}} |\psi_0(\vec{r})|^2 \quad \text{mit} \quad (\text{A.4})$$

$$\tilde{g} = -\frac{m_{ph}^3 c^4 n_2}{\hbar^2 n_0^5 \tau_{rt}} \quad (\text{A.5})$$

Hierbei bezeichnet  $\tilde{g}$  eine dimensionslose Wechselwirkungskonstante, definiert analog zu atomaren Systemen in zwei Dimensionen[130]. Man erhält also für die Dispersionsrelation:

$$E(k_r, \vec{r}) \simeq m_{ph} \frac{c^2}{n_0^2} + \frac{1}{2} m_{ph} \Omega^2 r^2 + \frac{1}{2m_{ph}} \hbar^2 k_r^2 + N_0 \tilde{g} \frac{\hbar^2}{m_{ph}} |\psi_0(\vec{r})|^2 \quad (\text{A.6})$$

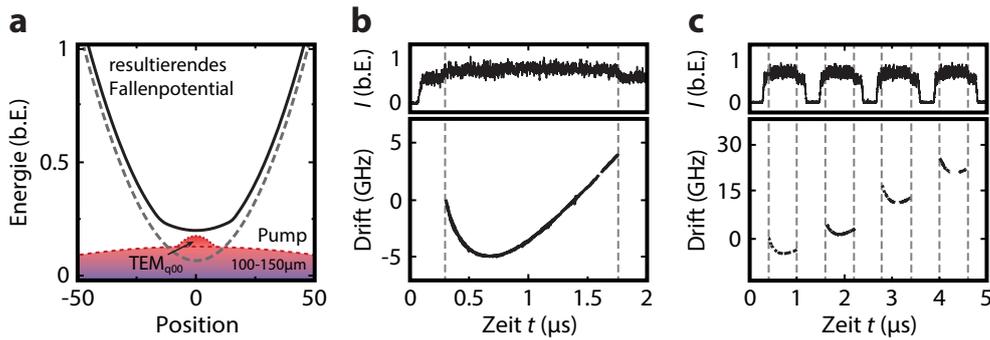
Die zugehörige Eigenwertgleichung ist gerade die zeitunabhängige Gross-Pitaevskii-Gleichung für ein teilchenzahlerhaltendes System mit dem chemischen Potential  $\mu$ :

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_{ph}} \nabla^2 + \frac{1}{2} m_{ph} \Omega^2 r^2 + N_0 \tilde{g} \frac{\hbar^2}{m_{ph}} |\psi_0(\vec{r})|^2 \right) \psi_0(\vec{r}) = \mu \psi_0(\vec{r}) \quad (\text{A.7})$$

Die in früheren experimentellen Arbeiten zur Bose-Einstein-Kondensation von Photonen beobachtete Vergrößerung des Kondensatdurchmessers entspricht einem Wechselwirkungsparameter von  $\tilde{g} = (7 \pm 3) \cdot 10^{-4}$  und ist vergleichsweise klein gegenüber denen in zweidimensionalen atomaren Gasen von  $\tilde{g} = 10^{-2} - 10^{-1}$ [26, 130, 144, 145]. Durch Anpassung der experimentellen Parameter, welche auf eine Verminderung der strahlungslosen Desaktivierungsprozesse des Farbstoffs abzielen, lassen sich die effektiven Wechselwirkungsstärken noch deutlich reduzieren ( $\tilde{g} < 10^{-6}$ )[99].

### Thermo-optische Effekte im Farbstoff-Mikroresonator

Neben einer (direkten) Kontaktwechselwirkung im Sinne einer optischen Kerr-Nichtlinearität kommen vor allem thermo-optische Effekte in Betracht, deren Ursprung bereits in Abschnitt 2.1.1 diskutiert wurde. Unter letzteren ist die Änderung des Brechungsindex  $\Delta n = n(T) + \frac{\partial n}{\partial T} \Delta T$  bei Änderung der Temperatur  $T$  zu verstehen, mit dem negativen thermo-optischen Koeffizienten  $\frac{\partial n}{\partial T}$  ( $= -2,6 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  für Ethylenglykol [97]). Aufgrund der nicht perfekten Quantenausbeute der Farbstofflösung ( $\eta \approx 95 \%$ ), aber auch in Folge der Energiedissipation des Thermalisierungsprozesses (vgl. Abb. 2.2), wird während der Lebensdauer des Photonengases fortlaufend Wärme im System deponiert und somit der Brechungsindex verringert. Eine lokale Änderung des Brechungsindex der Farbstofflösung im optischen Mikroresonator wiederum ist gleichbedeutend mit einer Verformung des Fallenpotentials (thermischer Linseneffekt), welche als zeitlich retardierte, repulsive Wechselwirkung gedeutet werden kann.



**Abbildung A.1:** Verzögerte repulsive thermo-optische Wechselwirkung im farbstoffgefüllten Mikroresonator. (a) Schema der Änderung des effektiven Fallenpotentials als Folge des Anregungspulses (FWHM: 100 – 150  $\mu\text{m}$ ) und der makroskopischen Besetzung des  $\text{TEM}_{q00}$ -Modens. Die homogene Anregung sorgt für Änderung der Tiefe des Potentials, während der im Fallenzentrum lokalisierte Grundmoden die Form der Falle beeinflusst. (b) Intensität von Kondensat und Laser (oben) sowie Energiedrift (unten) des Kondensatmodens während eines langen (1,5  $\mu\text{s}$ ) Anregungspulses. Nach einer anfänglich negativen (attraktiven) Energieverschiebung sorgt der (repulsive) thermo-optische Effekt für einen Drift hin zu größeren Frequenzen, gemessen mit Hilfe von Heterodyninterferometrie. (c) Kondensatintensität (oben) und Frequenzdrift (unten) während einer Folge von vier kurzen ( $\approx 750 \mu\text{s}$ ) Anregungspulsen. Während der Verlauf innerhalb der Pulse das Verhalten aus (b) wiedergibt, bewirkt die deponierte Wärme eine zeitlich verzögerte, kontinuierliche Energieverschiebung auch in den Dunkelphasen.

Abbildung A.1(a) zeigt schematisch das effektive Fallenpotential, das sich als Folge thermo-optischer Einflüsse einstellt. Ein großer Teil des Wärmeeintrags geschieht näherungsweise homogen verteilt über die gesamte Fläche des Anregungspulses ( $\varnothing \approx 100 - 150 \mu\text{m}$ ). Die so induzierte Änderung des Brechungsindex verschiebt das Fallenpotential hin zu größeren Energien; diese Verschiebung betrifft alle Eigenzustände näherungsweise gleich. Zusätzlich erfolgt ein weiterer positionsabhängiger Beitrag durch den makroskopisch besetzten Grundzustand, welcher ausgehend vom Fallenzentrum nach außen hin abnimmt und somit das Fallenpotential deformiert. Die hohe Lichtintensität im  $\text{TEM}_{q00}$ -Moden (typischerweise  $10\text{-}100 \text{ kW cm}^{-2}$ ) des Photonengases tief im kondensierten Bereich führt zudem vermehrt zu strahlungsloser Desaktivierung, welche diesen inhomogenen thermo-optischen Effekt noch weiter verstärkt.

Die Magnitude der induzierten Energieverschiebung des Grundzustands ist in den Abb. A.1(b,c) exemplarisch gezeigt. Die Messungen wurden im Zusammenhang mit der Bestimmung der zeitlichen Phasenkohärenz des Kondensats über heterodyne Interferometrie mit einer frequenzstabilen Laserquelle durchgeführt[33]. Die nach dem thermo-optischen Effekt erwartete positive Verschiebung stellt sich erst im späteren Verlauf jedes Pulses ein, wirkt aber noch in die Dunkelphasen hinein nach. Experimentell zeigt sich, dass erst nach einer Dunkelzeit von mehr als  $\approx 10 \text{ ms}$  jegliche thermisch induzierte Energieverschiebung abgeklungen ist. Im ersten Teil jedes Pulses dominiert zunächst ein gegenläufiger Effekt negativer Energieverschiebung, der jedoch lediglich für kleine Spiegelabstände ( $q < 10$ ) zu beobachten ist. Für wachsende Abstände verringern sich sowohl die Amplitude als auch die Zeit, in der sich diese Dynamik abspielt. Es liegt daher nahe, dieses Verhalten als Folge einer durch das Pumplicht induzierten Dichtemodulation des Farbstoffmediums zu deuten, welche sich ähnlich einer Schallwelle im möglichst zweidimensionalen System ausbreitet. Diese Vermutung wird durch die experimentelle Beobachtung gestützt, dass die Pumpgeometrie einen erheblichen Einfluss auf das Modulationsverhalten hat: Für

kleinere Pumpfokuse ist diese ausgeprägter und erreicht schneller ihre maximale Ausprägung (minimale Energieverschiebung).

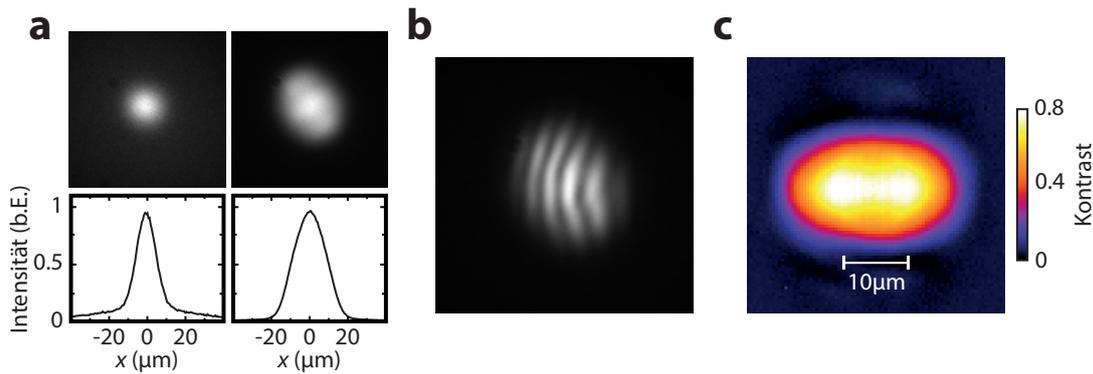
Da die zur Bestimmung der kalorischen Zustandsgrößen des Photonengases genutzten Anregungspulse in vergleichsweise kurzen Abständen erfolgen (2,5 ms), kann nach obiger Betrachtung davon ausgegangen werden, dass sich ein Gleichgewichtszustand der thermo-optischen Effekte eingestellt hat. Für ein solches System konnte in früheren Arbeiten bereits eine substantielle, intensitätsabhängige Vergrößerung des Durchmessers des Grundmoden als Folge der thermischen Linse gezeigt werden[25, 26], was zu einer unvollständigen Sättigung der Transversalmoden führen kann. Der diesem Verhalten zugrunde liegende Einfluss der positionsabhängigen thermo-optischen Wechselwirkung des Grundmoden führt effektiv zu einem Ausschalten des Fallenpotentials nahe der optischen Achse. Das System entspricht dann lokal einer homogenen Box, in der eine makroskopische Besetzung vieler niederenergetischer Moden beobachtet werden kann.

Abseits des thermo-optischen Effekts führt eine hohe Intensität im Kondensat durch das vermehrte Auftreten nichtradiativer Desaktivierungsprozesse ebenfalls zu einer verminderten optischen Aktivität des Fluorophors im Volumen des Grundmoden. Durch die so eingeschränkte Reabsorption ist die Thermalisierung lokal unvollständig und begünstigt die Emission in die nächstliegenden Transversalmoden, welche dann ebenfalls makroskopisch besetzt werden. Die maximale Photonenzahl, bis zu der ein solches multimodales Verhalten noch nicht auftritt, variiert stark mit den verwendeten Systemparametern, insbesondere der Pumpgeometrie und der Art, Konzentration und Reinheit des Farbstoffs. Für die in dieser Arbeit genutzten Systemparameter beträgt die Grenze in etwa 250 000 Photonen ( $\bar{n}_0/\bar{N} \approx 60\%$ ).

Neben den farbstoffinduzierten Wechselwirkungen lässt sich auch der Einfluss einer nichtlinearen Selbstwechselwirkung im Sinne des optischen Kerr-Effekts abschätzen[146, 147]. Ausgehend von einem nichtlinearen Brechungsindex für Ethylenglykol<sup>1</sup> von  $n_{2,EG} \approx 1,3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  wären Kondensatintensitäten  $\mathcal{O}(\text{GW cm}^{-2})$  nötig, um eine absolute Energieverschiebung wie in Abb. A.1 gezeigt zu bewirken. Die tatsächlich erzielten Kondensatintensitäten liegen viele Größenordnungen darunter. Zudem führt der positive nichtlineare Brechungsindex zu einer fokussierenden Wechselwirkung, was nichtlineare Kerr-Wechselwirkungen des Lösungsmittels als Ursache der Beobachtungen ausschließt. Die Zugabe von Rhodamin 6G vergrößert die beobachtete Nichtlinearität um etwa zwei Größenordnungen und führt zu einem Vorzeichenwechsel:  $n_{2,Rh6G+EG} \approx \mathcal{O}(-10^{-13} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1})$ [151]. Interessanterweise wird in der diesbezüglichen Literatur das in der Abbildung gezeigte Verhalten qualitativ und teils auch quantitativ wiedergegeben und dabei ebenfalls auf thermische Effekte verwiesen. So finden sich die Zeitskalen zum Aufbau einer thermischen Linse innerhalb von  $\mathcal{O}(40 \text{ ns})$  und ihr Abklingen auf einer Zeitskala von  $\mathcal{O}(100 \text{ ms})$ [152]. In einem System aus Rhodamin 6G gelöst in verschiedenen Lösungsmitteln wurde zudem ein Wechsel von defokussierender ( $n_2 < 0$ ) zu fokussierender ( $n_2 > 0$ ) Selbstwechselwirkung in Abhängigkeit der Dauer der Anregung ( $\mathcal{O}(\text{fs})$  bzw.  $\mathcal{O}(120 \text{ ns})$ ) beobachtet[151]. Inwieweit es sich dabei um nichtlineare Effekte, etwa einer makroskopischen Neuausrichtung der molekularen Dipole (Molekularer Kerr-Effekt), oder um thermo-optische bzw. dichtemodulierende Effekte handelt, ist nicht näher untersucht.

---

<sup>1</sup> Tatsächlich war es nicht möglich, in der Literatur Daten für Ethylenglykol für die hier genutzte Wellenlänge von 580 nm zu finden. Der genannte Wert für den nichtlinearen Brechungsindex von  $n_{2,EG} \approx 1,3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  entstammt Referenz[148] in Verbindung mit Referenz[149]. Erstere führt lediglich vergleichende Messungen mit Benzol bei einer Wellenlänge von 650 nm und einer Pulslänge von 10 – 20 ns durch. Ethylenglykol zeigt demnach eine in etwa doppelt so starke Nichtlinearität wie Methanol[149, 150].



**Abbildung A.2:** Verhalten des Photonengases bei hohen Besetzungsgraden. (a) Räumliche Intensitätsverteilung (oben) und horizontale Schnitte durch diese (unten) für einen Besetzungsgrad von  $\bar{n}_0/\bar{N} \approx 30\%$  (links) bzw.  $\approx 65\%$  (rechts sowie (b) und (c)). Der Kondensatdurchmesser des niedriger besetzten Photonengases entspricht den erwarteten  $\varnothing 12,7 \mu\text{m}$  des  $\text{TEM}_{00}$  Resonatormoden. Das stärker besetzte System zeigt eine multimodale makroskopische Besetzung ( $\approx \varnothing(21 \pm 1) \mu\text{m}$ ) und eine Abweichung von der erwarteten Radialsymmetrie. (b) Das Interferenzmuster am Ausgang des Interferometers zeigt eine Verzerrung der eigentlich vertikal verlaufenden Streifen. (c) Die entsprechende Kohärenzkarte zeigt eine elliptisch verformte und in sich inhomogene räumliche Korrelation.

### Nichtgleichgewichtsercheinungen bei sehr hohen Besetzungsgraden

Wie bereits im vorigen Abschnitt, kommt es im farbstoffgefüllten optischen Mikroresonator oberhalb eines Besetzungsgrades von  $\bar{n}_0/\bar{N} \approx 60\%$  zu einer Abweichung von den Erwartungen für ein ideales Bosegas<sup>2</sup>. Die darüber auftretende unvollständige Sättigung der Transversalmoden, in Form einer makroskopischen Besetzung mehrerer energetisch niedriger Eigenzustände, lässt sich auch in der räumlichen Intensitätsverteilung sowie den auftretenden räumlichen Korrelationen beobachten.

In Abb. A.2(a) sind gemessene räumliche Intensitätsverteilungen für zwei Photonengase der Besetzung  $\bar{n}_0/\bar{N} \approx 30\%$  bzw.  $\bar{n}_0/\bar{N} \approx 65\%$  gezeigt. Für ersteres entspricht die Messung der Erwartung gemäß der Theorie des idealen Bosegases. Die Kondensation findet in den Grundmoden statt und der gemessene Kondensatdurchmesser ist gleich dem erwarteten Modendurchmesser. Bei erhöhter Pumpleistung lässt sich darüber hinaus eine makroskopische Besetzung eines bzw. mehrerer niederenergetischer Transversalmoden beobachten, die das Kondensat verbreitert erscheinen lassen. Eine solche Verteilung kann im Sinne eines Systems mit lokal variierendem chemischen Potential verstanden werden, welches der vermehrten Verluste des Grundmoden Rechnung trägt.

Die Nichtgleichgewichtsbesetzung verändert auch die beobachteten Phasenkorrelationen erheblich. Abbildung A.2(b) zeigt das Interferenzmuster am Ausgang eines Mach-Zehnder-Interferometers, welches sich für die in (a) gezeigte Intensitätsverteilung einstellt. Die erwarteten vertikal verlaufenden Interferenzstreifen (vgl. Abb. 4.9(a)) sind verzerrt, was auf einen positionsabhängigen Phasengradienten hindeutet. Nicht überraschend weist auch die Kohärenzkarte eines solchen Systems (Teilabb. c) eine radiale Asymmetrie auf. Die Ausrichtung der beobachteten Ellipse scheint von der Richtung der einfallenden Pumpstrahlung

<sup>2</sup> Die Grenze von  $\bar{n}_0/\bar{N} \approx 60\%$  wurde empirisch für den in dieser Arbeit genutzten Mikroresonatoraufbau bestimmt und kann im Allgemeinen stark variieren. Tatsächlich ist die maximale Teilchenzahl, bis zu der keine multimodale Besetzung beobachtet wird, von diversen Faktoren abhängig, insbesondere der Güte und Sauberkeit der Resonatorspiegel, der Größe des Pumpfokus sowie der Reinheit und der Konzentration der Farbstofflösung.

abzuhängen, da eine Rotation der Spiegel, und damit eine Positionsänderung eventuell vorhandener Inhomogenitäten der Spiegeloberfläche, welche eine Vorzugsrichtung des Phasengradienten verursachen könnten, keine Auswirkung auf die beobachtete Kohärenzverteilung hat. Diese Beobachtung stützt die Annahme, dass pumpstrahlinduzierte thermo-optische Effekte das Nichtgleichgewichtsverhalten im Bereich niedriger Temperaturen bzw. hoher Teilchenzahlen verursachen.

## Auflistung relevanter formaler Zusammenhänge und experimenteller Parameter

**Tabelle B.1:** Rhodamin 6G in Ethylenglykol ( $C_2H_6O_2$ )

|                              |   |  |
|------------------------------|---|--|
| Absorption                   | $\alpha(\lambda)$<br>$\alpha(532 \text{ nm})$ | $\lambda_\alpha \approx 460 - 560 \text{ nm}$ ( $\lambda_{\alpha_{\max}} \approx 530 \text{ nm}$ )<br>$\approx 114\,000 \text{ mol}^{-1} \text{ cm}$ [123] |
| Fluoreszenz                  | $f(\lambda)$                                  | $\lambda_f \approx 520 - 650 \text{ nm}$ ( $\lambda_{f_{\max}} \approx 555 \text{ nm}$ )   |
| Null-Phononen Linie          | $\lambda_{ZPL}$                               | 545 nm   |
| Konzentration                | $c$   | 0,1 – 1 mmol/L   |
| Quanteneffizienz             | $\eta_{fl.} = N_{fl.}/N_{abs}$                | $\approx 95 \%$ [87]   |
| Fluoreszenzlebensdauer       | $\tau_{fl}$                                   | (3,90 ± 0,02) ns [91]  |
| Temperatur                   | $T$   | 300 K bzw. 300 – 390 K   |
| Brechungsindex               | $n$   | 1,4318 (300 K)   |
| thermo-optischer Koeffizient | $\frac{dn}{dt}$                               | $\approx -2,6 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ [97]   |
| nichtlinearer Brechungsindex | $n_{2,Rh6G+EG}$<br>$n_{2,EG}$                 | $\approx O(-10^{-13} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1})$ [151]<br>$\approx 1,3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$ [148–150]                             |

**Tabelle B.2:** Geometrische Parameter und Eigenschaften des genutzten Mikroresonators

|                       |   |  |
|-----------------------|---|--|
| Spiegelradien         | $R$                                     | 1 m                                      |
| Reflektivität         | $\tilde{R}$                             | $> 0,9999$                               |
|                       | $\tilde{R}_{\max}$                      | $> 0,999985$ (bei 550 nm)                |
| Finesse               | $F = \pi\sqrt{\tilde{R}}/1 - \tilde{R}$ | $> 30\,000$                              |
| Transmission          | $T_{Res}$                               | $\approx 2,0 \cdot 10^{-5}$ (bei 583 nm) |
| Abschneidewellenlänge | $\lambda_0$                             | 583 nm                                   |
| Halbwellenzahl        | $q$                                     | 8  |
| Eindringtiefe         | $d_q$                                   | $\approx 2,3 \cdot q$ [25]               |
| Spiegelabstand        | $D_0 = q\lambda_0/2n$                   | $\approx 1,6 \mu\text{m}$                |
|                       | $D_{0,geom} = (q - 2d_q)\lambda_0/2n$   | $\approx 0,7 \mu\text{m}$                |

**Tabelle B.3:** Thermodynamische Größen des Photonengases

|                        |                             |   |  |
|------------------------|-----------------------------|---|--|
| Fallenfrequenz         | $\Omega$                    | $\frac{c}{n\sqrt{D_0R/2}}$  | $\approx 2,32 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$<br>$\approx 2\pi \cdot 36,9 \text{ GHz}$ |
| effektive Masse        | $m_{\text{ph}}$             | $\frac{\pi q \hbar n}{c D_0}$   | $\approx 7,76 \cdot 10^{-36} \text{ kg}$   |
|                        |                             | $\frac{2\pi \hbar n^2}{\lambda_0 c}$  | $\approx 10^{-5} m_e$  |
|                        |                             | $\frac{\hbar \omega_0 n^2}{c^2}$  | $\approx 10^{-10} m_{\text{Rb}}$   |
| Ruheenergie            | $E_0$                       | $\frac{\hbar \omega_0}{m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n^2}}$  | $\approx 2,13 \text{ eV}$  |
| transversale Energie   | $u$                         | $\hbar \Omega (n_x + n_y)$  | $n_{x,y} \in \mathbb{N}^{0+}$  |
| Zustandsdichte         | $g(u)$                      | $2 \left( \frac{u}{\hbar \Omega} + 1 \right)$   | $2 \cdot \{1, 2, 3, \dots\}$   |
| Besetzungsgrad         | $\frac{\bar{n}_0}{\bar{N}}$ | $1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^2$  | $\approx 0 - 80 \%$  |
| mittlere Teilchenzahl  | $\bar{N}$                   | $\sum_{u=0, \hbar \Omega, \dots} n_{T, \mu}(u)$   | $\approx 0 - 500\,000$   |
| kritische Teilchenzahl | $\bar{N}_c$                 | $\frac{\pi^2}{3} \left( \frac{k_B T}{\hbar \Omega} \right)^2$   | $\approx 94\,000$  |
|                        |                             | $\frac{\pi^2}{6} \left( \frac{n k_B T}{c \hbar} \right)^2 D_0 R$  |  |
| kritische Temperatur   | $T_c$                       | $\frac{\sqrt{3} \hbar \Omega}{\pi k_B} \sqrt{\bar{N}}$<br>$\frac{\sqrt{6} \hbar c}{\pi k_B n} \sqrt{\frac{1}{D_0} \frac{\bar{N}}{R}}$ |  |
| Intensität             | $I_c(r=0)$                  |   | $\approx 0 - 200 \text{ kW cm}^{-2}$   |
|                        |                             |   | $\approx 13 \text{ kW cm}^{-2} (\bar{N} = \bar{N}_c)$                                |

**Tabelle B.4:** Kalorische Größen des Photonengases

|                          |                       |   |   |
|--------------------------|-----------------------|---|---|
| Temperatur               | $T$                   |   | wie Temp. des Farbstoffs                      |
| reduzierte Temperatur    | $\frac{T}{T_c}$       |   | $\approx 0,4 - \infty$                        |
| Trans. Besetzung         | $\bar{n}_{T, \mu}(u)$ | $\frac{g(u)}{e^{(u-\mu)/(k_B T)} - 1}$  |   |
| harmonisches Volumen     | $\mathcal{V}$         | $\Omega^{-2}$   |   |
| harmonischer Druck       | $\mathcal{P}$         | $\frac{1}{2} E \Omega^2$  |   |
| Kompressibilität         | $\kappa$              | $-\frac{1}{\mathcal{V}} \left( \frac{\partial \mathcal{P}}{\partial \mathcal{V}} \right)_{T, \mu=0}^{-1}$ | $\infty^1$                                    |
| innere Energie p. Ph.    | $\frac{E}{N k_B T_c}$ | $2 \frac{\zeta(3)}{\zeta(2)} \left( \frac{T}{T_c} \right)^2$  | $\approx 1,46 (T = T_c)$                      |
| spezifische Wärme p. Ph. | $\frac{C}{N k_B}$     | $6 \frac{\zeta(3)}{\zeta(2)} \left( \frac{T}{T_c} \right)^2$  | $\approx 4,36 (T = T_c; \bar{N}_c = \infty)$  |
|                          |                       |   | $\approx 4,11 (T = T_c; \bar{N}_c = 94\,000)$ |
| Entropie pro Photon      | $\frac{S}{N k_B}$     | $3 \frac{\zeta(3)}{\zeta(2)} \left( \frac{T}{T_c} \right)^2$  | $\approx 2,19 (T = T_c)$                      |

<sup>1</sup> Gültig für  $T/T_c \leq 1$

**Tabelle B.5:** Korrelationen und Längenskalen des Photonengases

|                                    |                            |   |                                      |
|------------------------------------|----------------------------|---|--------------------------------------|
| thermische de Broglie Wellenlänge  | $\lambda_{\text{th}}$      | $\sqrt{\frac{h^2}{2\pi m k_B T}}$                           | $\approx 1,482 \mu\text{m}$          |
| thermische Kohärenzlänge           | $l_{\text{c,th}}$          | $\lambda_{\text{th}} \sqrt{\ln 2 / 4\pi}$                   | $\approx 0,69 \mu\text{m}$           |
| therm. Kohärenzzeit erster Ordnung | $\tau_{\text{c,th}}^{(1)}$ | $\sqrt{3} \frac{\hbar}{k_B T}$                              | $\approx 44 \text{ fs}$              |
| Kohärenzzeit 1. O. des Kondensats  | $\tau_{\text{c}}^{(1)}$    |   | $\mathcal{O}(1 - 1\,000 \text{ ns})$ |
| Kohärenzzeit 2. O. des Kondensats  | $\tau_{\text{c}}^{(2)}$    |   | $\approx 2 \text{ ns}$               |
| mittlere Teilchendichte            | $\bar{\rho}_0$             | $\frac{\bar{N} m_{\text{ph}} \Omega^2}{2\pi k_B T}$         |                                      |
| Phasenraumdicke                    | $\bar{\omega}$             | $\frac{\bar{\rho}_0 \lambda_{\text{th}}^2}{(2\pi k_B T)^2}$ | $0 - 20$                             |
| kritische Phasenraumdicke          | $\bar{\omega}_c$           | $2\zeta(\alpha = 2)$  | $\pi^2/3 \approx 3,29$               |
| harmonische Oszillatorlänge        | $\sigma_a$                 | $\sqrt{\hbar / m_{\text{ph}} \Omega}$                       | $\approx 7,7 \mu\text{m}$            |
| Modendurchmesser $\text{TEM}_{00}$ | $d_{0,\text{FWHM}}$        | $2\sqrt{\hbar \ln(2) / m_{\text{ph}} \Omega}$               | $\approx 12,7 \mu\text{m}$           |
| Ausdehnung der therm. Wolke        | $\Delta r$                 | $\sqrt{2k_B T / m_{\text{ph}} \Omega^2}$                    | $\approx 140 \mu\text{m}$            |



# Danksagung

---

Diese letzte Seite möchte ich nutzen, um allen ein großes **Danke!** zu sagen, die mich in den letzten Jahren unterstützt und begleitet haben.

An erster Stelle steht dabei Herr **Prof. Dr. Martin Weitz**, der diese Promotion überhaupt erst möglich gemacht und mir die Möglichkeit gegeben hat, an diesem wunderbaren und spannenden Experiment zu arbeiten. Bei Herrn **Prof. Dr. Michael Köhl** bedanke ich mich für die Übernahme des Koreferats dieser Arbeit.

Ein großer Dank für die gegenseitige Unterstützung gilt meinem Kollegen **Dr. Julian Schmitt**, mit dem ich unzählige Stunden in Labor und Büro verbracht habe sowie **Dr. Jan Klärs**, der in den ersten Jahren der Promotion immer ein offenes Ohr für meine Fragen hatte. **Dr. Frank Vewinger, David Dung, Christian Wahl** und der gesamten **Arbeitsgruppe Quantenoptik** danke ich für die tolle Zusammenarbeit und äußerst angenehme Atmosphäre sowohl innerhalb aber auch außerhalb der Arbeitszeiten. Weiter danke ich den Angestellten der Verwaltung und Werkstätten für ihre Unterstützung bei allen Fragen und Problemen.

Ein besonderer Dank gilt meiner **Familie** und meiner Freundin **Karoline** für ihre Unterstützung und Motivation in den letzten Jahren.