

Variable Potentiale für thermisches Licht und gekoppelte Photonenkondensate

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

von
David Dung
aus
Linz am Rhein

Bonn 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 elektronisch publiziert.

1. Gutachter: Prof. Dr. Martin Weitz
2. Gutachter: Prof. Dr. Stefan Linden

Tag der Promotion: 8.12.2017
Erscheinungsjahr: 2018

Zusammenfassung

Seit mehr als einer Dekade lassen sich mit ultrakalten Atomen in periodischen Gitterpotentialen viele Aspekte der Festkörperphysik an sehr reinen, künstlichen Kristallen studieren. So konnte beispielsweise der Übergang von einer Supraflüssigkeit zum Mott-Isolator in einem System aus kalten Rubidium-Atomen in optischen Gitterpotentialen nachgewiesen werden. Doch nicht nur Atome eignen sich für solche Untersuchungen, auch photonische Plattformen wie photonische Kristalle, gekoppelte Wellenleiter oder sogar einige Experimente mit gekoppelten Lasern sind hier wegweisend. Diese Systeme operieren jedoch, anders als kalte atomare Gase, typischerweise nicht im thermischen Gleichgewicht, sodass sie sich bislang nicht für die Untersuchung von Gleichgewichtseffekten eignen. In den letzten Jahren gab es jedoch größere Fortschritte auf dem Weg photonische Festkörper-Simulatoren im thermischen Gleichgewicht zu realisieren. Allen voran Experimente mit Licht-Materie-Quasiteilchen (Exziton-Polaritonen) in Doppelmulden wie auch Gitterpotentialen und Experimente zur Bose-Einstein-Kondensation von Licht. Letztere wurde erstmals in einem farbstoffgefüllten Mikroresonator in der Arbeitsgruppe von Martin Weitz im Rahmen der Doktorarbeit von Jan Klärs im Jahr 2010 realisiert. Dabei thermalisiert das Photonengas durch wiederholte Fluoreszenz und Reabsorptionsprozesse im Kontakt mit Farbstoffmolekülen bei Raumtemperatur. Anders als zum Beispiel bei der Schwarzkörperstrahlung, lässt sich die Teilchenzahl unabhängig von der Temperatur einstellen. Das Gas wird zwischen zwei gekrümmten Spiegeln in einem harmonischen Fallenpotential gefangen, wobei das System formal äquivalent zu einem Gas aus massiven Teilchen in einem harmonischen Fallenpotential in zwei Dimensionen ist. Erhöht man die Teilchenzahl im Gas über die kritische Phasenraumdichte, so beobachtet man einen Phasenübergang zu einem Zustand mit einer makroskopischen Besetzung des Grundzustands, was der Ausbildung eines Bose-Einstein-Kondensats bei Raumtemperatur entspricht.

Zentrales Thema der vorliegenden Arbeit ist die Erzeugung von variablen Fallenpotentialen im Mikroresonator, um darin thermisches Licht und erstmals auch gekoppelte Photonenkondensate zu realisieren. Ausgangspunkt hierzu ist ein planparalleler Mikroresonator, der zunächst, anders als in sphärischen Resonatoren, kein Fallenpotential bereitstellt. Dieses kann dann durch zwei neuartige Methoden variabel induziert werden. Bei der ersten entwickelten Methode handelt es sich um eine gezielte Brechungsindexmodulation der Flüssigkeit im Mikroresonator. Dazu wird der Farbstofflösung ein thermosensitives Polymer beigemischt, welches bei rund 32 °C einen sogenannten Knäuel-Globuli Phasenübergang vollzieht. Durch Ausbildung von Polymerglobuli erhöht sich der Brechungsindex dabei lokal um mehrere Prozent, wodurch attraktive Fallenpotentiale für das Licht im Mikroresonator entstehen. Der temperaturabhängige Phasenübergang wird ortsabhängig kontrolliert, indem ein fokussierter Laserstrahl periodisch über eine außerhalb des Resonators angebrachte lichtabsorbierende Dünnschicht bewegt wird und dort Wärme einträgt. Die maßgeschneiderten Fallenpotentiale ergeben sich dann entsprechend des Temperaturprofils im Mikroresonator. Dadurch können experimentell sowohl einzelne harmonische Mikropotentiale als auch periodische Gitterstrukturen und nichtperiodische Potentialstrukturen erzeugt werden. Die Reversibilität des Polymer-Phasenübergangs ermöglicht dabei eine einfache Veränderung des gewünschten Potentials durch Anpassung des Temperaturprofils.

Die zweite Methode Fallenpotentiale zu induzieren beruht auf einer gezielten lokalen Anhebung der dielektrischen Spiegelschichten über sogenannte Delamination. Wie zuvor wird mit einem fokussierten Laserstrahl in Kombination mit einer absorbierenden Dünnschicht Wärme eingetragen. Die Wärmemenge ist dabei so groß gewählt, dass thermische Spannungen zwischen den Bragg-Spiegelschichten zu einem Ablösen von der absorbierenden Dünnschicht führen und sich in Folge die Spiegeloberfläche auswölbt. Dadurch verringert sich lokal die Resonatorlänge, was ein repulsives Fallenpotential bewirkt. Experimentell kann gezeigt werden, dass sich das Verfahren nicht nur zur Mikrostrukturierung von hochreflektiven Spiegeln eignet sondern auch zu einer allgemeinen Optimierung der Oberflächenrauigkeit, einhergehend mit geringeren optischen Streuverlusten.

Im nächsten Schritt wird das Photonengas in den induzierten variablen Potentialen untersucht. Hier kann die Thermalisierung und Kondensation des Gases in einem einzelnen harmonischen Mikropotential nachgewiesen werden, wie auch eine retardierte Selbstwechselwirkung des Photonenkondensats, die auf den thermooptischen Effekt zurückgeführt werden kann. Anschließend wird die Diskussion auf ein Doppelmuldenpotential erweitert, in dem Tunneln von Photonen durch die Potentialbarriere beobachtet wird, einhergehend mit einer Hybridisierung der Eigenzustände des Zwei-Niveau-Systems. Mittels einer Streak-Kamera mit hoher Zeitauflösung konnten weiterhin auch kohärente (Rabi-)Oszillationen des Photonenkondensats im Doppelmuldenpotential nachgewiesen werden. Hierbei zeigt sich deutlich der dissipative Charakter des farbstoffgefüllten Mikroresonatorsystems, in dem die Photonen nicht nur zwischen den Mulden tunneln, sondern auch ein komplexes Zusammenspiel von Molekülanregungen, Reemission und Verlusten stattfindet.

Die in der vorliegenden Doktorarbeit entwickelte experimentelle Plattform erlaubt die Untersuchung optischer Quantengase in variablen Potentialen nahe des thermischen Gleichgewichts. Zukünftig ist zu erwarten, dass das System Quantensimulationen mit Licht in Gitterpotentialen, beispielsweise des XY-Modells ermöglicht.

Publikationen

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

- D. Dung, C. Kurtscheid, T. Damm, J. Schmitt, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klärs, Variable potentials for thermalized light and coupled condensates, *Nature Photonics* **11**, 565 (2017)
- D. Dung, J. Klärs, F. Vewinger, M. Weitz, Laserresonator und Verfahren zur Formung wenigstens eines Laserstrahles in einem Resonator, *Deutsches Patent DE10 2015 004 764 A1*, 2016.10.20

Weitere im Rahmen der Arbeiten zu dieser Dissertation entstandene Veröffentlichungen:

- T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, M. Weitz und J. Schmitt, First-order spatial coherence measurements in a thermalized two-dimensional photonic quantum gas, *Nature Communications* **8**, 158 (2017)
- 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)
- 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)
- 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, Observation of Grand-Canonical Number Statistics in a Photon Bose-Einstein Condensate, *Physical Review Letters* **112**, 030401 (2014)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Bose-Einstein-Kondensation	5
2.1.1	Ideales Bose-Gas	5
2.1.2	Bose-Einstein-Kondensation des idealen atomaren Bose-Gases	6
2.1.3	Schwarzkörperstrahlung	7
2.2	Photonisches Bose-Einstein-Kondensat	9
2.2.1	Fluoreszenzinduzierter Thermalisierungsprozess	10
2.2.2	Dispersionsrelation im Mikroresonator	14
2.2.3	Statistische Physik des Photonengases	17
2.2.4	Selbstwechselwirkung von Photonen	19
2.2.4.1	Lösung der Gross-Pitaevskii Gleichung für kleine Wechselwirkungen durch Energievariation	21
2.2.4.2	Numerische Lösung der Gross-Pitaevskii Gleichung	24
2.2.5	Experimentelle Realisierung im farbstoffgefüllten Mikroresonator	25
2.3	Photonen im gekoppelten Doppelmuldenpotential	27
2.3.1	Gekoppeltes Zwei-Niveau-System	27
2.3.2	Optische Blochgleichungen	29
2.4	Thermosensitive Polymere	30
2.5	Delamination von Dünnschichten	32
3	Erzeugung und Charakterisierung von variablen Fallenpotentialen im optischen Mikroresonator mit einem thermosensitiven Polymer	35
3.1	Quanteneffizienz der Polymer-Farbstofflösung	35
3.2	Knäuel-Globuli Phasenübergang des thermosensitiven Polymers NIPAM	38
3.3	Polymer-Farbstofflösung im Mikroresonator	40
3.3.1	Erzeugung und Charakterisierung von variablen Fallenpotentialen	41
3.3.2	Dynamik des thermooptischen Phasenübergangs	46
3.3.3	Erzeugung variabler Potentialstrukturen	46

4	Mikrostrukturierung von Spiegeloberflächen mittels laser-induzierter Delamination	49
4.1	Methode zur Erzeugung und Charakterisierung der Oberflächenstrukturen . . .	49
4.1.1	Apparativer Aufbau zur Mikrostrukturierung	50
4.1.2	Mirau-Interferometer	51
4.2	Studie der erzeugten Mikrostrukturen	54
4.2.1	Delaminierte Fallenpotentiale	57
4.3	Optimierung der Spiegeloberflächenrauigkeit	58
5	Experimente zur Bose-Einstein-Kondensation von Licht im Mikrofallenpotential	63
5.1	Thermalisierung und Bose-Einstein-Kondensation	63
5.2	Thermooptische Effekte	67
5.3	Retardierte Selbstwechselwirkung des Kondensats	70
6	Experimente zu gekoppelten Kondensaten im Doppelmuldenpotential	75
6.1	Messungen im polymerbasierten Doppelmuldenpotential	75
6.1.1	Tunneln von Photonen und Kopplungsstärke	76
6.1.2	Nachweis hybridisierter Eigenzustände	78
6.2	Messungen im delaminierten Doppelmuldenpotential	79
6.2.1	Zeitaufgelöste Messung kohärenter Oszillationen	81
7	Ausblick	87
A	Numerische Methode – Schießverfahren	91
	Literatur	95

Einleitung

Die Beobachtung zum Zweck von Erkenntnisgewinn bildet seit jeher das Fundament für das Verständnis unserer Natur. Schon Philosophen im antiken Griechenland verstanden es, aus Beobachtungen argumentativ Gesetzmäßigkeiten der Natur abzuleiten. Experimente – eine Störung der Objekte oder Vorgänge – um verdeckte Eigenschaften zu beleuchten, wurden dabei als Eingriffe in die natürliche Ordnung angesehen und galten daher als unnatürlich und nicht erkenntnisbringend [1]. Erst mit Galileo Galilei (1564-1642) begründet sich die moderne Experimentalphysik [2]. Dabei nutzte Galilei Experimente um die reine Beobachtung zu ergänzen und konnte damit unter anderem die noch auf Aristoteles zurückgehende These, dass die Fallgeschwindigkeit von Körpern von deren Masse abhängt, widerlegen. So verankerte sich danach rasch das Experiment als Ergänzung zur bloßen Beobachtung. Seit dieser Zeit werden – wo möglich – methodisch Einflüsse untersucht und damit empirische Daten gewonnen. Es gibt jedoch immer wieder Umstände, bei denen die Durchführung von Experimenten besonders schwierig oder schlicht nicht möglich ist. Hier mögen einem zum Beispiel die Bahnen der Planeten im Sonnensystem in den Sinn kommen, die man in einem Experiment nicht einfach verändern kann, um den Einfluss auf die Bewegung zu studieren. Doch auch in zunächst weniger offensichtlichen Gebieten, wie der modernen Festkörperphysik, lassen sich viele Hypothesen in natürlichen Festkörpern nicht experimentell überprüfen. Zum einen liegt das häufig an der Schwierigkeit geeignete Proben herzustellen, zum anderen aber auch daran, dass sich viele Größen in Festkörpern nicht wie gewünscht verändern lassen. Daher ist es ein großes Ansinnen von Physikern in solchen Fällen Ersatzsysteme zu finden, mit denen sie ihre Hypothesen nichtsdestotrotz unter möglichst idealen und variablen Bedingungen überprüfen können. Ein in den vergangenen Jahren besonders erfolgreiches System kommt dabei aus der Atomphysik. Hier gelingt es atomare Gase bis in den Nanokelvin Bereich abzukühlen und von Störeinflüssen nahezu isolierte Quantensysteme zu realisieren. Ein Meilenstein war dabei die erstmalige Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats (BEC) aus ultrakalten Rubidium-Atomen im Jahr 1995 [3, 4]. Diese vorhergesagte (Gleichgewichts-) Phase mit einem makroskopisch besetzten Grundzustand war damit in der Atomphysik, vergleichbar der Entwicklung des Laser in der Optik, eine wegweisende Errungenschaft [5–7]. In kurzer Zeit entwickelte sich eine

Vielfalt an Werkzeugen ultrakalte Atome umfassend zu kontrollieren. Dabei war die Wahl der atomaren Spezies zu Beginn auf Alkaliatome beschränkt. Später gelang auch die Kühlung vieler anderer Spezies sowohl bosonischer als auch fermionischer Natur [8, 9]. Ultrakalte Atome in Gitterpotentialen bilden eine universelle Plattform zur Quantensimulation, mit der eine Reihe von interessanten Effekten der Festkörperphysik unter gut kontrollierbaren Bedingungen studiert werden kann, wie zum Beispiel der Übergang einer Supraflüssigkeit zum Mott-Isolator oder die Ausbildung von Cooper-Paaren (BEC-BCS Übergang) [10].

Doch nicht nur mit kalten Atomen lassen sich solche experimentellen Simulationen durchführen. Auch auf dem Gebiet der Photonik existiert eine ganze Reihe von Systemen, mit denen sich Quantenphysik simulieren lässt, etwa photonische Kristalle, gekoppelte Wellenleiter und gekoppelte Laser [11–14]. Hiermit ist es möglich Effekte wie z.B. Anderson-Lokalisierung, Solitonen und künstliche Magnetfelder zu untersuchen. Im Gegensatz zu atomaren Gasen operieren diese photonischen Systeme jedoch typischerweise nicht im thermischen Gleichgewicht, da es an einem Thermalisierungsmechanismus für die Photonen in diesen Systemen fehlt. Bestrebungen Gleichgewichtseffekte in photonischen Systemen zu studieren, bilden Experimente mit Kondensaten aus Licht-Materie-Quasiteilchen (Exziton-Polaritonen) in Doppelmulden- und Gitterpotentialen [15–19]. Hier wird eine Thermalisierung durch die Coulomb-Wechselwirkung des exzitonischen Anteils vermittelt. Aufgrund der starken Kopplung zwischen Photonen und Exzitonen handelt es sich hierbei jedoch nicht um ideale Bose-Gase.

Ein weiteres photonisches System ist das Bose-Einstein-Kondensat von Photonen, welches zentraler Bestandteil der vorliegenden Arbeit ist und eine Brücke zwischen Photonik und atomarer BEC-Physik schlägt [20, 21]. Dabei gelang die Kondensation des, oft als Textbuchbeispiel für ein ideales Gas aus Bosonen herangezogene, Photongases erst 15 Jahre nach den ersten atomaren Bose-Einstein-Kondensaten. Im Unterschied zu Atomen besitzen Photonen keine Ruhemasse, was dazu führt, dass ein thermisches Photonengas in Kontakt mit einem Schwarzkörper den man abkühlt keine konstante Teilchenzahl aufweist [5, 22]. Photonen können je nach Temperatur des Schwarzkörpers in dessen Wänden erzeugt und vernichtet werden. Kühlt man das Gas zum absoluten Nullpunkt, verschwinden gemäß des Stefan-Boltzmann Gesetzes sämtliche Photonen und folglich tritt keine Bose-Einstein-Kondensation auf [23]. Um diese dennoch zu erreichen ist ein Thermalisierungsmechanismus nötig der ein Einstellen der Teilchenzahl unabhängig von der Temperatur erlaubt. Ein theoretisches Konzept dazu entwickelte Chiao. Er schlug vor, Photonen in einem Fabry-Perot Resonator über nichtlineare Prozesse (Vier-Wellen-Mischung) zu thermalisieren [24, 25]. Experimentell ließ sich der Vorschlag jedoch bis heute nicht umsetzen. Erst 2010 gelang es in der Forschungsgruppe von Martin Weitz erstmals ein Bose-Einstein-Kondensat aus Licht zu realisieren [20, 21, 26]. Mittlerweile ist das Bose-Einstein-Kondensat von Photonen auch in den Gruppen von Robert A. Nyman am Imperial College London und von Dries van Oosten an der Universität Utrecht experimentell realisiert [27, 28].

Das Experiment wird in einem farbstoffgefüllten Hochfinesse Mikroresonator mit gekrümmten Spiegeln durchgeführt, durch den die Photonen eine nicht verschwindende effektive Ruhemasse bekommen. Die Realisierung eines teilchenzahlerhaltenden Thermalisierungsprozesses findet durch wiederholte Absorption und Reemission der Photonen durch die Farbstoffmoleküle statt. Durch häufige Stöße von Lösungsmittel- mit Farbstoffmolekülen, equilibrieren deren

rovibronischen Zustände bei der Umgebungstemperatur (Kennard-Stepanov-Gesetz [29–33]). Die emittierten Photonen weisen daher eine thermische Verteilung auf. Aufgrund des großen freien Spektralbereichs im Mikroresonator ist das Photonengas nur in einer einzelnen Longitudinalmode, womit sich die Anzahl der Dimensionen von drei auf zwei verringert. In diesem zweidimensionalen System kann man zeigen, dass ein nichttrivialer Grundzustand für das Gas existiert und dass die Dispersionsrelation formal äquivalent wird mit der eines massiven Bose-Gases in zwei Dimensionen in einer harmonischen Falle. Es ist bekannt, dass in einem solchen System oberhalb einer kritischen Phasenraumdichte eine Bose-Einstein-Kondensation auftreten sollte. Im Gegensatz zu atomaren Systemen bei denen die kritische Phasenraumdichte maßgeblich durch eine starke Verringerung der Temperatur erreicht wird, hält man für das Photonengas in bisherigen Experimenten die Temperatur auf Raumtemperatur und erhöht stattdessen die Teilchenzahl bis die kritische Phasenraumdichte für die Bose-Einstein-Kondensation erreicht wird.

In den letzten Jahren konnten Arbeiten diverse Aspekte des Photonenkondensats beleuchten: Eine Besonderheit des Systems stellt dabei die Kopplung der Photonen an die Farbstoffmoleküle dar, welche als Wärmebad fungieren [34]. In diesem dissipativen System konnte erstmals ein Bose-Einstein-Kondensat unter großkanonischen Bedingungen realisiert werden, einhergehend mit Teilchenzahlfluktuationen von der Größe der Gesamtteilchenzahl [35–39]. Auch konnte die Dynamik der Thermalisierung detailliert untersucht werden [39, 40]. Weitere Untersuchungen galten den kalorimetrischen Größen, räumlichen Korrelationen [41–44] und verschiedenen technischen Aspekten rund um den Mikroresonator und das Thermalisierungsmedium [45, 46]. Für den nächsten Schritt ist es naheliegend, das Photonen BEC zur Simulation von Quantenphysik, ähnlich den Experimenten mit Gasen aus kalten Atomen und Exziton-Polaritonen in Gitterpotentialen zu nutzen. Im Unterschied zu ultrakalten Atomen, bei denen typischerweise zunächst ein BEC erzeugt und die Atome des Grundmoden dann in Gitterpotentiale umgeladen werden in denen durch die Isolation keine weitere Kühlung stattfindet, bleibt im Fall des Photonenkondensats die Kopplung der Photonen an den Thermalisierungsprozess (durch den Farbstoff) auch in Gitterpotentialen bestehen, sodass sich Photonen hier direkt in variable Potentiale kühlen lassen.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Erzeugung von thermischem Licht und Bose-Einstein-Kondensaten von Licht in variablen Fallenpotentialen. Zentraler Bestandteil der Arbeit sind dabei die Entwicklung von zwei Methoden zur variablen thermooptischen Mikrostrukturierung eines Hochfinesse Mikroresonators und Experimente zur Bose-Einstein-Kondensation von Licht in diesen. Bei der ersten vorgestellten Methode wird ein maßgeschneidertes Brechungsindexmuster mittels eines thermosensitiven Polymers im Mikroresonator induziert. Dabei wird der Brechungsindex durch Wärmezufuhr mit einem fokussierten Laserstrahl lokal erhöht und so werden attraktive Potentiale für das Licht im Resonator erzeugt. Da der Prozess reversibel ist, kann das Brechungsindexmuster dynamisch geändert werden. Die zweite Methode beschäftigt sich mit einer statischen Mikrostrukturierung der Resonatorspiegel durch laserinduzierte Delamination. Das Verfahren erlaubt eine Auswölbung der dielektrischen Schichten eines Resonatorspiegels. Durch eine kontrollierte Verformung der Oberfläche wird damit der geometrische

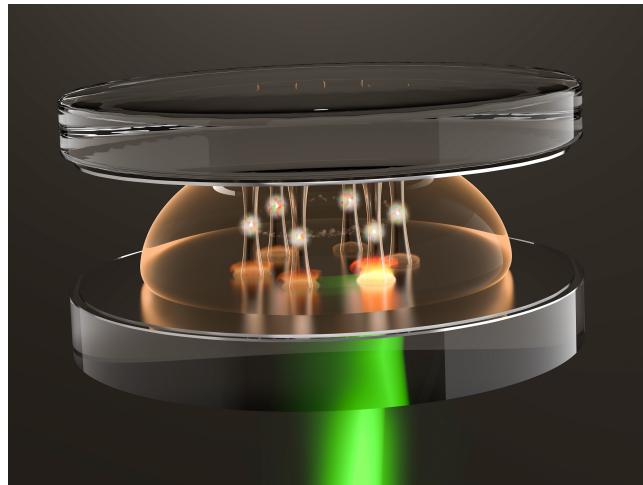


Illustration des polymer-farbstoffgefüllten Mikroresonators mit thermooptisch induzierten Fallenpotentialen durch eingetragene Wärme eines absorbierten grünen Laserstrahls.

Weg im Mikroresonator zwischen den Spiegeloberflächen lokal reduziert, was zur Erzeugung von repulsiven Potentialen für die Photonen im Resonator führt.

In Kapitel 2 werden zunächst die physikalischen Grundlagen der in dieser Doktorarbeit behandelten Themen erläutert. Anschließend wird in Kapitel 3 die thermooptische Methode zur Erzeugung von Brechungsindexmustern im Mikroresonator im Detail vorgestellt, gefolgt von der Erzeugung und Charakterisierung statischer Verformungen hochreflektiver Spiegeloberflächen mittels Delamination in Kapitel 4. In Kapitel 5 geht es dann um die experimentelle Realisierung von thermischem Licht und der Bose-Einstein-Kondensation von Licht in induzierten Mikropotentialen. Thermooptische Effekte des Pumpstrahls und Kondensats werden untersucht. Dabei zeigt sich, dass der thermooptische Effekt im Kondensat zu einer Selbstwechselwirkung führt. Kapitel 6 beschreibt anschließend Experimente zur Realisierung gekoppelter Photonenkondensate in einem Doppelmuldenpotential. Auch werden die Eigenzustände und die Dynamik kohärenter Oszillationen im dissipativen System des farbstoffgefüllten Mikroresonators untersucht. Abschließend wird in Kapitel 7 ein Ausblick auf zukünftige Arbeiten gegeben, insbesondere werden die Anwendungsmöglichkeiten des neuartigen Systems für die Untersuchung von Festkörpereffekten und zur Quantensimulation diskutiert.

Grundlagen

2.1 Bose-Einstein-Kondensation

Das Konzept der Bose-Einstein-Kondensation wird im folgenden Abschnitt zunächst am Beispiel von Teilchen nicht-verschwindender Ruhemasse dargestellt. Ausgangspunkt dazu sind die Arbeiten von Satyendranath Bose und Albert Einstein zum idealen, d.h. wechselwirkungsfreien Bose-Gas und dessen Tieftemperaturverhalten [5, 6]. Anschließend werden die Erkenntnisse dem idealen Bose-Gas aus Photonen gegenübergestellt.

2.1.1 Ideales Bose-Gas

Ideale Quantengase lassen sich in zwei grundlegende Gruppen zusammenfassen: Gase aus Teilchen mit ganzzahligem Spin, die sogenannten Bosonen, zeichnen sich dadurch aus, dass ihre Vielteilchenwellenfunktion unter Vertauschung zweier beliebiger Teilchen symmetrisch ist und sich daher nicht ändert, was zu einer Ununterscheidbarkeit der Teilchen führt [23]. Ganz anders verhält es sich für fermionische Gase aus Teilchen mit halbzahligem Spin. Hier ist die Vielteilchenwellenfunktion antisymmetrisch und wechselt daher unter Vertauschung zweier Teilchen ihr Vorzeichen. Dies begründet auch das Ausschlussprinzip von Pauli, das untersagt, dass sich zwei Fermionen im gleichen Quantenzustand befinden dürfen, da sonst die Wellenfunktion verschwindet [47]. In Bose-Gasen ist dem nicht so und im Falle der Bose-Einstein-Kondensation wird sich zeigen, dass sogar makroskopisch viele Teilchen ein und den selben Quantenzustand besetzen können [5, 6].

Die Besetzung der Einteilchenzustände im idealen, d.h. wechselwirkungsfreien Bose-Gas wird durch die Bose-Einstein Verteilung beschrieben

$$\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) = \frac{g(\epsilon)}{e^{(\epsilon-\mu)/k_B T} - 1}, \quad (2.1)$$

wobei T die Temperatur des Ensembles beschreibt, $g(\epsilon)$ die Entartung der Energieniveaus ϵ und k_B die Boltzmann-Konstante [23]. Um die mittlere Teilchenzahl konstant zu halten, wurde in Gleichung (2.1) das chemische Potential μ eingeführt. Dieses wird durch die Randbedingung

$$\bar{N} = \sum_{\epsilon} \bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \quad (2.2)$$

eingestellt. Mit $\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \geq 0$ ist μ stets kleiner als die Grundzustandsenergie ϵ_0 die im Folgenden ohne Beschränkung der Allgemeinheit $\epsilon_0 = 0$ gesetzt wird. Der Einfluss der Quantennatur des Gases verschwindet im Falle hoher Temperaturen $\epsilon - \mu \ll -k_B T$ und die Besetzungsverteilung kann dann durch die klassische Boltzmann-Verteilung beschrieben werden

$$\bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \simeq g(\epsilon)e^{-(\epsilon-\mu)/k_B T}. \quad (2.3)$$

2.1.2 Bose-Einstein-Kondensation des idealen atomaren Bose-Gases

Bei Vergrößerung der Phasenraumdichte, etwa durch Erhöhung der Teilchenzahl \bar{N} bei konstant gehaltener Temperatur T verläuft gemäß Gleichungen (2.2) und (2.3) das chemische Potential gegen seinen Maximalwert $\mu \rightarrow 0^-$, wobei die Besetzung der angeregten Teilchenzustände mehr und mehr sättigt, da sie keine weiteren Teilchen mehr aufnehmen können. Alle weiteren Teilchen bevölkern den Grundzustand, infolgedessen die Verteilung dort divergiert und sich eine makroskopische Besetzung einstellt. Dieser Prozess wird als „Bose-Einstein-Kondensation“ bezeichnet. Durch Summation über die Besetzungen der angeregten Zustände ergibt sich die kritische Teilchenzahl, bei der dieses Verhalten einsetzt,

$$N_c = \sum_{\epsilon > 0} \bar{n}_{T,\mu}(\epsilon). \quad (2.4)$$

Die Summe in Gleichung (2.4) wird in ein Integral überführt. Dieses „Glätten“ kann angewendet werden, falls der Energieabstand benachbarter Zustände sehr viel kleiner ist als die thermische Energie ($\Delta\epsilon \ll k_B T$). In dieser Darstellung wird die Entartung $g(\epsilon)$ durch die Zustandsdichte $\tilde{g}(\epsilon)$ genähert, welche durch die Dimensionalität des Systems und ein möglicherweise vorhandenes Fallenpotential bestimmt ist. Für ein homogenes freies ideales Bose-Gas in drei Dimensionen mit Teilchen der Masse m im Volumen V ergibt sich

$$\tilde{g}(\epsilon) = Vm(\pi^2\hbar^3)^{-1} \sqrt{2m\epsilon}. \quad (2.5)$$

Mit Gleichungen (2.3), (2.4) ergibt sich

$$N_c = \sum_{\epsilon > 0} \bar{n}_{T,\mu}(\epsilon) \simeq \int_0^{\infty} \frac{Vm(\pi^2\hbar^3)^{-1} \sqrt{2m\epsilon}}{\exp\left(\frac{\epsilon}{k_B T}\right) - 1} d\epsilon \quad (2.6)$$

$$= \frac{\zeta\left(\frac{3}{2}\right)V}{\hbar^3} \left(\frac{mk_B T}{2\pi}\right)^{\frac{3}{2}}, \quad (2.7)$$

mit der Riemannschen-Zeta-Funktion $\zeta(x)$. Durch Umformung von Gleichung (2.7) lässt sich für eine feste Teilchenzahl N auch eine kritische Temperatur T_c definieren

$$T_c = \frac{2\pi}{k_B m} \left(\frac{\hbar^3 N}{\zeta\left(\frac{3}{2}\right) V} \right)^{\frac{2}{3}}. \quad (2.8)$$

Bei der Bose-Einstein-Kondensation handelt es sich um einen thermodynamischen Phasenübergang, da die kritische Temperatur aus Gleichung (2.8) im thermodynamischen Limes ($N \rightarrow \infty, V \rightarrow \infty, N/V = \text{konst.}$) endlich bleibt. Die Zustandsdichte hängt von der Dimensionalität ab und lautet beispielsweise für ein freies zweidimensionales System

$$\tilde{g}_{2D}(\epsilon) = \frac{Am}{2\pi\hbar^2}, \quad (2.9)$$

mit der Fläche A und ist unabhängig von der Energie ϵ [48, 49]. Dies hat einen erheblichen Einfluss auf das Auftreten der Bose-Einstein-Kondensation. Für das ideale Bose-Gas findet man in zwei Dimensionen

$$N_c \simeq \int_0^\infty \frac{Am/2\pi\hbar^2}{\exp\left(\frac{\epsilon}{k_B T}\right) - 1} d\epsilon \rightarrow \infty \quad (2.10)$$

keine endliche kritische Teilchenzahl. Die angeregten Zustände im freien, zweidimensionalen idealen Bose-Gas können beliebig viele Teilchen aufnehmen, sättigen nicht und es findet keine Bose-Einstein-Kondensation statt. In Anwesenheit eines Fallenpotential der Form

$$V(r) = V_0 |r|^\eta \quad (V_0 > 0, \eta > 0), \quad (2.11)$$

wird die kritische Teilchenzahl jedoch auch in zwei Dimensionen endlich und eine Bose-Einstein-Kondensation kann auftreten [49]. Beschränkt man den Fallenparameter zusätzlich auf $\eta < 2$, so ist N_c auch in einer Dimension endlich.

2.1.3 Schwarzkörperstrahlung

Im folgenden Abschnitt wird vorgestellt, was analog mit einem Photonengas im thermischen Gleichgewicht bei tiefen Temperaturen geschieht. Hierzu wird das Modell des Schwarzkörperstrahlers betrachtet [5, 22]. In seinen Wänden können Photonen in Wärmeenergie, bzw. Wärmeenergie in Photonen umgewandelt werden. Durch Absorptions- und Reemissionsprozesse kommt es zu einer Thermalisierung des Photonengases bei der Temperatur des Schwarzkörpers. Anders als beim atomaren Bose-Gas gibt es hier jedoch keine Erhaltung der Teilchenzahl und im Gleichgewicht muss keine Randbedingung, wie sie in Gleichung (2.2) für die Gesamtteilchenzahl definiert wurde, erfüllt sein. Folglich verschwindet das chemische Potential $\mu = 0$. In

drei Dimensionen lautet die spektrale Zustandsdichte $\tilde{g}(\epsilon) = \omega^2/\pi^2 c^3$ (Zustände pro Frequenz und Volumen) und die spektrale Photonendichte ergibt sich als

$$n(\omega, T) = \frac{\omega^2/\pi^2 c^3}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) - 1}. \quad (2.12)$$

Integration über die Frequenz ergibt die Photonendichte

$$n(T) = \int_0^\infty n(\omega, T) d\omega = \frac{2\zeta(3)k_B^3}{\pi^2(\hbar c)^3} T^3 \rightarrow 0 \quad (T \rightarrow 0), \quad (2.13)$$

welche für tiefe Temperaturen verschwindet. Gleichung (2.13) verdeutlicht, dass die thermische Energie im System die Photonenzahl einstellt, welche jedoch für $T \rightarrow 0$ verschwindet und daher den Übergang der Schwarzkörperstrahlung zu einem Bose-Einstein-Kondensat im Grundzustand des Hohlraums verhindert.

Einstein'sche Ratengleichungen

Um den Aspekt der nicht auftretenden Bose-Einstein-Kondensation bei der Schwarzkörperstrahlung besser zu verstehen, ist es nützlich, den bislang implizit als vorhanden angenommenen, aber nicht weiter spezifizierten Thermalisierungsmechanismus der Photonen im Hohlraum genauer zu betrachten. Eine Gleichgewichtsverteilung kann hier nicht durch Zweikörperstöße erreicht werden, da die lineare Wechselwirkung von Photonen im Gegensatz zu atomaren Gasen vernachlässigt werden darf. Einstein formulierte das folgende phänomenologische Modell [50]:

Man betrachtet N identische Atome in den Wänden des Hohlraums mit nicht entarteten Energiezuständen E_g, E_a und $\bar{\omega} = E_a - E_g$. Die Atome können durch spontane und stimulierte Übergänge Energie mit dem Hohlraum austauschen. Die zeitliche Entwicklung der Besetzungswahrscheinlichkeiten $p_g(t)$ und $p_a(t)$ wird durch die zwei Einstein'schen Ratengleichungen

$$\frac{dp_g}{dt} = (A + \hat{B}n)p_a - \hat{B}np_g \quad (2.14)$$

$$\frac{dp_a}{dt} = -\frac{dp_g}{dt} \quad (2.15)$$

beschrieben, wobei zur besseren Übersicht $p_g \equiv p_g(t)$, $p_a \equiv p_a(t)$ und $n \equiv n(\omega, T)$ verwendet werden. Des Weiteren bezeichnet A die Rate für spontane Emission und $\hat{B}n (= \hbar\omega Bn)$ die Rate für stimulierte Absorption und Emission, mit den üblichen Einstein-Koeffizienten A und B . Im stationären Fall ($dp_g/dt = dp_a/dt = 0$) findet man

$$(A + \hat{B}n)p_a = \hat{B}np_g. \quad (2.16)$$

Mit der Beziehung für die relative Besetzung der Energiezustände des Ensembles im thermischen Gleichgewicht mit dem Hohlraum bei Temperatur T

$$\frac{p_a}{p_g} = e^{-\hbar\omega/k_B T}, \quad (2.17)$$

findet man für die Besetzung

$$n(\omega, T) = \frac{A}{\hat{B}} \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) - 1}. \quad (2.18)$$

Das Verhältnis A/\hat{B} entspricht gerade der Zustandsdichte $\omega^2/\pi^2 c^3$. Da im Modell des Schwarzkörpers Anregungen durch thermische Energie vollzogen werden können, gibt es keine Randbedingung für eine erhaltene Teilchenzahl im Gas und in Gleichung (2.17) wird erneut das chemische Potential Null gesetzt. Genau hier bietet sich ein Ansatz um ein System zu realisieren in dem eine Bose-Einstein-Kondensation für Photonen möglich wird. Es ist bekannt, dass nicht alle Strahlungsprozesse auf der Energieskala der thermischen Energie stattfinden. Zum Beispiel haben Fluoreszenzprozesse im sichtbaren Spektrum deutlich höhere Energien bei elektronischen Übergängen ($\hbar\omega = 2 \text{ eV}$ mit $\hbar\omega \gg k_B T \approx 1/40 \text{ eV}$ ($T = 300 \text{ K}$)). Thermische Anregungen finden dann nach Gleichung (2.17) praktisch nicht statt ($\sim \exp(-\hbar\omega/k_B T) \approx 10^{-35}$) und es sind (optische) Photonen zur Anregung nötig. Damit ist es möglich durch externes optisches Pumpen die Teilchenzahl unabhängig von der Temperatur einzustellen, was wie beim atomaren Bose-Gas zu einem nicht verschwindenden chemischen Potential und der Randbedingung aus Gleichung (2.2) führt.

Die Betrachtungen zeigen, dass durch ein Verschieben der Skala von Übergangsenergien, etwa von thermischen zu elektronischen Anregungen, ein nicht verschwindendes chemisches Potential realisiert und somit die Teilchenzahl unabhängig von der Temperatur eingestellt werden kann. Dabei soll ein Thermalisierungsprozess nur innerhalb der Unterzustände der beiden elektronischen Niveaus wirken. Wie im nächsten Kapitel ausführlich vorgestellt wird, kann ein solcher Prozess experimentell durch die Kopplung der Photonen an ein molekulares Wärmebad realisiert werden.

2.2 Photonisches Bose-Einstein-Kondensat

In Anknüpfung an den letzten Abschnitt, werden die gewonnenen Erkenntnisse über atomare Bose-Einstein-Kondensation und Schwarzkörperstrahlung nun genutzt, um ein für die Bose-Einstein-Kondensation von Photonen geeignetes System zu konstruieren. Ausgangspunkt hierfür ist ein Thermalisierungsprozess, der ein Einstellen der Teilchenzahl unabhängig von der Temperatur erlaubt. Dazu wird das Photonengas in Kontakt mit einem Reservoir aus Farbstoffmolekülen gebracht. Die Photonen befinden sich in einer Art „Box“, genauer gesagt in einem Mikroresonator aus zwei hochreflektiven sphärisch-gekrümmten Spiegeln, in der das Gas

schließlich bei genügend tiefen Temperaturen bzw. hohen Teilchendichten in den Grundzustand des Resonators kondensiert [51].

2.2.1 Fluoreszenzinduzierter Thermalisierungsprozess

Für den Thermalisierungsprozess wird das Photonengas in Kontakt mit einer Farbstoffflüssigkeit gebracht, deren Temperatur der Raumtemperatur entspricht ($T = 300$ K). Über Absorptions- und Fluoreszenzprozesse kann Energie zwischen Photonen und Farbstoffmolekülen radiativ ausgetauscht werden. Im Folgenden wird gezeigt, dass überschüssige Energie „heißer“ Photonen dabei in das Molekülbad dissipiert oder Energie aus dem Bad für „kalte“ Photonen bereitgestellt wird. Im Gegensatz zur Schwarzkörperstrahlung ist die Teilchenzahl bei diesem Prozess erhalten und unabhängig von der Temperatur einstellbar. Der zentrale Aspekt für die Thermalisierung in diesem System sind die spektralen Absorptions- und Emissionsprofile welche über die sogenannte „Kennard-Stepanov-Relation“ verknüpft sind, die im Folgenden hergeleitet wird.

Kennard-Stepanov-Relation

Für die Diskussion werden zunächst einige grundlegenden Eigenschaften von Farbstoffmolekülen erläutert [52–54]. Ein Farbstoffmolekül lässt sich schematisch durch einen elektronischen Grundzustand (S_0) und eine Folge angeregter Zustände (S_1, S_2, \dots) beschreiben, wie es im Jablonski-Diagramm in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt ist. Zwischen den Singulett-Zuständen $S_{n \geq 2}$, kommt es jedoch zu raschen internen Konversionsprozessen aufgrund von teils überlappenden Energiebändern, sodass Fluoreszenz in der Regel nur beim Übergang $S_1 \rightarrow S_0$ beobachtet wird. Durch die komplexe organische Struktur der Moleküle ist jedes elektronische Niveau in eine Mannigfaltigkeit aus Vibrations- und Rotationszuständen aufgespalten (schattierte Flächen in Abbildung 2.1). Dabei sind die Energieabstände für Vibrations- ($10^{-2} - 10^{-1}$ eV) und Rotationszustände ($10^{-3} - 10^{-2}$ eV) deutlich geringer als der Abstand der elektronischen Niveaus (\sim eV) und erlauben daher für Umgebungstemperaturen $T > 0$ Übergänge durch thermische Energie. Wird ein Molekül durch ein Photon der Energie ϵ vom Grundzustand S_0 in einen rovibronisch hochangeregten Zustand S_1 gebracht sorgen Stöße mit Lösungsmittelmolekülen in der Umgebung (bei Raumtemperatur alle $\sim 10^{-14}$ s) für eine rasche Dissipation der überschüssigen kinetischen Energie in das Lösungsmittelbad ($\sim 10^{-12}$ s). Dies hat zur Folge, dass sich innerhalb der natürlichen Lebensdauer des Zustands ($\sim 10^{-9}$ s) eine equilibrierte Besetzungsverteilung der rovibronischen Niveaus einstellt, von der aus die Fluoreszenz in den Grundzustand stattfindet. Als Konsequenzen dieses (sich auch im elektronischen Grundzustand vollziehenden) Dissipationsmechanismus ist das Profil der Fluoreszenz spektral gegen das Absorptionsprofil verschoben („Stokes-Verschiebung“ [55]) und die Wellenlänge der Emission unabhängig von der des anregenden Lichts („Regel von Kasha“ [56]). Eine weitere

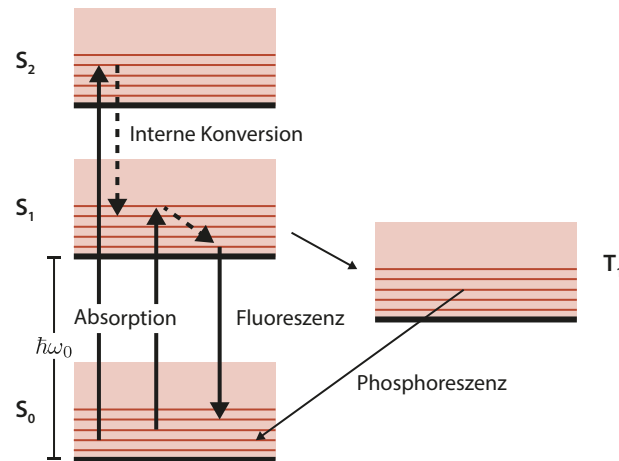


Abbildung 2.1 | Jablonski Diagramm eines Farbstoffmoleküls – Schematisch dargestellt ist die interne Struktur und Übergangsprozesse eines Farbstoffmoleküls. Der Energieabstand $\hbar\omega_0$ zwischen dem Grundzustand (S_0) und ersten elektronischen angeregten Zustand (S_1) wird als Null-Phononen-Linie (engl.: *zero phonon line*) bezeichnet.

wichtige Auswirkung des Thermalisierungsprozesses ist die Verknüpfung von Fluoreszenz- und Absorptionsspektrum durch den Boltzmann-Faktor

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right), \quad (2.19)$$

wobei $f(\omega)$ die Fluoreszenz (spektrale Energiedichte) und $\alpha(\omega)$ den Absorptionskoeffizienten bei der Frequenz ω bezeichnen. Dieser Zusammenhang wurde erstmals von Kennard erkannt und später davon unabhängig von Stepanov wiederentdeckt [29–32]. Für die Herleitung betrachtet man die Zustände S_0 und S_1 , wie sie in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt sind [33]. Das Verhältnis aus Fluoreszenz und Absorption ist gegeben durch

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{\int g'(\epsilon') p(\epsilon') A(\epsilon', \omega) d\epsilon'}{\int g(\epsilon) p(\epsilon) B(\epsilon, \omega) d\epsilon}, \quad (2.20)$$

mit den rovibronischen spektralen Zustandsdichten $g(\epsilon)$, $g'(\epsilon')$ in S_0 bzw. S_1 , den Einsteinkoeffizienten A und B sowie der Aufenthaltswahrscheinlichkeit p der rovibronischen Zustände ϵ und ϵ' . Betrachtet man Übergänge mit erhaltener Energie ($\hbar\omega_0 + \epsilon' = \hbar\omega + \epsilon$) so sind die Einsteinkoeffizienten über die A-B-Relation verknüpft [33]

$$g'(\epsilon') A(\epsilon', \omega) d\epsilon' = \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} g(\epsilon) B(\epsilon, \omega) d\epsilon. \quad (2.21)$$

Die Verteilungsfunktion p ist durch den bereits eingeführten stoßinduzierten Thermalisierungsmechanismus in Grund- wie angeregtem Zustand gegeben durch

$$p(\epsilon) = \exp\left(-\frac{\epsilon}{k_B T}\right). \quad (2.22)$$

Unter der Annahme, dass die rovibronische Aufspaltung identisch für beide elektronische Zustände ist, gilt $g(\epsilon, \omega) = g'(\epsilon', \omega)$ und einsetzen von Gleichungen (2.21), (2.22) in (2.20) ergibt die Kennard-Stepanov-Relation

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} \exp\left(-\frac{\epsilon' - \epsilon}{k_B T}\right) = \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} \exp\left(-\frac{\hbar(\omega - \omega_0)}{k_B T}\right). \quad (2.23)$$

Experimentell konnte dieser Zusammenhang in einer Vielzahl von Systemen bestätigt werden, etwa für organische Farbstoffe in Lösungen [21, 57, 58] oder Polymermatrizen [45]. Darüber hinaus ist die Relation ebenfalls in Experimenten mit Halbleiterquantenpunkten (kollodial in Lösung [46] und dotiert [59]), sowie bei ultradichten Rubidiumgasen [60] und Dimeren [61] nachgewiesen.

Ein weiterer Aspekt der Molekülstruktur sind Triplett-Zustände, deren Besetzung durch die Dipol-Auswahlregeln verboten ist, aber durch Spin-Bahn-Kopplung trotzdem auftreten kann. Dabei kommt es zur Umwandlung eines meist hochangeregten Singulett-Zustands in einen Triplett-Zustand über sogenannte „Interkombinationsprozesse“. Aufgrund der Auswahlregeln sind diese Zustände besonders langlebig und reduzieren somit fortlaufend die Zahl der Farbstoffmoleküle, die für den Thermalisierungsmechanismus zur Verfügung stehen.

Thermisches Gleichgewicht durch Markow-Prozesse

Die Kennard-Stepanov-Relation verknüpft das thermische Gleichgewicht des Molekülreservoirs mit den spektralen Eigenschaften der Emission. Es wird nun betrachtet welche Auswirkungen dieser Prozess auf ein Photonengas in einer „Box“ hat. Modellhaft handelt es sich bei der Photonenbox um einen idealisierten, mit Farbstofflösung gefüllten Hohlraum, dessen Wände Licht vollständig reflektieren und Photonen nur durch zwei kleine Löcher hinein bzw. hinaus gelangen können (vgl. Abbildung 2.2). Pumpet man durch eines der Löcher Photonen in die Box, so werden diese vom Farbstoff absorbiert und entsprechend der Kennard-Stepanov-Relation reemittiert. Die Ausgangskonfiguration der Photonen im Resonator lautet

$$|1\rangle = \{n_0, n_1, \dots, n_i, \dots, n_j, \dots\}, \quad (2.24)$$

wobei n_i die Besetzung des i -ten Zustands (Moden) der Photonenbox mit Energie $\hbar\omega_i$ beschreibt. Wird nun ein Photon aus der i -ten Mode absorbiert und anschließend in die j -te Mode emittiert, so verändert sich die Konfiguration zu

$$|2\rangle = \{n_0, n_1, \dots, n_i - 1, \dots, n_j + 1, \dots\}. \quad (2.25)$$

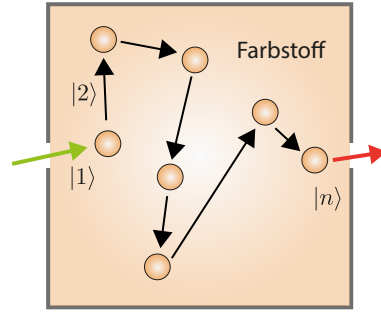


Abbildung 2.2 | Schematische Darstellung einer mit Farbstoff gefüllten Photonenbox – Durch eine Öffnung eindringende Photonen werden durch die Farbstoffmoleküle absorbiert und wieder in die Moden der Box reemittiert. Bei diesem Prozess wird die Energie der Photonen gemäß der Kennard-Stepanov-Relation geändert. Nach mehrfachen zufälligen Absorptions- und Emissionsprozessen werden die Photonen durch eine weitere Öffnung der Box emittiert. Dabei beobachtet man eine spektrale Rotverschiebung im Vergleich zu der ursprünglichen Photonenenergie.

Die Übergangsraten zwischen diesen Konfigurationen

$$R(1 \rightarrow 2) \propto n_i \alpha(\omega_i) \times \tilde{f}(\omega_j)(n_j + 1) \quad (2.26)$$

$$R(2 \rightarrow 1) \propto (n_j + 1) \alpha(\omega_j) \times \tilde{f}(\omega_i)(n_i) \quad (2.27)$$

sind bestimmt durch die Absorptionskoeffizienten der entsprechenden Moden $\alpha(\omega)$ und der spektralen Fluoreszenzwahrscheinlichkeit pro Moden $\tilde{f}(\omega)$

$$\tilde{f}(\omega) = f(\omega) \frac{\pi^2 c^3}{\hbar \omega^3}. \quad (2.28)$$

Unter der Annahme, dass die neue Konfiguration einzig durch die Ausgangskonfiguration bestimmt ist, kann der Prozess durch eine Markow-Kette beschrieben werden. Dabei handelt es sich um ein stochastisches Modell um Zufallsprozesse (engl.: *random walks*) im Konfigurationsraum des Systems zu beschreiben. Um herauszufinden unter welchen Umständen diese Prozesse in stationäre Zustände des Photonengases führen, lässt sich die Wahrscheinlichkeitsänderung einer beliebigen Konfiguration K betrachten

$$p_K(t+1) - p_K(t) = \sum_{K'} p_{K'}(t) R(K' \rightarrow K) - \sum_{K'} p_K(t) R(K \rightarrow K'). \quad (2.29)$$

Im thermischen Gleichgewicht gilt

$$p_K(t \rightarrow \infty) = \exp\left(-\frac{\epsilon_K}{k_B T}\right) \quad (2.30)$$

und folglich

$$0 = \sum_{K'} \exp\left(-\frac{\epsilon_{K'}}{k_B T}\right) R(K' \rightarrow K) - \sum_{K'} \exp\left(-\frac{\epsilon_K}{k_B T}\right) R(K \rightarrow K'). \quad (2.31)$$

Genügen die Übergangsraten der Mastergleichung (2.31), so wird das System durch die Markow-Kette ins thermische Gleichgewicht geführt. Dabei bildet eine Lösung der Gleichung das Verschwinden jeder einzelnen Differenz der Summanden, sodass kein Nettowahrscheinlichkeitsfluss zwischen den Konfigurationen stattfindet. Diese Klasse an Lösungen wird auch „Detailliertes Gleichgewicht“ genannt und ist genau dann erfüllt wenn

$$\frac{R(1 \rightarrow 2)}{R(2 \rightarrow 1)} = \exp\left(-\frac{\epsilon_{K'} - \epsilon_K}{k_B T}\right). \quad (2.32)$$

Bildet man nun das Verhältnis der Absorptions- und Emissionsübergangsraten der Photonen aus Gleichungen (2.26) und (2.27)

$$\frac{R(1 \rightarrow 2)}{R(2 \rightarrow 1)} \propto \frac{\alpha(\omega_i) f(\omega_j) \omega_i^3}{\alpha(\omega_j) f(\omega_i) \omega_j^3} \stackrel{\text{K-S(2.23)}}{=} \exp\left(-\frac{\hbar\omega_j - \omega_i}{k_B T}\right) \quad \forall i, j, \quad (2.33)$$

wird die Bedingung für detailliertes Gleichgewicht durch die Kennard-Stepanov-Relation gerade erfüllt [21, 62, 63]. Kommt es zu hinreichend vielen Konfigurationsänderungen (durch Absorptions- und Emissionsprozesse) thermalisiert das Photonengas in die Moden der Box entsprechend der Temperatur der Farbstofflösung. So kommt es bei Raumtemperatur dazu, dass die aus der Box emittierten Photonen eine gegenüber den PumpPhotonen rot-verschobene Energie aufweisen. Für Laserfarbstoffe, wie etwa Rhodamin 6G beobachtet man jedoch kein Planckspektrum für das emittierte Licht. Die Planckverteilung weist für $T = 300$ K ihr Maximum im mittleren infraroten Spektrum auf (bei einer Wellenlänge $\lambda = 10 \mu\text{m}$). Da jedoch der Farbstoff für Wellenlängen jenseits $\lambda = 600$ nm nur noch geringe Absorption zeigt, bricht der thermische Kontakt der Photonen mit dem Farbstoff für größere Wellenlängen ab und folglich bleibt das Photonengas nur teilweise thermalisiert.

Grundsätzlich erlaubt der stoß-induzierte Equilibrierungsmechanismus also das Photonengas in ein thermisches Ensemble zu überführen. Für eine vollständige Thermalisierung wird im nächsten Abschnitt das Konzept der Photonenbox modifiziert. Dazu sperrt man die Photonen in einen Fabry-Perot Mikroresonator, dessen Modenstruktur so eingestellt ist, dass ein vollständiger thermischer Kontakt zustande kommt.

2.2.2 Dispersionsrelation im Mikroresonator

Für ein Photon mit Frequenz ω im Medium mit Brechungsindex n gilt zunächst

$$E = \hbar\omega = \hbar \frac{c}{n} |\vec{k}|, \quad (2.34)$$

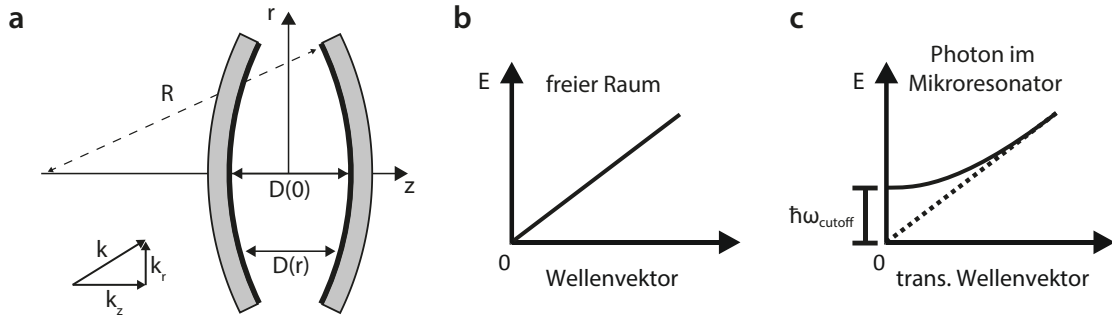


Abbildung 2.3 | Mikroresonator und photonische Dispersionsrelation – **a**, Schematischer Aufbau des Mikroresonators aus zwei sphärischen Spiegeln mit Krümmungsradius R und Spiegelabstand $D(r)$. **b**, Im freien Raum hängt die Energie linear vom Wellenvektor ab, mit einer verschwindenden Energie im Ursprung aufgrund der fehlenden Ruhemasse. **c**, Im Mikroresonator ist der longitudinale Freiheitsgrad ausgefroren und das in der Folge zweidimensionale System folgt einer quadratischen Dispersionsrelation mit einer Abschneideenergie (engl.: *cutoff energy*) von $\hbar\omega_c$.

mit der Geschwindigkeit des Lichts im Vakuum c und dem Wellenvektor \vec{k} . Im Mikroresonator der Länge D_0 kann der Wellenvektor in seinen longitudinalen und transversalen Anteil k_z bzw. k_r zerlegt werden

$$|\vec{k}| = \sqrt{k_z^2 + k_r^2}, \quad (2.35)$$

mit der Randbedingung durch die Spiegel

$$k_z(r) = \frac{q\pi}{D(r)}, \quad (2.36)$$

wobei r den radialen Abstand zur optischen Achse bezeichnet. In einem bisphärischen Mikroresonator, wie in Abbildung 2.3a schematisch dargestellt, ergibt sich die Distanz zwischen den Spiegeln

$$D(r) = D_0 - 2(R - \sqrt{R^2 - r^2}), \quad (2.37)$$

mit der Länge des Resonators $D_0 \equiv D(r = 0)$ auf der optischen Achse und dem Krümmungsradius der Spiegel R . Damit lautet die Dispersionsrelation

$$E(r, k_r) = \frac{\hbar c}{n} \sqrt{\left(\frac{q\pi}{D(r)}\right)^2 + k_r^2}. \quad (2.38)$$

Nahe der optischen Achse findet man in paraxialer Näherung ($r \ll R$ und $k_r \ll k_z$)

$$E(r, k_r) = \frac{\pi \hbar c q}{n D_0} + \frac{\hbar c D_0}{2\pi n q} k_r^2 + \frac{\pi \hbar c q}{n D_0^2 R} r^2, \quad (2.39)$$

was durch die Einführung einer effektiven Photonenmasse m_{ph} und einer harmonischen Fallenfrequenz Ω weiter umgeschrieben werden kann. Mit

$$m_{\text{ph}} := \frac{\pi \hbar n q}{c D_0} \quad \text{und} \quad \Omega := \frac{c}{n \sqrt{D_0 R/2}} \quad (2.40)$$

nimmt Gleichung (2.39) die Form eines harmonisch gefangenen, massiven Teilchens in zwei Dimensionen an

$$E(r, k_r) = \frac{m_{\text{ph}} c^2}{n^2} + \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m_{\text{ph}}} + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2. \quad (2.41)$$

Wie man aus Gleichung (2.41) erkennt, wächst die Energie im Mikroresonator quadratisch mit dem (transversalen) Wellenvektor, ganz im Gegensatz zur gewöhnlichen linearen Dispersionsrelation von Photonen im freien Raum, wie in Abbildung 2.3b,c schematisch dargestellt ist. Darüber hinaus besetzen Photonen auf der optischen Achse ($k_{r=0} = 0$) einen von Energie Null verschiedenen Grundzustand, was sich in der effektiven Photonenmasse m_{ph} im ersten Term von Gleichung (2.41) manifestiert. Formal beschreibt Gleichung (2.41) die Energie eines nicht-relativistischen massiven Teilchens in zwei Dimensionen, gefangen in einem harmonischen Potential.

Bislang wurde das Fallenpotential allein durch die Geometrie des Resonators, wie Abstand und Spiegelkrümmung erzeugt (vgl. Gleichung (2.40)), wobei der Brechungsindex $n(r) = n$ konstant gesetzt wurde. In der folgenden Betrachtung wird diese Einschränkung aufgehoben und eine räumliche Variation $n(r) = n_0 + \Delta n(r)$ mit $\Delta n(r) \ll n_0$ zugelassen. Damit lässt sich Gleichung (2.41) erweitern zu

$$E(r, k_r) = \frac{m_{\text{ph}} c^2}{n_0^2} + \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m_{\text{ph}}} + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{m_{\text{ph}} c^2}{n_0^3} \Delta n(r). \quad (2.42)$$

Zur Veranschaulichung wird ein planparalleler Mikroresonator betrachtet. Hierbei ist $R \rightarrow \infty$ und das Fallenpotential aus Gleichung (2.42) verschwindet zunächst $\Omega = 0$ (3. Term). Erzeugt man nun eine gaußförmige Brechungsindexerhöhung im Mikroresonator mit

$$\Delta n(r) = \Delta n_0 \exp(-r^2/2\tilde{r}^2), \quad (2.43)$$

so findet man in paraxialer Näherung ($r \ll \tilde{r}$) erneut ein harmonisch gefangenes Gas

$$E(r, k_r) = \frac{m_{\text{ph}} c^2}{n^2} + \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m_{\text{ph}}} + \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \tilde{\Omega}^2 r^2, \quad (2.44)$$

wobei $\tilde{\Omega} = c/n \sqrt{\Delta n_0/n_0 \tilde{r}^2}$ die Fallenfrequenz des brechungsindexinduzierten harmonischen Potentials beschreibt. Das Beispiel verdeutlicht, dass neben geometrischen Parametern auch die Modulation des optischen Weges durch den Brechungsindex die Energiezustände im Mikroresonator beeinflusst. Dies wird in den experimentellen Kapiteln als Ausgangspunkt für maßgeschneiderte Fallenpotentiale für das Photonengas dienen.

Die Wellenfunktionen lassen sich mithilfe der Hermitpolynome n -ten Grades H_n darstellen:

$$\psi_{n_x, n_y}(x, y) = \psi_{n_x}(x) \cdot \psi_{n_y}(y), \quad (2.45)$$

$$\psi_n(x) = \sqrt{\frac{1}{2^n n!} \left(\frac{m_{\text{Ph}} \Omega}{\pi \hbar} \right)^{1/4}} \exp\left(-\frac{m_{\text{Ph}} \Omega x^2}{2\hbar}\right) H_n\left(\sqrt{\frac{m_{\text{Ph}} \Omega}{\hbar}} x\right), \quad (2.46)$$

$$E_{n_x, n_y} = \frac{m_{\text{Ph}} c^2}{n_0^2} + \hbar \Omega (n_x + n_y + 1), \quad (2.47)$$

wobei ψ_{n_x, n_y} die Eigenfunktionen und E_{n_x, n_y} die Eigenenergien bezeichnen [64–66].

2.2.3 Statistische Physik des Photonengases

Es stellt sich nun die Frage, wie die im vorherigen Abschnitt hergeleiteten Energiezustände als Funktion der Temperatur besetzt werden. Dazu ist es nützlich E_{n_x, n_y} um die Energie des Grundzustands zu verschieben und im Folgendem die (transversale) Anregungsenergie

$$u_{n_x, n_y} = E_{n_x, n_y} - \frac{m_{\text{Ph}} c^2}{n_0^2} - \hbar \Omega = \hbar \Omega (n_x + n_y) \quad (2.48)$$

zu betrachten. Davon ausgehend kann die Zustandsdichte

$$g(u) = 2 \left(\frac{u}{\hbar \Omega} + 1 \right) \quad (2.49)$$

eingeführt werden, welche sowohl die lineare Entartung bzgl. der Quantenzahlen n_x, n_y als auch die zwei Polarisationszustände des Lichts im Resonator berücksichtigt. Damit ergibt sich die mittlere Besetzung der Zustände bei einer Temperatur T und chemischem Potential μ als

$$\bar{n}_{T, \mu}(u) = \frac{g(u)}{\exp((u - \mu)/k_B T) - 1}, \quad (2.50)$$

mit der Nebenbedingung zur Einstellung der Gesamtteilchenzahl

$$\sum_{u=0, \hbar \Omega, 2\hbar \Omega, \dots} \bar{n}_{T, \mu}(u) = N, \quad (2.51)$$

wie bereits in der allgemeinen Diskussion des idealen Bose-Gases in Abschnitt 2.1.1 erläutert wurde. Kühlt man das System nun ab, oder erhöht die Teilchenzahl, so kommt es zu einer Sättigung der angeregten Zustände und die Grundzustandsbesetzung divergiert

$$\bar{n}(u=0)_{\mu \rightarrow 0^-} \rightarrow \infty. \quad (2.52)$$

Die (kritische) Teilchenzahl, bei der es zu der makroskopischen Besetzung des Grundzustandes kommt, ergibt sich aus der Summation über alle angeregten Zustände

$$N_c = \sum_{u=\hbar\Omega, 2\hbar\Omega, \dots} \frac{2\left(\frac{u}{\hbar\Omega} + 1\right)}{\exp\left(\frac{u}{k_B T}\right) - 1} \approx \int_0^\infty \frac{2x}{\exp\left(\frac{\hbar\Omega}{k_B T}x\right) - 1} dx \quad (2.53)$$

$$\approx 2\left(\frac{k_B T}{\hbar\Omega}\right)^2 \int_0^\infty \frac{x'}{\exp(x') - 1} dx' = 2\left(\frac{k_B T}{\hbar\Omega}\right)^2 \Gamma(2)\zeta(2). \quad (2.54)$$

Hier wurde genutzt, dass die Summe in einem hinreichend kontinuierlichen System ($\hbar\Omega \ll k_B T$) durch eine Integraldarstellung ersetzt werden kann. Die kritische Teilchenzahl N_c findet sich unter Verwendung der Gamma-Funktion $\Gamma(2) = 1$ und der Riemannschen-Zeta-Funktion $\zeta(2) = \pi^2/6$ zu

$$N_c \approx \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B T}{\hbar\Omega}\right)^2. \quad (2.55)$$

Nach Erreichen der kritischen Teilchenzahl, besetzen alle dem System weiter zugefügten Photonen den Grundzustand. Neben der kritischen Teilchenzahl lässt sich mittels Gleichung (2.55) auch die kritische Temperatur definieren

$$T_c \approx \frac{\hbar\Omega}{\pi k_B} \sqrt{3N}. \quad (2.56)$$

Unter Verwendung der zuvor eingeführten Mikroresonatorgeometrie Gleichung (2.40) lassen sich Gleichungen (2.55) und (2.56) schließlich umschreiben zu

$$N_c \approx \frac{\pi^2}{6} \left(\frac{k_B T n}{\hbar c}\right)^2 D_0 R \quad \text{bzw.} \quad T_c \approx \frac{\hbar c}{\pi k_B n} \sqrt{\frac{6N}{D_0 R}}. \quad (2.57)$$

Hieraus lässt sich auch erkennen, dass es sich bei der makroskopischen Besetzung des Grundzustandes um einen thermodynamischen Phasenübergang, die Bose-Einstein-Kondensation von Photonen, handelt, da die kritische Temperatur auch im thermodynamischen Limes ($N \rightarrow \infty$, $R \rightarrow \infty$, $N/R = \text{konst.}$) Bestand hat. Dabei ist die Vergrößerung des Krümmungsradius (Reduzierung des Fallenpotentials) gleichbedeutend mit einer Vergrößerung des Volumens ($V \rightarrow \infty$). Aus Gleichung (2.57) ergibt sich der Kondensatanteil, also das Verhältnis aus Teilchen im Grundzustand N_0 und Gesamtteilchenzahl, zu

$$\frac{N_0}{N} = 1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^2 \quad (T < T_c), \quad (2.58)$$

mit der reduzierten Temperatur T/T_c .

Abschließend sei darauf hingewiesen, dass ohne Fallenpotential die Bose-Einstein-Kondensation in zwei Dimensionen für $T > 0$ K nicht erreicht wird, da die Zustandsdichte in diesem Fall unabhängig von der Energie ist und das Integral in Gleichung (2.53) den Wert

$$N_c \propto \int_0^\infty \frac{1}{\exp(x') - 1} dx' = \Gamma(1)\zeta(1) \rightarrow \infty \quad (2.59)$$

annehmen würde [49].

2.2.4 Selbstwechselwirkung von Photonen

Neben der externen Manipulation des Fallenpotentials, beispielsweise durch den Brechungsindex, können auch physikalische Effekte basierend auf der Photonendichte im Resonator zu intensitätsabhängigen Energieverschiebungen führen. Zu nennen sind hier der optische Kerr-Effekt [67] und der thermooptische Effekt (thermische Linse) [68], welche eine nichtlineare Photonenwechselwirkung vermitteln [21]. Die genauen Charakteristika dieser Wechselwirkungen werden im folgenden Abschnitt diskutiert. Die Energie der Photonen wird gemäß Gleichung (2.42) durch Brechungsindexänderungen beeinflusst, welche sich zusammensetzen aus

$$\Delta n(r) = \Delta n_{\text{Kerr}}(r) + \Delta n_{\text{thermoopt.}}(r) \quad (2.60)$$

$$= n_{\text{Kerr}}^{(2)} I(r) + \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right) \Delta T(r), \quad (2.61)$$

wobei $n_{\text{Kerr}}^{(2)}$ den nichtlinearen optischen Kerr- und $(\partial n / \partial T)$ den thermooptischen Koeffizienten der Farbstofflösung beschreibt. Der optische Kerr-Effekt führt dabei gemäß Gleichung (2.61) zu Brechungsindexänderungen proportional zur Intensität des Lichtfelds

$$I(r) = \frac{m_{\text{ph}} c^2}{n^2 \tau_{\text{rt}}} N_0 |\psi(r)|^2, \quad (2.62)$$

die mit der Photonendichte $|\psi(r)|^2$ und der Umlaufzeit im Resonator $\tau_{\text{rt}} = nD_0/c$ zusammenhängt. Zur einfacheren Betrachtung wurde hier angenommen, dass alle Teilchen den Grundmoden ψ besetzen. Bei Betrachtung der Auswirkungen des thermooptischen Effekts wird keine direkte Intensitätsabhängigkeit festgestellt. Im Falle des Photonenkondensats im farbstoffgefüllten Mikroresonators ist die Temperaturänderung $\Delta T(r)$ jedoch an die Intensität des Grundmoden geknüpft: Im Mikroresonator verursachen Photonenverluste, hervorgerufen durch eine endliche Quanteneffizienz bei der Reemission durch die Farbstoffmoleküle, eine strahlungslose Energie-dissipation in die Umgebung. Die Verteilung der Verlustenergie entspricht dabei näherungsweise dem Intensitätsprofil des Grundmoden. Das dadurch bedingte Aufheizen der Farbstofflösung führt schließlich zu einer Brechungsindexänderung gemäß des thermooptischen Effekts.

In vorherigen Arbeiten konnte gezeigt werden, dass der dominierende Selbstwechselwirkungsmechanismus im Farbstoff Mikroresonator der thermooptische Effekt ist und Kerr-Koeffizienten so klein sind, dass bei den typischen Photonendichten keine messbaren Energieverschiebungen

aufzutreten [20, 21]. Im Folgenden wird $n_{\text{Kerr}}^{(2)}$ daher vernachlässigt und nur die Auswirkungen der thermooptischen Wechselwirkung betrachtet. Im ersten Schritt wird das zeitabhängige Temperaturprofil $T(r, t)$ innerhalb der Farbstofflösung hergeleitet. Wärmeabfluss soll nur über die dielektrischen Spiegel möglich sein, die als Randbedingung eine konstante Temperatur T_0 aufweisen. Darüber hinaus wird transversale, räumliche Diffusion nicht berücksichtigt. Gewissermaßen wird hier angenommen, dass die Dicke des Farbstofffilms zwischen den Spiegeln sehr viel kleiner ist als die transversale Größe des Modenprofils. Die Wechselwirkungsenergie E_{ww} lautet dann gemäß Gleichung (2.42)

$$E_{\text{ww}}(r, t) = \frac{m_{\text{Ph}} c^2}{n_0^3} \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right) (T(r, t) - T_0) \equiv \mathcal{A} (T(r, t) - T_0). \quad (2.63)$$

Die zeitliche Entwicklung der Temperatur wird durch die Differenzialgleichung

$$\frac{dT}{dt} = -\frac{1}{\tau} (T - T_0) + \mathcal{B} \cdot N_0 |\psi(r; t)|^2 \quad (2.64)$$

modelliert, mit Zeitkonstante τ und durch die Flächenaufheizrate pro Photon im Kondensat \mathcal{B} quantifizierten Aufheizen der Lösung proportional zur Teilchenzahl N_0 im Grundmoden ψ . Dabei ist \mathcal{B} bedingt durch die Absorptionsrate und Quanteneffizienz des Farbstoffs. Gleichung (2.64) lässt sich mittels Greensfunktionen lösen [69] und man findet für die Temperatur der Farbstofflösung

$$T(r, t) = T_0 + \mathcal{B} \int_{-\infty}^t N_0 |\psi(r; t')|^2 \exp(-(t - t')/\tau) dt'. \quad (2.65)$$

Berücksichtigt man darüber hinaus die physikalische Randbedingung $|\psi(r, t)|^2 \equiv 0$ für $t < 0$, lässt sich Gleichung (2.63) schließlich schreiben als

$$E_{\text{ww}}(r, t) = \mathcal{A} \mathcal{B} \int_0^t N_0 |\psi(r; t')|^2 \exp(-(t - t')/\tau) dt'. \quad (2.66)$$

Für Zeiten $t \gg \tau$ stellt sich eine stationäre Temperaturverteilung ($dT/dt = 0$) ein und man findet

$$E_{\text{ww}}(r) = -\tau \mathcal{A} \mathcal{B} N_0 |\psi(r)|^2 \equiv \frac{\hbar^2 g_{\text{stat}} N_0}{m_{\text{Ph}} \tau} |\psi(r)|^2, \quad (2.67)$$

wobei die dimensionslose stationäre Wechselwirkungskonstante $g_{\text{stat}} = -\tau \mathcal{A} \mathcal{B} m_{\text{Ph}} / \hbar^2$ im letzten Schritt eingeführt wurde. Für allgemeine Zeiten gilt dann

$$E_{\text{ww}}(r, t) = \frac{\hbar^2 g_{\text{stat}} N_0}{m_{\text{Ph}} \tau} \int_0^t |\psi(r; t')|^2 \exp(-(t - t')/\tau) dt'. \quad (2.68)$$

Das Integral wichtet dabei Wellenfunktionen aus vergangenen Zeiten t' exponentiell abfallend. Die Zeitkonstante τ kann dabei als Retardierungszeit der Wechselwirkung aufgefasst werden und ist durch die Wärmeleitung in der Farbstofflösung bestimmt. Die Gesamtenergie ist gemäß Gleichung (2.42) gegeben durch

$$E(r, k_r) = \frac{m_{\text{Ph}} c^2}{n_0^2} + \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m_{\text{Ph}}} + \frac{1}{2} m_{\text{Ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{\hbar^2 g_{\text{stat}} N_0}{m_{\text{Ph}} \tau} \int_0^t |\psi(r; t')|^2 \exp(-(t-t')/\tau) dt'. \quad (2.69)$$

Man kann nun durch Analogie mit der nicht-relativistischen Quantenmechanik die Eigenwertgleichung des Systems aufstellen

$$\left(\frac{\hbar^2}{2m_{\text{Ph}}} \nabla^2 + \frac{1}{2} m_{\text{Ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{\hbar^2 g_{\text{stat}} N_0}{m_{\text{Ph}} \tau} \int_0^t |\psi(r; t')|^2 \exp(-(t-t')/\tau) dt' \right) \psi(r; t) = \mu \psi(r; t). \quad (2.70)$$

Die Form ähnelt einer zeitunabhängigen Gross-Pitaevskii Gleichung [70, 71]. Das Integral modifiziert die Gleichung und führt eine Retardierung der Wechselwirkung ein. Da thermooptische Effekte langsam im Vergleich zu der Dynamik der Wellenfunktion sind, muss hier keine zeitabhängige Gross-Pitaevskii Gleichung zur Beschreibung herangezogen werden. Die thermooptische Wechselwirkung ändert vielmehr nur sehr langsam die Einhüllende der stationären Wellenfunktion $\psi(r)$, sodass die Zeit t bei der Beschreibung einen Parameter darstellt, was mit $\psi(r; t)$ ausgedrückt wird.

Gleichung (2.70) lässt sich im Allgemeinen nicht analytisch lösen. Für Spezialfälle wie den stationären Zustand ($t \gg \tau$) in dem das Retardierungs-Integral verschwindet und unter der Vernachlässigung der kinetischen Energie kann aber z.B. eine Lösung mithilfe der Thomas-Fermi-Näherung angegeben werden [48]. Diese Studie wurde bereits für das System eines Farbstoffmikroresonators mit zwei sphärischen Spiegeln durchgeführt [20, 21]. Dort wird bei Erhöhung der Teilchenzahl eine Vergrößerung des Kondensatmodens beobachtet, was sich durch lokales Aufheizen in Verbindung mit dem negativen thermooptischen Koeffizienten der Farbstofflösung erklären lässt. Dabei stellte sich über mehrere Pumplaserpulse ein stationärer Kondensatdurchmesser ein ($t \gg \tau$), der auf eine repulsive Wechselwirkung der Stärke $g_{\text{stat}} = 7 \times 10^{-4}$ schließen lässt.

2.2.4.1 Lösung der Gross-Pitaevskii Gleichung für kleine Wechselwirkungen durch Energievariation

Für ein besseres Verständnis der thermooptischen Wechselwirkung wird in der vorliegenden Arbeit eine Veränderung des Kondensatmodendurchmessers auf der Zeitskala eines einzelnen Pulses untersucht. Der zeitliche Abstand zweier Pulse soll dabei so groß sein, dass durch Wechselwirkung zugeführte Wärme vollständig aus dem System heraus dissipieren kann und dieses so zu Beginn eines jeden Pulses die gleiche Temperatur aufweist. Bei Untersuchungen muss

dann keine Rücksicht mehr auf die akkumulierte Wärme aus vergangenen Pulsen genommen werden.

Bei der Diskussion des Thermalisierungsmechanismus wurde darauf hingewiesen, dass die Besetzung von langlebigen Triplett-Zuständen mit der Zeit zunimmt und daher die Summe aus dem Thermalisierungsprozess zur Verfügung stehenden Molekülen in Singulett-Zuständen und Photonen abnimmt. Dieser Prozess limitiert im Experiment die Pumpdauer des Farbstoffs auf rund $1 \mu\text{s}$, gefolgt von einer Wartezeit (typischerweise $\sim \text{ms}$) in der die langlebigen Triplett-Zustände relaxieren können, bevor der Farbstoff erneut gepumpt wird. Die Ergebnisse in Ref. [20] zeigen eine Vergrößerung des Kondensatmoden über viele aufeinanderfolgende Pumpulse, sodass anzunehmen ist, dass sich innerhalb der Zeit eines einzelnen Pulses keine stationäre Temperaturverteilung im Resonator einstellt und die Untersuchung daher auf Zeiten $t \ll \tau$ beschränkt ist. Für genügend kleine Wechselwirkungsenergien kann dann angenommen werden dass sich das Betragsquadrat der Wellenfunktion nur geringfügig ändert und näherungsweise $|\psi(r; t)|^2 \cong |\psi(r; 0)|^2$ gilt. Damit vereinfacht sich Gleichung (2.68) zu

$$E_{\text{ww}}(r, t) = \frac{\hbar^2}{m_{\text{Ph}}} g_{\text{eff}}(t) N_0 |\psi(r; 0)|^2, \quad (2.71)$$

wobei die effektive Wechselwirkungsstärke $g_{\text{eff}}(t) = (t/\tau) \cdot g_{\text{stat}}$ eingeführt wurde. Um die Gross-Pitaevskii Gleichung mit diesem vereinfachten Term zu lösen, kann ein Energievariationsansatz gewählt werden wie er zum Beispiel in Ref. [48] für ein gaußförmiges Wellenpaket in drei Dimensionen beschrieben ist. Dabei wird ein (vergrößerter) Kondensatradius gesucht, welcher die Gesamtenergie des Systems minimiert. Diese ist für einen radialsymmetrischen Moden in zwei Dimensionen gegeben durch

$$E(\psi) = \int 2\pi r \left(\frac{\hbar^2}{2m_{\text{Ph}}} |\nabla\psi(r; t)|^2 + V(r)|\psi(r; t)|^2 + \frac{1}{2} U_0 |\psi(r; t)|^4 \right) dr, \quad (2.72)$$

mit der Wechselwirkung $U_0 = \hbar^2 g_{\text{eff}}(r)/m_{\text{Ph}}$ und dem harmonischen Fallenpotential $V(r)$. Im wechselwirkungsfreien System ($U_0 = 0$) hat die Grundzustandswellenfunktion $\phi_0(r)$ die Form eines Gaußpakets

$$\phi_0(r) = \sqrt{\frac{N_0}{\pi a^2}} \exp\left(-\frac{r^2}{2a^2}\right), \quad (2.73)$$

mit dem Radius $a = \sqrt{\hbar/(m_{\text{Ph}}\Omega)}$. Unter Berücksichtigung der Wechselwirkung verändert sich die räumliche Ausbreitung der Wellenfunktion. Dafür wird eine entsprechende Testfunktion, hier ebenfalls als Gaußpaket, angesetzt mit einem zum wechselwirkungsfreien Fall veränderten Radius b ,

$$\psi(r) = \sqrt{\frac{N_0}{\pi b^2}} \exp\left(-\frac{r^2}{2b^2}\right). \quad (2.74)$$

Damit ergibt sich für die Gesamtenergie gemäß Gleichung (2.72)

$$E(\psi) = \frac{N_0 \hbar \Omega}{2} \left(\frac{1}{x^2} + x^2 \right) + \frac{N_0^2 U_0}{4\pi a^2} \frac{1}{x^2}, \quad (2.75)$$

mit der relativen Veränderung des Radius $x \equiv b/a$. Es wird nun jene Wellenfunktion ψ gesucht, welche die Energie gemäß Gleichung (2.75) minimiert. Aus

$$\frac{\partial E}{\partial x} = N_0 \hbar \Omega \left(x - \frac{1}{x^3} \right) - \frac{N_0^2 U_0}{2\pi a^2} \frac{1}{x^3} \stackrel{!}{=} 0 \quad (2.76)$$

findet man die Veränderung des Radius

$$x = \frac{b}{a} = \sqrt[4]{1 + \frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{2\pi}} \simeq 1 + \frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{8\pi}, \quad (2.77)$$

wobei im letzten Schritt erneut für kleine Wechselwirkungen entwickelt wurde. Schließlich ergibt sich für die minimierte Gesamtenergie

$$E = N_0 \hbar \Omega \left(1 + \frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{4\pi} + \frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{4\pi} \cdot 2\Delta x \right) \quad (2.78)$$

$$= N_0 \hbar \Omega \left(1 + \frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{4\pi} \right) + \mathcal{O}(g_{\text{eff}}^2), \quad (2.79)$$

wobei sich die Ausdehnung der Grundzustandswellenfunktion in Anwesenheit von Wechselwirkung gemäß

$$\Delta x = \frac{N_0}{8\pi} \cdot g_{\text{eff}}(t) \quad (2.80)$$

verändert. Abschließend kann also festgestellt werden, dass aus der Veränderung des Kondensatmodenradius eine Aussage über die effektive Wechselwirkung $g_{\text{eff}}(t)$ gemacht werden kann. Bei genauerer Betrachtung von Gleichung (2.78) enthüllt sich auch der Näherungscharakter des Variationsverfahrens, da die räumliche Veränderung des Wellenpakets schlussendlich nur in zweiter Ordnung von g_{eff} Auswirkungen auf die minimierte Energie hat. Daher stellt Gleichung (2.77) nur eine Abschätzung der Vergrößerung des Grundmoden dar. Der Energievariation wird im nächsten Abschnitt eine numerische Analyse der Gross-Pitaevskii Gleichung gegenüber gestellt.

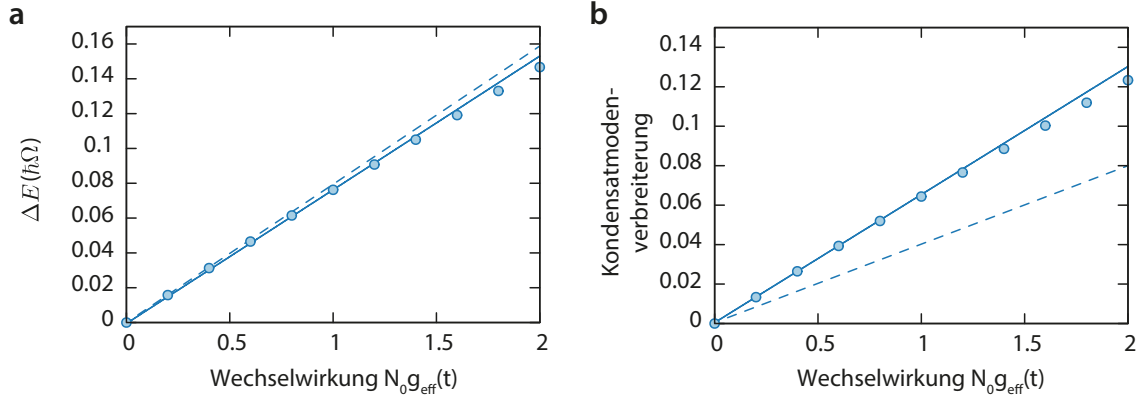


Abbildung 2.4 | Numerische Untersuchung der effektiven Wechselwirkung – **a**, Verhalten der Gesamtenergie des Systems im Bereich kleiner Wechselwirkungen und Zeiten, weit entfernt von einer stationären Temperaturverteilung. **b**, Entsprechende Auswirkung der Wechselwirkung auf den Durchmesser des Kondensatmoden. Zum Vergleich sind die analytischen Näherungslösungen durch Energievariation (siehe Gleichungen (2.77), (2.79)) ebenfalls dargestellt (gestrichelte Linien).

2.2.4.2 Numerische Lösung der Gross-Pitaevskii Gleichung

Auch für die numerische Untersuchung werden die Beschränkungen $t \ll \tau$ und kleine Wechselwirkungen aufrecht gehalten. Die zu lösende Gross-Pitaevskii Gleichung hat dann gemäß Gleichungen (2.70) und (2.71) die Form

$$\left(\frac{\hbar^2}{2m_{\text{Ph}}} \nabla^2 + \frac{1}{2} m_{\text{Ph}} \Omega^2 r^2 + \frac{\hbar^2}{m_{\text{Ph}}} g_{\text{eff}}(t) N_0 |\psi(r)|^2 \right) \psi(r) = \mu \psi(r). \quad (2.81)$$

Diese wird für ein radialsymmetrisches zweidimensionales System mit dem Split-Step Crank-Nicolson Algorithmus für verschiedene Wechselwirkungsstärken $g_{\text{eff}}(t)$ gelöst. Der verwendete C++ Programmcode stammt aus Ref. [72]. Die Ergebnisse für die Vergrößerung des Radius und die Energie sind in Abbildung 2.4 dargestellt. Man beobachtet ein zunächst linear mit $g_{\text{eff}}(t)$ ansteigendes Verhalten für genügend kleine Wechselwirkungen sowohl für die Vergrößerung des Moden, als auch für die Gesamtenergie, was eine qualitative Übereinstimmung mit den Vorhersagen durch den Variationsansatz darstellt. Um einen quantitativen Vergleich herzustellen wird die Steigung im linearen Bereich angepasst und man erhält

$$E = N_0 \hbar \Omega \left(1 + \frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{4.14(2) \pi} \right) \quad \text{und} \quad (2.82)$$

$$x = 1 + \frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{4.90(7) \pi}. \quad (2.83)$$

Die numerisch bestimmte Gesamtenergie weicht nur geringfügig von Gleichung (2.78) ab, wohingegen die numerische Veränderung des Kondensatmodendurchmessers einen signifikanten Unterschied zu Gleichung (2.77) aufweist. Ersteres wird darauf zurückgeführt, dass auch die

numerische Lösung in erster Ordnung ein Minimum der Gesamtenergie gemäß Gleichung (2.78) im Variationsansatz darstellt, und letzteres durch den Umstand, dass bei der Numerik keine Vorgabe an die Form der Wellenfunktion gestellt wird, wie sie bei der Energievariation explizit vorgegeben war um die Vergrößerung des Durchmessers mit einem Parameter darstellbar zu machen (Gaußpaket). Somit findet man numerisch ein genaueres Ergebnis für die Verbreiterung des Kondensatmoden.

Mit den Erkenntnissen der vorangegangenen Abschnitte lässt sich die thermooptische Selbstwechselwirkung in der Farbstofflösung des Mikroresonators für Zeiten weit abseits einer stationären Temperaturverteilung beschreiben. Mithilfe dieses Modells wird in Kapitel 5 der Wechselwirkungsparameter g_{eff} im Mikroresonator bestimmt, indem experimentell die Kondensatmodenvergrößerung studiert wird.

2.2.5 Experimentelle Realisierung im farbstoffgefüllten Mikroresonator

Die in den vorangegangenen Abschnitten vorgestellten Konzepte, bilden die Voraussetzungen für den experimentellen Nachweis des teilchenzahlerhaltenden Thermalisierungsmechanismus [51]. Dies ermöglichte in einer früheren Arbeit die erstmalige experimentelle Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats aus Licht in einem mit Farbstoff gefüllten optischen Hochfinesse-Mikroresonator mit gekrümmten Spiegeln [20]. Im Weiteren wird der spezielle Bezug zu diesen Experimenten im Mikroresonator mit gekrümmten Spiegeln durch die Bezeichnung „makroskopisches“ Photonenkondensat kenntlich gemacht. Nachfolgend werden der apparative Aufbau und einige typische Beobachtungen in diesem „makroskopischen“ Photonenkondensat vorgestellt. Dies dient insbesondere zum späteren Vergleich mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit, welche mit einem (modifizierten) Mikroresonatoraufbau erzielt wurden. Der in Ref. [20] verwendete Mikroresonator besteht aus zwei sphärisch-gekrümmten dielektrischen Spiegeln mit Reflektivitäten $> 99.995\%$ (für $\lambda = 530 - 590$ nm) was einer Finesse von $> 62\,000$ entspricht. Diese werden bis auf wenige Halbwellenlängen aneinander gebracht (vgl. Abbildung 2.5a). Für typische Abstände auf der optischen Achse $D_0 = q \cdot \lambda/2 = 1.5\ \mu\text{m}$ für $q = 7$, ergibt sich damit (unter Vernachlässigung von Reabsorption) eine mittlere Speicherzeit der Photonen im Resonator von $\tau > 800$ ps, bis die Photonen durch Transmission den Resonator verlassen. Die sphärische Krümmung der Spiegel induziert nahe der optischen Achse ein harmonisches Fallenpotential gemäß Gleichung (2.40) mit einer Fallenfrequenz $\Omega/2\pi = 39$ GHz für den verwendeten Krümmungsradius $R = 1$ m.

Typischerweise ist der Resonator mit einer Lösung des Laserfarbstoffs Rhodamin 6G gefüllt der eine besonders hohe Quanteneffizienz aufweist ($> 95\%$ in Methanol [73]). Die Temperatur der Spiegel sowie der Farbstofflösung entsprechen der Raumtemperatur ($T = 300$ K). Der Resonator wird unter einem Winkel von etwa 45° gepumpt, da die winkelabhängige Reflektivität dort für eine Polarisation ein Minimum aufweist. Das Pumplicht regt die Farbstoffmoleküle an, welche in Folge in die Moden des Resonators emittieren. Aufgrund des geringen Spiegelabstands $D_0 = q \cdot \lambda/2n_0$ sind die verschiedenen Longitudinalmoden spektral deutlich separiert $\Delta\lambda_{\text{long}} = \lambda^2/2n_0D_0 = 80$ nm (bzw. $\Delta\nu = 75$ THz). Der freie Spektralbereich nimmt dabei Werte in der

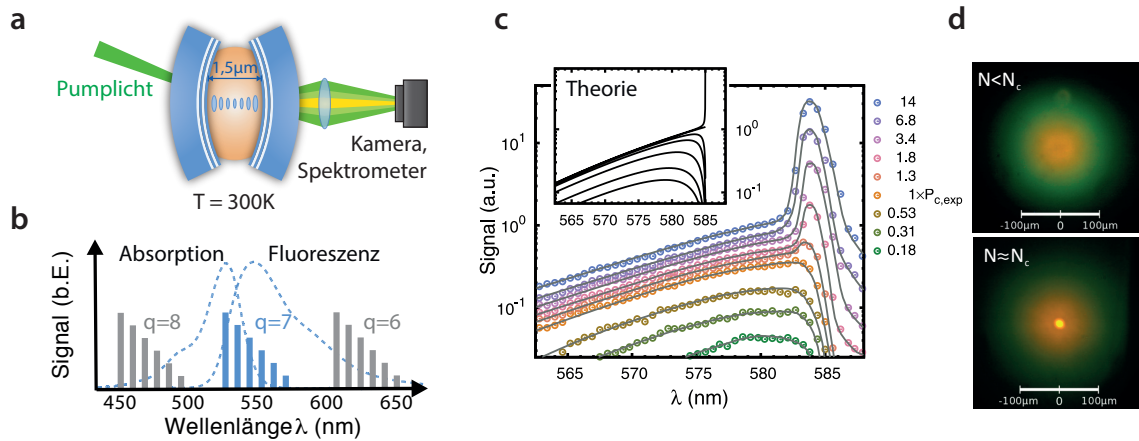


Abbildung 2.5 | Experimentelle Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats aus Photonen im farbstoffgefüllten Mikrospektromet – **a**, Als „Photonenbox“ wird ein Hochfinesse Mikrospektromet aus zwei sphärisch-gekrümmten Spiegeln verwendet. Dieser ist mit einer Farbstofflösung gefüllt. Ein externer Pumpplaser initialisiert das Photonengas im Inneren und gleicht Verluste durch strahlungslose Desaktivierung der Farbstoffmoleküle und Spiegeltransmission aus, sodass die Photonenzahl im Resonator konstant gehalten wird. Die transmittierten Photonen können sowohl räumlich mit einer (Farb-)Kamera als auch energetisch mit einem Spektrometer analysiert werden. **b**, Durch den geringen Spiegelabstand von nur wenigen Halbwellenlängen auf der optischen Achse entspricht der freie Spektralbereich in etwa der Fluoreszenzbandbreite des Farbstoffs. Daher erfolgt die Emission der Farbstoffmoleküle nur in einen einzelnen Longitudinalmoden und das System wird effektiv auf Anregungen in den verbleibenden zwei (transversalen) Freiheitsgraden beschränkt. Die Balken deuten dabei die (entarteten) transversalen Zustände an. **c**, Dargestellt ist die Besetzung der transversalen Resonatormoden für unterschiedliche Gesamtphotonenzahlen. Weit unterhalb der kritischen Teilchenzahl folgt die Besetzung einer Boltzmann Verteilung (siehe Teilbild), wohingegen ab einer Teilchenzahl $N = (6.6 \pm 2.5) \times 10^4$ der Grundzustand makroskopisch besetzt wird und die Besetzung durch die Bose-Einstein Verteilung beschrieben wird. (aus Ref. [20]) **d**, Räumliche Abbildung des Photonengases. Unterhalb der kritischen Teilchenzahl beobachtet man zunächst das thermische Photonengas (oben), welches dann einen makroskopisch besetzten Grundmoden im Zentrum der Falle am Phasenübergang ausprägt (unten). (aus Ref. [20])

Größenordnung der spektralen Fluoreszenzbandbreite des Farbstoffs an (vgl. Abbildung 2.5b). Somit wird sichergestellt, dass Emissionsprozesse nur in einen ausgewählten Longitudinalmoden möglich sind und sich die Anzahl der Freiheitsgrade damit auf zwei (transversal) verringert mit $\Delta\nu_{\text{trans}} = 39$ GHz. Den Grundzustand des Systems bildet dann der TEM_{q00} -Moden auf der optischen Achse bei der Abschneidewellenlänge λ_c . Die in Abbildung 2.5c gezeigten Spektren des transmittierten Lichts weit unterhalb der kritischen Phasenraumdicke zeigen eine gute Übereinstimmung mit einer Boltzmann-Verteilung bei Raumtemperatur. Daraus kann man schlussfolgern, dass das zweidimensionale Photonengas in Kontakt zu den Farbstoffmolekülen steht, so dass es in guter Näherung zu einer Gleichgewichtsbesetzung innerhalb der Speicherzeit kommt.

Bei Erhöhung der Phasenraumdicke durch Zufuhr von Photonen in den Resonator durch den Pumpplaser, wird sowohl spektral als auch räumlich die Bose-Einstein-Kondensation des

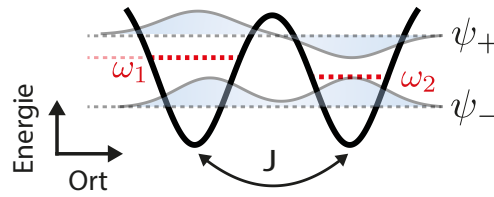


Abbildung 2.6 | Schematische Darstellung eines Doppelmuldenpotentials – Bei vernachlässigbarer Kopplung befindet sich in jeder Mulde ein Zustand mit der Energie $\hbar\omega_1$ bzw. $\hbar\omega_2$. In Folge einer Kopplung $\hbar J$ kommt es zu einer Hybridisierung der Eigenzustände des Zwei-Niveau-Systems, mit neuen Eigenenergien E_+ bzw. E_- und zugehörigen Wellenfunktionen.

Photonengases bei einer Teilchenzahl von $N = (6.6 \pm 2.5) \times 10^4$ beobachtet [20] (vgl. Abbildungen 2.5c und 2.5d). Diese stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem nach Gleichung (2.57) erwarteten Wert von $N_c = 77\,000$ überein.

2.3 Photonen im gekoppelten Doppelmuldenpotential

In der vorliegenden Arbeit werden Quantengase aus Licht in einem Mikroresonator untersucht. Das grundlegendste System, in dem Kopplung studiert werden kann, ist ein Zwei-Niveau-System, wie man es zum Beispiel mit einem Doppelmuldenpotential realisieren kann. Im nun folgenden Abschnitt wird das theoretische Gerüst des Zwei-Niveau-Systems vorgestellt, mit dem sich im experimentellen Teil der Arbeit die relevanten Größen wie die Tunnelrate und Besetzungen der Zustände bestimmen lassen.

2.3.1 Gekoppeltes Zwei-Niveau-System

In der Quantenmechanik bezeichnet das Zwei-Niveau-System die Problemstellung bei der das System gerade die Zustände $|\varphi_1\rangle$ und $|\varphi_2\rangle$ oder eine Superposition $|\psi\rangle = c_1|\varphi_1\rangle + c_2|\varphi_2\rangle$ von beiden annehmen kann, wobei für die Wahrscheinlichkeitsamplituden $|c_1|^2 + |c_2|^2 = 1$ gilt. Viele physikalische Systeme lassen sich durch dieses Modell beschreiben, etwa ein gebundenes Elektron in einem Zwei-Niveau-Atom. Auch das in dieser Arbeit realisierte System von zwei (gekoppelten) Kondensatmoden im Doppelmuldenpotential lässt sich als Zwei-Niveau-System auffassen. Unter der Einschränkung, dass jede Mulde nur einen einzelnen Zustand $|\varphi_1\rangle$ bzw. $|\varphi_2\rangle$ erlaubt und nur die Kondensatmoden betrachtet werden, ergibt sich ein System, wie es schematisch in Abbildung 2.6 dargestellt ist.

Für den ungestörten, d.h. ungekoppelten Fall gilt (siehe z.B. Ref. [74])

$$H_0 |\varphi_1\rangle = E_1, \quad (2.84)$$

$$H_0 |\varphi_2\rangle = E_2, \quad (2.85)$$

mit dem (ungestörten) Hamiltonoperator H_0 und den Eigenenergien $E_1 = \hbar\omega_1$, bzw. $E_2 = \hbar\omega_2$. In Anwesenheit einer Störung W , wie sie z.B. durch quantenmechanisches Tunneln von Teilchen durch die klassisch verbotene Barriere zwischen den Mulden erzeugt werden kann, lautet der Hamiltonoperator des Systems in der orthonormalen $\{\varphi_1, \varphi_2\}$ -Basis

$$H = H_0 + W \quad (2.86)$$

mit der Kopplung J auf den Nebendiagonalelementen

$$W = \begin{pmatrix} 0 & \hbar J \\ \hbar J & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.87)$$

Die neuen Zustände lauten dann $|\psi_+\rangle$ und $|\psi_-\rangle$ mit ihren Eigenenergien

$$H |\psi_+\rangle = E_+, \quad (2.88)$$

$$H |\psi_-\rangle = E_-, \quad (2.89)$$

welche sich leicht durch Diagonalisieren der Matrix in Gleichung (2.86) finden als

$$E_{\pm} = \frac{1}{2}\hbar(\omega_1 + \omega_2) \pm \frac{1}{2}\hbar\sqrt{\Delta\omega^2 + (2J)^2}, \quad (2.90)$$

wobei $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$ die Verstimmung bezeichnet. Zur Veranschaulichung sind die Eigenenergien beispielhaft als Funktion der Verstimmung in Abbildung 2.7a aufgetragen. Auf Resonanz entsteht eine Energielücke $\Delta E = 2J$ zwischen den Eigenzuständen, welche für $J \rightarrow 0$ verschwindet, einhergehend mit einer Überführung von E_+ und E_- in die ursprünglichen Energien E_1 und E_2 . In Anwesenheit von Kopplung sind die Eigenvektoren gegenüber denen des ungestörten System gedreht

$$|\psi_+\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |\varphi_1\rangle - \sin \frac{\theta}{2} |\varphi_2\rangle, \quad (2.91)$$

$$|\psi_-\rangle = \sin \frac{\theta}{2} |\varphi_1\rangle + \cos \frac{\theta}{2} |\varphi_2\rangle, \quad (2.92)$$

mit dem Mischungswinkel

$$\tan \theta = \frac{-2J}{\Delta\omega} \quad \text{mit } (0 \leq \theta < \pi). \quad (2.93)$$

Sind beide Energieniveaus in Resonanz ($\Delta\omega = 0$) so gilt $\theta \rightarrow \pi/2$ und man findet das System in der (anti-) symmetrischen Superposition der ungekoppelten Zustände $|\varphi_1\rangle, |\varphi_2\rangle$

$$|\psi_+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\varphi_1\rangle - |\varphi_2\rangle) \quad (\text{antisymmetrisch}) \quad (2.94)$$

$$|\psi_-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\varphi_1\rangle + |\varphi_2\rangle). \quad (\text{symmetrisch}) \quad (2.95)$$

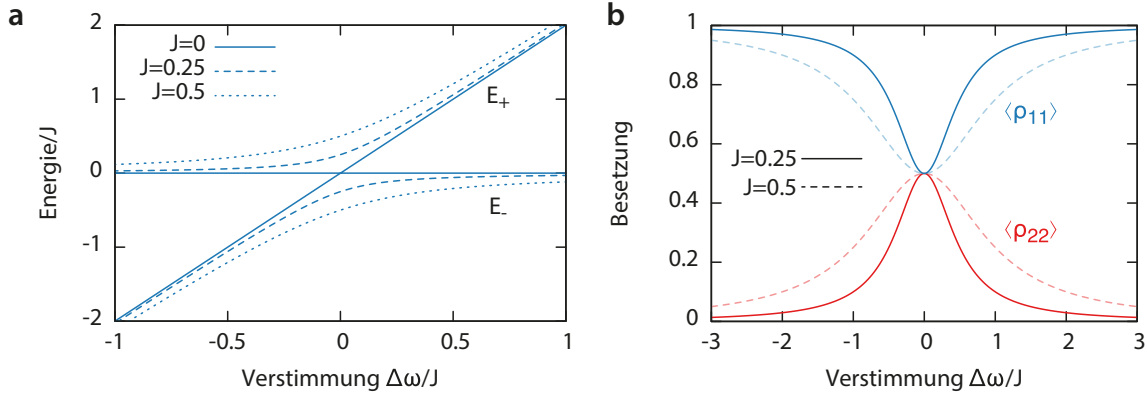


Abbildung 2.7 | Eigenenergien und Besetzung im gekoppelten Zwei-Niveau-System – **a**, Aufgetragen ist die Energie der Eigenzustände E_+ , E_- als Funktion der Verstimmung für verschiedene Kopplungsstärken J . Dabei bildet sich eine Energielücke um die Resonanz aus, die durch die Kopplung (Gleichung 2.87) entsteht. **b**, Relative Besetzung der Zustände φ_1 , φ_2 als Funktion der Verstimmung.

Die Notation mit + und – führt oft zu Missverständnissen, da sie fälschlicherweise mit der symmetrischen bzw. antisymmetrischen Wellenfunktion gleichgesetzt wird. Sie bezieht sich jedoch einzig auf die Energien der Zustände ($E_+ \geq E_-$). In Hinblick auf die Symmetrie der Superposition gilt $|\psi_-\rangle \equiv |\psi(\text{symmetrisch})\rangle$ und $|\psi_+\rangle \equiv |\psi(\text{antisymmetrisch})\rangle$.

2.3.2 Optische Blochgleichungen

Bislang beschränkte sich die Beschreibung auf ein einzelnes Teilchen in einem Superpositionszustand. Für die Charakterisierung eines Ensembles an Teilchen ist es hilfreich den Dichteoperator $\hat{\rho} = |\varphi\rangle\langle\varphi|$ zu betrachten. Für dessen zeitliche Entwicklung lässt sich aus der Schrödingergleichung in „Bra“- und „Ket“-Darstellung leicht die *von-Neumann-Gleichung* herleiten [75]

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = \left(\frac{\partial}{\partial t} |\varphi\rangle \right) \langle\varphi| + |\varphi\rangle \left(\frac{\partial}{\partial t} \langle\varphi| \right), \quad (2.96)$$

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}(H\hat{\rho} - \hat{\rho}H) = -\frac{i}{\hbar}[H, \hat{\rho}], \quad (\text{von Neumann Gleichung}) \quad (2.97)$$

wobei im letzten Schritt der quantenmechanische Kommutator verwendet wurde. Gleichung (2.97) lässt sich durch das Hinzufügen weitere Terme in eine Mastergleichung erweitern, welche auch die experimentell relevanten Prozesse wie Spiegeltransmissionsverluste und Pumpen des Mikrosresonators berücksichtigen. Die Mastergleichung lautet

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}[H, \hat{\rho}] + \begin{pmatrix} \lambda & 0 \\ 0 & \lambda \end{pmatrix} + \Gamma \hat{\rho}, \quad (2.98)$$

mit Pumprate λ und Verlustrate Γ . Daraus erhält man schlussendlich die „optischen Blochgleichungen“ [76], welche die zeitliche Entwicklung der Besetzungen und Kohärenzen der Zustände beschreibt:

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_{11} = \lambda - \Gamma \hat{\rho}_{11} - 2J \operatorname{Im}\{\hat{\rho}_{12}\}, \quad (2.99)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_{22} = \lambda - \Gamma \hat{\rho}_{22} + 2J \operatorname{Im}\{\hat{\rho}_{12}\}, \quad (2.100)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_{12} = -(\Delta\omega - \Gamma) \hat{\rho}_{12} - iJ \operatorname{Im}\{\hat{\rho}_{22} - \hat{\rho}_{11}\}, \quad (2.101)$$

mit $\hat{\rho}_{12} = \hat{\rho}_{21}^*$. Im stationären Fall ($\frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_{11} = \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_{22} = \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_{12} = \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}_{21} = 0$) lassen sich die Differentialgleichungen lösen

$$\hat{\rho}_{11}^{\text{stat}} = \frac{\lambda}{\Gamma} \left(1 - \frac{2J^2}{\Delta\omega^2 + 4J^2 + \Gamma^2} \right), \quad (2.102)$$

$$\hat{\rho}_{22}^{\text{stat}} = \frac{\lambda}{\Gamma} \left(\frac{2J^2}{\Delta\omega^2 + 4J^2 + \Gamma^2} \right), \quad (2.103)$$

$$\hat{\rho}_{12}^{\text{stat}} = \frac{-i\Gamma - \Delta\omega}{\Delta\omega^2 + 4J^2 + \Gamma^2} \cdot 2(\hat{\rho}_{22}^{\text{stat}} - \hat{\rho}_{11}^{\text{stat}}). \quad (2.104)$$

Im Falle der gekoppelten Photonenkondensate, wie sie in späteren Kapiteln experimentell realisiert werden, erlauben die Gleichungen Vorhersagen über die Besetzung der Mulden als z.B. Funktion der Energieverstimmung $\Delta\omega$. Eine exemplarische Darstellung für $\Gamma = 0$ (d.h. ohne Pump- und Verlustprozesse) und zwei unterschiedliche Kopplungen findet sich in Abbildung 2.7b. Neben den Gleichgewichtsbesetzungen kann aber auch die zeitliche Entwicklung der Besetzungen aus den optischen Blochgleichungen bestimmt werden. Für eine Anfangsbesetzung $\hat{\rho}_{11}(t=0) = 1$ und $\hat{\rho}_{22}(t=0) = 0$, wie sie zum Beispiel durch einen zeitlich kurzen Pumpimpuls erzeugt werden kann, findet man ein oszillatorisches Verhalten der Wahrscheinlichkeiten gemäß

$$\hat{\rho}_{11}(t) = e^{-\Gamma t} \frac{J^2}{\tilde{\Omega}^2} \left(\cos^2 \left(\frac{\tilde{\Omega}}{2} t \right) + \frac{\Delta\omega^2}{J^2} \right) \quad (2.105)$$

$$\hat{\rho}_{22}(t) = e^{-\Gamma t} \frac{J^2}{\tilde{\Omega}^2} \left(\sin^2 \left(\frac{\tilde{\Omega}}{2} t \right) \right), \quad (2.106)$$

wobei die Oszillationsfrequenz $\tilde{\Omega} = \sqrt{\Delta\omega^2 + J^2}$, auch verallgemeinert Rabi-Frequenz genannt, eingeführt wurde.

2.4 Thermosensitive Polymere

Ein wesentlicher Bestandteil der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Mikrostrukturierung des Resonators beruht auf einer signifikanten Erhöhung des Brechungsindex. Dazu wird das Polymer Poly(N-Isopropylacrylamid) (kurz NIPAM) verwendet [77–79]. Es gehört zu der

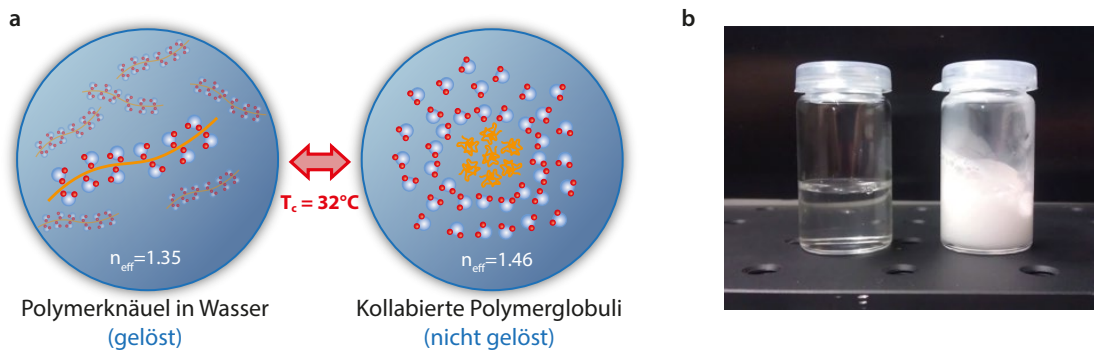


Abbildung 2.8 | Knäuel-Globuli-Phasenübergang von NIPAM – **a**, Schematische Darstellung der molekularen Anordnung von Polymerknäuel und Wassermolekülen unterhalb (links) und oberhalb (rechts) der kritischen Lösungstemperatur T_c . Am Phasenübergang brechen die Wasserstoffbrücken auf und die Polymermoleküle kollabieren in räumlich kompakte Globuli die sich zunehmend anreichern. **b**, Fotografie einer NIPAM-Wasser Lösung. Unterhalb des Phasenübergangs ist die Lösung transparent (links), zeigt dann aber oberhalb des Phasenübergangs die typisch milchige Farbe aufgrund von Lichtstreuung an Globuli-Agglomeraten (rechts).

Gruppe der thermosensitiven Polymere, die ihre physikalischen Eigenschaften deutlich und sprunghaft in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur ändern. Normalerweise äußert sich diese Veränderung in der Löslichkeit des Polymers im Lösungsmittel. Es liegt eine Mischungslücke vor, d.h. unter- oder oberhalb einer kritischen Lösungstemperatur T_c wird das zuvor gelöste Polymer plötzlich unlöslich. Es handelt sich hierbei um einen Knäuel-Globuli Phasenübergang [80]. NIPAM ist in Wasser bei Raumtemperatur löslich und hat eine untere kritische Lösungstemperatur von rund $32\text{ }^\circ\text{C}$, mit einer typischen Temperaturbreite des Phasenübergangs $\Delta T \approx 0.2\text{ }^\circ\text{C}$. Dabei ist die genaue Temperatur des Phasenübergangs von der Wechselwirkung zwischen Polymer und Lösungsmittel abhängig und kann durch die Polymerkonzentration oder der Beigabe von Salzen oder Co-Lösungsmitteln gezielt verändert werden [81]. Daher eignet sich NIPAM für Bioapplikationen, wie z.B. den gezielten Transport von Wirkstoffen im Organismus, welche für die Anwendung im menschlichen Körper grundsätzlich T_c nahe der Körpertemperatur ($T = 36.3 - 37.4^\circ$ [82]) voraussetzen [83].

Unterhalb von $32\text{ }^\circ\text{C}$ liegen die NIPAM-Molekülketten in Knäueln vor, welche über Wasserstoffbrücken von Wassermolekülen aus der Lösung umgeben sind, wie in Abbildung 2.8a schematisch dargestellt ist. Es kommt zur Hydratisierung, was zu einer Minimierung der freien Reaktionsenthalpie (Gibbs-Energie) des Systems führt und in einer hohen Löslichkeit des Polymers resultiert [81]. Erhöht man nun die Temperatur, so werden die Wasserstoffbrücken aufgebrochen und Wassermoleküle verdrängt. Die Gibbs-Energie steigt bis zum Erreichen der kritischen Lösungstemperatur, bei der ein Kollaps des Polymerknäuels in einen kompakten Globuli energetisch günstiger ist, als die Aufrechterhaltung des Knäuelzustandes. Es bilden sich kompakte Globuli die in Wasser unlöslich sind. Aufgrund von Oberflächenspannung kommt es zu lokaler Anreicherung von Globuli, was einen Brechungsindexanstieg von $n_{T < T_c} \approx 1.35$ auf $n_{T > T_c} \approx 1.46$ zur Folge hat [84]. Die entstehenden Globuli-Agglomerate können auf die Größe der optischen Wellenlänge und darüber hinaus anwachsen und führen daher zu einer

Trübung der Lösung durch Mie-Streuung (vgl. Abbildung 2.8b) [84, 85]. Solche Streuverluste durch Agglomeration sind für die vorliegende Arbeit höchst nachteilig. Die zur Thermalisierung nötige Speicherzeit der Photonen im Mikroresonator kann dann nicht erreicht werden. Eine genauere Untersuchung des Agglomerationsverhaltens zeigt jedoch, dass die Trübung nur für Temperaturen deutlich über T_c auftritt. In Ref. [85] werden Experimente vorgestellt, in denen NIPAM mittels eines kurzen Laserpulses sprunghaft knapp über den Phasenübergang erhitzt wird und beim anschließenden Abkühlen sowohl die Trübung als auch der Brechungsindex als Funktion der Zeit gemessen wird. Es zeigt sich, dass die auftretende Lichtstreuung innerhalb von rund 100 ms verschwindet, die Änderung des Brechungsindex aber noch für mehrere Sekunden aufrechterhalten bleibt. Die zunächst für $T \gg T_c$ erzeugten größeren Globuli-Agglomerate dissoziieren rasch in kleinere assoziierte oder einzelne Globuli, die keine signifikante Streuung mehr verursachen. Daher wird für Umgebungstemperaturen unmittelbar um T_c in guter Näherung keine bzw. keine anhaltende Trübung der Lösung erwartet, was weiterhin hohe Photonenspeicherzeiten im Resonator ermöglichen sollte.

2.5 Delamination von Dünnschichten

Für eine statische Mikrostrukturierung der Spiegeloberflächen wird in dieser Arbeit die gezielte Ablösung der dielektrischen Schichten eines Resonatorspiegels untersucht. Dieser Effekt wird auch als Delamination bezeichnet und kann an Grenzflächen zweier unterschiedlicher Materialien auftreten [86–88]. Er basiert auf Druckspannung im Kristallgitter, wobei hier zwischen intrinsischer und thermisch-induzierter Spannung unterschieden werden muss. Bei der Fabrikation von Bragg-Spiegeln und optischen Beschichtungen durch Epitaxieverfahren, wie ionenstrahlgestützte Deposition, wird ein gewisses Maß an Spannung durch Fehlstellen in der Kristallstruktur erzeugt (intrinsische Spannung) [89]. Darüber hinaus bildet sich thermische Spannung aus, sobald die Umgebungs- von der Herstellungstemperatur abweicht. Dies tritt als Folge von unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten zwischen beispielsweise Substrat und Beschichtung auf, welche sich mitunter deutlich voneinander unterscheiden können und somit eine temperaturabhängige Spannung induziert wird. Zur Delamination kommt es, wenn die durch van-der-Waals Kräfte gegebene Anziehung (Kohäsion) durch die Summe aus intrinsischer und thermischer Druckspannung überwunden wird, wozu es z.B. in Folge einer Temperaturänderung kommen kann.

Betrachtet man zur Anschauung ein System aus zwei Materialien, einem Substrat und einer darauf aufgetragenen Dünnschicht, wie es in Abbildung 2.9a dargestellt ist, so beobachtet man oberhalb einer Druckspannungsschwelle eine lokale Auswölbung der Dünnschicht (Delamination). Darunter entsteht ein Hohlraum, wobei es Hinweise darauf gibt, dass in diesem typischerweise ein Vakuum herrscht [90]. In der ausgewölbten Schicht liegt ein neues lokales Gleichgewicht zwischen Spannungen und Kohäsion vor, welches aufgrund der reduzierten intrinsischen Spannung auch nach Rückkehr zur Ausgangstemperatur (unterhalb der Delaminationsschwelle) erhalten bleibt. Somit handelt es sich bei der Delamination um einen irreversiblen Prozess. Die Ablösung nahe der Delaminationsschwelle verläuft zunächst ohne optisch er-

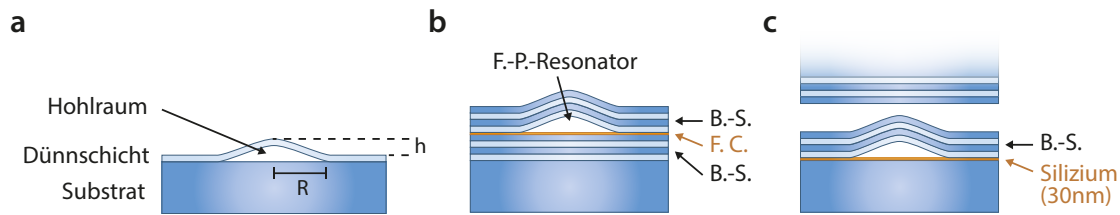


Abbildung 2.9 | Delamination von Dünnschichten – **a**, Durch induzierte Druckspannung zwischen Materialien, wie einem Substrat und einer Dünnschicht, kann die van-der-Waals Anziehung an der Grenzfläche überwunden werden und es kommt unter Ausbildung eines Hohlraums zur Ablösung der Schichten (Delamination). Der Radius der Delamination R ist dabei typischerweise deutlich größer als die Höhe der Ablösung h ($R \gg h$). **b**, Gezielte Delamination eines Fabry-Perot Resonators (F.P.) mit eingefügter Materialschicht mit geringer Kohäsion (10 nm Fluorkohlenstoff (F.C.)) zwischen den Bragg-Schichten (B.S.) [92]. **c**, Schematischer Aufbau eines modifizierten Spiegels mit Siliziumschicht zwischen Substrat und Bragg-Schichten zur Untersuchung gezielter Delamination für den farbstoffgefüllten Mikroresonator. Fokussiertes Laserlicht trägt in der Siliziumschicht Wärme und damit thermische Spannung, sodass die Bragg-Schichten gezielt delaminiert werden können. In Kombination mit einem weiteren „herkömmlichen“ Spiegel ohne Siliziumschicht (oben) entsteht dann ein mikrostrukturierter Resonator. Bei geeigneten Delaminationsmustern können zwischen den Auswölbungen attraktive Potentiale realisiert werden.

kennbare Beschädigung der Schichten. Mit steigender thermischer Spannung kommt es dann zunächst zu einzelnen Rissen und Brüchen in der Schicht, bevor sie, bei weiterer Erhöhung der Spannung, komplett zerstört wird [86, 91].

Ursprünglich wurde Delamination als unerwünschter Nebeneffekt bei der Fabrikation optischer Beschichtungen beobachtet. Die genauere Untersuchung des Effekts [86–89] ermöglicht ein gezieltes Anwenden von Delamination zur Mikrostrukturierung in verschiedenen Systemen. Ein Beispiel ist ein System aus Substrat und einem darauf aufgebrachtem Stapel aus modifizierten Bragg-Schichten, wie es in Abbildung 2.9b schematisch dargestellt ist [92]. Dabei ist zwischen die Abfolge von Schichten nach der Hälfte eine dünne Schicht aus einem Material mit geringer Kohäsion (10 nm Fluorkohlenstoff) eingefügt. Trägt man nun durch Absorption eines fokussierten Laserstrahl lokal Wärme in das System ein, so kommt es zur Delamination an der eingefügten Schicht. Der Bragg-Spiegel teilt sich in zwei Teile und der entstehende Hohlraum im Inneren bildet einen Fabry-Perot Resonator. Über die Bestimmung der Finesse kann gezeigt werden, dass die Delamination keine signifikanten Auswirkungen auf die optische Qualität der Bragg-Schichten hat, was auf eine zerstörungsfreie Ablösung hinweist [92]. Das Ergebnis der Mikrostrukturierung wird durch das eingetragene Wärmemuster beeinflusst. Über Wärmetrag entlang von Linien lassen sich mit der Methode so auch Lichtwellenleiter erzeugen [93]. Andere Arbeiten verwenden kurze Laserpulse um transparente SiO_2 Dünnschichten auf einem Siliziumsubstrat gezielt anzuheben und vollständig zu entfernen, was Anwendung etwa bei der Solarzellenherstellung findet [94, 95]. Im Gegensatz zur zerstörungsfreien Delamination, die einzig auf Spannung zwischen den Schichten beruht, werden im Regime der Schichtzerstörung auch Einflüsse von Schmelzprozessen diskutiert. Bei großen Laserpulsenergien kann lokal die Schmelztemperatur des absorbierenden Materials (z.B. 1 460 K bei amorphem Silizi-

um [96]) überschritten werden und durch den explosionsartig ansteigenden Gasdruck wird die darüberliegende Schicht zerstört.

In den späteren Kapiteln dieser Arbeit wird die Methode der Delamination von Bragg-Schichten auf einem Spiegelsubstrat zur gezielten Mikrostrukturierung der Resonatorgeometrie untersucht. Hierzu wird ein modifizierter Bragg-Spiegel, wie er in Abbildung 2.9c dargestellt ist, verwendet. Zwischen Substrat und dielektrischen Schichten ist eine dünne Schicht aus amorphem Silizium eingefügt ($d = 30$ nm), welche sichtbares Licht absorbiert (30 % bei $\lambda = 532$ nm) und im Experiment einen lokalen Wärmeeintrag durch Absorption von fokussiertem Laserlicht erlaubt. Im experimentellen Teil der Arbeit wurde untersucht, ob eine zerstörungsfreie Delamination der Bragg-Schichten möglich ist, und die Delamination Auswirkungen auf die Oberflächenrauigkeit und die Reflektivität des Spiegels hat. Ein farbstoffgefüllter Mikroresonator kann dann aus einer Kombination von einem mikrostrukturierten und einem herkömmlichen Spiegel gebildet werden. Dabei entspricht die Auswölbung der Spiegeloberfläche einer lokalen Verringerung der Resonatorlänge was ein repulsives Potential bewirkt (vgl. Abschnitt 2.2.2).

Erzeugung und Charakterisierung von variablen Fallenpotentialen im optischen Mikroresonator mit einem thermosensitiven Polymer

In diesem Kapitel wird experimentell untersucht, inwiefern sich das in Abschnitt 2.4 vorgestellte thermosensitive Polymer (NIPAM) zur Erzeugung von variablen Fallenpotentialen für Licht im Mikroresonator eignet. Dazu werden sowohl die Quanteneffizienz als auch die kritische Temperatur des Phasenübergangs einer Lösung aus Polymer und Farbstoff untersucht. Danach wird der verwendete Aufbau zum gezielten Heizen der Polymer-Farbstofflösung im Mikroresonator vorgestellt und die damit realisierbaren Fallenpotentiale untersucht. Zur vollständigen Charakterisierung dieser neuartigen Methode wird abschließend die zeitliche Dynamik des Phasenübergangs im Mikroresonator vermessen und die Machbarkeit von verschiedenen Potentialstrukturen diskutiert.

3.1 Quanteneffizienz der Polymer-Farbstofflösung

Um die Verluste beim Thermalisierungsmechanismus gering zu halten (vgl. Abschnitt 2.2.1), ist eine möglichst hohe Quanteneffizienz des Farbstoffs nötig. In vorherigen Arbeiten zum Photonen Bose-Einstein-Kondensat wurde der Mikroresonator mit dem Laserfarbstoff Rhodamin 6G gefüllt [20, 34, 51]. Die Farbstoffmoleküle sind dabei entweder in Methanol oder Ethylenglycol gelöst und weisen Quanteneffizienzen von bis zu 95 % auf [73]. In der vorliegenden Arbeit wird hingegen destilliertes Wasser als Lösungsmittel für die Farbstoffmoleküle verwendet, da sich das thermosensitive Polymer darin lösen lässt. Es stellt sich die Frage, ob eine vergleichbar hohe Quanteneffizienz auch für die Polymer-Farbstofflösung erreicht werden kann. Anders als

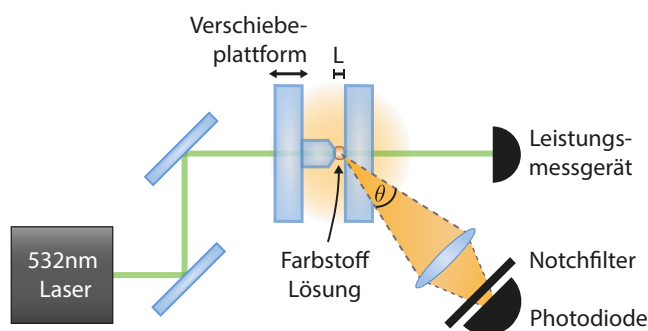


Abbildung 3.1 | Apparativer Aufbau zur Quanteneffizienzmessung – Für die Messung wird die Fluoreszenz der Farbstofflösung zwischen zwei Glassubstraten untersucht. Die Substrate sind so gefertigt, dass sie über eine Verschiebeplattform bis auf einen Abstand $d \sim \mu\text{m}$ aneinander gebracht werden können. Der Farbstoff wird mit einem Laserstrahl angeregt ($\lambda = 532 \text{ nm}$) und die Fluoreszenz in einen Raumwinkel θ auf einer Photodiode detektiert. Dabei filtert ein Kerbfilter (engl: *notch filter*) gestreutes Pumplicht. Zusätzlich kann die absorbierte Laserleistung über ein Leistungsmessgerät bestimmt werden.

in unpolaren Lösungsmitteln zeigt Rhodamin 6G in polaren Lösungsmitteln wie Wasser nur eine geringe Quanteneffizienz, da es verstärkt zur Bildung von Dimeren kommt, welche zur Selbstauslöschung (engl.: *quenching*), d.h. strahlungslose Desaktivierung, führen [97]. Um Dimerbildung zu reduzieren kann jedoch ein Lösungsvermittler wie z.B. das Tensid Ammonyx-LO beigemischt werden, dessen Einfluss auf die Quanteneffizienz im Folgenden experimentell untersucht wird.

In Abbildung 3.1 ist der Aufbau zur Bestimmung der Quanteneffizienz dargestellt. Die Methode beruht auf einer Vergleichsmessung zweier Proben von bekannter und unbekannter Quanteneffizienz. Nacheinander werden die zwei zu vergleichenden Farbstofflösungen zwischen zwei Glassubstrate gebracht. Der Abstand der Substrate L wird mit einer Mikrometer-Verschiebeplattform so eingestellt, dass die Absorption eines durch die Flüssigkeit geführten Laserstrahls ($\lambda = 532 \text{ nm}$) für beide Proben identisch ist. Um Reabsorption von emittierten Photonen in den Lösungen gering zu halten und trotzdem ausreichend Fluoreszenz zu detektieren, werden die Messungen bei 80 % transmittierter Laserleistung durchgeführt [52]. Ein fixer Teil der isotropen Emission wird mit einer Linse gesammelt (Raumwinkel θ) und mit einer Photodiode detektiert. Die unbekannte Quanteneffizienz γ_{Probe} ergibt sich dann durch Vergleich mit der Referenzmessung von Rhodamin 6G in Ethylenglycol γ_{Ref} .

$$\gamma_{\text{Probe}} = \gamma_{\text{Ref}} \cdot \frac{F_{\text{Probe}}}{F_{\text{Ref}}} \cdot \frac{A_{\text{Ref.}}}{A_{\text{Probe}}} \cdot \frac{n_{\text{Probe}}^2}{n_{\text{Ref.}}^2}, \quad (3.1)$$

wobei F die entsprechend detektierte Fluoreszenzleistung beschreibt, A die absorbierte Laserleistung, welche für beide Messungen identisch eingestellt wird ($A_{\text{Ref.}}/A_{\text{Probe}} \approx 1$) und n den Brechungsindex der Lösungen bezeichnet. Als Referenzprobe dient eine Lösung von Rhodamin 6G in Ethylenglycol. Die Konzentration entspricht mit $\rho = 1 \text{ mmolL}^{-1}$ der typischen Farbstoffkonzentration im Mikroresonator. Die aus der Literatur bekannte Quanteneffizienz liegt bei $\gamma_{\text{Ref.}} = 95 \%$ [73]. Über das Lambert-Beersche Gesetz [98] und den Extinktionsko-

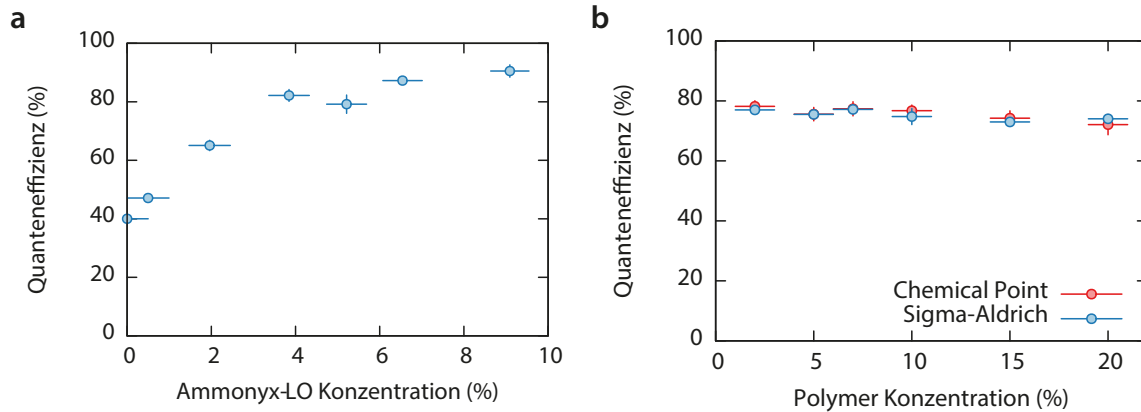


Abbildung 3.2 | Messung der Quanteneffizienz – **a**, Quanteneffizienz einer Lösung aus Rhodamin 6G, in Wasser mit variierender Konzentration des Lösungsvermittlers Ammonyx-LO. **b**, Quanteneffizienz einer Lösung aus Rhodamin 6G, in Wasser mit 6% Lösungsvermittler Ammonyx-LO bei variierender Konzentration des thermosensitiven Polymers NIPAM der Hersteller Sigma-Aldrich bzw. Chemical Point.

effizienten von Rhodamin 6G ($\epsilon = 1.16 \times 10^5 \text{ Lmol}^{-1}\text{cm}^{-1}$ bei 532 nm [99]) lässt sich der Abstand zwischen den Glassubstraten bei 80% Transmission zu $L \approx 19 \mu\text{m}$ abschätzen. Weiter kann angenommen werden, dass der Brechungsindex durch das Lösungsmittel dominiert wird ($n_{\text{Ref.}} = n_{\text{Ethylengl.}} = 1.43$ [100]).

Im ersten Schritt wird die Quanteneffizienz der Referenzprobe mit der von Lösungen aus Rhodamin 6G in Wasser (ebenfalls $\rho = 1 \text{ mmolL}^{-1}$) mit variierenden Konzentrationen des Lösungsvermittlers verglichen. Die Ammonyx-LO Konzentration der Proben liegt zwischen 0 – 10% (Masseanteil). Der Brechungsindex der verschiedenen Proben wird hier durch den Einfluss von Wasser dominiert, da Ammonyx-LO einen ähnlichen Brechungsindex aufweist ($n_{\text{Ammonyx-LO}} = 1.38 \approx n_{\text{Wasser}} = 1.33$ [68, 101]). Um die Messgenauigkeit zu erhöhen, werden pro Konzentration je drei Messungen der Referenzflüssigkeit und der unbekannt Probe durchgeführt und die Resultate anschließend gemittelt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.2a dargestellt. Ohne den Lösungsvermittler findet man eine Quanteneffizienz $\gamma_0 = (46.0 \pm 1.9)\%$, welche mit steigender Ammonyx-LO Konzentration zunächst ansteigt. Für Konzentrationen über 6% ist keine signifikante Erhöhung der Quanteneffizienz von $\gamma_{6\%} \approx 90\%$ mehr beobachtbar.

Nun wird der Lösung aus Rhodamin 6G, Wasser und 6% Ammonyx-LO das thermosensitive Polymer beigemischt. Auch hier wird die Konzentration variiert. Dazu wird NIPAM der Hersteller Sigma-Aldrich und Chemical Point verglichen, um herstellerepezifische Abweichungen auszuschließen. Die zwei Sorten NIPAM unterscheiden sich nur durch die Länge der Polymerketten, und damit ihrer (relativen) Molekülmassen M ($M_{\text{Aldrich}} = (16\,000 - 26\,000)$ und $M_{\text{Chemical}} = (19\,000 - 35\,000)$). Erneut werden die Quanteneffizienzen durch Vergleich mit der Referenzprobe ermittelt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.2b dargestellt. Es wird eine innerhalb der Fehlergrenzen konstante Quanteneffizienz im untersuchten Bereich bis 20% Polymerkonzentration beobachtet. Weiter lässt sich kein signifikanten Unterschied zwischen den Polymeren beider Hersteller ausmachen. Im Vergleich mit der Lösung ohne Polymer

zeigt sich jedoch eine reduzierte Quanteneffizienz $\gamma_{\text{Polymer}} \approx 80\%$. Die Ergebnisse legen nahe, dass es in Anwesenheit des Polymers zu erhöhter Fluoreszenzselbstauslöschung der Farbstoffmoleküle kommt. In Kapitel 5 wird überprüft, ob diese verringerte Quanteneffizienz der Polymer-Farbstofflösung ausreichend für eine Thermalisierung des Photonengases ist.

3.2 Knäuel-Globuli Phasenübergang des thermosensitiven Polymers NIPAM

In diesem Abschnitt werden Messungen zum Knäuel-Globuli Phasenübergang des Polymers in der Polymer-Farbstofflösung vorgestellt. Die relevanten Messgrößen sind dabei die kritische Temperatur an der der Phasenübergang stattfindet und dessen Temperaturbreite. Wie in Abschnitt 2.4 ausführlich erläutert, bilden sich am Phasenübergang aus den einzelnen Polymerketten Globuli-Agglomerate, die zu einer Trübung der Lösung führen. Die erhöhte Streuung von Licht an den Agglomeraten lässt sich indirekt über eine Transmissionsmessung feststellen und ist eine gängige Methode zur Quantifizierung des Phasenübergangs von thermosensitiven Polymeren [84, 85].

Der zur Vermessung des Phasenübergangs verwendete apparative Aufbau ist in Abbildung 3.3 schematisch dargestellt. Dabei wird ein Laserstrahl durch eine mit Polymer-Farbstofflösung gefüllte Küvette geleitet und die transmittierte Leistung gemessen. Die Wellenlänge des Lasers ($\lambda = 680\text{ nm}$, Firma *Thorlabs*, Modell LDM 21) ist dabei so gewählt, dass sie außerhalb des Absorptionsspektrum von Rhodamin 6G liegt. Der Phasenübergang von NIPAM in Wasser findet typischerweise innerhalb einer Temperaturveränderung von rund $0.2\text{ }^\circ\text{C}$ statt [78]. Daher ist für die Messung sowohl das Einstellen, als auch die Bestimmung der Temperatur mit einer Auflösung $\Delta T \ll 0.2\text{ }^\circ\text{C}$ nötig. Die Temperatur in der Küvette wird durch ein Wasserbad eingestellt, welches ein deutlich größeres Volumen aufweist und über eine Heizplatte (Firma *IKA*, Typ RCT classic) erwärmt werden kann. Dabei sorgt ein integrierter Magnetrührer für eine kontinuierliche Umwälzung des Wassers und damit eine möglichst homogene Temperaturverteilung im Wasserbad. Die Heizgeschwindigkeit beträgt zwischen $0.4 - 0.8\text{ }^\circ\text{Cmin}^{-1}$ und ist dabei so niedrig gewählt, dass die Temperaturverteilung um die Küvette zu jeder Zeit in guter Näherung als konstant angenommen werden kann. Für die Detektion wird ein Temperaturfühler des Typ AD590MF (Firma *Analog Devices*) verwendet, der an der Küvette befestigt ist und über eine Ausleseelektronik die Bestimmung der Temperatur mit einer relativen Genauigkeit von $\Delta T = 0.01\text{ }^\circ\text{C}$ erlaubt. Der Phasenübergang wird untersucht, indem die Umgebungstemperatur der Küvette ausgehend von der Raumtemperatur sukzessive erhöht wird, und fortlaufend die Werte des Temperaturfühlers und der Photodiodenspannung mit einem Computerprogramm aufgenommen werden.

Eine typische Transmissionskurve einer Polymer-Farbstofflösung als Funktion der Temperatur ist in Abbildung 3.4 aufgetragen. Für Temperaturen $T < 32.2\text{ }^\circ\text{C}$ wird das Laserlicht vollständig transmittiert. Darüber setzt der Phasenübergang ein und das Signal nimmt mit ansteigender Temperatur ab, bis es für $T > 32.6\text{ }^\circ\text{C}$ völlig verschwindet. Die kritische Temperatur des Pha-

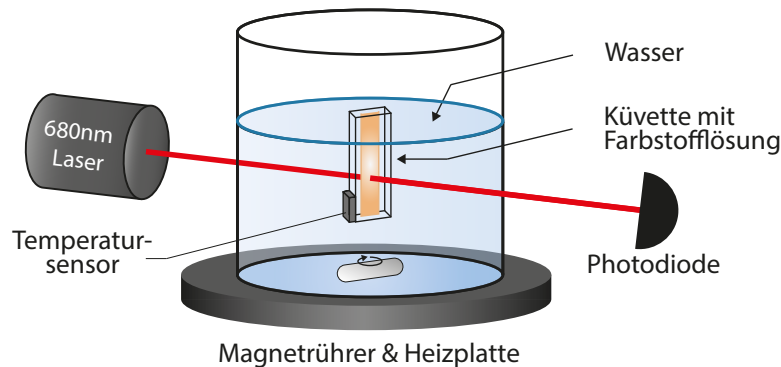


Abbildung 3.3 | Apparativer Aufbau zur Messung des Polymer-Phasenübergangs – Der Phasenübergang wird mittels einer Transmissionsmessung charakterisiert. Dazu wird ein Laserstrahl durch eine mit Polymer-Farbstofflösung gefüllte Küvette geleitet und die transmittierte Leistung mit einer Photodiode bestimmt. Die Temperatur der Lösung in der Küvette wird durch eine langsame Erwärmung des umgebenden Wasserbads eingestellt. Dabei kann die Temperatur durch einen an der Küvette angebrachten Sensor ausgelesen werden.

senübergangs wird bei der Temperatur bei der gerade 50 % des Lichts transmittiert werden angenommen und ist für variierende Polymerkonzentration in Abbildung 3.5a aufgetragen. Für alle Proben beobachtet man kritische Temperaturen zwischen 31.5 – 33.5 °C und eine Absenkung mit zunehmender Polymerkonzentration. Erneut, zeigen die Polymere beider Hersteller ein ähnliches Verhalten. Die Breite des Phasenübergangs wird ebenfalls über die Transmission (10 – 90 %) bestimmt und ist in Abbildung 3.5b aufgetragen. Bei sehr geringen Polymerkonzentrationen findet sich eine zunächst erhöhte Temperaturbreite des Phasenübergangs, welche rasch mit der Konzentration abnimmt und für Polymer Konzentrationen über 2 %, innerhalb ihrer Fehlergrenzen konstant zwischen 0.1 – 0.2 °C liegt.

Sowohl die kritische Temperatur als auch Temperaturbreite des Phasenübergangs von NIPAM können durch die Zugabe weiterer Substanzen (wie z.B. Salze) beeinflusst werden. Dieser Effekt ist für NIPAM aus der Literatur bekannt und dient typischerweise dem Absenken oder Anheben der kritischen Temperatur [81]. Im Rahmen der Bachelorarbeit von Christian Schilz wurde dieser Effekt auch für die Polymer-Farbstofflösung untersucht [102]. Experimentell stellt sich jedoch heraus, dass eine kritische Temperatur der Polymer-Farbstofflösung von $T_c = 32\text{ °C}$ für die Verwendung im Mikroresonator geeignet ist. Daher wurden der Lösung für die in dieser Arbeit gezeigten Messungen keine weiteren Substanzen hinzugefügt. In allen folgenden Experimenten besteht die Polymer-Farbstofflösung stets aus destilliertem Wasser mit $\rho = 5\%$ Lösungsvermittler (Ammonyx-LO), $\rho = 8\%$ thermosensitivem Polymer (NIPAM) und $\rho = 0.04\%$ ($\hat{=} 1\text{ mmolL}^{-1}$) Farbstoff (Rhodamin 6G).

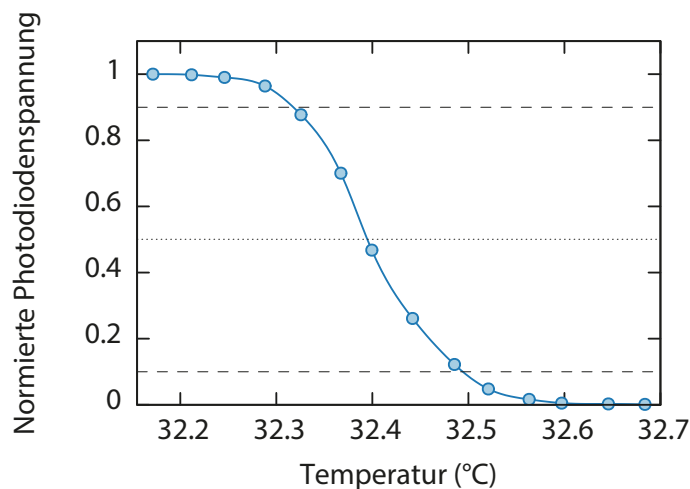


Abbildung 3.4 | Exemplarische Transmissionskurve der Polymer-Farbstofflösung – Aufgetragen ist die Transmission durch eine Probe mit 10 % NIPAM. Die Messwerte sind zur besseren Übersicht verbunden (durchgezogene Linie). Die kritische Temperatur des Phasenübergangs ist bei 50 % Transmission definiert (gepunktete Linie) und die Temperaturbreite des Phasenübergangs über die Transmission von 10 – 90 % (gestrichelte Linien).

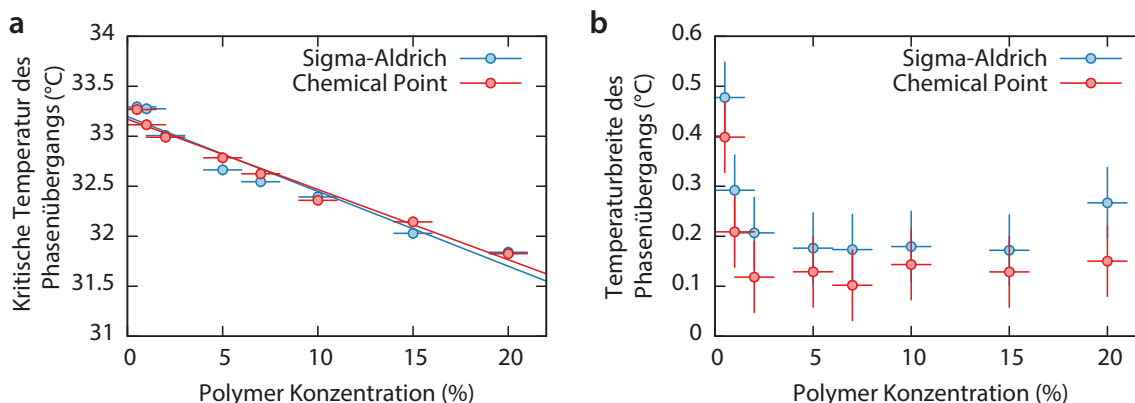


Abbildung 3.5 | Quantifizierung des Knäuel-Globuli Phasenübergangs – Kritische Temperatur des Phasenübergangs (a) und die Temperaturbreite (b) als Funktion der Polymerkonzentration. Es werden NIPAM Proben der Hersteller Sigma-Aldrich (blau) und Chemical Point (rot) verglichen.

3.3 Polymer-Farbstofflösung im Mikroresonator

Die Polymer-Farbstofflösung wird nun im Umfeld des Mikroresonators zur Erzeugung variabler Fallenpotentiale genutzt. Dazu wird eine Methode vorgestellt, gezielt Wärme im Resonator einzutragen, um lokal die kritische Phasenübergangstemperatur des Polymers zu erreichen. Grundsätzlich lässt sich Wärme gezielt über fokussiertes Laserlicht und Absorptionsprozesse mit niedriger Quanteneffizienz eintragen. Dabei wird die Energie der Photonen dann rasch über

Stöße oder Schwingungen an das Absorptionsmedium abgegeben und führt so zu einer Erhöhung der Temperatur. In einem Hochfinesse Mikroresonator ist dies jedoch eine Herausforderung, da Absorption die Finesse grundsätzlich begrenzt. Bei der Herstellung von dielektrischen Spiegeln werden ausschließlich Materialien mit besonders geringer Absorption verwendet. Daher richten sich erste Bemühungen auf das Einbringen von Absorptionsmaterialien in den Resonator, welche im typischen Wellenlängenbereich des Photonengases (530 – 600 nm) möglichst transparent sind. Hier gibt es zum einen die Möglichkeit organische Farbstoffe zu verwenden, die eine hohe Absorption im Nahinfraroten aufweisen und zum anderen Dünnschichten aus Halbleiter Quantenpunkten, welche Absorption im blauen Spektrum (< 450 nm) zeigen [52, 103–109]. Die Methoden scheitern jedoch in anfänglich durchgeführten Experimenten an ihrer (wenn auch geringen) Restabsorbtivität im Wellenlängenbereich des Photonengases und führen so zu nicht hinnehmbaren Photonenverlusten. Daher wurde im nächsten Schritt eine Methode entwickelt, in der das absorbierende Material außerhalb des Resonators angeordnet ist. Es wird eine dünne Schicht aus Silizium beim Herstellungsprozess der Bragg-Spiegel zwischen Substrat und dielektrischen Schichten eingebracht. Diese dient zur Absorption des Lichts eines externen, fokussierten Laserstrahls (im Folgenden als „Heizlaser(-strahl)“ bezeichnet), wodurch punktuell Wärme in die Schicht eingetragen wird. Über Wärmeleitung durch die dielektrischen Schichten lässt sich dann die Temperatur in der Polymer-Farbstofflösung gezielt kontrollieren. Durch die externe Anordnung der Absorptionsschicht bleibt die Finesse des Mikroresonators unbeeinflusst, was lange Speicherzeiten des Photonengases ermöglicht und insbesondere für die in einem späteren Kapitel untersuchte Thermalisierung notwendig ist.

3.3.1 Erzeugung und Charakterisierung von variablen Fallenpotentialen

In diesem Abschnitt werden Fallenpotentiale für Licht im Polymer-Farbstoff gefüllten Mikroresonator durch die Brechungsindexänderung mit dem Polymerphasenübergang diskutiert. Außerdem wird die Falltiefe und -frequenz charakterisiert. Der dazu verwendete Aufbau ist in Abbildung 3.6 schematisch dargestellt. Um den Effekt des Polymers auf die Modenstruktur im Mikroresonator zu testen, wird eine Kombination aus einem Planspiegel mit Siliziumschicht (Spezialanfertigung, Hersteller *Laseroptik*) und einem herkömmlichen, gekrümmten Spiegel ($R = 0.5$ m, Hersteller *Laseroptik*) verwendet. Letzterer sorgt, wie bereits in Experimenten zum makroskopischen Photonen Bose-Einstein-Kondensat, für ein schwaches harmonisches Fallenpotential ($\Omega = 2\pi \times 39$ GHz), sodass Licht auch ohne die Brechungsindexänderung des Polymers gefangen werden kann. Um die Temperatur lokal zu erhöhen wird ein Heizlaserstrahl ($\lambda = 532$ nm) mit einem Mikroskopobjektiv (Hersteller *Mitutoyo*, Modell M Plan Apo 10x) auf die Siliziumschicht fokussiert ($w_{\text{FWHM}} = 2$ μm , engl.: *full width at half maximum*, FWHM). Die Laserleistung kann dabei über einen akustooptischen Modulator (AOM) zeitabhängig variiert werden. Rund 30 % des Laserlichts wird in der Siliziumschicht absorbiert. Durch die hohe Reflektivität der Spiegel ist die Transmission in den Mikroresonator um vier Größenordnungen unterdrückt, sodass der nicht absorbierte Anteil nahezu vollständig von den Bragg-Schichten zurückreflektiert wird. Zur Analyse der Modenstruktur des Mikroresonators wird die Polymer-Farbstofflösung über einen zeitlich modulierten Pumplaserstrahl (1 μs -Pulse, $f = 100$ Hz) unter

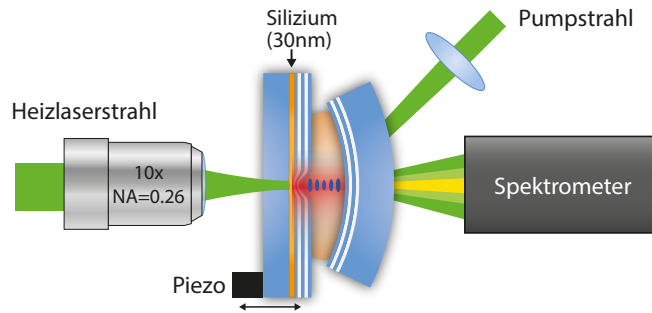


Abbildung 3.6 | Apparativer Aufbau zur Erzeugung und Charakterisierung eines variablen Fallenpotentials – Der semisphärische Mikroresonator besteht aus einem planen Spiegel mit Siliziumschicht und einem handelsüblichen, gekrümmten Spiegel und ist mit Polymer-Farbstofflösung gefüllt, die mit dem Pumpstrahl angeregten Farbstoffmoleküle emittieren in die Moden des Resonators, deren Besetzung mit einem Spektrometer detektiert wird. Die Siliziumschicht wird mit einem fokussierten Laserstrahl $\lambda = 532 \text{ nm}$ gaußförmig geheizt. Das zur Fokussierung verwendete Mikroskopobjektiv hat eine numerische Apertur von 0.28.

rund 45° angeregt, und das in den Resonator emittierte und anschließend durch den gekrümmten Spiegel transmittierte Licht mit einem Spektrometer (Firma *Thorlabs*, Modell: CCS175/M) charakterisiert. Der Spiegelabstand ist $D_0 = 6 \cdot \lambda_c/2$, bei einer Abschneidewellenlänge $\lambda_c = 585 \text{ nm}$ und wird über eine aktive Stabilisierung konstant gehalten¹. Der Pumpstrahl ist auf wenige Mikrometer fokussiert und bei ausgeschaltetem Heizlaser so justiert, dass die Grundmode des Resonators stark besetzt ist. Die Peak-Leistung des Heizlasers wird sukzessive erhöht², und das transmittierte Licht mit dem Spektrometer analysiert. Die gemessenen Spektren sind in Abbildung 3.7 dargestellt. Bis zu einer Leistung des Heizlaserstrahls von 10 mW beobachtet man eine unveränderte Emission bei der Abschneidewellenlänge des semisphärischen Resonators. Erhöht man die Leistung weiter, so tritt auch Emission oberhalb der ursprünglichen Abschneidewellenlänge auf, welche sich zunächst als weiteres Intensitätsmaximum im Spektrum zeigt und mit zunehmender Leistung des Heizlaserstrahls immer mehr Maxima ausbildet, die zu immer höheren Wellenlängen (rot-)verschoben werden. Für Heizleistungen über 14 mW bleibt die Anzahl von 8 Intensitätsmaxima konstant mit der niederenergetischsten Emission bei 600 nm.

Aus diesen Beobachtungen lässt sich bereits qualitativ schließen, dass in dieser Konfiguration bei 10 mW Heizlaserleistung die kritische Temperatur des Polymers im Resonator erreicht wird, und durch die Erhöhung des Brechungsindex der optische Weg entlang der Resonatorachse zunimmt, was die Abschneidewellenlänge rot verschiebt. Aus den Spektren lassen sich Falltiefe und Abstand benachbarter Energieniveaus ermitteln, welche in Abbildung 3.8 dargestellt sind.

¹ Dazu wird das Licht eines Helium-Neon-Lasers durch den Mikroresonator geführt. Aufgrund des gekrümmten Spiegels entstehen Interferenzringe, deren Position mit einer Kamera detektiert und über eine Software die Abweichung von der Sollposition bestimmt wird. Daraus ergibt sich ein Fehlersignal, dem entsprechend über einen am Spiegelhalter angebrachten Piezokristall die Spiegelposition und damit die Resonatorlänge korrigiert wird.

² Die Leistung des Heizlaserstrahls wird mit einem AOM periodisch gepulst (0.3 ms an, 8.7 ms aus). Am Ende dieses Abschnitts wird noch gezeigt, dass ein gepulstes Erzeugen eines einzelnen Fallenpotentials vorteilhaft für die Erzeugung komplexer Potentialstrukturen ist.

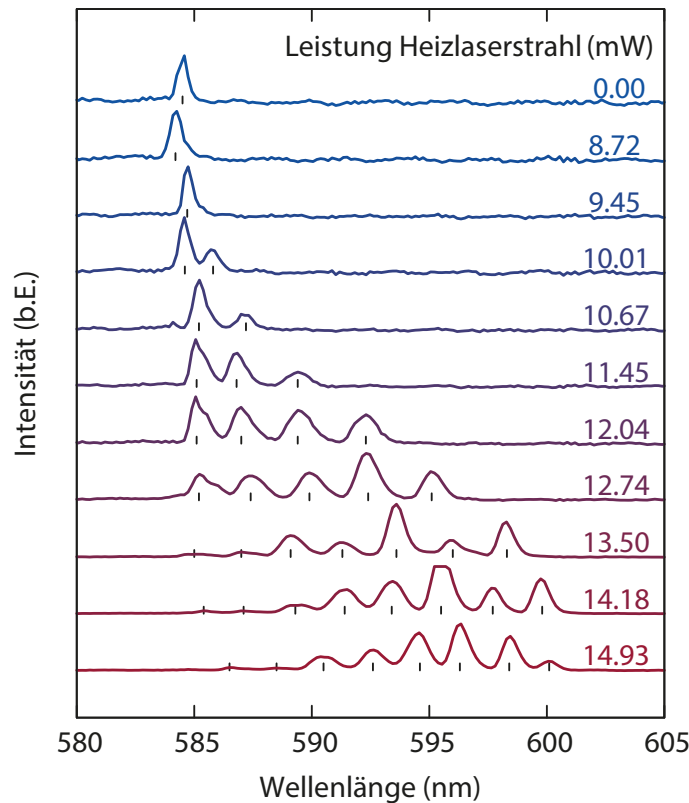


Abbildung 3.7 | Spektrale Verteilung des transmittierten Lichts für variierende Leistung des fokussierten Heizlaserstrahls – Die Spektren wurden zur besseren Sichtbarkeit vertikal verschoben (Oben das Spektrum bei ausgeschaltetem Heizlaser und nach unten zunehmende Heizlaserleistung). Alle beobachteten Intensitätsmaxima der Energieniveaus sind mit einem vertikalen Strich markiert.

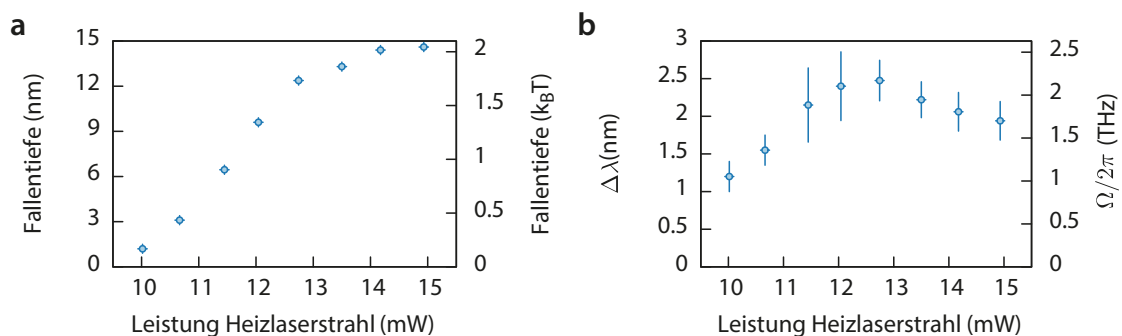


Abbildung 3.8 | Extrahierte Falltiefe und energetischer Abstand benachbarter Niveaus – **a**, Aus den Spektren in Abbildung 3.7, wird die induzierte Falltiefe extrahiert. Diese ergibt sich als Differenz der beobachteten Abschneidewellenlänge λ_{\max} und der ursprünglichen Abschneidewellenlänge λ_c des Mikroresonators ohne Heizlaser. **b**, Mittlerer spektraler Abstand benachbarter Energieniveaus. Die Fehlerbalken setzen sich aus Ableseunsicherheit und Standardabweichung der spektralen Abstände zusammen.

In Abbildung 3.8a lässt sich eine Zunahme der Fallentiefe oberhalb einer kritischen Heizleistung beobachten, bevor sich ein Sättigungsverhalten bei einer Fallentiefe von rund $2 k_B T$ mit $T = 305$ K einstellt. Ein anderes Verhalten zeigt sich bei den spektralen Abständen benachbarter Energieniveaus, wie in Abbildung 3.8b dargestellt ist. Hier wird zunächst eine Zunahme des mittleren spektralen Abstands beobachtet, welcher dann mit Eintreten der Sättigung in der Fallentiefe jedoch wieder abnimmt, was sich mit einer räumlichen Verbreiterung des Fallenpotentials erklären lässt. Der Energieabstand benachbarter Niveaus beträgt $\hbar\Omega = h \times (1.1 - 2.2)$ THz.

Für ein umfassenderes Bild der Fallenparameter und des Sättigungsverhaltens wird eine numerische Simulation der Temperaturverteilung im Mikroresonator durchgeführt. Die simulierte Geometrie ist in Abbildung 3.9a schematisch dargestellt. Die Dicke des Farbstofffilms zwischen den Spiegeln beträgt $0.5 \mu\text{m}$. Die Abbildungen 3.9b,c zeigen stationäre Temperaturverteilungen für (kontinuierliche) Heizlaserleistungen $P = 1.8$ mW (b) und $P = 1.9$ mW (c), die mit einer kommerziellen Simulationssoftware (Comsol Multiphysics Version 3.43) berechnet wurden. Vereinfachend für die Simulation wird dabei die Polymer-Farbstofflösung durch die Materialeigenschaften des Lösungsmittels (Wasser) modelliert und die dielektrischen Schichten zu einem räumlich homogenen Material mit gemittelten Eigenschaften von SiO_2 und Ta_2O_5 zusammengefasst. Die verwendeten Materialkonstanten sind Ref. [110] entnommen. Als Heizquelle dient analog zum Experiment ein auf $2 \mu\text{m}$ (FWHM) fokussierter Laserstrahl, welcher von der 30 nm-dicken Siliziumschicht (Longitudinale Position $z = 0$) zu 30% absorbiert wird. Die Ausgangstemperatur des Systems liegt bei Raumtemperatur ($T = 300$ K). Oberhalb der kritischen Temperatur $T_c = 305.15$ K steigt der Brechungsindex durch den Polymer Phasenübergang innerhalb einer Temperaturbreite $\Delta T = 0.2$ K von $n \approx 1.35$ auf $n \approx 1.46$ an. Der Bereich oberhalb der kritischen Temperatur in der Lösung ist in den Abbildungen 3.9b,c hell schattiert dargestellt. Die mittlere Änderung des Brechungsindex, entlang der transversalen Position kann über die Beziehung

$$\Delta E = \frac{m_{\text{Ph}} c^2}{n_0^2} \cdot \Delta n = \frac{2\pi \hbar q_{\text{Lösung}} c}{q \lambda_c n_0} \cdot \Delta n \quad (3.2)$$

in eine Fallenpotentialtiefe umgerechnet werden. Hierbei muss berücksichtigt werden, dass $q_0 = 4.7$ -Halbwellen des Lichts in die Bragg-Schichten eindringen [26], die Brechungsindexänderung aber nur innerhalb der Polymer-Farbstofflösung auftritt, d.h. über effektiv $q_{\text{Lösung}} = q - q_0 = 1.3$ -Halbwellen. Die sich aus den Temperaturverteilungen ergebenden Potentiale sind in Abbildung 3.9d,e aufgetragen und veranschaulichen zwei unterschiedliche Potentialformen: Die Rechnungen legen nahe, dass erstens in guter Näherung harmonische Fallenpotentiale erzeugt werden können (Abbildung 3.9d). Dabei liegt die numerisch bestimmte Potentialtiefe von $1.5 k_B T$ innerhalb des Bereichs der experimentell erzeugten Fallenparameter. Die Fallenfrequenz $\Omega/2\pi = 3.5$ THz liegt jedoch signifikant über den gemessenen Werten. Eine mögliche Ursache ist, dass in der Simulation kein Massetransport der Polymermoleküle berücksichtigt wird. Die Messwerte deuten an, dass der transversale Verlauf der Brechungsindexänderung im Mikroresonator auf einer größeren Breite stattfindet, als auf das Temperaturprofil zurückzuführen ist, und folglich im Experiment kleinere Fallenfrequenzen realisiert werden. Zweitens zeigen die Rechnungen bei höheren Heizlaserleistungen Potentiale die unten abgeflacht

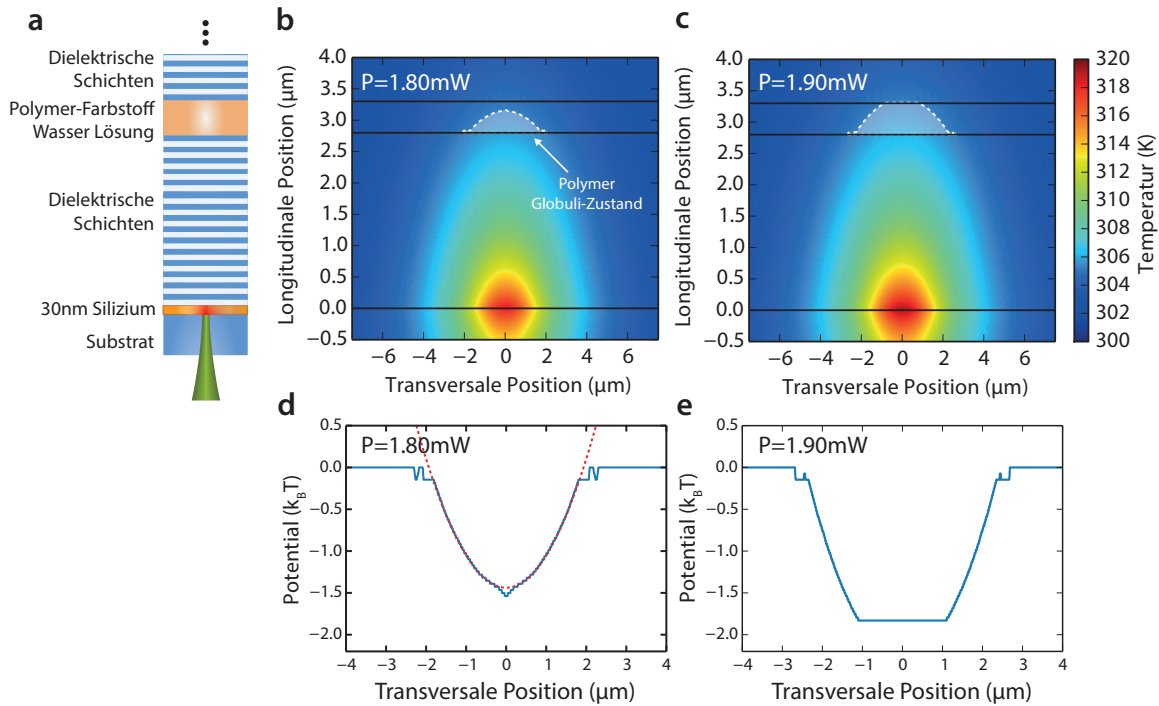


Abbildung 3.9 | Numerische Simulation der Temperaturverteilung im Mikroresonator – **a**, Schematische Darstellung der simulierten Geometrie entlang der z-Achse (Longitudinale Position). Die mit Laserlicht bestrahlte Siliziumschicht dient als Heizquelle. Das Problem wird radial-symmetrisch entlang der z-Achse gelöst. **b,c**, Stationäre Simulationsergebnisse der Temperaturverteilung. Die Polymer-Farbstofflösung befindet sich zwischen $2.8\ \mu\text{m}$ und $3.3\ \mu\text{m}$ entlang der z-Achse. Die Bilder zeigen die Temperaturverteilung für Laserleistungen $1.80\ \text{mW}$ (**b**) und $1.90\ \text{mW}$ (**c**) (man beachte die unterschiedliche Skalierung der longitudinalen und transversalen Achse). Dabei sind die Regionen mit Temperaturen oberhalb der kritischen Temperatur des Polymer Phasenübergangs in der Lösung markiert (hell schattierte Flächen mit weiß gestrichelten Konturen). Die Verteilungen zeigen nur einen Ausschnitt der gesamten simulierten Geometrie. **d,e**, Aus den Temperaturverteilungen berechnete Fallenpotentiale (durchgezogene Linie) und angepasstes harmonisches Fallenpotential (gestrichelte Linie).

sind (Abbildung 3.9e), also im Zentrum deutlich von einem harmonischen Potential abweichen. Dies liegt daran, dass die kritische Temperatur des Polymerphasenübergangs an diesen Stellen auf ganze Länge des Resonators erreicht ist und dort die maximale Brechungsindexänderung $\Delta n = 0.11$ vorliegt. Dies erklärt zum einen das beobachtete Sättigungsverhalten der Fallentiefe mit steigender Heizlaserleistung (Abbildung 3.8a) und gleichzeitig die Abnahme des Energieabstands benachbarter Niveaus, da die räumliche Ausdehnung des Potentials mit Erreichen der Sättigung zunimmt. Die weiteren Experimente in dieser Arbeit werden ausschließlich bei ungesättigten Fallentiefen (linearer Bereich) durchgeführt, in denen das Fallenpotential in guter Näherung harmonisch ist.

3.3.2 Dynamik des thermooptischen Phasenübergangs

Als nächste Eigenschaft soll die Zeitskala des Polymer-Phasenübergangs im Mikroresonator experimentell untersucht werden. Es stellt sich die Frage, wie schnell sich die Brechungsindexänderung und damit das Fallenpotential aufbaut bzw. relaxiert, sobald der Heizlaser an- bzw. ausgeschaltet wird. Für die Messung wird die Leistung des Heizlaserstrahls so gewählt, dass sich im stationären Fall ein Potential nahe $\Delta E = 1.1 k_B T$ mit Fallenfrequenz $\Omega/2\pi = 1.8$ THz einstellt ($q = 7$, $\lambda_c = 598$ nm). Die Siliziumschicht wird jede Millisekunde für $600 \mu\text{s}$ geheizt und bei jedem zehnten Heizzyklus wird die Polymer-Farbstofflösung für $1 \mu\text{s}$ gepumpt. Während des Pumpulses wird die Fluoreszenz aus dem induzierten Fallenpotential über ein Gitter spektral aufgespalten und auf einer ICCD-Kamera (eng.: *Intensified-CCD*, Typ: OrcaFlash 4.0/C9546-02, Firma *Hamamatsu*) energieaufgelöst detektiert (Auflösung $\Delta\nu = 60$ GHz, freier Spektralbereich: 15 nm), sodass jede 10 ms die niedrigste Energie und damit die Potentialtiefe gemessen werden kann. Die Abfolge ist schematisch in Abbildung 3.10a dargestellt. Die Messung für die Relaxation des Fallenpotentials erfolgt analog: Zunächst wird mit dem Heizlaser ein stationäres Potential erzeugt. Dann wird der Heizlaser ausgeschaltet und wie zuvor werden jede 10 ms die Farbstoffmoleküle angeregt und mit dem Gitterspektrometer die niedrigste Energie der Emission bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.10b aufgetragen. Aufbau und Relaxation stellen sich mit den Zeitkonstanten $\tau_{\text{Aufbau}} = (0.80 \pm 0.02)$ s bzw. $\tau_{\text{Relaxation}} = (0.35 \pm 0.02)$ s (10 – 90 %) ein. Dies zeigt, dass die Dynamik nicht allein durch Wärmeleitung verursacht ist, bei der die Zeitkonstanten für Abkühlung und Aufheizen identisch sind, die Brechungsindexänderung durch das Polymer jedoch einen deutlichen Unterschied zwischen beiden Prozessen aufweist. Der Phasenübergang wird zwar durch die Temperatur ausgelöst, die Brechungsindexänderung erfolgt jedoch auf molekularer Ebene durch die Änderung der Knäuel-, bzw. Globulidichte der Polymerketten, was mit Molekültransport in der Lösung einhergeht. Ein solcher Effekt wurde bislang nur in makroskopischen Volumina von NIPAM Lösung gemessen [85]. Hier zeigt sich zwar eine Aufspaltung der Zeiten, jedoch ist die Aufbauzeit stets geringer als die Relaxationszeit. Ein direkter Vergleich ist jedoch schwierig, da der Mikroresonator mit seinem sehr geringen Spiegelabstand eine besondere (quasi zweidimensionale) Geometrie darstellt. Abschließend kann festgehalten werden, dass sich der Brechungsindex auf Zeitskalen von 0.4 – 0.8 s ändert. Insbesondere erlaubt dies, mit nur einem einzelnen Heizlaserstrahl quasistatische Potentialstrukturen zu erzeugen, solange man diesen nur ausreichend schnell periodisch über die Siliziumschicht bewegt, wie im nächsten Abschnitt genauer erläutert wird.

3.3.3 Erzeugung variabler Potentialstrukturen

Die Erkenntnisse aus den beiden vorangegangenen Abschnitten werden nun kombiniert, um Potentialstrukturen über ein einzelnes harmonisches Fallenpotential hinaus im Mikroresonator zu erzeugen. Da sich der Polymerphasenübergang, und damit die Brechungsindexänderung, auf einer Zeitskala von mehreren 100 ms abspielt, können Potentialstrukturen durch einen sich rasch über die Siliziumschicht bewegenden Heizlaserstrahl erzeugt werden (Lasertyp: Verdi G12, Firma *Coherent*). Dieser trägt Wärme entsprechend eines programmierten Musters ein wäh-

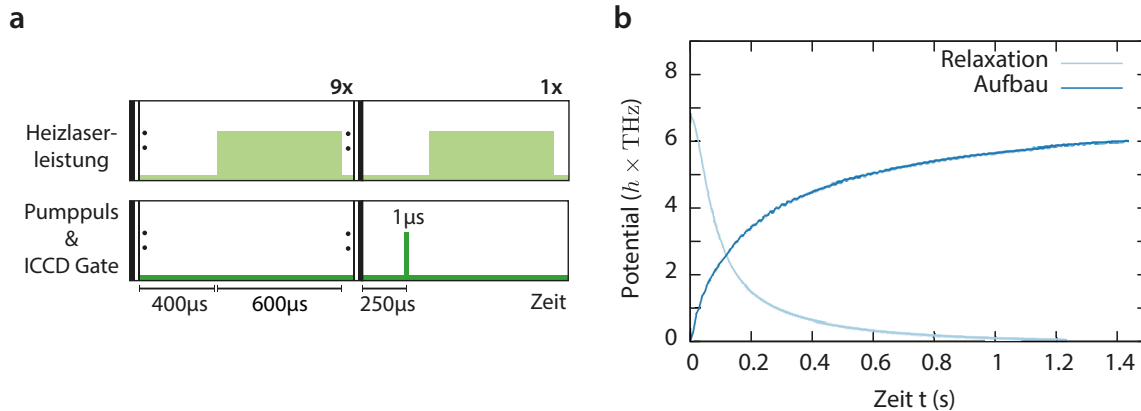


Abbildung 3.10 | Dynamik der Brechungsindexänderung im Mikroresonator – **a**, Schematische Darstellung des Zyklus von Heizlaser, Pumpimpuls und ICCD-Kamera Aufnahmezeitfenster (engl.: Gate). Das Heizen der Siliziumschicht erfolgt periodisch mit einer Wiederholrate von 1 kHz. Die Messung der Brechungsindexänderung, und damit des Fallenpotentials, erfolgt dann bei jedem zehnten Zyklus über das Pumpen der Polymer-Farbstofflösung und spektralen Bestimmung des niedrigsten Energiezustands. **b**, Fallenpotentialtiefe als Funktion der Zeit während des Aufbaus bzw. der Relaxation.

rend er fortlaufend periodisch die Absorptionsschicht abtastet. Ist die Zeit für eine Periode deutlich kleiner als die Dynamik der Polymerphasenübergangs, stellt sich ein quasistatisches Brechungsindexmuster ein. Zum Bewegen des Laserstrahls wird der in Abbildung 3.11a gezeigte Aufbau verwendet, bei dem der Winkel des Heizlaserstrahls mittels eines Galvo-Scanners (Firma *Thorlabs*, Typ GVS002) zweidimensional zeitlich moduliert und über eine weitere Linse in eine Änderung der Position in der Ebene der Siliziumschicht umgewandelt wird. Zur variablen Steuerung wird eine eigens entwickelte Software genutzt, wobei diese eine vollständige Synchronisation zwischen Heizlaserleistung, Galvo-Scanner Position, Pumplaser und Kameras erlaubt. Der Mikroresonator wird unter rund 45° zur optischen Achse mit zeitlich moduliertem Laserlicht gepumpt (1 μs -Pulse, Typ: Verdi G12 Laser, Firma *Coherent*). Die Emission aus realisierten Potentialstrukturen ist beispielhaft in Abbildung 3.11b-d dargestellt, wobei sowohl periodische als auch nicht-periodische Geometrien induziert werden können. Es sei darauf hingewiesen, dass es sich bei den gezeigten Strukturen um eine reine Machbarkeitsstudie handelt und daher keine gleichmäßige Verteilung des Photonengases auf die verschiedenen Gitterplätze maßgebend war. Die beobachtbaren Intensitätsunterschiede ergeben sich aus unterschiedlichen Potentialtiefen der Gitterplätze und einem inhomogenen Intensitätsmuster des Pumpstrahls im Mikroresonator, wobei beide Effekte bei den gezeigten Messungen nicht korrigiert werden. Grundsätzlich können mit der Methode auch Strukturen über Punktmuster hinaus erzeugt werden, etwa linienförmige Lichtleiter, welche jedoch in dieser Arbeit nicht untersucht werden.

Zum Abschluss dieses Kapitels kann zusammengefasst werden, dass sich die Polymer-Farbstofflösung dazu eignet (Mikro-)Fallenpotentiale über einen Knäuel-Globuli-Phasenübergang des thermosensitiven Polymers NIPAM im Mikroresonator zu realisieren. Aufgrund der beobachteten langsamen Brechungsindexänderung kann ein einzelner Laserstrahl zum variablen

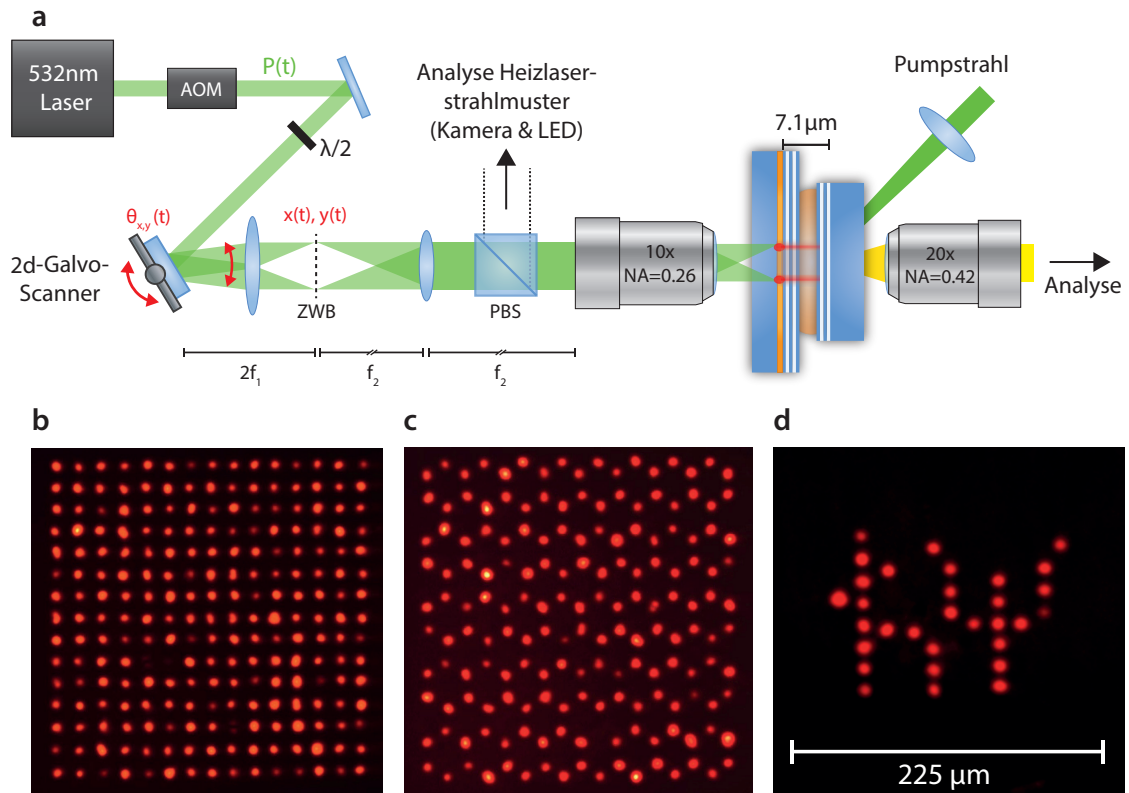


Abbildung 3.11 | Apparativer Aufbau zur Erzeugung variabler Potentialstrukturen und Machbarkeitsstudie räumlich ausgedehnter Potentiale – **a**, Die Leistung des Heizlaserstrahls $P(t)$ wird akustooptisch (AOM) zeitlich moduliert, wobei gleichzeitig der Winkel $\theta_{x,y}(t)$ des Laserstrahls mit einem zweidimensionalen Galvo-Scanner variiert wird. Die Winkeländerung wird über eine Sammellinse ($f_1 = 5$ cm) in eine Positionsänderung $x(t), y(t)$ in der Zwischenbildebene (ZWB) übersetzt, welche mit einem Konfokalmikroskop ($f_{\text{Objektiv}} = 2$ cm, $f_{\text{Tubus}} = f_2 = 30$ cm) auf die Siliziumschicht verkleinert abgebildet wird. Das zurückreflektierte Licht wird über einen polarisierenden Strahlteilerwürfel auf eine Kamera geführt, was eine Überprüfung des Intensitätsmuster erlaubt (Analyse Heizlaserstrahlmuster). Die transmittierte Fluoreszenz wird über ein Mikroskopobjektiv (Firma Mitutoyo, Modell M Plan Apo 20x) eingefangen und mittels einer weiteren Kamera analysiert. **b-d**, Farbgetreue Kameraaufnahmen der Emission des Mikroresonators für das Photonengas in einem induzierten quadratischen Gitter (**b**), hexagonalen Gitter (**c**) und einer nicht-periodischen Struktur, welche die Buchstaben „ $h\psi$ “ zeigt, (**d**) dargestellt.

Heizen einer räumlich ausgedehnten Potentialstruktur genutzt werden. Dazu wird der fokussierte Laserstrahl zeitabhängig sowohl in Ort als auch Leistung periodisch über die Siliziumschicht geführt. Diese Methode wird in Kapitel 5 dazu genutzt, thermisches Licht und Bose-Einstein-Kondensation in einem einzelnen thermooptisch induzierten Mikropotential zu untersuchen, und in Kapitel 6 um gekoppelte Fallenpotentiale zu realisieren. Zuvor wird jedoch eine weitere Methode zur Erzeugung von statischen Fallenpotentialen im Mikroresonator über Delamination vorgestellt.

Mikrostrukturierung von Spiegeloberflächen mittels laser-induzierter Delamination

In diesem Kapitel wird eine Methode zur Erzeugung von statischen Fallenpotentialen im Hochfinesse Mikroresonator vorgestellt. Die Technik basiert auf Delamination (vgl. Abschnitt 2.5), wodurch die Bragg-Schichten eines hochreflektiven Spiegels an verschiedenen Stellen gezielt angehoben werden. Dadurch verringert sich dort der optische Weg im Resonator und es entstehen repulsive Potentialbarrieren, anders als bei der zuvor vorgestellten Methode mit dem thermosensitiven Polymer NIPAM, bei der der optische Weg erhöht wurde und sich attraktive Potentiale ausbilden. Ein weiterer Unterschied der Methoden ist, dass die Delamination irreversibel ist, d.h. einmal strukturierte Spiegeloberflächen ihre Form erhalten. Dies hat den Vorteil, dass die mikrostrukturierten Spiegel bereits vor dem Einbau in den Mikroresonator charakterisiert werden können, sodass sich das Fallenpotential abschätzen lässt. Zunächst wird in diesem Kapitel der apparative Aufbau und die Methode zur Oberflächenstrukturierung bzw. zur Bestimmung der Oberflächentopografie der Spiegel vorgestellt. Danach wird die Mikrostrukturierung in Bezug auf beeinflussende Parameter wie Heizleistung oder -zeit untersucht und so die Grenzen des Verfahrens bestimmt. Abschließend werden die erzielten Strukturen in ihrer Qualität, welche durch die Oberflächenrauigkeit charakterisiert ist, mit Spiegeln diverser kommerzieller Hersteller verglichen.

4.1 Methode zur Erzeugung und Charakterisierung der Oberflächenstrukturen

Im diesem Abschnitt wird zunächst der apparative Aufbau zur permanenten Mikrostrukturierung einer Spiegeloberfläche vorgestellt und anschließend ein interferometrisches Verfahren, um die erzeugten Strukturen in ihrer Topographie zu charakterisieren.

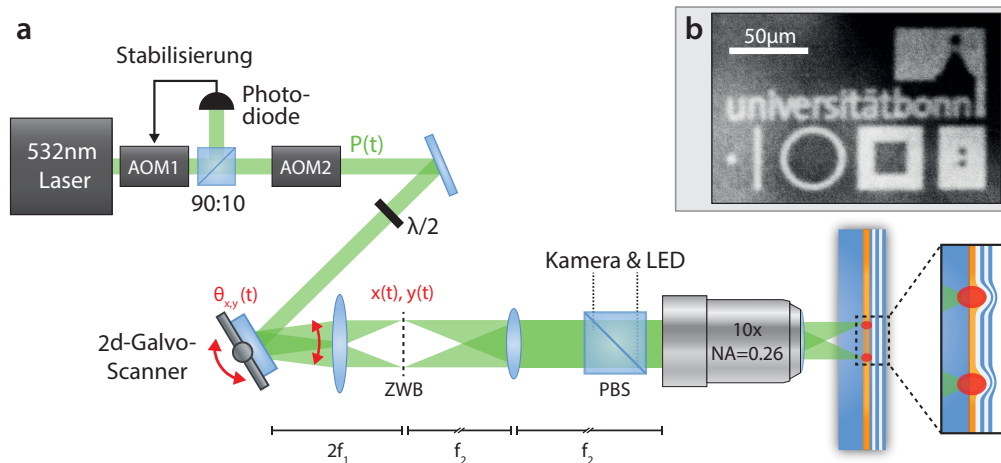


Abbildung 4.1 | Apparativer Aufbau zur Delamination der Spiegelfläche – **a**, Die Leistung des Heizlaserstrahls wird über eine Stabilisierung, bestehend aus AOM (AOM1), Photodiode und Proportional-Integral-Regler, konstant gehalten und anschließend über einen weiteren AOM (AOM2) zeitlich moduliert. Der weitere Aufbau ist identisch mit dem in Abbildung 3.11 gezeigten. **b**, Mikroskopaufnahme der Spiegelfläche nach der Delamination. Das Muster zeigt das Universitätslogo, darunter von links nach rechts einen Punkt, eine vertikale Linie, einen Kreis, einen Kasten und eine Doppelmuldenstruktur. Der Kontrast wurde zur besseren Sichtbarkeit erhöht.

4.1.1 Apparativer Aufbau zur Mikrostrukturierung

Der verwendete Aufbau ist in Abbildung 4.1a schematisch dargestellt und ist konzeptionell identisch mit dem Aufbau zur Erzeugung der Potentiale durch das thermosensitive Polymer: Der fokussierte Heizlaserstrahl ($w_{\text{FWHM}} = 1.8 \mu\text{m}$) wird mit einem Galvo-Scanner in zwei Dimensionen über die Siliziumschicht des Spiegels bewegt und trägt dort Wärme ein (vgl. Abschnitt 3.3.3). Einzig eine Stabilisierung der Intensität des Heizlaserstrahls, hier vom Typ Millennia ($\lambda = 532 \text{ nm}$, Firma *Spectra Physics*) wurde ergänzt. Über einen 90:10 Strahlteilerwürfel wird ein Teil des von AOM1 gebeugten Lichts auf einer Photodiode detektiert und damit die Laserleistung über einen Proportional-Integral-Regler (Typ Lockbox 5, *IAP Bonn*) und den AOM auf relative Abweichungen geringer als 10^{-3} stabilisiert. Ausgehend davon wird mit einer eigens entwickelten Steuerungssoftware Position und Leistung des Heizlaserstrahls auf der Siliziumschicht durch den Galvo-Scanner und einen weiteren AOM (AOM2) variiert. Die Leistung des Heizlasers an der Siliziumschicht kann auf bis zu 100 mW eingestellt werden. Bei Heizlaserstrahlleistungen über 25 mW wird der Spiegel gemäß des mit dem Galvo-Scanner erzeugten Intensitätsmuster delaminiert, was in Mikroskopaufnahmen mit stark erhöhtem Kontrast sichtbar wird (Abbildung 4.1b). Hierzu wurden vorläufige Messungen im Rahmen der Masterarbeit von Dario Bashir-Elahi durchgeführt [111].

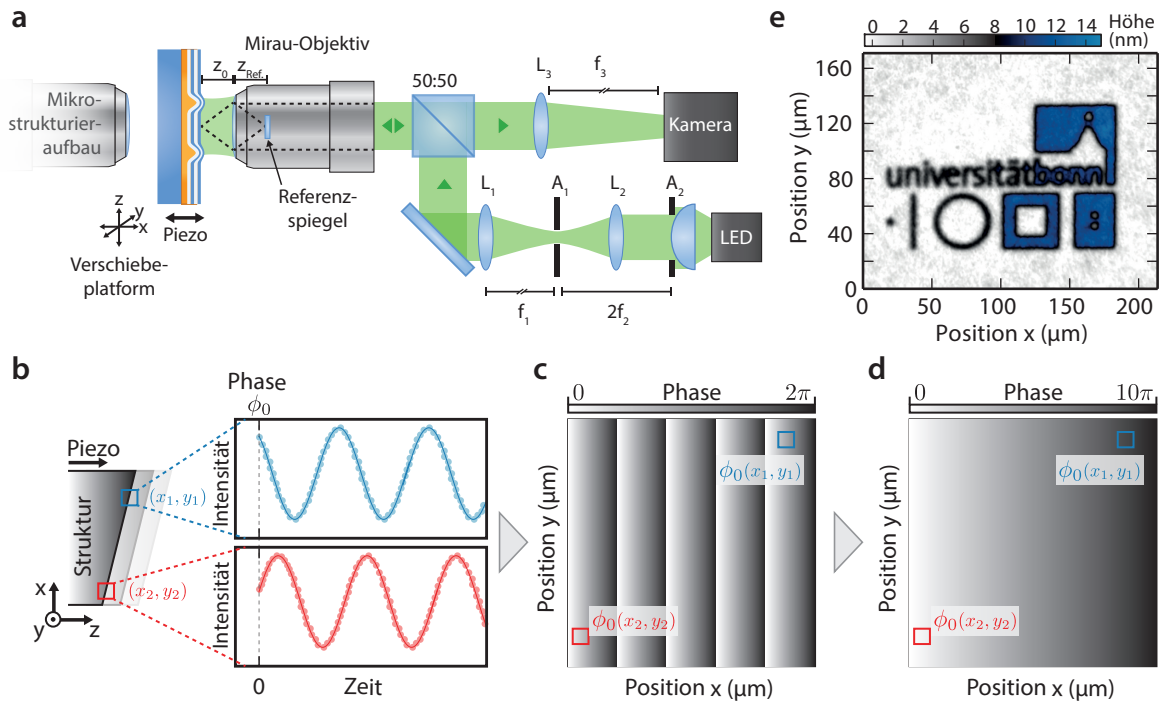


Abbildung 4.2 | Apparativer Aufbau des Mirau-Interferometers und Messverfahren – **a**, Konfokaler Mikroskopaufbau aus Objektiv, Tubuslinse (L_3 , $f_3 = 30$ cm) und LED zur Beleuchtung (Köhlerbeleuchtung). Bei dem Objektiv handelt es sich um ein Mirau-Objektiv mit integriertem Referenzspiegel. Das gesammelte Licht der grünen LED wird über die Linsen L_1 ($f_1 = 12.5$ cm) und L_2 ($f_2 = 10$ cm) kollimiert. Die Aperturblenden dienen zum Einstellen der Helligkeit (A_2) und ausgeleuchteten Fläche des Spiegels (A_1). **b**, Für die Mirau-Aufnahme wird die zu untersuchende Struktur (hier beispielhaft ein Keil) mittels des Piezokristalls entlang der z -Achse verschoben und mit der Kamera währenddessen für alle Bildpunkte (x, y) die Intensitäten aufgenommen. Daraus ergibt sich eine Helligkeitsabfolge an die ein Sinus angepasst und so für jeden Bildpunkt eine Phase $\phi_0(x, y)$ bestimmt wird (**c**). Diese Phasenkarte der Struktur kann Unstetigkeiten enthalten, welche durch „phase-unwrapping“ aufgelöst werden und so der Phasenbereich entsprechend erweitert wird (**d**). **e**, Eine topographische Karte der Oberfläche entsteht durch die Umrechnung der Phasenwerte in Höhen. Dargestellt ist die Mirau-Aufnahme der Beispielstruktur aus Abbildung 4.1b.

4.1.2 Mirau-Interferometer

Im nächsten Schritt werden die erzeugten Strukturen genauer untersucht. Bei Delamination kommt es zu einer Auswölbung, d.h. Höhenänderung der Spiegeloberfläche, die quantifiziert werden soll. Um topografische Aufnahmen der mikrostrukturierten Spiegeloberfläche zu erstellen, bietet sich ein interferometrisches Verfahren an. In dieser Arbeit und teilweise im Rahmen der Masterarbeit von Christian Schilz wurde dazu ein *Mirau-Interferometer* aufgebaut [112, 113]. Ein solches ist schematisch in Abbildung 4.2a dargestellt. Es besteht aus einer Beleuchtungsquelle geringer Kohärenzlänge, in diesem Fall einer grünen LED, einer Kamera zur Bildaufnahme (DCC1545M, Firma *Thorlabs*) und einem Mirau-Mikroskopobjektiv (CF Plan 20x DI, Firma *Nikon*). Letzteres hat die Besonderheit, dass dessen Frontfacette als Strahlteiler fungiert und die

Hälfte des LED-Lichts auf einen Referenzspiegel im inneren des Objektivs zurückgeworfen wird. Dies bildet den Referenzarm des Interferometers. Das durch die Frontfacette transmittierte Licht wird dann von der mikrostrukturierten Spiegeloberfläche zurückreflektiert und mit dem Licht des Referenzarms überlagert. Damit auf der Kamera ein Interferenzmuster trotz der geringen Kohärenzlänge der LED sichtbar wird, sind die Weglängen beider Interferometerarme bis auf wenige Wellenzüge identisch gewählt ($z_0 \approx z_{\text{Ref.}}$). Eine Topografie der Spiegeloberfläche wird nun erstellt, indem der zu untersuchende Spiegel mit einem Piezokristall langsam um rund einen Mikrometer verschoben wird (Zeitskala \sim Sekunden) und währenddessen mit der Kamera die Interferenzbilder aufgenommen werden. Anschließend wird für jeden Bildpunkt der Kamera ($x = 1 - 1280, y = 1 - 1024$) eine Helligkeitsabfolge aus den gespeicherten Aufnahmen erstellt (typischerweise 100 Interferenzbilder), wie in Abbildung 4.2b schematisch dargestellt ist. Durch das Anpassen einer Funktion $\sim \sin(\omega t + \phi_0)$ mit Kreisfrequenz ω , lässt sich daraus für jeden Bildpunkt eine Phase $\phi_0(x, y)$ ermitteln¹. Dies geschieht nun für alle Bildpunkte (x, y) der Kamera, sodass sich anschließend eine Phasenkarte erstellen lässt, bei der an jedem Ort des Kamerabildes die angepasste Phase eingetragen wird (vgl. Abbildung 4.2c). Hier kann es zu Phasensprüngen zwischen benachbarten Bildpunkten kommen, da die angepasste Phase auf den Bereich $0 - 2\pi$ beschränkt ist. Es wird ein Programmcode verwendet, welcher die Phasenunstetigkeiten auflöst (engl.: *phase-unwrapping*) und dazu den Bereich über $0 - 2\pi$ hinaus erweitert (Abbildung 4.2d) [115]. Anschließend können damit die Phasen $\phi_0(x, y)$ in Höhen $h(x, y)$ umgerechnet werden:

$$h(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\phi_0(x, y)}{2}, \quad (4.1)$$

wobei $\lambda = 530$ nm die zentrale Wellenlänge der LED bezeichnet. So entsteht eine topographische Karte des mikrostrukturierten Spiegels. Die Mirau-Aufnahme nach diesem Verfahren ist für die erzeugte Beispielstruktur aus Abbildung 4.1b in Abbildung 4.2e dargestellt. Hier ist der nicht-mikrostrukturierte Randbereich als Referenzhöhe $h = 0$ gesetzt. Dies ist nötig, da beim *phase-unwrapping* der Phasenbereich mathematisch erweitert wird, ohne dass es einen zuvor definierten Bezugspunkt (\tilde{x}, \tilde{y}) mit $\phi_0(\tilde{x}, \tilde{y}) \equiv 0$ gibt².

¹ In anderen Arbeiten wird oft statt einer Funktionsanpassung die Phase aus nur wenigen Interferenzaufnahmen ermittelt. Hier spricht man von *N*-Bild Methoden, wobei *N* die Anzahl an nötigen Interferenzbilder bezeichnet. Oft wird ein Algorithmus mit 6 Interferenzbildern verwendet, die bei zuvor kalibrierten Phasen $\phi = (0, \pi/2, \pi, 2\pi/2, 2\pi, 5\pi/2)$ aufgenommen werden [114]. Eine detaillierte Übersicht über die Vor- und Nachteile jedes einzelnen Algorithmus ist zum Beispiel in Referenz [112] zu finden. Ein gemeinsamer Vorteil dieser Algorithmen ist, dass der nötige Rechenaufwand deutlich geringer als eine Funktionsanpassung für jeden einzelnen Bildpunkt ($1280 \times 1024 = 1.3 \times 10^6$) ist. Sie bieten jedoch im Vergleich eine verringerte Höhenauflösung.

² Die Referenzhöhe wird aus dem Bildrand bestimmt (typischerweise 50 Pixel-Breite). Durch das Anpassen einer Ebene an die Höhen in diesem Randbereich können außerdem Verkippungen des Spiegels bzgl. des Mirau-Objektivs über das ganze Bild ausgeglichen werden.

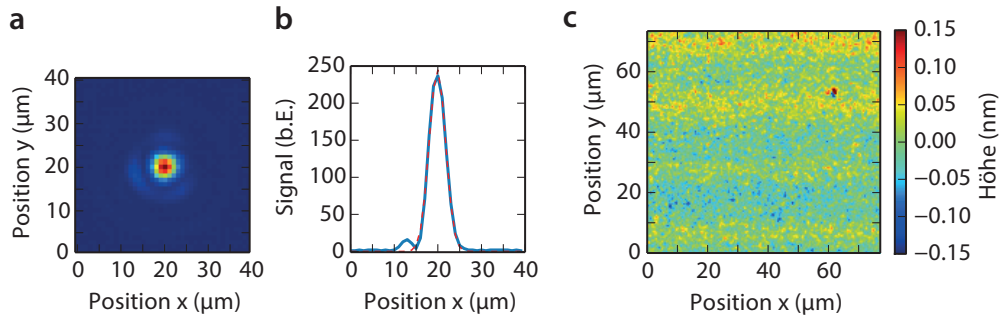


Abbildung 4.3 | Vermessung der Auflösung des Mirau-Interferometers – **a**, Mit SNOM-Faser vermessene Punktspreizfunktion des optischen Systems (laterale Auflösung). **b**, Horizontaler Schnitt durch die gemessene Intensitätsverteilung der Punktspreizfunktion (durchgezogene Linie) und daran angepasste Gauß-Funktion mit $\Delta w_{\text{FWHM}} = 0.74 \mu\text{m}$ (gestrichelte Linie). **c**, Ergebnis der Subtraktion zweier Oberflächenaufnahmen der selben Spiegelfläche. Die verbleibende Höhenstruktur entspricht dem Rauschpegel des Mirau-Interferometers, welcher die Höhenauflösung begrenzt. Der sichtbare Punkt in der oberen rechten Bildhälfte wird durch ein Staubkorn auf der Spiegeloberfläche verursacht.

Auflösung des Mirau-Interferometers

Daran anknüpfend stellt sich die Frage nach der Genauigkeit, die bei der Charakterisierung einer Spiegeloberfläche mit dem Mirau-Interferometer erzielt wird, welche im Folgenden bestimmt wird. Hier muss zwischen der Lateral- und Höhenauflösung unterschieden werden: Erstere wird über die Punktspreizfunktion des optischen Systems limitiert welche in Abbildungen 4.3a,b aufgetragen ist. Die Punktspreizfunktion wird mit einer SNOM-Faser (engl.: *scanning nearfield optical microscope*) vermessen. Die Apertur der Faser beträgt rund 200 nm und stellt für das optische System eine Punktlichtquelle dar, sodass auf dem Kamerasensor die Punktspreizfunktion gemessen wird. Daraus lässt sich die laterale Auflösung zu $\Delta w_{\text{FWHM}} = 0.74 \mu\text{m}$ bestimmen. Beim Erstellen der Phasenkarte für die Mirau-Aufnahme kommt es durch die Unsicherheit $\Delta\phi_0(x, y)$ bei der Funktionsanpassung zu Rauschen zwischen benachbarten Bildpunkten unterhalb der lateralen Auflösung, da das Bild unter dieser digitalisiert ist. Anschließend wird die aus der Anpassung erstellte Phasenkarte mit der Punktspreizfunktion gefaltet. Dadurch kann dann durch die Digitalisierung hinzugeführtes Rauschen wieder geglättet werden.

Als nächstes wird die Höhenauflösung des Mirau-Interferometers bestimmt. Dazu wird eine topographische Karte der Spiegeloberfläche erstellt. Für den untersuchten Spiegel mit Siliziumschicht ergibt sich eine Oberflächenrauigkeit $\sigma_{\text{rms}} = 3.4 \text{ \AA}$ (quadratisches Mittel der Abweichungen, engl.: *root mean square* (RMS)) auf der untersuchten Fläche von $70 \mu\text{m} \times 70 \mu\text{m}$. Nun wird die Messung wiederholt und die beiden gemessenen Oberflächen subtrahiert. Das Ergebnis einer solchen Messung ist in Abbildung 4.3c aufgetragen. Das verbleibende Signal hat hier eine Standardabweichung von $\Delta\sigma_{\text{rms}} = 0.29 \text{ \AA}$, was die Höhenauflösung des Mirau-Interferometers begrenzt. Diese ist hauptsächlich durch ein verbleibendes Streifenmuster limitiert. Dabei handelt es sich um einen bekannten Effekt der durch Vibrationen zwischen Spiegel und Mirau-Objektiv während der Aufnahme entsteht, wenn eine Kamera mit einem rollenden Verschluss (engl.:

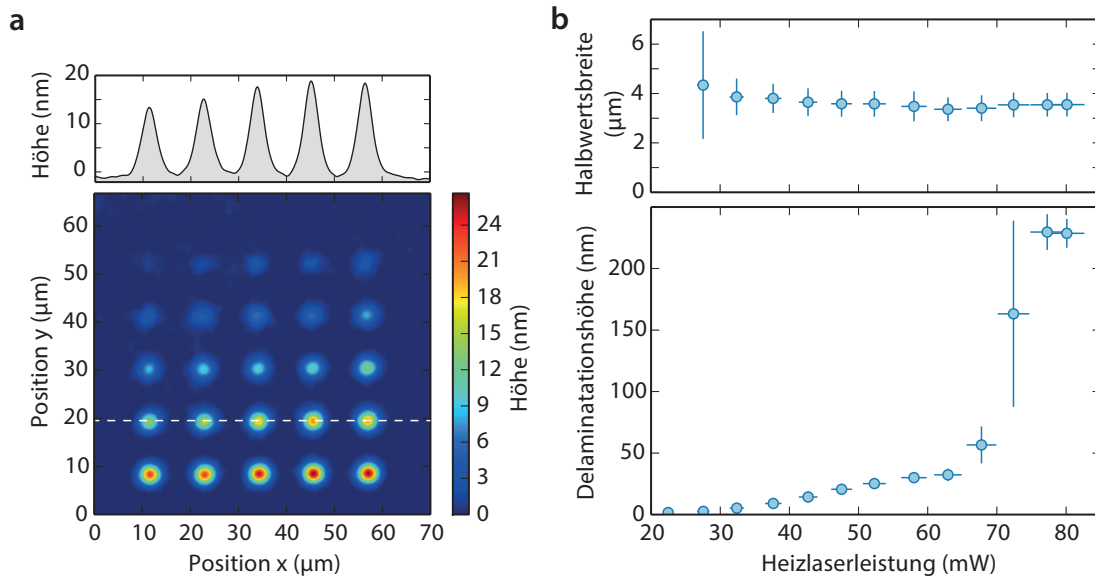


Abbildung 4.4 | Messung der Höhe delaminierter Punkte als Funktion der Heizlaserleistung – **a**, Beispielhafte Oberflächenmessung einer delaminierten Struktur bestehend aus 5×5 Punkten. Die Leistung des Heizlasers wurde von links oben nach rechts unten erhöht. Die obere Teilabbildung zeigt einen horizontalen Schnitt des Höhenprofils (gestrichelte Linie). **b**, Aufgetragen sind Höhe (unten) und Halbwertsbreite (oben) der delaminierten Punkte als Funktion der Heizlaserleistung.

rolling shutter) verwendet wird [112]. Durch verbesserte Vibrationsdämpfung und plane Ausrichtung des Spiegels zum Objektiv konnte in späteren Messungen die Amplitude des Streifenmusters verringert und dessen Periode erhöht werden. Dadurch wird die Höhenauflösung des Mirau-Interferometers auf $\Delta h = 0.1 \text{ \AA}$ verbessert. Diese Auflösung liegt deutlich unter der Oberflächenrauigkeit von superpolierten Spiegeln (typisch $\Delta h = 1 \text{ \AA}$) und ist daher ausreichend für die weiteren Untersuchungen.

4.2 Studie der erzeugten Mikrostrukturen

Im Folgenden wird der Mikrostrukturierungsprozess der Spiegeloberfläche quantifiziert, um Erkenntnis über die damit erzeugbaren Fallenpotentiale für den Mikroresonator zu gewinnen. Dabei wird zunächst der Einfluss der Heizlaserleistung und der Zeit die geheizt wird auf die Höhe und Breite von einzelnen delaminierten Punkten untersucht. Anschließend werden Punkte zu einzelnen Linien zusammengesetzt und delaminierte Fallenpotentiale vorgestellt.

Im ersten Schritt wird der Einfluss der Heizlaserleistung auf die Delaminationshöhe untersucht. Dazu werden mehrere Muster aus 5×5 Punkten delaminiert und mit dem Mirau-Interferometer charakterisiert, wie es beispielhaft in Abbildung 4.4a dargestellt ist. Ausgehend von links oben wurde die Laserleistung nach rechts unten zunehmend erhöht. An jeden dieser Punkte wird

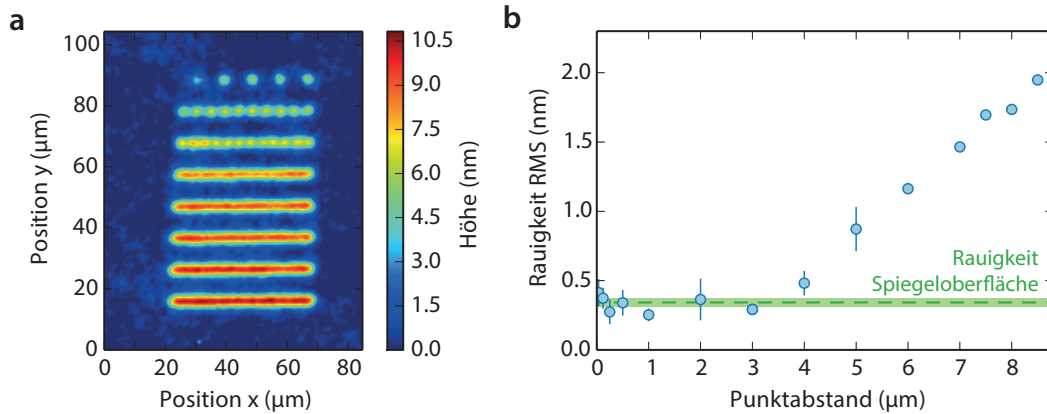


Abbildung 4.5 | Mikrostrukturierte Linien zusammengesetzt aus einzelnen Delaminationspunkten – **a**, Bei konstanter Leistung des Heizlasers werden entlang einer Linie mehrere Delaminationspunkte mit dem Galvo-Scanner angesteuert, mit zunehmender Punktdichte von oben nach unten. **b**, Untersuchte Rauigkeit entlang der mikrostrukturierten Linien. Für Punktabstände $\Delta d < 3 \mu\text{m}$ ist die beobachtete Rauigkeit durch die Rauigkeit der Spiegeloberfläche limitiert (gestrichelte Linie).

eine zweidimensionale Gauß-Funktion angepasst und darüber Höhe und Breite der Delamination bestimmt. Die zusammengefassten Ergebnisse von 100 untersuchten Punkten sind in Abbildung 4.4b dargestellt. Im unteren Teilbild ist die Delaminationshöhe als Funktion der Laserleistung aufgetragen. Unterhalb von $P \approx 25 \text{ mW}$ ist keine Delamination beobachtbar. Überschreitet man diese Schwelle wächst die Höhe mit der Laserleistung an, bis es oberhalb von $P \approx 65 \text{ mW}$ zu einem signifikanten Sprung in der Höhe kommt. Es ist davon auszugehen, dass hier die Schwelle für eine thermische Zerstörung der Bragg-Schichten erreicht ist, was mit einem starken Transmissionsanstieg von zuvor $T \sim 10^{-5}$ auf $T > 10^{-2}$ einhergeht, wie in der Masterarbeit von Dario Bashir-Elahi gezeigt wurde [111]. Im oberen Teilbild von Abbildung 4.4b ist die laterale Halbwertsbreite der Delamination aufgetragen, welche innerhalb der Fehlergrenzen unabhängig von der Laserleistung ($3.6 \pm 0.3 \mu\text{m}$) beträgt. Dieser Wert liegt signifikant über der Fokusgröße des Heizlasers ($w_{\text{FWHM}} = (1.8 \pm 0.2) \mu\text{m}$) und definiert damit die kleinste erzeugbare Breite, welche sich durch das neue Gleichgewicht von Druckspannung und Kohäsion beim Delaminationsprozess einstellt.

Als nächstes wird untersucht wie dicht Delaminationspunkte gesetzt werden müssen, dass daraus möglichst glatte, zusammenhängende Mikrostrukturen entstehen. Dazu werden Linien aus einer variierenden Anzahl an benachbarten Punkten geschrieben, wie beispielhaft in Abbildung 4.5a dargestellt ist. Die Anzahl von Punkten, die vom Galvo-Scanner angesteuert und anschließend über die Delaminationsschwelle geheizt werden, nimmt von oben nach unten zu. Die Oberflächenrauigkeit σ_{rms} wird entlang der Linie ermittelt und ist als Funktion des Punktabstandes für 64 untersuchte Linien in Abbildung 4.5b zusammengefasst dargestellt. Man beobachtet eine Abnahme der Oberflächenrauigkeit mit erhöhter Punktdichte (kleinerer Punktabstand) bis sich für Punktabstände $\Delta d < 3 \mu\text{m}$ eine minimale Oberflächenrauigkeit $\sigma_{\text{rms}} = (3.3 \pm 0.5) \text{ \AA}$ einstellt. Dieser Wert stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der weiter oben bestimmten Oberflächenrauigkeit des Spiegels vor der Delamination ($\sigma_{\text{rms}} = (3.4 \pm 0.1) \text{ \AA}$) überein. Das

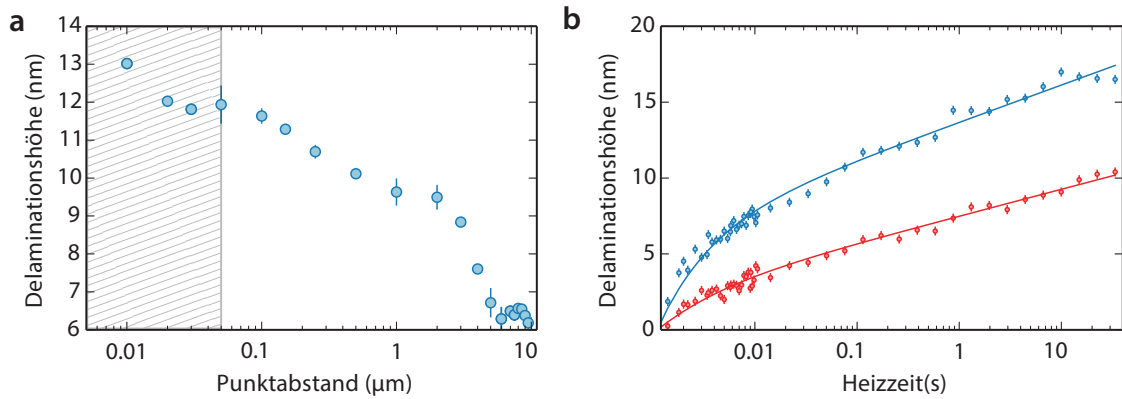


Abbildung 4.6 | Auswirkung von Punktabstand und Heizdauer auf die Delaminationshöhe – **a**, Delaminationshöhe als Funktion des vom Galvo-Scanner adressierten Punktabstands. Die schraffierte Fläche kennzeichnet den Bereich unterhalb der Positionsaufösung des Galvo-Scanners $\Delta x = 50 \text{ nm}$ ($\Delta\theta = 15 \mu\text{rad}$ spezifizierter Winkelaufösung). **b**, Delaminationshöhe eines einzelnen Punktes bei konstanter Heizlaserleistung $P = 40 \text{ mW}$ (rote Punkte) und $P = 50 \text{ mW}$ (blaue Punkte) als Funktion verschiedenen Heizdauern. Die Linien zeigen den empirisch ermittelten funktionalen Zusammenhang, welcher an die Datenpunkte angepasst wurde.

bedeutet, dass die Qualität der Mikrostrukturierung bei geeignetem Punktabstand mindestens so gut ist wie die Spiegeloberfläche selbst.

Bei weiterer Betrachtung von Abbildung 4.5a fällt auf, dass mit zunehmender Punktdichte auch die Höhe der Linien zunimmt. Quantitativ ist dieser Zusammenhang in Abbildung 4.6a aufgetragen. Eine mögliche Erklärung dafür lässt sich in der unterschiedlichen Dauer finden, die der Galvo-Scanner auf ein und der selben Fläche verweilt. Jeder Punkt auf der Siliziumschicht wird für $t = 10 \text{ ms}$ angesteuert und währenddessen mit konstanter Leistung des Heizlasers delaminiert. Bei Punktabständen kleiner der Fokusgröße führt das dazu, dass der Heizlaserstrahl länger Wärme in die den Strahlfokus überlappende Siliziumfläche einträgt. So ist es auch zu erklären, dass die Delaminationshöhe steigt, wenn der von der Software vorgegebene Punktabstand die tatsächliche Positionsaufösung des Galvo-Scanners unterschreitet, also für mehrere Zielpositionen auf der selben Position verweilt (siehe Abbildung 4.6a – schraffierte Fläche). Um diese mögliche Ursache zu überprüfen, wird eine Messung der Delaminationshöhe eines Punktes als Funktion der Heizdauer untersucht. Der Galvo-Scanner erzeugt wie zuvor 5×5 Punktmuster, mit konstanter Laserleistung aber unterschiedlichen Heizdauern. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.6b aufgetragen. Die Messung wird für Leistungen des Heizlasers $P = 40 \text{ mW}$ (rote Punkte) und $P = 50 \text{ mW}$ (blaue Punkte) durchgeführt. Empirisch kann die beobachtete Abhängigkeit mit dem Zusammenhang

$$h(t) \propto (P - P_{\text{Schw.}}) \cdot \left(1 - \frac{\alpha}{t}\right) \cdot \left(\log\left(\frac{t}{\beta}\right)\right), \quad (4.2)$$

beschrieben werden, wobei $P_{\text{Schw.}} \approx 25 \text{ mW}$ die Leistung an der Delaminationsschwelle bezeichnet, und es sich bei α, β um Anpassungskonstanten handelt. Im Verlauf lassen sich zwei Bereiche identifizieren: Die Delaminationshöhe steigt zunächst bis rund $\sim 10 \text{ ms}$ durch

den $\sim (1 - 1/t)$ -Term rasch an und geht danach in eine logarithmisches Wachstum ($\sim \log t$) über. Letzterer Zusammenhang wird z.B. auch bei dem ebenfalls schwellenbasierten Prozess der Laserablation beobachtet [116]. Zur Delamination der Oberflächen bietet es sich daher an, eine Punktdichte und Heizdauer zu wählen und die Höhe einzig über die Leistung einzustellen. Dabei zeigt das empirische Modell, dass eine Heizzeit von mindestens 10 ms pro Punkt vorteilhaft ist, da die Höhe hier nur noch logarithmisch mit der Zeit wächst und die Auswirkungen durch Unsicherheit in der Heizdauer so geringer ausfallen.

Die vorgestellten Messungen zeigen, dass durch Delamination die Spiegeloberfläche gezielt angehoben werden kann. Durch die Kenntnis der geeigneten Parameter für die Delamination, können im nächsten Schritt kontrolliert Fallenpotentiale für das Photonengas realisiert werden.

4.2.1 Delaminierte Fallenpotentiale

Im Rahmen dieser Arbeit werden Fallenpotentiale durch Delamination der Spiegeloberfläche erzeugt. Ein Vorteil dieser Methode gegenüber der Potentialerzeugung durch das thermosensitive Polymer ist, dass sich aus den Mirau-Aufnahmen der mikrostrukturierten Spiegeloberfläche das Fallenpotential im semisphärischen Mikroresonator vorhersagen lässt. Beispielfhaft werden die Mirau-Aufnahmen zweier erzeugter Mikrostrukturen untersucht: Einer sphärisch-gekrümmten Struktur (Abbildung 4.7a, Krümmungsradius $R = 10$ cm) und einer Doppelmuldenstruktur (Abbildung 4.7c). Die Höhenprofile $h(x)$ der Strukturen (horizontalen Schnitte) können gemäß

$$E_0 = m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n^2} \stackrel{Gl.(2.40)}{=} \frac{\pi \hbar q n c^2}{D_0 c n^2}, \quad (4.3)$$

$$D_0 \rightarrow D_0 - h(x) \quad \Rightarrow \quad \Delta E(x) = m_{\text{ph}} \frac{c^2 h(x)}{n^2 D_0} \quad (4.4)$$

in Potentiale im Mikroresonator umgerechnet werden. Die effektive Photonenmasse m_{ph} und der Abstand auf der optischen Achse D_0 werden durch die Longitudinalmode $q = 9$ und die Abschneidewellenlänge $\lambda_c = 585$ nm festgelegt. Zwei beispielhafte Potentiale sind in Abbildungen 4.7b,d gezeigt (graue Flächen). Die Energieniveaus und die zugehörigen Wellenfunktionen lassen sich mittels des „Schießverfahrens“, welches im Anhang A genauer erläutert ist, numerisch für die experimentellen Daten berechnen. Für das sphärische Höhenprofil findet man erwartungsgemäß für $r \ll R$ ein harmonisches Fallenpotential mit äquidistanten Energieniveaus. Die entsprechende Fallenfrequenz beträgt $\Omega/2\pi = (82 \pm 5)$ GHz, was gut mit der theoretischen Fallenfrequenz für einen semisphärischen Mikroresonator des gewünschten Radius des gekrümmten Spiegels von $R_1 = 10$ cm von $\Omega/2\pi = 86.2$ GHz übereinstimmt (vgl. Gleichung(2.40)). Als zweiter Spiegel wird wie beschrieben ein planer Spiegel angenommen, mit $R_2 \rightarrow \infty$. Die Potentialtiefe beträgt $\Delta E \approx h \times 2$ THz, was $\Delta E = 0.3 k_B T$ entspricht. Aus der zuvor bestimmten, maximal möglichen Delaminationshöhe ($\Delta h \approx 50$ nm) lässt sich somit eine maximale Potentialtiefe $\Delta E = 3.4 k_B T$ realisieren. Für das Doppelmuldenpotential erkennt man die Hybridisierung der Wellenfunktionen für Energien kleiner der Potentialbarriere (Abbildung 4.7d), wie sie in

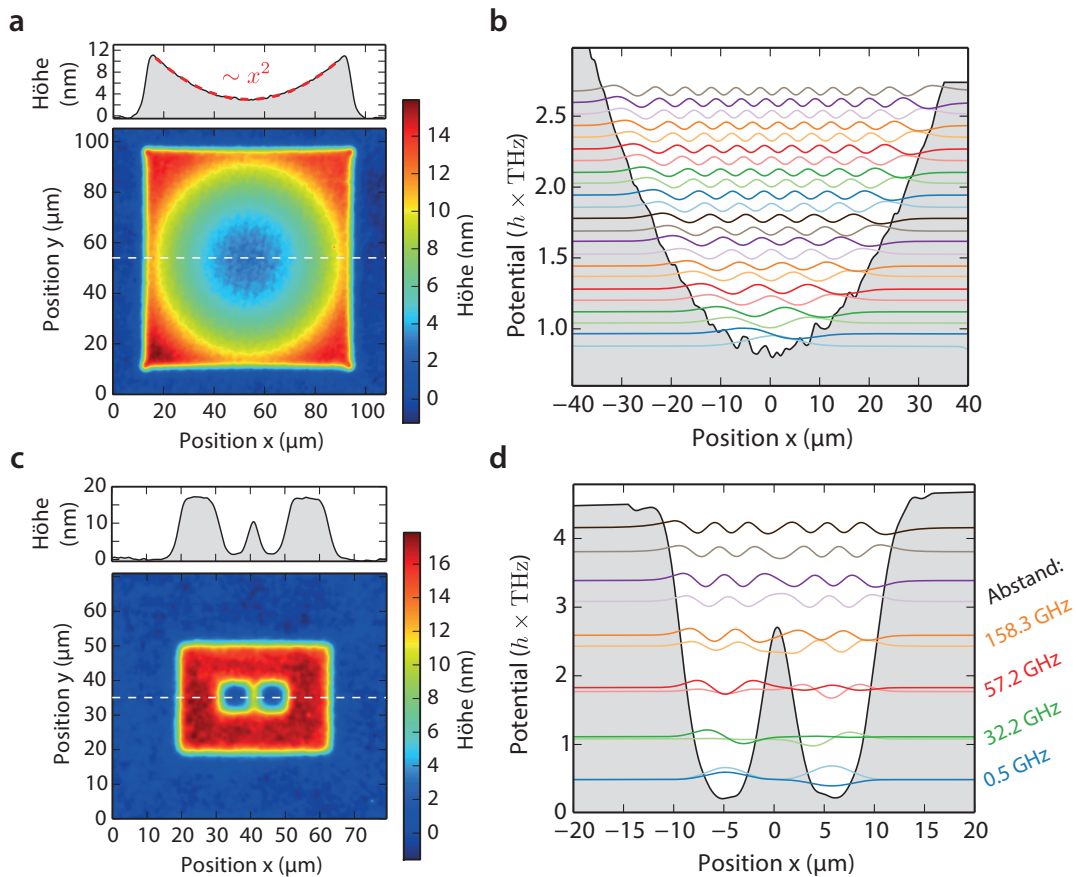


Abbildung 4.7 | Charakterisierung delaminierter Fallenpotentiale – Mirau-Aufnahmen einer sphärisch-gekrümmten Struktur **(a)** und einer Doppelmuldenstruktur **(c)**. Die oberen Teilabbildungen zeigen jeweils horizontale Schnitte der Höhenprofile (gestrichelte Linien). Diese werden in Potentiale im Mikroresonator umgerechnet und können anschließend numerisch auf Energieniveaus und Wellenfunktionen untersucht werden. Die Ergebnisse der numerischen Analyse mittels „Schießverfahren“ sind für die sphärisch-gekrümmte Struktur **(b)** und die Doppelmulde **(d)** aufgetragen (Linien).

Abschnitt 2.3 erläutert wurde, und die mit der Kopplung der Mulden zusammenhängt. Dieser Sachverhalt wird in Kapitel 6 auch experimentell untersucht.

4.3 Optimierung der Spiegelflächenrauigkeit

Zum Abschluss der Charakterisierung der Delaminationsmethode zur Mikrostrukturierung von Spiegelflächen wird die Oberflächenrauigkeit der Spiegel genauer untersucht, und diese mit der handelsüblicher Spiegel verglichen. Bei ultrahochreflektiven Spiegeln spielt die

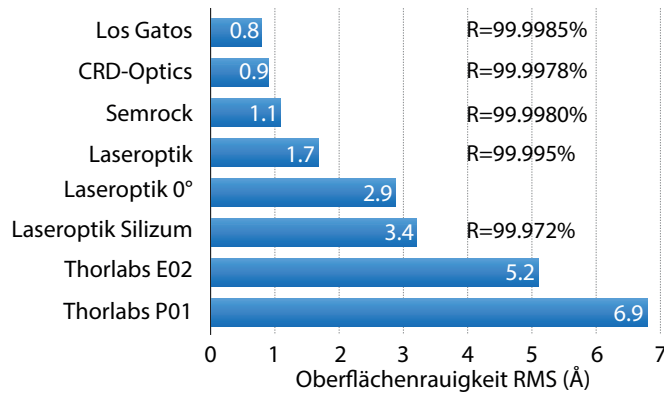


Abbildung 4.8 | Oberflächenrauigkeit verschiedener Spiegeltypen – Mit dem Mirau-Interferometer wird die Oberflächenrauigkeit σ_{rms} für die in Arbeiten zum Photonenkondensat verwendeten Spiegel gemessen. Quantifiziert sind die entsprechenden Resultate ultrahochreflektiver Spiegel der Hersteller *Los Gatos*, *CRD Optics*, *Semrock*, *Laseroptik* (herkömmlich; unter 0° für 532 nm transparent; mit Siliziumschicht, wie in dieser Arbeit verwendet) und zum Vergleich zwei *Thorlabs*-Spiegel mit dielektrischer- (E02) und Silber-Beschichtung (P01). Die angegebenen Reflektivitäten R wurden bei 532 nm gemessen und stammen aus [37].

Oberflächenrauigkeit eine entscheidende Rolle. Die Reflektivität R wird dabei vor allem durch Streuverluste $L_{\text{Streu.}}$ begrenzt. Es gilt

$$R = 1 - T - L_{\text{Abs.}} - L_{\text{Streu.}}, \quad (4.5)$$

wobei T die Transmission und $L_{\text{Abs.}}$ die Absorptionsverluste in den dielektrischen Schichten bezeichnen. Letztere können von Herstellern typischerweise auf wenige $\sim 10^{-6}$ reduziert werden. Die Streuverluste sind über den Zusammenhang

$$L_{\text{Streu.}} = \left(\frac{4\pi}{\lambda}\right)^2 \cdot \sigma_{\text{rms}}^2 \quad (4.6)$$

mit der Oberflächenrauigkeit σ_{rms} quadratisch verknüpft [117]. In Abbildung 4.8 sind die aus Mirau-Aufnahmen bestimmten Oberflächenrauigkeiten der in Arbeiten zum Photonen Bose-Einstein-Kondensat verwendeten Spiegeln und deren Reflektivitäten bei $\lambda = 532$ nm dargestellt. Die Spiegel der Firma *Los Gatos* zeigen dabei die geringste Oberflächenrauigkeit $\sigma_{\text{rms}} = 0.8 \text{ \AA}$. Bei den in dieser Arbeit verwendeten Spiegeln mit Siliziumschicht von *Laseroptik* ist $\sigma_{\text{rms}} = 3.4 \text{ \AA}$, womit die zu erwartenden Streuverluste einen Faktor 18 über denen der *Los Gatos*-Spiegel liegen.

Es stellt sich die Frage, ob es mittels Delamination möglich ist, die Oberflächenrauigkeit der Spiegel mit Siliziumschicht zu reduzieren und damit auch deren Streuverluste. Einen ersten Hinweis liefert die Untersuchung der Punktdichten für die Delamination: Hierbei zeigte sich, dass die Mikrostrukturierung die ursprüngliche Oberflächenrauigkeit des Spiegels im Rahmen der Fehlergrenzen nicht vergrößert, sodass davon ausgegangen werden kann, dass die Qualität der Strukturierung selbst die ursprüngliche Oberflächenrauigkeit übersteigt (vgl. Abschnitt 4.2).

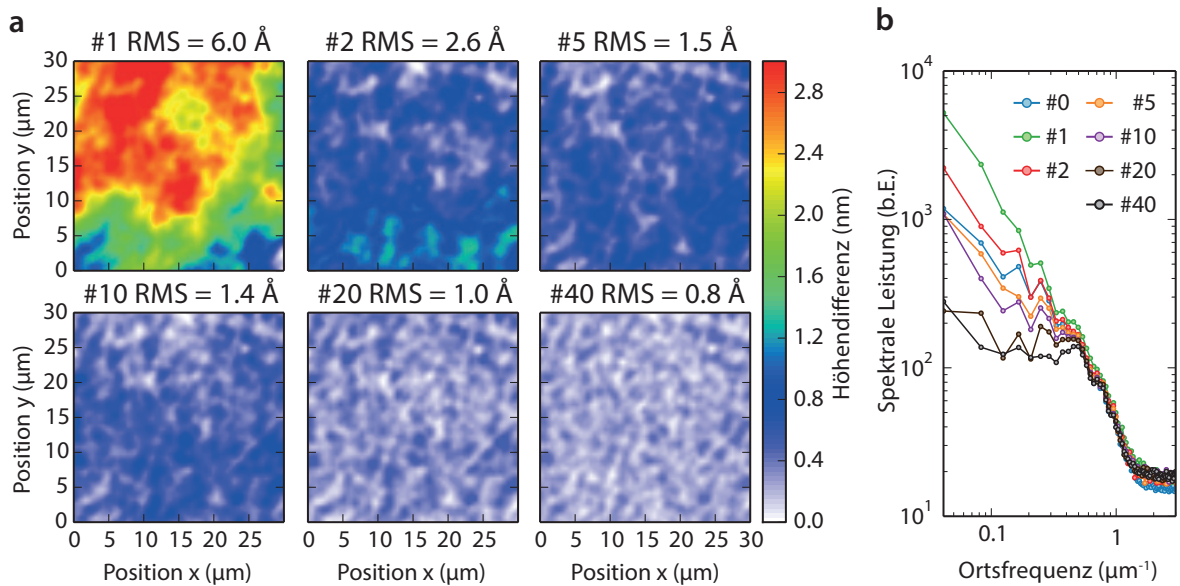


Abbildung 4.9 | Optimierung der Oberflächenrauigkeit – **a**, Dargestellt sind Mirau-Aufnahmen delaminierter Spiegeloberflächen. Ausgehend von der initialen Delamination der $30\ \mu\text{m} \times 30\ \mu\text{m}$ -Fläche nach Schritt #1, bei dem durch eine gezielte Dejustage des Heizlaserstrahlssystems zunächst die Oberflächenrauigkeit auf $\sigma_{\text{rms}} = 6.0\ \text{Å}$ vergrößert wurde, wird diese danach sukzessive über 40 Optimierungsschritte auf $\sigma_{\text{rms}} = 0.8\ \text{Å}$ reduziert. **b**, Ortsfrequenzspektrum der Spiegeloberfläche im Verlauf des Optimierungsverfahrens, beginnend mit dem Spektrum der nicht-delaminierten Fläche (#0). Die Messwerte sind zur besseren Übersicht verbunden (Linien).

In diesem Abschnitt wird ein Verfahren vorgestellt, um die Oberflächenrauigkeit des Spiegels mit Siliziumschicht durch Delamination zu optimieren. Dazu wird eine Machbarkeitsstudie auf einer Spiegelfläche von $30\ \mu\text{m} \times 30\ \mu\text{m}$ durchgeführt. Ziel des Verfahrens ist die Oberflächenrauigkeit auf dieser Fläche zu reduzieren, indem Täler der Oberfläche gezielt durch Delamination angehoben werden und die Spiegeloberfläche so geglättet wird. Dafür werden zunächst die Koordinaten des Galvo-Scanners auf der Mirau-Aufnahme kalibriert, indem die vier Ecken der zu optimierenden Fläche punktförmig delaminiert werden, und die Lage dieser Punkte auf einer Mirau-Aufnahme bestimmt wird. In diesem Bereich wird auch der Ausgangswert für die Oberflächenrauigkeit bestimmt. Danach wird die gesamte Fläche durch Delamination angehoben und erneut mit dem Mirau-Interferometer vermessen. Aus diesen Daten wird die globale maximale Höhe ermittelt, und auf der gesamten Fläche die Abweichung von dieser (Soll-)Höhe berechnet. Entsprechend dieser Abweichung wird die Leistung des Heizlaserstrahls beim erneuten Delaminieren der Fläche ortsabhängig angepasst. Der Vorgang wird wiederholt, bis die gewünschte Oberflächenrauigkeit erreicht ist, bzw. sich keine Veränderung der gemessenen Rauigkeit mehr einstellt. In Abbildung 4.9a ist ein solcher Optimierungsprozess dargestellt. Um das Verfahren zu testen, wird durch eine gezielte Dejustage des Heizlaserstrahlssystems im ersten Schritt eine räumlich variierende Laserstrahlleistung und damit eine Zunahme der

Oberflächenrauigkeit in Bezug auf die nicht-delaminierte Spiegelfläche ($\sigma_{\text{rms}} = 2.3 \text{ \AA}^3$) realisiert. Anschließend korrigiert der Algorithmus sukzessive die Oberfläche durch Anpassung der Laserstrahlleistung, sodass nach 40-Optimierungsschritten eine minimale Oberflächenrauigkeit $\sigma_{\text{rms}} = (0.80 \pm 0.02) \text{ \AA}$ gefunden wird, was einer Reduktion um 87 % entspricht. Durch Fouriertransformation der Oberfläche lässt sich auch die Änderung der lateralen Strukturgrößen der Rauigkeit im Verlauf des Optimierungsprozess bestimmen. In Abbildung 4.9b ist das Ortsfrequenzspektrum der Spiegeloberflächen für verschiedene Optimierungsschritte aufgetragen. Wie die Messungen zeigen, lassen sich Raumfrequenzen bis rund $0.5 \mu\text{m}^{-1}$ mit dem Heizlaserstrahl ausgleichen, was Strukturgrößen von rund $2 \mu\text{m}$ entspricht.

Das Verfahren kann auch zur Oberflächenoptimierung beliebiger Mikrostrukturen genutzt werden. So wurde die in Abbildung 4.7a gezeigte sphärisch-gekrümmte Struktur ebenfalls mit dem vorgestellten Optimierungsverfahren erzeugt. Die Abweichung von der Parabelform liegt bei $\sigma_{\text{rms}} = (1.4 \pm 0.1) \text{ \AA}$. Dabei wird ein ortsabhängiges zweidimensionales parabelförmiges Höhenprofil als Referenz für den Optimierungsprozess verwendet. Die Ergebnisse verdeutlichen, dass die entwickelte Methode zur Optimierung von Spiegeloberflächen mit derzeit angewandten Verfahren zu Herstellung von superpolierten Spiegeln konkurrieren kann. Anders als diese Techniken können mit dem laser-induzierten Glättungsverfahren auch grundsätzlich beliebig geformte Strukturen realisiert werden.

Im nächsten Schritt wird das Optimierungsverfahren auf einer deutlich größeren Spiegelfläche von $400 \mu\text{m} \times 400 \mu\text{m}$ untersucht. Die einfache Kalibrierung von Galvo-Scanner und Mirau-Interferometer über die vier Flächeneckpunkte reicht hier nichtmehr aus, damit Heizstrahlposition und Bildpunkte der Mirau-Aufnahme mit einer Genauigkeit des Laserstrahlfokusdurchmesser über die ganze Fläche zugeordnet werden können. Dies liegt an Abbildungsfehlern, welche bei der Kalibrierung berücksichtigt werden müssen. Dazu wird mit dem Galvo-Scanner ein äquidistantes 20×20 Punktgitter, wie in Abbildung 4.10a dargestellt, auf der Fläche delaminiert. Anschließend werden die Koordinaten der Punkte auf der Mirau-Aufnahme automatisiert bestimmt und den Koordinaten des Galvo-Scanners zugeordnet. Mit einem Bildentzerrungsalgorithmus (Softwarebibliothek *OpenCV 2.4*, Funktion *Remap*) wird daraus eine Transformationsmatrix für beliebige Zwischenbildpunkte berechnet. Danach wird das zuvor beschriebene Optimierungsverfahren angewandt. Ein erzielt Resultat ist in Abbildung 4.10b dargestellt. Die optimierte Oberflächenrauigkeit liegt bei $\sigma_{\text{rms}} = (1.4 \pm 0.1) \text{ \AA}$ (von zuvor $\sigma_{\text{rms}} = (3.3 \pm 0.1) \text{ \AA}$). Über Cavity-ring-down-Spektroskopie [118, 119] wird die Reflektivität der nicht-delaminierten und optimierten Spiegelfläche bestimmt. Für die Wellenlänge $\lambda = 594 \text{ nm}$ findet man Reflektivitäten $R_{\text{ref.}} = (99.9753 \pm 0.0009) \%$ auf der nicht-delaminierten und $R_{\text{opt.}} = (99.9768 \pm 0.0009) \%$ auf der optimierten Fläche. Unter Beachtung der Transmissionen $T_{\text{ref.}} = (8.54 \pm 0.14) \times 10^{-6}$ bzw. $T_{\text{opt.}} = (1.04 \pm 0.01) \times 10^{-5}$ findet man für die nicht-delaminierte Fläche Verluste gemäß $L_{\text{ref.}} = 1 - R - T = (237 \pm 8) \text{ ppm}$ bzw. $L_{\text{opt.}} = (221 \pm 8) \text{ ppm}$ für die optimierte Fläche (engl.: *parts-per-million*, ppm). Die Größe L fasst dabei Absorptions- und Streuverluste zusammen, die in der Messung nicht getrennt gemessen werden können. Durch die Oberflächenoptimierung

³ Die Oberflächenrauigkeit der *Laseroptik*-Spiegel mit Siliziumschicht variiert von Spiegel zu Spiegel aufgrund einer Streuung in der Oberflächenrauigkeit der verwendeten Spiegel-Substrate, welche laut Hersteller zwischen $2 - 4 \text{ \AA}$ liegt.

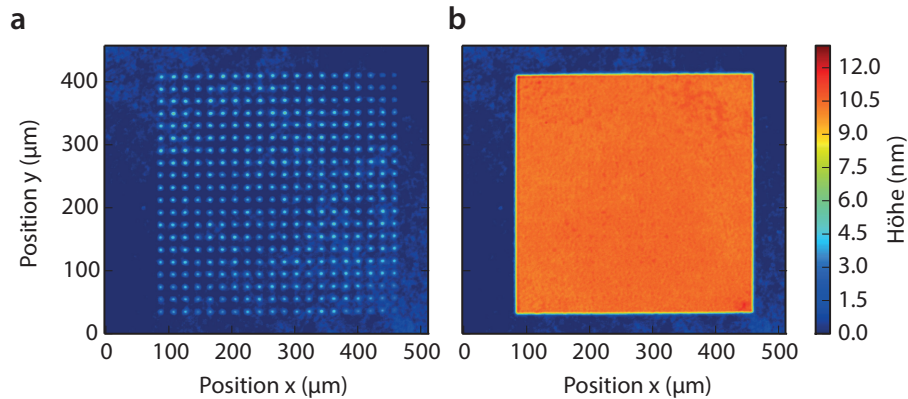


Abbildung 4.10 | Skalierung des Verfahrens zur Optimierung der Spiegeloberfläche – **a**, Delaminiertes Punktmuster von geringer Höhe zur Kalibrierung des Galvo-Scanners. **b**, Spiegeloberfläche nach 24 Optimierungsschritten. Die Oberflächenrauigkeit innerhalb der Fläche beträgt $\sigma_{\text{rms}} = (1.4 \pm 0.1) \text{ \AA}$.

wird somit insgesamt eine Reduzierung der Verluste von $(16 \pm 11) \text{ ppm}$ erreicht. Dieser Wert liegt jedoch unter der theoretisch erwarteten Reduzierung von 40 ppm gemäß Gleichung (4.6) für die gemessenen Oberflächenrauigkeiten. Ein möglicher Grund ist, dass Gleichung (4.6) die idealen Streuverluste angibt und im Detail auch die Ortsfrequenzverteilung der Rauigkeit berücksichtigt werden muss. Der große Anteil der Verluste ($\approx 200 \text{ ppm}$) wird Absorptionsverlusten zugeschrieben. Diese sind damit deutlich größer als in herkömmlichen Spiegeln (z.B. $R = 99.9958 \% \Rightarrow L < 40 \text{ ppm}$, bei *Laseroptik*-Spiegeln ohne Siliziumschicht), was bedeuten könnte, dass Siliziumatome der Absorptionsschicht in die Bragg-Schichten diffundieren. Dieser Sachverhalt kann jedoch nicht vollständig geklärt werden.

Abschießend kann zusammengefasst werden, dass Delamination zur permanenten Mikrostrukturierung der hochreflektiven Spiegel mit Siliziumschicht geeignet ist. Die Strukturhöhen sind dabei auf 50 nm begrenzt, was Fallenpotentialtiefen von bis zu $3.4 k_B T$ ermöglicht, mit einer lateralen Auflösung von $3.6 \mu\text{m}$ (FWHM). Darüber hinaus kann über eine wiederholte Delamination die Oberflächenrauigkeit der Spiegel signifikant verbessert werden. Auch wird eine geringfügige Erhöhung der Reflektivität festgestellt. Eine weitere technische Entwicklung hin zu größeren Flächen bietet die Möglichkeit, Oberflächenrauigkeit und damit Streuverluste bei hochreflektiven Spiegeln gezielt einzustellen. Dabei lassen sich grundsätzlich beliebig geformte Mikrostrukturen mit sehr hohen Reflektivitäten und Oberflächen auf dem Stand der Technik von superpolierten Spiegeln realisieren, was bislang mit Mikrostrukturierungsverfahren mit fokussierten Ionenstrahlen [120] oder CO_2 -Laser basierter Strukturierung von Glassubstraten [121, 122] nicht möglich ist. Die mit der in diesem Kapitel vorgestellten Methode erzeugten (Doppelmulden-) Strukturen werden in Kapitel 6 im farbstoffgefüllten Mikroresonator untersucht, um dort gekoppelte Kondensate zu realisieren.

Experimente zur Bose-Einstein-Kondensation von Licht im Mikrofallenpotential

In diesem Kapitel wird das Photonengas experimentell in Mikrofallenpotentialen charakterisiert, wie sie mit den Verfahren aus Kapitel 3 und 4 erzeugt werden. Die Diskussion beginnt mit einer Untersuchung der Besetzung der Energiezustände im polymerbasierten Mikrofallenpotential. Man findet eine Thermalisierung des gefangenen Photonengases und beobachtet darüber hinaus, die Bose-Einstein-Kondensation trotz des auf wenige Zustände begrenzten Fallenpotentials. Dies zeigt, dass das Mikrostrukturierungsverfahren die Erzeugung von variablen Potentialen ermöglicht, bei denen die Verluste hinreichend gering sind, um einen solchen Phasenübergang zu ermöglichen. Anschließend wird die Selbstwechselwirkung der Photonen, welche aus dem thermooptischen Effekt resultiert, mit dem entwickelten Modell aus Abschnitt 2.2.4 in sowohl polymerbasierten als auch delaminierten Mikrofallenpotentialen näher untersucht.

5.1 Thermalisierung und Bose-Einstein-Kondensation

Im Folgenden wird die Besetzung der Energiezustände im Mikroresonator untersucht. Dazu wird ein Mikroresonatoraufbau aus einem planen Spiegel mit Siliziumschicht und einem herkömmlichen, ultrahochreflektiven Planspiegel (Hersteller *Laseroptik*) zusammengesetzt (spezifizierte Reflektivität $R > 99.991\%$ im Wellenlängenbereich $\lambda = 520 - 590$ nm). Die Mikroresonatorlänge wird auf $q = 9$ festgesetzt, und bei einer Abschneidewellenlänge von $\lambda_c = 595$ nm stabilisiert. Der apparative Aufbau ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Zwischen den Spiegeln befindet sich die Polymer-Farbstofflösung, welche unter dem Winkel des ersten Transmissionsmaximum

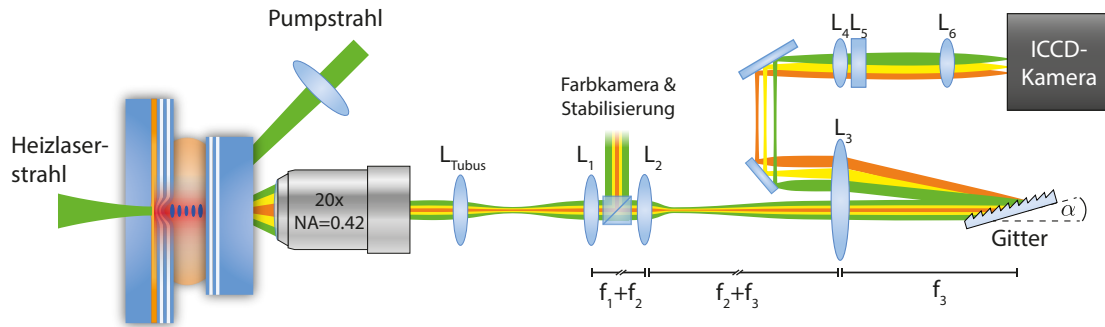


Abbildung 5.1 | Apparativer Aufbau zur Untersuchung von Thermalisierung und Kondensation des Photonengases – Das aus den Zuständen des Mikroresonators transmittierte Licht wird mit einem Mikroskopobjektiv (Typ: M Plan Apo 20x, Firma *Mitutoyo*) gesammelt, über Linsen L_{Tubus} ($f = 15$ cm), L_1 ($f = 15$ cm) kollimiert, und mit einem selbst gebauten, spaltfreien Gitterspektrometer nahe der Littrow-Konfiguration [123] auf einer ICCD-Kamera als Sensor untersucht. Über die Linsen L_2 ($f = 6$ cm) und L_3 ($f = 50$ cm) wird eine maximale Ausleuchtung des Gitters ($1800 \text{ Linien} \cdot \text{mm}^{-1}$) erreicht. Dabei ist der Winkel α so gewählt, dass die erste Ordnung nahe der optischen Achse zurückreflektiert wird, erneut Linse L_3 passiert und über einen Spiegel vom einfallenden Licht getrennt auf dem Sensor der ICCD-Kamera detektiert wird. Die Vergrößerung von Impuls- und Ortsachse wird getrennt über zwei Zylinderlinsen L_4 ($f = 5$ cm) bzw. L_5 ($f = 30$ cm) und die Sammellinse L_6 ($f = 30$ cm) eingestellt.

der dielektrischen Schichten des Auskoppelspiegels¹ ($\theta \approx 45^\circ$) gepumpt wird (Typ: Verdi-G12 Lasers, Firma *Coherent*). Der Durchmesser des Pumplaserstrahls im Mikroresonator beträgt $w_{\text{FWHM}} \approx 15 \mu\text{m}$ und das Licht wird akustooptisch in $1 \mu\text{s}$ lange Pulse moduliert (50 Hz Wiederholrate). Für die Untersuchung wird ein einzelnes Mikrofallenpotential, wie in Kapitel 3 beschrieben, mit dem thermosensitiven Polymer realisiert, und die Verteilung des Photonengases über die induzierten Energieniveaus für variierende Gesamtphotonenzahl gemessen. Dazu wird das transmittierte Licht mit einem spaltfreien Gitterspektrometer, wie in Abbildung 5.1 schematisch dargestellt, analysiert. Die spektrale Auflösung beträgt $\Delta\nu \approx 30 \text{ GHz}$ innerhalb des auf dem Sensor der ICCD-Kamera detektierten Wellenlängenbereichs ($\Delta\lambda \approx 15 \text{ nm}$). Dabei erlaubt die Verstärkung der ICCD-Kamera Signale bis in den Einzelphotonenbereich zu detektieren.

Gemessene Spektren der Emission des Mikropotentials sind in Abbildung 5.2 (oben) für verschiedene Photonenzahlen dargestellt. In der unteren Teilabbildung sind die Spektrometerdaten zusammengefasst und geben die Verteilung der Photonen auf die Energiezustände wieder. Die beobachtete Potentialtiefe beträgt $\Delta E \approx h \times 7.5 \text{ THz}$, was $1.2 k_B T$ bei $T = 305 \text{ K}$ entspricht. Die Fallenfrequenz liegt für die niedrigen Energiezustände bei $\Omega/2\pi \approx 1.18 \text{ THz}$, und nimmt für höhere Transversalmoden ab, da es hier zu Abweichungen von einem harmonischen Fallenpotential kommt (vgl. innere Teilabbildung). Man beobachtet eine breite spektrale Verteilung

¹ Die Transmission beider Spiegel ist nahezu identisch, sodass sich beide Seiten des Resonators zur Beobachtung eignen. Da aber die Siliziumschicht rund 30 % des Lichts absorbiert, und noch dazu auf dieser Seite das optische System zum Heizen angeordnet ist, wird das durch den herkömmlichen Spiegel transmittierte Licht für die Analyse verwendet.

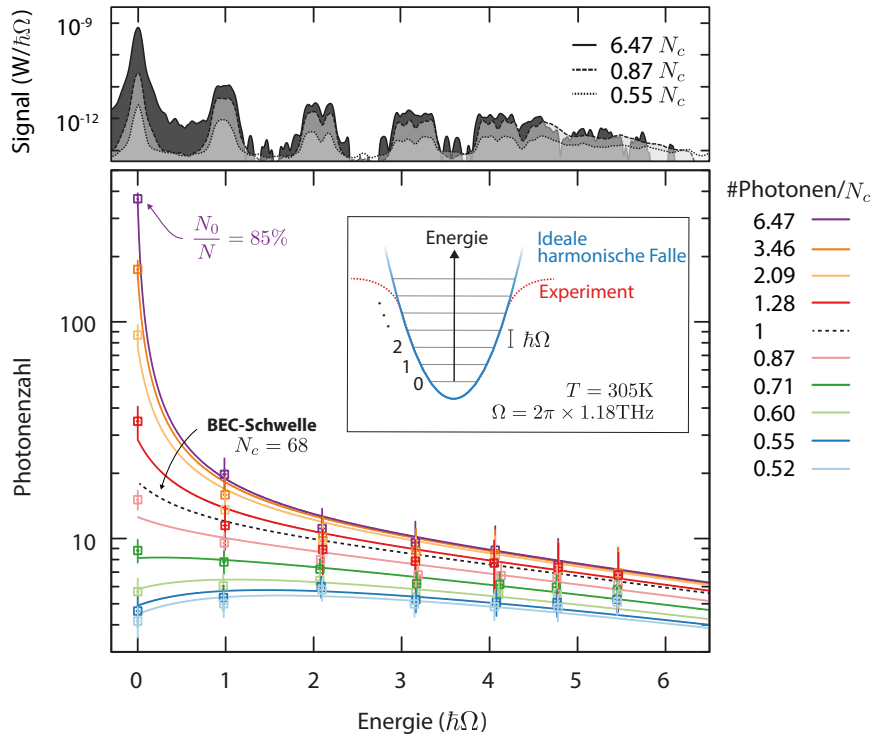


Abbildung 5.2 | Thermalisierung und Bose-Einstein-Kondensation im polymerbasierten Mikropotential – Die obere Teilabbildung zeigt Daten des ICCD-Gitterspektrometers für verschiedene Photonenzahlen in Einheiten der kritischen Photonenzahl N_c . Die Spektren ergeben sich aus der Mittelung von 2000 Realisierungen. Darunter wurden die Daten spektral zusammengefasst und darüber hinaus die wellenlängenabhängige Transmission des Auskoppelspiegels berücksichtigt, sodass sich die Besetzung der Zustände in der Falle ergibt (Punkte). Weiter sind die theoretisch erwarteten Besetzungen aufgetragen (Linien). Oberhalb der kritischen Teilchenzahl beobachtet man ein spektral scharfes Kondensatmaximum an der Position der Abschneidewellenlänge zusammen mit einer breiten thermischen Verteilung über die 7 Energiezustände im induzierten Mikropotential. Bei den hohen Energiezuständen nimmt der Energieabstand ab, und es zeigt sich eine Abweichung vom harmonischen Fallenpotential, was sich mit der endlichen Fallengeometrie erklären lässt (Innere Teilabbildung).

der thermischen Wolke, deren Besetzung innerhalb der Fehlergrenzen gut mit der theoretisch erwarteten Bose-Einstein Verteilung übereinstimmt (durchgezogene Linien in Abbildung 5.2)

$$n(u_i) = \frac{g(u_i)}{\exp\left(\frac{u_i - \mu}{k_B T}\right) - 1}, \quad (5.1)$$

wobei $u_i = i \times \hbar\Omega$ die Energie des i -ten Zustands relativ zur Abschneideenergie $\hbar\omega_c$ bezeichnet. Die in den Spektren beobachtete Breite der Emission aus den angeregten Moden hat dabei technische Ursachen. Zum einen führen die beim spaltfreien Spektrometer verbleibenden räumlichen Informationen zu einer vergrößerten spektralen Breite höherer Transversalmoden auf dem Kamerasensor. Zum anderen kann nicht ausgeschlossen werden, dass das Mikropotential

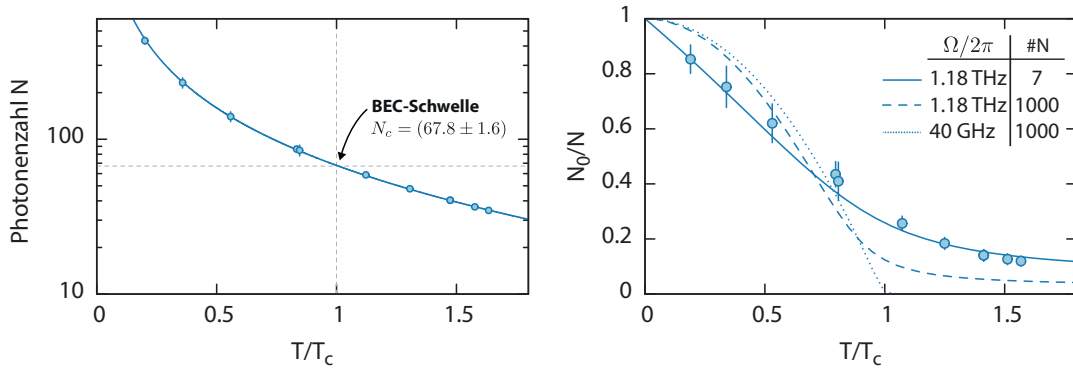


Abbildung 5.3 | Photonenzahl und Kondensatanteil für verschiedene reduzierte Temperaturen – **a**, Zur Bestimmung der Kondensationsschwelle wird die Photonenzahl gegen die reduzierte Temperatur aufgetragen (Punkte). Aus der Interpolation mit einem inversen Polynom zweiter Ordnung (Linie) ergibt sich die kritische Teilchenzahl bei $T/T_c = 1$ zu $N_{c,\text{exp}} = (67.8 \pm 1.6)$. **b**, Dargestellt ist der Kondensatanteil N_0/N gegen die reduzierte Temperatur für die Spektren aus Abbildung 5.2 (Punkte) und die theoretische Erwartung für die Fallenparameter $\Omega/2\pi \approx 1.18$ THz und 7 Energieniveaus ($\#N$) (durchgezogene Linie). Im Vergleich zu den in früheren Experimenten realisierten makroskopischen Photonenkondensaten mit $\Omega/2\pi \approx 40$ GHz [20, 42] mit mehr als 1000 vorhandenen Energieniveaus (gepunktete Linie), wo man ein deutliches Schwellenverhalten erwartet, verläuft der der Anstieg des Kondensatanteils im Mikropotential glatter. Dies ändert sich auch bei Erhöhung der Anzahl an vorhandenen Energieniveaus im System nicht wesentlich (gestrichelte Linie).

von einer perfekten Radialsymmetrie abweicht. Die beobachtete Zunahme der Breite wäre kompatibel mit einer Elliptizität des Potentials von 1.16, was die Entartung der Eigenzustände entsprechend aufhebt. Hingegen kann durch die Untersuchung von Einzelpulsspektren ausgeschlossen werden, dass Schwankungen in der Fallenfrequenz während der Messung der 2000 Spektren für die beobachtete spektrale Breite verantwortlich sind. Bei den hohen Transversalmoden beobachtet man darüber hinaus eine geringe Überhöhung der Besetzung, was durch unzureichende räumliche Filterung von Fluoreszenz aus dem Mikrofallenpotential erklärt werden kann. Dabei trifft Streulicht aus Kontinuumsmoden auf den Sensor der ICCD-Kamera, das die Besetzung der hohen Transversalmoden verfälscht. Durch den geringen energetischen Abstand der Kontinuumsmoden zusammen mit dem spaltfreien Aufbau des Spektrometers, lässt sich dieser Einfluss nicht eliminieren. Die kritische Teilchenzahl für die Fallenparameter beträgt gemäß Gleichung (2.53) $N_c = 67.5$, wobei explizit über die Besetzungen der 6 angeregten Transversalmoden summiert wird. Experimentell beobachtet man für Photonenzahlen $N > N_c$ die Ausbildung des Bose-Einstein-Kondensats, sichtbar als ausgeprägtes Maximum der Besetzung des Grundmoden. Dabei übersteigt die beobachtete spektrale Breite des Kondensatmoden (90 GHz) die Auflösung des Spektrometers ($\Delta\nu \approx 30$ GHz) (vgl. Abbildung 5.2 (oben)), was durch eine thermooptische Verschiebung erklärt werden kann, die in Abschnitt 5.2 näher erläutert wird. Zum Vergleich mit der rechnerischen kritischen Teilchenzahl wird die experimentelle Kondensationsschwelle aus Interpolation der Messdaten gewonnen. Dazu wird für jede Photonenzahl N die reduzierte Temperatur berechnet und beide Größen gegeneinander aufgetragen (Abbildung 5.3a). An die Daten wird ein inverses Polynom zweiter Ordnung angepasst und daraus auf die kritische

Teilchenzahl $N_{c,\text{exp}} = (67.8 \pm 1.6)$ bei $\tilde{T} = 1$ geschlossen. Der Wert stimmt innerhalb seiner Fehlergrenzen mit der theoretischen Erwartung $N_c = 67.5$ überein. Damit liegt die Teilchenzahl für die Kondensation drei Größenordnungen unter der für makroskopische Photonenkondensate in Fallen mit zwei gekrümmten Spiegeln mit Krümmungsradius $R = 1$ m [20]. Dies lässt sich durch den hier sehr viel kleineren effektiven Krümmungsradius $R_{\text{eff}} = 2c^2/n^2D_0\Omega^2 \approx 0.9$ mm für das Mikrofallenpotential mit Fallenfrequenz $\Omega/2\pi \approx 1.18$ THz erklären. Des Weiteren muss beachtet werden, dass das untersuchte System mit nur 7 Energieniveaus (dies entspricht mit Polarisationsentartung 56 Eigenzuständen) weit ab vom thermodynamischen Limes liegt. Zu diesem Schluss kommt man auch durch Betrachtung des Kondensatanteils N_0/N (vgl. Gleichung (2.58)), wie er in Abbildung 5.3b gegen die reduzierte Temperatur T/T_c aufgetragen ist. Der gemessene Verlauf des Kondensatanteils als Funktion der reduzierten Temperatur im Mikrofallenpotential weicht deutlich von einer inversen Parabel ab, wie man sie für zweidimensionale Systeme im bzw. nahe des thermodynamischen Limes erwartet, wie etwa für ein makroskopisches Photonenkondensat in einer Falle aus gekrümmten Spiegeln mit Krümmungsradius $R = 1$ m (gepunktete Linie). Trotz der geringen Anzahl an Energieniveaus zeigen die Messungen eine gute Übereinstimmung mit der Theorie der Bose-Einstein-Kondensation. Das bedeutet auch, dass die Resonatorverluste durch reduzierte Quanteneffizienz der Polymer-Farbstofflösung gegenüber reiner Farbstofflösung und Streuverluste durch Polymerglobuli hinreichend gering sind, damit die Photonen innerhalb ihrer Speicherzeit im Resonator thermalisieren. Damit ist das vorgestellte System ein geeigneter Kandidat, um in Zukunft Thermodynamik mit nur wenigen Teilchen zu untersuchen [124].

5.2 Thermooptische Effekte

In diesem Abschnitt wird die Ausprägung einer thermischen Linse aufgrund des thermooptischen Effekts im Mikroresonator untersucht. Dazu wird die Frequenzverschiebung des Kondensats während des Pumpulses charakterisiert und die in Abschnitt 2.2.4 eingeführte Retardierungszeit, mit der sich die Temperatur im Mikroresonator ändert, bestimmt. Die Temperaturerhöhung in der Farbstofflösung basiert im Wesentlichen auf drei Prozessen:

1. Direktes periodisches Heizen der Siliziumschicht zum Induzieren des Polymer-Phasenübergangs.
2. Die Energie der absorbierten Photonen des Pumpstrahls ($\lambda_{\text{pump}} = 532$ nm) ist höher als die der in das Mikrofallenpotential mit Abschneidewellenlänge $\lambda_c = 595$ nm emittierten Photonen. Die überschüssige Energie wird in Form von Wärme entsprechend des Intensitätsprofils des Pumpasers in die Polymer-Farbstofflösung eingetragen.
3. Durch die begrenzte Quanteneffizienz der Lösung ($\gamma = 0.8 - 0.95$) kommt es in 5 – 20 % aller Absorptionsprozesse zur strahlungslosen Desaktivierung des Farbstoffmoleküls. Dies betrifft sowohl die erstmalige Anregung durch den Pumpstrahl entsprechend seines Intensitätsprofils, als auch die wiederholte Reabsorption der Photonen im Kondensatmoden.

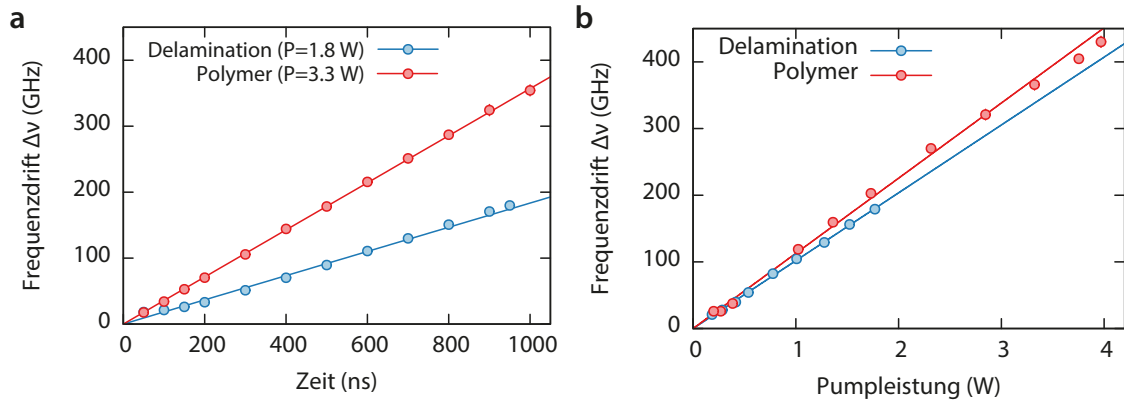


Abbildung 5.4 | Frequenzverschiebung des Photonenkondensats – **a**, Mit dem Gitterspektrometer wird die Frequenzverschiebung innerhalb des Pumpulses zeitaufgelöst gemessen. Dazu wird die Integrationszeit des Spektrometers über die Breite des Aufnahme Fensters der ICCD-Kamera von 50 – 1 000 ns variiert. Eine Frequenzverschiebung lässt sich aus der spektralen Breite des Kondensats auf den Aufnahmen bestimmen. Beispielhaft sind Messungen in einem delaminierten Fallenpotential und einem polymerbasierten Potential mit Pumpleistungen $P = 1.8$ W bzw. $P = 3.3$ W (Punkte) aufgetragen. An die Daten sind Geraden angepasst (Linien). **b**, Die Frequenzverschiebung in beiden Fallenpotentialen als Funktion der Pumpleistung (Punkte) mit angepassten Geraden (Linien). Das Aufnahme Fenster der ICCD-Kamera hat dazu eine Breite von 1 000 ns.

Ohne einen Effekt des thermosensitiven Polymers erwartet man aufgrund der negativen thermo-optischen Koeffizienten $\partial n/\partial T$ von sowohl Wasser ($-1 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ [125]), als auch Ethylenglycol ($-2.6 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ [126]) durch Wärmeeintrag eine Verringerung des Brechungsindex und damit eine Frequenzverschiebung des Kondensats hin zu höheren Energien. Für die Untersuchung dieses Effekts wird erneut der Aufbau aus Abbildung 5.1 verwendet. Das Gitter wird dabei jedoch durch ein Echelle-Gitter ausgetauscht ($79 \text{ Linien mm}^{-1}$, 75° Blazewinkel, Firma *Thorlabs*), welches für die Verwendung von hohen Beugungsordnungen ausgelegt ist ($m = 41$), sodass eine Frequenzauflösung von $\Delta\nu \approx 9 \text{ GHz}$ erreicht wird. Die Frequenzverschiebung wird sowohl in einem Potential, welches durch Delamination erzeugt wurde, als auch in einem mit thermosensitiven Polymer induzierten Potential untersucht. Die räumliche Ausdehnung des Potentials beträgt etwa $4 \mu\text{m}$ und der Pumpstrahldurchmesser ist $11 \mu\text{m}$. In einem ersten Schritt wird die zeitliche Frequenzverschiebung des Kondensats während des $1 \mu\text{s}$ langen Pumpulses vermessen. Dazu wird das Aufnahme Fenster der ICCD-Kamera, und damit die Aufnahmezeit des Gitterspektrometers, variiert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.4a dargestellt. Mit zunehmender Integrationszeit des Gitterspektrometers beobachtet man für beide Potentiale eine Blauverschiebung der Kondensatfrequenz, die in guter Näherung linear mit der Zeit ansteigt. Die Steigungen sind $(249 \pm 1) \text{ MHz s}^{-1}$ und $(128 \pm 4) \text{ MHz s}^{-1}$ für das polymerbasierte bzw. das delaminierte Potential. Man beachte, dass die für die Messung verwendeten Pumpleistungen mit $P = 3.3 \text{ W}$ bzw. $P = 1.8 \text{ W}$ nicht identisch waren. Die Abhängigkeit der Frequenzverschiebung von der Pumpleistung ist in Abbildung 5.4b dargestellt. Auch hier beobachtet man einen linearen Zusammenhang mit Steigungen $(113 \pm 2) \text{ MHz W}^{-1}$ bzw. $(102 \pm 1) \text{ MHz W}^{-1}$ für polymerbasiertes bzw. delaminiertes Potential, was sich durch die zur Pumpleistung proportionalen

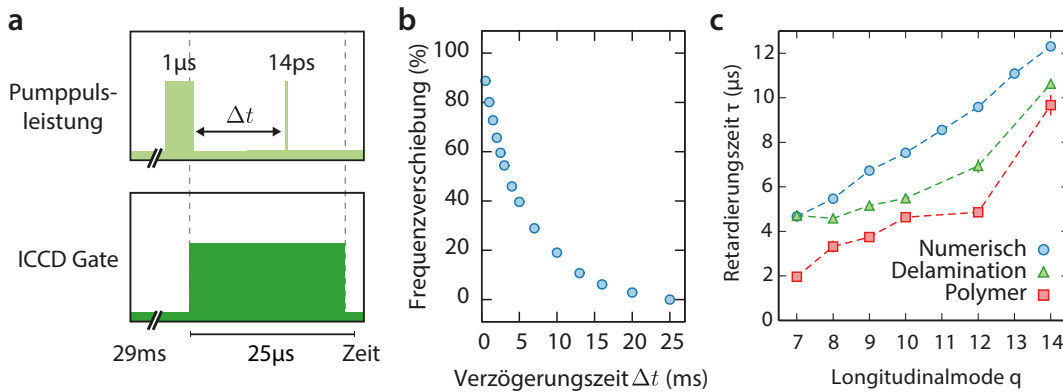


Abbildung 5.5 | Bestimmung der Zeitkonstante der Temperaturänderung – **a**, Zur Messung der Frequenzverschiebung über $1\ \mu\text{s}$ hinaus, wird das Aufnahmefenster der ICCD-Kamera an das Ende des Pumpimpulses verschoben und auf eine Länge von $25\ \mu\text{s}$ eingestellt. Nach einer Verzögerungszeit Δt werden die Farbstoffmoleküle mit einem Puls laser angeblitzt und die Fluoreszenz spektral vermessen. **b**, Aufnahme der relaxierenden Kondensatfrequenz in Bezug auf das Ende des $1\ \mu\text{s}$ langen Pumpimpulses im delaminierten Potential bei $q = 9$. **c**, Die extrahierte Retardierungszeit aufgetragen gegen die Longitudinalmode. Die Datenpunkte wurden zur besseren Sichtbarkeit verbunden (gestrichelte Linien). Die numerischen Daten sind aus den zeitabhängigen Lösungen der Temperaturverteilung im (mit Wasser gefüllten) Mikroresonator bestimmt. Die simulierte Geometrie entspricht der aus Abbildung 3.9, mit angepassten Spiegelabständen und der Heizquelle im Zentrum der Lösung anstatt in der Siliziumschicht.

Verluste erklären lässt. Die beobachtete Blauverschiebung der Frequenz auf der Zeitskala des Pumpimpulses ist dabei kompatibel mit den negativen thermooptischen Koeffizienten der Lösungsmittel ($E \propto (\partial n/\partial T)\Delta T$). Dies schließt auch insbesondere einen dominierenden Einfluss des thermosensitiven Polymers auf der Zeitskala des Pumpimpulses aus, da die Frequenz dann wegen $(\partial n/\partial T)_{\text{NIPAM}} > 0$ rotverschoben sein müsste. Diese Beobachtung deckt sich mit der zuvor gemessenen Zeitkonstante für Brechungsindexänderungen durch den Polymerphasenübergang, der die Dauer des Pumpimpulses um 5 Größenordnungen übersteigt ($1\ \mu\text{s} \ll 400\ \text{ms}$) und daher keine signifikante Brechungsindexänderung durch das Polymer auf der Zeitskala des Pumpimpulses stattfindet². Weiter weisen die Ergebnisse der zeitaufgelösten Messung darauf hin, dass sich innerhalb des Pumpimpulses kein Temperaturgleichgewicht der Mikroresonatorumgebung einstellt (linearer Anstieg) und daher keine Sättigung in der Frequenzverschiebung beobachtet wird. Dies deutet darauf hin, dass die Wärmeleitung im Mikroresonator deutlich langsamer abläuft als der Pumpimpuls andauert. Da dieser jedoch aufgrund von Besetzungen von Triplett-Zuständen nicht über $1\ \mu\text{s}$ hinaus verlängert werden kann, muss eine andere Messmethode gewählt werden, um die Zeitkonstante der Temperaturänderung zu bestimmen. Das verwendete Messverfahren ist in Abbildung 5.5a schematisch dargestellt. Die Dauer des Pumpimpulses ist wie zuvor $1\ \mu\text{s}$, jedoch wird das nun $25\ \mu\text{s}$ breite Aufnahmefenster der ICCD-Kamera an das Ende des Pulses geschoben. Nach Ende des Pumpimpulses sinkt die zuvor erhöhte Temperatur im

² Legt man den maximalen Anstieg des Brechungsindex durch den Polymer-Phasenübergang von 0.11 zu Grunde, lässt sich auf der Zeitskala des Pumpimpulses eine Brechungsindexänderung $\Delta n_{\text{Polymer}} \approx 0.11 \cdot (1 - \exp(-1\ \mu\text{s}/400\ \text{ms})) \approx 3 \times 10^{-7}$ abschätzen. Dies entspricht einer maximalen Frequenzverschiebung des Kondensats auf der Zeitskala des Pumpimpulses durch Effekte des Polymers von $\Delta \nu \approx 100\ \text{MHz}$.

Mikroresonator durch Wärmedissipation wieder, und damit relaxiert die Frequenz des Grundzustandes zu ihrem ursprünglichen Wert. Dies kann durch ein zeitlich verzögertes Anblitzen der Farbstoffmoleküle mit einem Picosekundenpulslaser (15 ps Pulslänge, Typ PL2201, Firma Ekspla), und damit verbundener Emission in das Fallenpotential sichtbar gemacht werden. Die Frequenzverschiebung ist als Funktion der Zeitverzögerung des Pumlasers Δt in Abbildung 5.5b aufgetragen. Daraus lässt sich die Zeitkonstante der Temperaturänderung, welche bereits in Abschnitt 2.2.4 als Retardierungszeit τ eingeführt wurde, indirekt über den Abfall ($1/e$) der Frequenz bestimmen. Die Messung wird für verschiedene Mikroresonatorgeometrien wiederholt. Die zusammengefassten Ergebnisse sind in Abbildung 5.5c dargestellt. Man beobachtet sowohl für polymerbasierte als auch delaminierte Potentiale eine Zunahme der Retardierungszeit mit der Longitudinalmode. Die Messwerte übersteigen mit $\tau \approx 2 - 11 \mu\text{s}$ allesamt die Pumpdauer. Innerhalb dieser $1 \mu\text{s}$ -kurzen Zeitspanne prägt sich somit kein Temperaturgleichgewicht aus. Zusätzlich wird numerisch die bereits aus Abbildung 3.9 bekannte Mikroresonatorgeometrie für eine Heizquelle in der Farbstofflösung zeitabhängig gelöst, und daraus die erwarteten Retardierungszeiten bestimmt. Die Werte sind zum Vergleich in Abbildung 5.5c aufgetragen und stimmen innerhalb ihrer Größenordnung mit den Messwerten überein. Der beobachtete Anstieg der Retardierungszeit mit der Longitudinalmode (Spiegelabstand) lässt sich dadurch erklären, dass die Spiegeloberflächen Wärmesenken darstellen, welche sich mit zunehmendem Spiegelabstand vom Zentrum der Flüssigkeit entfernen, und die Wärme daher nur langsamer abgeführt werden kann.

Insgesamt wurde festgestellt, dass im Mikroresonator ein Wärmeeintrag stattfindet, welcher durch den thermooptischen Effekt die Frequenz des Kondensats über die Dauer des Pumpulses blauverschiebt. Der Einfluss von Pumlaserstrahl und Kondensat sind bei der Frequenzverschiebung jedoch überlagert, sodass hier noch keine Aussage über die Photonen-Selbstwechselwirkung des Kondensats möglich ist. Die Messung der Retardierungszeit τ ist jedoch ein erster Schritt, um mit dem in Abschnitt 2.2.4 hergeleiteten Modell die retardierte Selbstwechselwirkung des Kondensats bestimmen zu können, sobald der thermooptische Einfluss des Kondensats ohne Überlagerung durch die Heizeffekte des Pumpstrahls bekannt ist.

5.3 Retardierte Selbstwechselwirkung des Kondensats

In diesem Abschnitt wird die retardierte Selbstwechselwirkung des Photonenkondensats über die beobachtete Verbreiterung des Kondensatmodens bestimmt. Dazu wird zunächst der Einfluss des Pumpstrahls bei dieser Messung untersucht. Dessen Wärmeeintrag führt durch den thermooptischen Effekt zu einem Potential

$$V_{\text{pump}}(t) = \xi(t) \cdot I_{0,\text{pump}} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_{\text{pump}}^2}\right), \quad (5.2)$$

mit der Intensität des Pumlasers $I_{0,\text{pump}} = 2P_{\text{pump}}/\pi w_{\text{pump}}^2$, Radius w_{pump} , Leistung P_{pump} und einem zeitabhängigen Faktor $\xi(t)$, der für $t \ll \tau$ analog zur Herleitung der Selbstwechselwirkung

in Abschnitt 2.2.4 proportional zur Länge des Pumpulses ist. Dieses durch den Pumpstrahl induzierte Potential addiert sich zu dem harmonischen Fallenpotential $V_{\text{Falle}} = (m_{\text{Ph}}/2)\Omega^2 r^2$ und man findet

$$V(r, t) = V_{\text{Falle}} + V_{\text{pump}} \approx \frac{m_{\text{Ph}}}{2} \Omega'(t)^2 r^2 + \xi(t) \cdot I_{0,\text{pump}} \quad (5.3)$$

$$\text{mit } \Omega'(t) = \Omega \left(1 - 2\xi(t) \frac{I_{0,\text{pump}}}{\Omega^2 m_{\text{Ph}} \pi w_{\text{pump}}^2} \right) \quad (5.4)$$

für $\Omega'/\Omega \approx 1$. Berücksichtigt man dieses Potential bei der Energievariation aus Abschnitt 2.2.4, so findet man in erster Ordnung die relative Änderung des Kondensatradius (für $\Delta w_{\text{cond}} \ll w_{0,\text{cond}}$)

$$\frac{\Delta w_{\text{cond}}}{w_{0,\text{cond}}} \approx \frac{\xi \cdot P_{\text{pump}}}{\Omega^2 m_{\text{Ph}}^2 \pi w_{\text{pump}}^4} + \frac{N_0}{\kappa} \cdot g_{\text{eff}}(t), \quad (5.5)$$

wobei $w_{0,\text{cond}}$ den Kondensatradius zu Beginn des Pumpulses bezeichnet und die Konstante $\kappa = 8\pi$ das analytische Ergebnis der Energievariation bzw. $\kappa = 4.90(7)\pi$ das numerische Ergebnis der Gross-Pitaevskii Gleichung darstellt. Der Einfluss des Pumpstrahls auf die Vergrößerung hängt von dessen Leistung und Radius ab, wohingegen der Einfluss der Selbstwechselwirkung nur von der Photonenzahl im Kondensat und dem effektiven Wechselwirkungsparameter abhängt. Letzterer ergibt sich dann als asymptotischer Wert der Vergrößerung des Kondensatmoden bei konstanter Photonenzahl, aber stark vergrößerten Pumpstrahldurchmessern. Anschaulich hängt dies damit zusammen, dass ein breiter Pumpstrahl in guter Näherung homogen Wärme über das gesamte Mikrofallenpotential einträgt und dieses daher eine globale Energieverschiebung erfährt, anstatt das Potential lokal zu deformieren, wie es durch den Wärmeeintrag des Kondensats passiert.

Für die Messung der Selbstwechselwirkung wird mit dem thermosensitiven Polymer ein Potential mit einem einzelnen Energieniveau wie in Abschnitt 5.2 erzeugt ($\lambda_c = 595 \text{ nm}$, $q = 9$, Kondensatdurchmesser $3 \mu\text{m}$). Dieser Moden wird räumlich auf die ICCD-Kamera abgebildet. Um die Verbreiterung des Moden zu bestimmen, wird das Aufnahme Fenster der Kamera nur für einen Bruchteil ($\Delta t = 50 \text{ ns}$) des Kondensatpulses geöffnet, und alternierend an den Anfang ($t = 0 \text{ ns}$) und das Ende des Pulses ($t = 950 \text{ ns}$) geschoben. Für eine Reihe von Pumpstrahldurchmessern wird eine solche Bildfolge aus je 200 Einzelaufnahmen erstellt, wobei die Pumpstrahlleistung jeweils so angepasst wird, dass die Photonenzahl im Kondensatmoden $N_0 = 50\,000 \pm 4\,000$ beträgt, was einer Intensität $I \approx (13.2 \pm 1.1) \text{ MWcm}^{-2}$ im Resonator entspricht. Durch Anpassung einer Gaußfunktion wird die Breite des Kondensatmoden zu beiden Zeitpunkten bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.6 dargestellt und zeigen für alle untersuchten Pumpstrahldurchmesser eine Vergrößerung des Kondensats. Die besonders hohe Vergrößerung für kleine Pumpstrahldurchmesser nimmt mit anwachsendem Pumpstrahldurchmesser rasch ab und wird schließlich konstant. An die Messdaten wird Gleichung (5.5) angepasst (blaue Linie). Dabei zeigt sich innerhalb der Fehlergrenzen eine gute Übereinstimmung mit den Beobachtungen. Der asymptotische Wert ($w_{\text{pump}} \gg w_{0,\text{cond}}$) für die Modenvergrößerung ergibt sich aus der Anpassung zu $(8 \pm 1) \%$ was nach Gleichung (5.5) einer effektiven Wechselwirkungsstärke $g_{\text{eff}} = (4 \pm 2) \times 10^{-5}$ entspricht. Unter Verwendung der numerischen Lösung

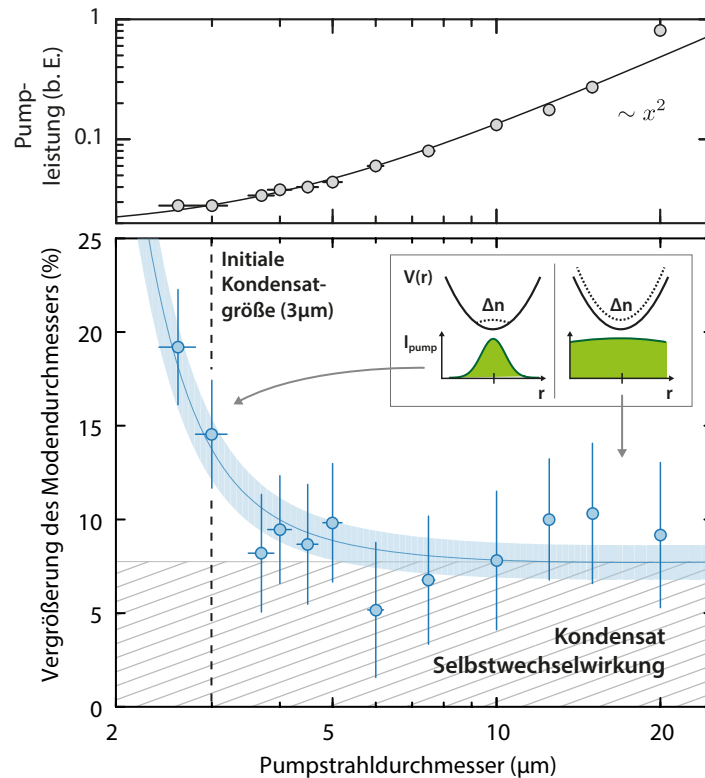


Abbildung 5.6 | Relative Änderung des Kondensatmodendurchmessers als Funktion der Pumpstrahlbreite – Die Photonenzahl im Kondensatmoden ($N_0 = 50\,000 \pm 4\,000$) wird durch quadratische Anpassung der Pumpstrahlintensität konstant gehalten (oben). Jeder dargestellte Messpunkt ergibt sich aus 200 Einzelschussaufnahmen; die Fehlerbalken stellen die statistischen Fehler dar. Daran angepasst ist das Modell für die Wechselwirkungsstärke (blaue Linie). Die hellblaue Fläche kennzeichnet die Unsicherheit der Anpassung. Die schraffierte Fläche stellt den vom Pumpimpuls unabhängigen thermooptischen Effekt auf die Modenverbreiterung dar, welcher durch die retardierte Selbstwechselwirkung des Kondensats verursacht wird. Die innere Teilabbildung zeigt schematisch die Auswirkung des Pumpstrahls I_{pump} auf die Potentialform (gestrichelte Linie).

der Gross-Pitaevskii Gleichung (2.83) beträgt $g_{\text{eff}} = (2.5 \pm 0.8) \times 10^{-5}$. Daraus ergibt sich mit der zuvor ermittelten Retardierungszeit $\tau = (4 \pm 1) \mu\text{s}$ eine statische Wechselwirkungsstärke $g_{\text{stat}} = (\tau/1 \mu\text{s}) \cdot g_{\text{eff}} = (1.0 \pm 0.3) \times 10^{-4}$. Dieser Wert ist kleiner als bei Messungen im bispärischen Mikroresonator $g_{\text{stat}} = 7 \times 10^{-4}$ [20], was hauptsächlich darauf zurückgeführt wird, dass Wasser einen niedrigeren thermooptischen Koeffizienten als Methanol hat und, dass die Reabsorptionsrate der Farbstoffmoleküle bei $\lambda_c = 595 \text{ nm}$ geringer ist. Darüber hinaus wurde in Ref. [20] die Modenverbreiterung über mehrere Pulse untersucht. Analog wurde im Rahmen der Masterarbeit von Christian Kurtscheid die Untersuchung in einem delaminierten Fallenpotential unter ähnlichen experimentellen Bedingungen durchgeführt [127]. Dort findet man eine relative Vergrößerung von $(1.3 \pm 0.1) \%$, was einer effektiven Wechselwirkung $g_{\text{eff}} = (3.3 \pm 0.3) \times 10^{-6}$ entspricht.

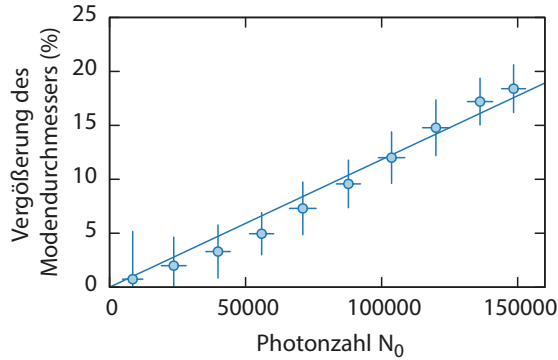


Abbildung 5.7 | Relative Vergrößerung des Modendurchmessers als Funktion der Photonenzahl nach einem $1 \mu\text{s}$ langen Pumpimpuls – Der Pumpstrahldurchmesser ist mit $10 \mu\text{m}$ größer gewählt als der Kondensatmodendurchmesser zu Beginn des Pumpimpulses ($3 \mu\text{m}$), sodass die Vergrößerung (Punkte) durch die Kondensatphotonen dominiert wird. Die Messdaten zeigen einen linearen Anstieg (Linie), gemäß der theoretischen Vorhersage aus Gleichung (5.5).

In einem weiteren Schritt wird die räumliche Verformung des Modens als Funktion der Photonenzahl untersucht. Dazu wird ein Pumpstrahldurchmesser $w_{\text{pump}} \approx 10 \mu\text{m}$ gewählt, sodass die thermo-optischen Effekte bereits durch die Kondensatphotonen dominiert werden (vgl. Abbildung 5.6). Unter Variation der Photonenzahl wird wie zuvor beschrieben die räumliche Modenvergrößerung gemessen. Wie durch Gleichung (5.5) erwartet, zeigen beiden Größen eine lineare Abhängigkeit, siehe Abbildung 5.7. Aus der Steigung lässt sich der effektive Wechselwirkungsparameter $g_{\text{eff}} = (1.82 \pm 0.07) \times 10^{-5}$ bestimmen, welcher im Rahmen der Unsicherheit mit dem zuvor bestimmten Wert übereinstimmt.

Abschätzung der retardierten Selbstwechselwirkung

Zum Vergleich mit dem experimentell bestimmten Wert für die effektive Wechselwirkung, wird im Folgenden der aus Photonenverlusten resultierende thermo-optische Effekt für den Kondensatmoden abgeschätzt. Ausgangspunkt hierzu ist die Brechungsindexänderung aufgrund der thermo-optischen Wechselwirkung nach Gleichungen (2.79) und (2.63)

$$E_{\text{ww}} = \frac{m_{\text{Ph}} c^2}{n_0^3} \Delta n = \frac{m_{\text{Ph}} c^2}{n_0^3} \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right) \Delta T = \hbar \Omega \left(\frac{N_0 g_{\text{eff}}(t)}{4\pi} \right), \quad (5.6)$$

wobei angenommen wird, dass sich eine mittlere Temperaturänderung

$$\Delta T = \Delta Q / (c_s \rho V_{\text{Mode}}), \quad (5.7)$$

aufgrund des Wärmeeintrags ΔQ im Modenvolumen V_{Mode} einstellt, wobei c_s die spezifische Wärme und ρ die Dichte der Polymer-Farbstofflösung bezeichnen. Beschränkt man sich auf den Wärmeeintrag durch strahlungslose Desaktivierung der Farbstoffmoleküle, so findet man

$$\Delta Q = N_0 \Gamma_{\text{reabs.}} t_{\text{pump}} (1 - \gamma) \cdot E_{\text{Photon}}, \quad (5.8)$$

wobei $\Gamma_{\text{reabs.}}$ die Reabsorptionsrate, t_{pump} die Pumpimpulsdauer, γ die Quanteneffizienz und $E_{\text{Photon}} = hc/\lambda_c$ die Energie eines einzelnen Photons bezeichnet. Dabei ist das aufgeheizte Modenvolumen auf die Flüssigkeit zwischen den Spiegel beschränkt

$$V_{\text{Mode}} = \pi r_{\text{cond}}^2 \cdot q_{\text{eff}} \frac{\lambda_c}{2} = \pi \frac{\hbar}{m_{\text{Ph}} \Omega} \cdot q_{\text{eff}} \frac{\lambda_c}{2}, \quad (5.9)$$

wobei $q_{\text{eff}} = q - q_0$ die um die Eindringtiefe in die Spiegel bereinigte Longitudinalmodenzahl angibt. Im letzten Schritt wurde der Zusammenhang $r_{\text{cond}}^2 = \hbar/m_{\text{Ph}}\Omega$ benutzt. Nach Einsetzen von Gleichungen (5.7), (5.8), (5.9) in (5.6) und Auflösen nach dem effektiven Wechselwirkungsparameter findet man

$$g_{\text{eff, theo}} = \frac{16\pi m_{\text{Ph}}^2 c^3 \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right) t_{\text{pump}} \Gamma_{\text{reabs.}} (1 - \gamma)}{q_{\text{eff}} \hbar n_0^3 c_s \rho \lambda_c^2} \approx (0.9 \pm 0.6) \times 10^{-5}. \quad (5.10)$$

Dabei wurden die Parameter entsprechend der in Abbildung 5.6 dargestellten Messung gewählt³. Die Abschätzung ergibt einen geringeren Wert als die Messung $g_{\text{eff, exp}} = (2.5 \pm 0.8) \times 10^{-5}$. Dies könnte zum einen an der Vereinfachung der Temperaturänderung, ohne räumliche Einflüsse zu berücksichtigen, liegen und zum anderen an der Unterschätzung der eingetragenen Wärmemenge durch die Beschränkung auf strahlungslose Desaktivierungsprozesse, und an der Energieverschiebung des Kondensats in Bezug auf auf den Pumpaser, wobei hier der Wärmeeintrag aus z.B. Photobleichprozessen nicht berücksichtigt wird [128].

Zusammengefasst kann festgehalten werden, dass eine retardierte Selbstwechselwirkung der Kondensatphotonen im polymerbasierten Potential beobachtet wird. Die während eines 1 μ s langen Pumpimpulses akkumulierte Stärke liegt bei $g_{\text{eff}} = (2.5 \pm 0.8) \times 10^{-5}$ und kann teilweise mit Photonenverlusten durch strahlungslose Desaktivierung von Farbstoffmolekülen erklärt werden. Die Abschätzung legt aber nahe, dass darüber hinaus weitere Prozesse, wie etwa Photobleichen oder Einfluss von Ammonyx-LO und thermosensitivem Polymer, zusätzliche Wärme in die Lösung eintragen. Dabei liegt die bestimmte Wechselwirkung des Photonenkondensats mehrere Größenordnungen unter der Wechselwirkung, wie sie z.B. in atomaren Gasen beobachtet wird, mit typischen Wechselwirkungsparametern von $g = 10^{-2} - 10^{-1}$ [129]. Zudem ist die hier beobachtete thermooptische Wechselwirkung zeitlich verzögert.

³ Hierbei wurden entsprechend der Messung die Parameter $m_{\text{Ph}} = 7.6 \times 10^{-36}$ kg, $(\partial n/\partial T) = 1.0 \times 10^{-4}$ K⁻¹, $\Gamma_{\text{reabs.}} = (10 \pm 5)$ GHz, $t_{\text{pump}} = 1.0$ μ s, $\gamma = 0.8$, $\rho = \rho_{\text{Wasser}} = 1000$ kg \cdot m⁻³ und $c_s = c_{\text{Wasser}} = (4.2 \pm 2.0)$ kJ(kg \cdot K)⁻¹ verwendet. Für die Wärmekapazität wird der Wert von Wasser verwendet. Die Unsicherheit bezieht sich auf den unbekanntem Einfluss von Ammonyx-LO und thermosensitivem Polymer.

Experimente zu gekoppelten Kondensaten im Doppelmuldenpotential

Nachdem die Untersuchung des Photonengases im vorherigen Kapitel ein einzelnes Mikropotential adressiert hat, wird die Diskussion nun auf Experimente im Doppelmuldenpotential erweitert. Dabei rückt die Realisierung von Kopplung zweier räumlich getrennter Kondensatenmoden im Doppelmuldenpotential durch Tunneln von Photonen durch die Potentialbarriere in den Mittelpunkt der Untersuchung. Zunächst werden dazu Ergebnisse im polymerbasierten und anschließend im delaminierten Doppelmuldenpotential vorgestellt.

6.1 Messungen im polymerbasierten Doppelmuldenpotential

Zur Untersuchung der Kopplung im polymerbasierten Doppelmuldenpotential wird der Aufbau zur Analyse des Photonengases im einzelnen Mikropotential erweitert. Zusätzlich zu der spektralen Analyse mit einem Echelle-Gitterspektrometer, welches bereits in Abschnitt 5.1 vorgestellt wurde, wird der Aufbau zur Analyse um ein Interferometer und zwei Photonenvervielfacher erweitert. Wie in Abbildung 6.1 schematisch dargestellt ist, erlaubt das Mach-Zehnder-Interferometer eine Überlagerung der Emission aus den zwei Mulden, welche zusammen mit den beiden einzelnen Intensitätsprofilen und dem Signal des Gitterspektrometers auf dem Sensor der ICCD-Kamera abgebildet werden (Sensorfläche $13.3 \text{ mm} \times 13.3 \text{ mm}$ mit $2048 \text{ Pixel} \times 2048 \text{ Pixel}$). Eine beispielhafte Aufnahme ist in Abbildung 6.1b gezeigt, mit dem Spektrum im oberen und den (überlagerten) Intensitätsprofilen im unteren Sensorbereich. So lässt sich neben den Frequenzen mit dem Interferenzmuster auch die relative Phase zwischen den Kondensaten ermitteln. Darüber hinaus werden die Kondensatintensitäten zeitaufgelöst mit zwei Photonenvervielfachern (Typen R6357 und R928, Firma *Hamamatsu*) mit einer Bandbreite von 230 MHz gemessen.

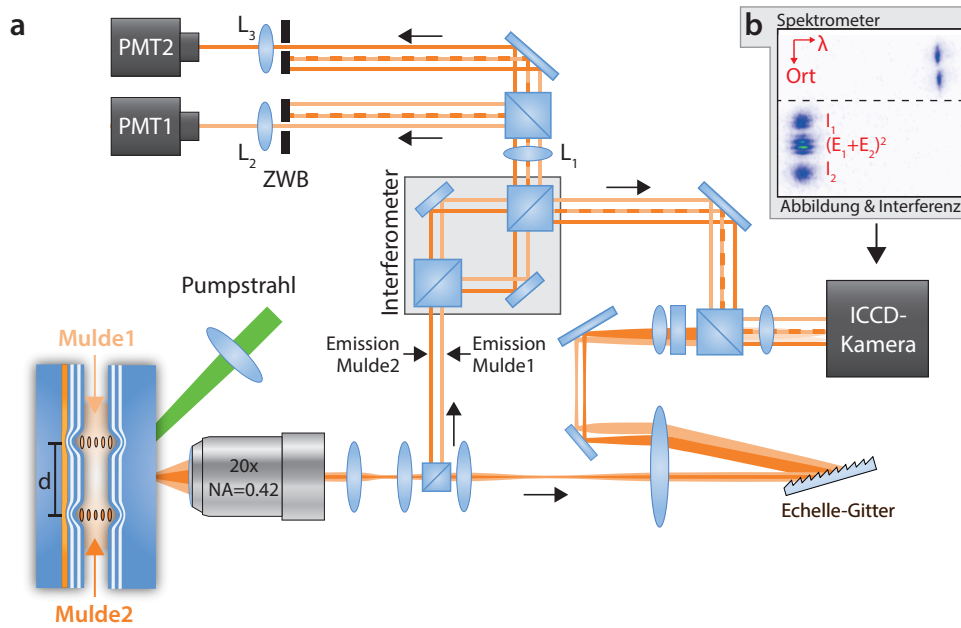


Abbildung 6.1 | Aufbau zur Untersuchung gekoppelter Kondensatmoden im Doppelmuldenpotential – **a**, Das Licht aus Mulden 1 und 2 wird wie zuvor mit einem Gitterspektrometer analysiert (vgl. Abbildung 5.1). Darüber hinaus lässt sich aus der räumlichen Überlagerung des Lichts in einem Mach-Zehnder-Interferometer die relative Phase zwischen den beiden Moden bestimmen. Die Intensitäten werden jeweils mit einem Photonenervielfacher (engl.: *photomultiplier tube*, PMT1,2) zeitaufgelöst gemessen. Dazu wird die jeweilige Intensität im Zwischenbild (ZWB) hinter der Linse L_1 ($f = 25$ cm) räumlich mit einer Blende herausgefiltert und kollimiert auf den Photonenervielfacher geleitet (L_2, L_3 $f = 5$ cm). **b**, Ausschnitt eines beispielhaften ICCD-Kamerabildes mit der Abbildung des Gitterspektrometers im oberen und die Abbildung der Intensitätsprofile I_1, I_2 und deren Interferenzbild $(E_1 + E_2)^2$ im unteren Bildbereich. Das Aufnahmezeitfenster der ICCD-Kamera ist hier $\Delta t = 20$ ns lang geöffnet.

6.1.1 Tunneln von Photonen und Kopplungsstärke

Zum Nachweis von Tunneln wird die in Abbildung 6.2a schematisch dargestellte Methode verwendet: Zwei räumlich separierte Potentialmulden 1, 2 werden mit dem thermosensitiven Polymer im Abstand $d = 8 - 15 \mu\text{m}$ induziert. Der minimale Abstand ist dabei durch die räumliche Breite der einzelnen Mikropotentiale limitiert. Die Potentialtiefe ist so gering gewählt, dass in jedem nur ein Energieniveau mit Frequenz ω_1 bzw. ω_2 liegt, wobei Mulde 1 durch einen dort größeren Wärmeeintrag des Heizlaser leicht rotverschoben ist ($\omega_1 < \omega_2$). Die Anordnung des Pumpstrahls stellt sicher, dass in guter Näherung ausschließlich Photonen in Mulde 1 injiziert werden. Im Verlauf der Zeit führt der (hier pumpstrahldominierte) thermooptische Effekt dann, wie in Abschnitt 5.2 untersucht, zu einer Verschiebung des Energieniveaus ω_1 über die Resonanz ($\omega_1 = \omega_2$) hinweg. Die Potentialstabilität zwischen den Mulden beträgt rund 3 GHz (Schuss-zu-Schuss). Beispielhafte Signale der Photonenervielfacher sind über die Zeit des Pumpimpulses für die Muldenabstände $d = (13.7 \pm 0.2) \mu\text{m}$ bzw. $d = (8.6 \pm 0.2) \mu\text{m}$ in Abbildung 6.2b dargestellt (hellblaue bzw. dunkelblaue Kurve), mit den Besetzungen für Mulde 1 (oben) und Mulde 2 (unten). Man beobachtet, dass die Photonen zu Beginn des Pulses nur Mulde 1 besetzen, sich

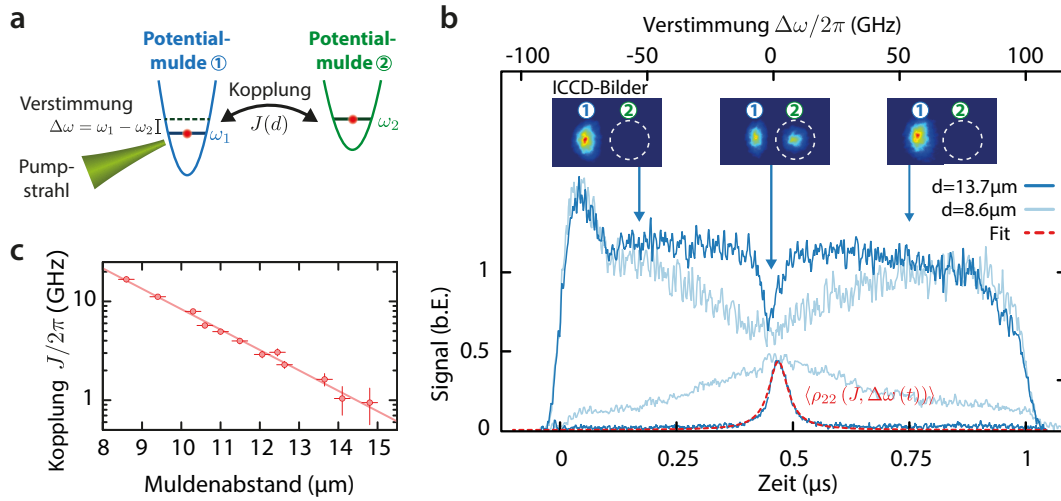


Abbildung 6.2 | Tunneln von Photonen zwischen den Potentialmulden – **a**, Schematische Darstellung der untersuchten Doppelmuldenpotentiale, mit verstimmtener Energieniveaus ω_1, ω_2 . **b**, Zeitabhängige Emission aus den Mulde 1 (obere Kurven) bzw. Mulde 2 (untere Kurven) bei den Abständen $d = 13.7 \mu\text{m}$ (dunkelblaue Kurve) und $d = 8.6 \mu\text{m}$ (hellblaue Kurve). Der hier pumpstrahl-dominierte thermo-optische Effekt verschiebt das Energieniveau aus Mulde 1 über die Zeit des Pumpimpulses. Unter Annahme einer zeitlich linearen Energieverschiebung kann daraus die Verstimmung $\Delta\omega(t)$ zwischen den Mulden berechnet werden (obere Achse). Die inneren Teilabbildungen zeigen räumliche Aufnahmen der Emission aus dem Doppelmuldenpotential zu ausgewählten Zeitpunkten. **c**, Ermittelte Tunnelkopplung als Funktion des Muldenabstands aus je 400 experimentellen Realisierungen (Punkte) und deren Standardabweichungen (Fehlerbalken) zusammen mit einer angepassten exponentiell abfallenden Funktion (Linie).

jedoch mit abnehmender Frequenzverstimmung auch in Mulde 2 aufhalten können. Dies lässt sich auch durch räumliche Abbildung der Emission der Doppelmulden auf der ICCD-Kamera bei kurzer Aufnahmezeit ($\Delta t = 20 \text{ ns}$) beobachten (innere Teilabbildung 6.2b). Die Photonen tunneln bei geringer Frequenzverstimmung durch die Potentialbarriere. Unter der Annahme, dass auch in dieser Konfiguration die Frequenzverschiebung linear mit der Zeit verläuft, kann die Zeitachse in eine Frequenzverstimmungsschse kalibriert werden (oben). Damit lässt sich über die Resonanzbreite und die stationäre Lösung der Bloch-Gleichungen die Kopplung J bestimmen (vgl. Abschnitt 2.3.2). Im ersten Schritt wird das Verhältnis J/Γ aus Tunnel- und Verlustrate aus dem erwarteten Verhältnis $\hat{\rho}_{11}(\Delta\omega = 0)/\hat{\rho}_{11}(\Delta\omega \rightarrow \infty) = 1 - 1/[2(1 + (\Gamma/2J)^2)]$ für jeden einzelnen Muldenabstand bestimmt. Im nächsten Schritt wird dann die Tunnelrate J aus Anpassung der Resonanzbreite ermittelt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.2c aufgetragen und stimmen innerhalb ihrer Fehlergrenzen mit dem erwarteten exponentiellen Abfall mit dem Muldenabstand überein. Eine mittlere Verlustrate $\Gamma = (11 \pm 5) \text{ GHz}$ ergibt sich dann aus den Tunnelraten und dem Besetzungsverhältnis auf der Resonanz. Die realisierten Tunnelraten liegen alle im Gigahertz-Bereich, was die Bandbreite der Photonenvervielfacher um wenigstens eine Größenordnung übersteigt, und somit in dieser Untersuchung keine Rabi-Oszillationen beobachtet werden können. Auch ist in den vorgestellten Messungen die Energieverschiebung innerhalb der Bandbreite ($\sim 100 \text{ MHz}$) deutlich kleiner als die Reabsorptionsrate des Farb-

stoffs (\sim GHz) und die realisierten Tunnelraten (\sim GHz), sodass angenommen werden kann, dass jeder Messpunkt der Intensitätsspuren in Abbildung 6.2b als Gleichgewichtszustand des Systems für die entsprechende Verstimmung $\Delta\omega$ angesehen werden kann.

6.1.2 Nachweis hybridisierter Eigenzustände

Im nächsten Schritt wird untersucht, ob die Eigenzustände des Systems in Anwesenheit von Kopplung (Abschnitt 2.3), in neue Eigenzustände ψ_{\pm} mit der charakteristischen Energielücke $\Delta E = 2J$ auf Resonanz überführt werden. Die Photonendichten und Frequenzen der Emission in den Doppelmulden während des Pumpulses werden nun zeitaufgelöst gemessen. Dafür wird das Aufnahme Fenster der ICCD-Kamera auf $\Delta t = 20 \text{ ns} \ll t_{\text{pump}}$ eingestellt. Ausgehend vom Beginn des Pumpulses wird die Position des Aufnahme Fensters mit jedem weiteren Puls sukzessive verzögert $t_i = \{0, 20, 40, \dots, 980\} \text{ ns}$, sodass sich über eine Abfolge von 50 Pulsen die Spektren, Photonendichten und Interferenzmuster über den gesamten Puls ergeben. Die experimentelle Konfiguration über die 50 Realisierungen wird dabei durch Stabilisierung der Resonatorlänge in guter Näherung konstant gehalten. Die frequenz aufgelöste Emission aus Mulde 1 ist gegen die Verstimmung für die Muldenabstände $d = 13.7 \mu\text{m}$ bzw. $d = 8.6 \mu\text{m}$ in Abbildung 6.3a,b aufgetragen, wobei erneut eine lineare Frequenzverschiebung mit der Zeit angenommen wird. Während man für den größeren Muldenabstand keine Aufspaltung der Eigenenergien beobachtet, findet man für den geringeren Abstand eine ausgeprägte Energielücke in der Umgebung von $\Delta\omega = 0$. Die beobachtete Emission stimmt dabei gut mit der erwarteten Hybridisierung der Eigenzustände gemäß Gleichung (2.90) überein (gestrichelte Linie), wobei die in Abschnitt 6.1.1 aus der Resonanzbreite bestimmte Kopplung $J/2\pi = 16.7 \text{ GHz}$ herangezogen wird. Interessanterweise zeigen die Aufnahmen der Photonendichte (innere Teilabbildung) nicht verschwindende Emission zwischen den Mulden im Bereich der klassisch verbotenen Potentialbarriere, was darauf hindeutet, dass das System für negative Verstimmungen (i) im symmetrischen Eigenzustand $\psi_{\text{sym}} = \psi_{-}$ ist. Für positive Verstimmungen (ii) verschwindet die Emission im Zentrum und das System ist im antisymmetrischen Eigenzustand $\psi_{\text{antisym}} = \psi_{+}$. Der Wechsel zwischen den Eigenzuständen zeigt sich auch durch die Bestimmung der relativen Phase im Interferenzmuster, welche die erwartete Phasendifferenz $\Delta\phi = \pi$ zwischen den Zuständen aufweist (innere Teilabbildung). Die theoretisch erwartete Emission aus Mulde 1 $\propto |\langle \psi_{\pm} | \psi_1 \rangle|^2$ als Funktion der Verstimmung unter Vernachlässigung von Verlusten ist in Abbildung 6.3c aufgetragen. Dabei zeigen die Messdaten aus Abbildung 6.3b eine stärkere Unterdrückung der Emission in den schwächeren Bereichen. Dies wird darauf zurückgeführt, dass dort hauptsächlich Überlapp mit der nicht gepumpten Mulde 2 besteht und das Signal aufgrund von Photonenverlusten abgeschwächt ist.

Abschließend ergeben sich aus den Energielücken bei verschiedenen Muldenabständen über den Zusammenhang $\Delta E = 2\hbar J$ direkt die Tunnelkopplungen, welche in Abbildung 6.4 aufgetragen sind. Die Werte stimmen innerhalb ihrer Fehlergrenzen mit den zuvor ermittelten Werten aus den Resonanzbreiten überein (gestrichelte Linie), wobei die Auflösung des verwendeten Spektrometers keine Messung der Energielücke für Muldenabstände jenseits $12 \mu\text{m}$ erlaubt.

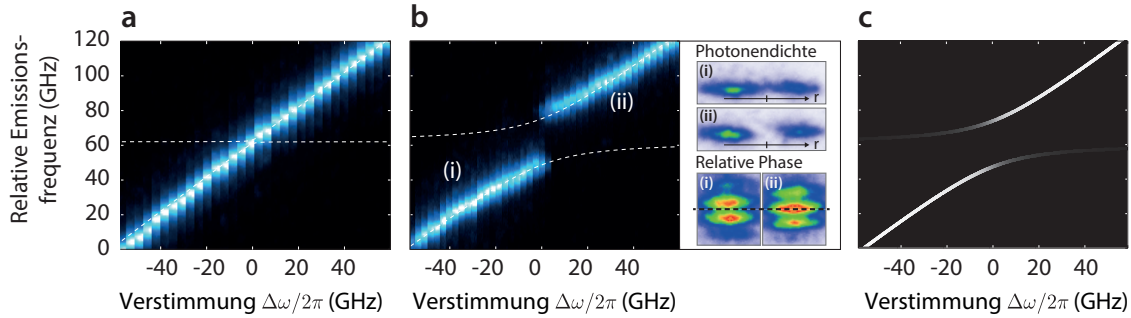


Abbildung 6.3 | Hybridisierung der Eigenzustände im Doppelmuldenpotential – **a,b**, Spektren der Emission aus Mulde 1 als Funktion der Verstimmung für Muldenabstände $d = 13.7 \mu\text{m}$ mit Tunnelkopplung $J/2\pi = 1.7 \text{ GHz}$ (**a**) bzw. $d = 8.6 \mu\text{m}$ mit $J/2\pi = 16.7 \text{ GHz}$ (**b**). Für die Messung werden zeitaufgelöste Spektren mit einer ICCD-Kamera mit kurzem Aufnahmezeitfenster erstellt. Über wiederholte Messung mit sukzessive verzögerter Position des Aufnahmezeitfensters wird der Puls vollständig abgetastet. Die gestrichelten Linien zeigen den erwarteten Verlauf der Eigenenergien bei den entsprechenden Kopplungen. Rechts oben in **b** sind Kameraaufnahmen der Photonendichte im Mikroresonator für Verstimmungen von Mulde 1 unterhalb (i) und oberhalb (ii) Mulde 2 dargestellt, mit den entsprechenden Interferometeraufnahmen darunter. **c**, Theoretisch erwartete Emission von Mulde 1 für $J/2\pi = 16.7 \text{ GHz}$ unter Vernachlässigung von Verlusten.

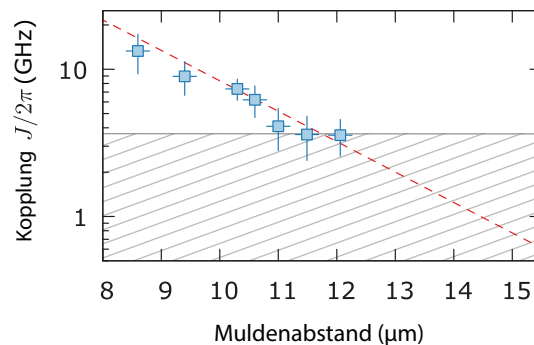


Abbildung 6.4 | Energielücke im Doppelmuldenpotential – Dargestellt ist die aus der Energielücke der Eigenzustände auf Resonanz bestimmte Tunnelkopplung $J = \Delta E/2\hbar$ (Punkte) mit Standardabweichung über 50 Realisierungen (Fehlerbalken). Die zuvor angepasste Funktion an die Tunnelkopplungen aus den Resonanzbreiten (vgl. Abbildung 6.2c) ist zum Vergleich erneut dargestellt (gestrichelte Linie). Aufgrund der begrenzten Spektrometereauflösung kann die Kopplung für Energielücken kleiner als $\Delta\nu_{1/e} = 3.6 \text{ GHz}$ mit diesem Verfahren nicht bestimmt werden (schraffierter Bereich).

6.2 Messungen im delaminierten Doppelmuldenpotential

Im folgenden Abschnitt wird Tunneln von Photonen durch die Potentialbarriere im delaminierten Doppelmulden vorgestellt. Anschließend werden erstmals Rabi-Oszillationen in einem solchen System untersucht. Zeitaufgelöste Messungen werden im Rahmen dieser Arbeit an einer delaminierten Doppelmuldenstruktur durchgeführt. In einem ersten Schritt war es nötig die experimentellen Parameter für dieses System zu charakterisieren, was im Rahmen der

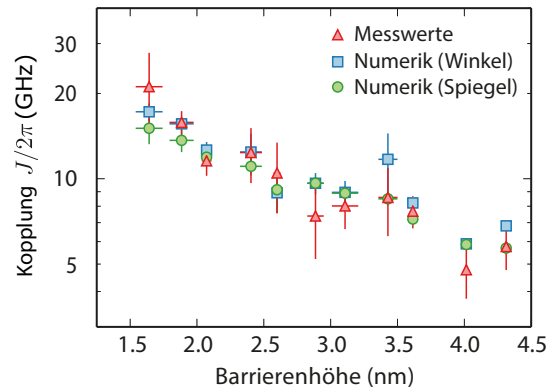


Abbildung 6.5 | Tunneln im delaminierten Doppelmuldenpotential – **a**, Mirau-Aufnahme der untersuchten Doppelmuldenpotentiale mit konstantem Abstand $d = (7.8 \pm 0.3) \mu\text{m}$ und kontrolliert veränderter Barrierenhöhe. **b**, Ermittelte Tunnelkopplung als Funktion der Barrierenhöhe durch Messung der Resonanzbreite (Dreiecke) und numerische Abschätzung mit dem Schießverfahren über den Mischungswinkel (Quadrate) sowie Ausgleich der Muldenverstimmung durch Potentialspiegelung an der Barriere (Kreise). Die Ergebnisse der 30 untersuchten Potentiale sind zur besseren Übersicht zusammengefasst aufgetragen mit Standardabweichungen (Fehlerbalken).

Masterarbeit von Erik Busley durchgeführt wurde [130]. Dabei wurden nach dem im vorherigen Abschnitt beschriebenen Verfahren delaminierte Doppelmuldenpotentiale mit konstantem Muldenabstand $d = (7.8 \pm 0.3) \mu\text{m}$ und gezielt variierten (Barrieren-) Höhen (zwischen 1.5 – 5 nm) auf Tunnelkopplung untersucht. Die Messergebnisse der Tunnelkopplungen sind in Abbildung 6.5 zusammengefasst aufgetragen (Dreiecke). Darüber hinaus werden im Rahmen dieser Arbeit die Höhenprofile der Doppelmulden mit dem Schießverfahren numerisch untersucht. Um aus den Energieabständen die Tunnelkopplung zu extrahieren ist es dazu nötig, entweder sicherzustellen, dass die Verstimmung zwischen den Mulden verschwindet oder den Mischungswinkel zu ermitteln und damit auf die Tunnelrate zu schließen. Die Ergebnisse sind ebenfalls in Abbildung 6.5 aufgetragen, wobei „Numerik (Spiegel)“ die Methode bei verschwindender Verstimmung (Kreise) und „Numerik (Winkel)“ die Methode über den Mischungswinkel (Quadrate) bezeichnen. Beide Verfahren werden in Anhang A beschrieben. Die numerischen Tunnelkopplungen stimmen innerhalb ihrer Unsicherheit mit den gemessenen Tunnelkopplungen überein. Die mittleren Abweichungen von den Messdaten betragen $\Delta J_{\text{Winkel}}/2\pi \approx 2.3 \text{ GHz}$ bzw. $\Delta J_{\text{Spiegel}}/2\pi \approx 2.8 \text{ GHz}$ und sind ein Maß für die Vorhersagequalität der Tunnelrate mit dem Schießverfahren. Hierbei ist zu beachten, dass mit dem Schießverfahren stets nur ein eindimensionaler Schnitt durch die eigentlich zweidimensionale Potentialstruktur untersucht werden kann. Insgesamt sind die realisierten Tunnelkopplungen von der gleichen Größenordnung wie die Werte, die aus den polymerbasierten Doppelmulden extrahiert wurden.

6.2.1 Zeitaufgelöste Messung kohärenter Oszillationen

Die Tunnelkopplung liegt unabhängig von der Erzeugungsmethode des Doppelmuldenpotential im Gigahertz-Bereich. Diese Zeitskala kann von den verwendeten Photonenvervielfachern nicht aufgelöst werden, sodass die Experimente bislang auf die Messung der stationären Besetzungen im Doppelmuldenpotential beschränkt waren und keine Untersuchung der zeitabhängigen optischen Blochgleichungen im System des farbstoffgefüllten Mikroresonator möglich war. Dazu ist eine Detektionsbandbreite notwendig, welche die Tunnelkopplung übersteigt, sodass überprüft werden kann, ob es zu Rabi-Oszillationen in den Besetzungen kommt. Besonders interessant ist dabei der zusätzliche Einfluss der Kopplung der Photonen an die Farbstoffmoleküle über Absorption und Reemission, deren Stärke im Experiment durch die Abschneidewellenlänge variiert werden kann, mit zunehmendem Kontakt mit dem Molekülreservoir vom roten zum grünen Spektralbereich. Für eine ausreichend hohe Zeitauflösung von wenigen Picosekunden wird die Emission des Doppelmuldenpotentials mit einer Streak-Kamera untersucht (Typ C10910, Firma *Hamamatsu*). Das Funktionsprinzip ist detailliert z.B. in Ref. [39] beschrieben. Zusammengefasst, wird dabei das zu untersuchende Licht auf den horizontalen Eingangsspalt der Streak-Kamera abgebildet. Dahinter löst der verbleibende eindimensionale (Licht-)Streifen (engl.: *Streak*) Elektronen auf einer Photokathode aus, welche zum einen entlang der z -Achse über eine konstante Anodenspannung beschleunigt und darüber hinaus durch das Anlegen einer zeitlich rasch ansteigenden Vertikalspannung zusätzlich abgelenkt werden. Die Elektronen treffen auf eine Mikrokanalplatte durch die sie vervielfacht werden, bevor sie auf einen Phosphorschirm treffen und dort ein Phosphoreszenzmuster erzeugen. Dieses wird mit einer CCD-Kamera ($640 \text{ Pixel} \times 480 \text{ Pixel}$) digitalisiert, wobei im Bild horizontal die Orts- und vertikal die Zeitinformation angeordnet sind, mit dem Zeitverlauf von oben nach unten. Je nach eingestellter Steigung der vertikalen Spannungsrampe können nach diesem Prinzip mit der Streak-Kamera Zeitspannen zwischen $0.1 - 50 \text{ ns}$ mit einer Zeitauflösung bis minimal 1 ps untersucht werden. Durch die geringe Quanteneffizienz des Systems von rund einem Prozent in Kombination mit den typischerweise nur geringen Signalniveau im Experiment ($\sim \text{nW}$), ist es notwendig Streak-Kamera Daten aus vielen Realisierungen (typisch > 1000) miteinander zu kombinieren.

Die Streak-Kamera wird mit dem in Abbildung 6.6a schematisch dargestellten Aufbau verwendet. Dabei wird die Emission aus dem Doppelmuldenpotential auf den Spalt der Streak-Kamera abgebildet. Hierzu ist es nötig, die Emission der im Mikroresonator vertikal angeordneten Doppelmulden mit einem Dove-Prisma (Typ PS992M-A, Firma *Thorlabs*) 90° um die z -Achse in die Horizontale zu drehen. Für eine zeitlich gepulste Anregung der Farbstoffmoleküle wird im Experiment ein Pikosekundenpulslaser (Typ: PL2201, Firma *EKSPLA*) mit Pulslängen von 15 ps verwendet. Ein Teil des Pumpimpulses wird als Zeit-Referenzpuls darüber hinaus direkt auf den Spalt der Streak-Kamera abgebildet. Dies ist nötig, da die Schwankungen (engl.: *jitter*) in den elektronischen Triggersignalen die Zeitauflösung der Streak-Kamera deutlich übersteigen. Damit Emission und Zeit-Referenzpuls beide auf einer Streak-Aufnahme der Zeitspanne 500 ps sichtbar sind, muss die Länge der optischen Wege bis auf wenige Zentimeter übereinstimmen. Dies wird durch einen Verzögerungspfad mit einem Retroreflektor für den Referenzpuls bewerkstelligt. Über die Zeitposition des Referenzpulses auf der Streak-Aufnahme lassen sich dann

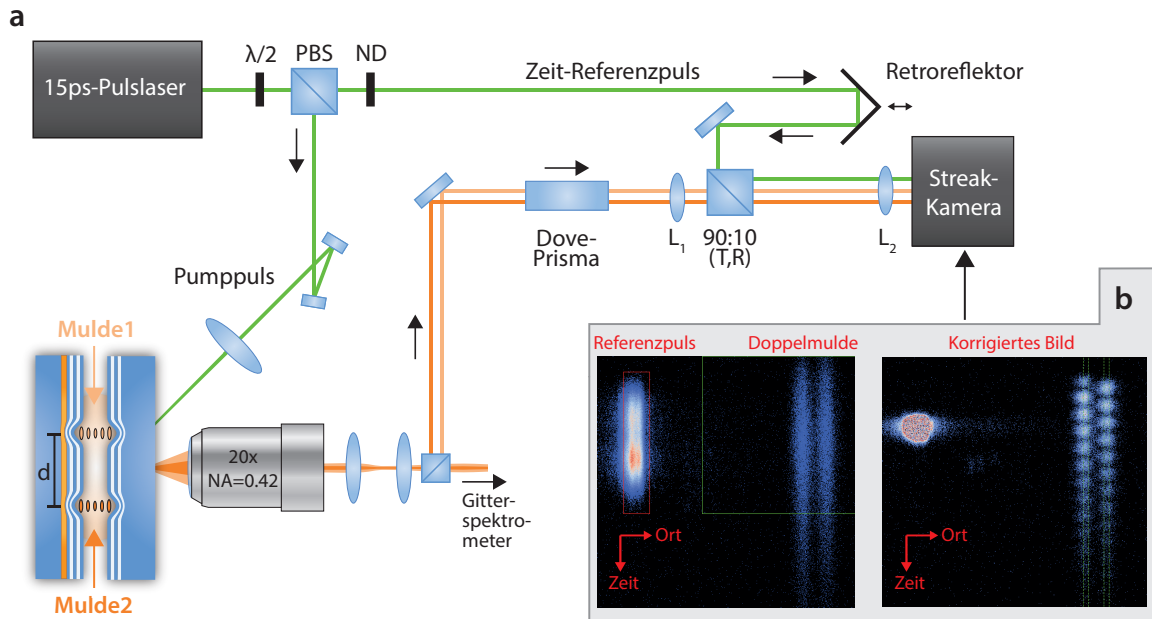


Abbildung 6.6 | Apparativer Aufbau zur zeitaufgelösten Beobachtung des optischen Quantengases im Doppelmuldenpotential – **a**, Die Emission aus dem Doppelmuldenpotential wird auf dem horizontalen Eingangsspalt der Streak-Kamera abgebildet. Davor wird die vertikale Anordnung des Doppelmuldenpotential mit einem Dove-Prisma 90° um die z-Achse in die Horizontale gedreht. Die Farbstoffmoleküle werden mit Picosekundenpulsen ($\lambda = 532 \text{ nm}$) angeregt, deren Intensität über eine Kombination aus Verzögerungsplatte ($\lambda/2$) und polarisierendem Strahlteilerwürfel (PBS) variabel einstellbar ist. Ein Teil des Pulslichts wird über einen Filter (ND) weiter abgeschwächt und als Zeit-Referenzpuls ebenfalls auf die Streak-Kamera geleitet. Die Längen der optischen Wege von Emission und Zeit-Referenzpuls sind über einen Verzögerungspfad angeglichen. Die verwendeten Linsen zur Abbildung (L_1), bzw. Fokussierung auf den Eingangspalt (L_2 , Zylinderlinse) haben die Brennweiten $f_1 = 20 \text{ cm}$ bzw. $f_2 = 5 \text{ cm}$. Weiterhin lässt sich die Emission auch mit Nanosekunden-Zeitauflösung mit einem Gitterspektrometer untersuchen (vgl. Abschnitt 6.1). **b**, Unkorrigierte Überlagerung von 10000 Streak-Aufnahmen (links) mit dem Zeit-Referenzpuls in der linken und der Emission des Doppelmuldens in der rechten Bildhälfte. Das rechte Teilbild zeigt eine gemäß den Zeit-Referenzpulsen korrigierte Überlagerung.

Aufnahmen übereinander legen. Beispielhaft ist in Abbildung 6.6b (links) eine unkorrigierte Überlagerung von 10000 Streak-Aufnahmen abgebildet. Erst wenn jede Aufnahme gemäß der Position des Zeit-Referenzpulses korrekt aufeinander geschoben wird, ergibt sich die hohe Zeitauflösung (rechts).

Das für die Untersuchung verwendete Doppelmuldenpotential ist in Abbildung 6.7a gezeigt. Dabei wurde die Geometrie noch ein wenig kleiner gewählt als bei den Untersuchungen zuvor, sodass sich eine höhere Tunnelkopplung ergibt. Numerisch findet man $J/2\pi = (37 \pm 2) \text{ GHz}$ was auf Resonanz der Mulden der erwarteten Rabi-Frequenz entspricht. Die Oszillation der Besetzungen steht dabei in Konkurrenz zu anderen Dekohärenzraten im dissipativen, farbstoffgefüllten Mikroresonatorsystem, wie es in Abbildung 6.7b schematisch dargestellt ist. Im Experiment wird mit dem Picosekundenpuls eine initiale Anregung von Farbstoffmolekülen realisiert. Dabei hat der fokussierte Puls laserstrahl in guter Näherung lediglich mit Mulde 1

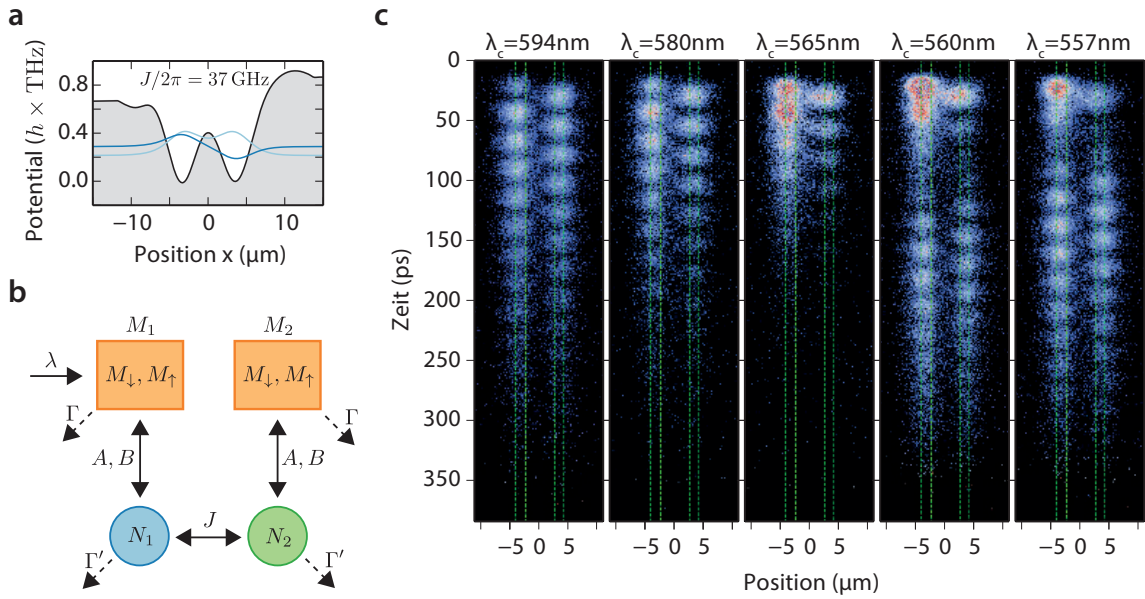


Abbildung 6.7 | Zeitaufgelöste Besetzungen im dissipativen Doppelmuldenpotential – **a**, Aus der Mirau-Aufnahme extrahiertes Potential der delaminierten Doppelmulde, mit den gekoppelten Zuständen ψ_+ , ψ_- . Die ungleiche Höhe der äußeren Potentialwände hat keine merkliche Auswirkung auf die Untersuchung und ist bedingt durch die Erzeugung des Potentials, zu einem Zeitpunkt als das Optimierungsverfahren zur Delamination noch nicht im Experiment implementiert war. **b**, Schematische Übersicht aller Prozesse im dissipativen System des Doppelmuldenpotentials mit räumlich getrennten Farbstoffreservoirs M_1, M_2 mit jeweils Molekülen im Grund- und angeregten Zustand M_\downarrow, M_\uparrow und Photonendichten N_1, N_2 . Die Umwandlung zwischen Photonen und Molekülanregungen wird durch die Einstein-Koeffizienten A, B beschrieben. Dazu kommt die kurze Anregung der Moleküle in Mulde 1 durch den Pumpimpuls λ , die Tunnelkopplung zwischen den Mulden J und die Verluste durch strahlungslose Desaktivierung von Molekülanregungen Γ und Spiegeltransmission Γ' . **c**, Streak-Kamera-Aufnahmen der Photonendichten im Doppelmuldenpotential für verschiedene Abschneidewellenlängen λ_c , mit der schwächsten Kopplung an das Farbstoffreservoir bei 594 nm und der stärksten bei 557 nm. Die Bilder sind jeweils zusammengesetzt aus 10000 Realisierungen.

räumlichen Überlapp¹. Die Anregungen werden dann gemäß der Einstein'schen Ratengleichungen (Mit Einstein-Koeffizienten A, B) in Photonen in Mulde 1 umgewandelt, welche wiederum durch Reabsorption erneut Moleküle anregen können. Nun erwartet man aufgrund der Kopplung J , dass Photonen in Mulde 2 tunneln, wo sie gemäß der Ratengleichungen mit den Farbstoffmolekülen im räumlichen Überlapp mit Mulde 2 wechselwirken und zu Anregungen führen. Dazu kommen noch Verluste durch Spiegeltransmission Γ' und strahlungsloser Desaktivierung in den Molekülr reservoiren Γ , sodass die Dynamik des Systems insgesamt von einer Vielzahl teils konkurrierender Prozesse abhängt, deren Raten, mit Ausnahme der Verluste, experimentell kontrolliert eingestellt werden können.

¹ Es wird angenommen, dass kein Transport von angeregten Molekülen durch Diffusion zwischen M_1 nach M_2 stattfindet.

Im Folgenden wird der Einfluss des Verhältnisses aus Tunnelkopplung und Einstein-Koeffizienten untersucht. Die Kopplung der Photonen an das Molekülreservoir wird über die Abschneidewellenlänge λ_c variiert, wobei die Tunnelkopplung konstant ist. Messungen werden für $\lambda_c = \{594; 580; 565; 560; 557\}$ nm durchgeführt mit zunehmender Kopplung der Photonen an das Molekülreservoir, wobei für jede Wellenlänge Streak-Kamera Daten von 10000 Realisierungen überlagert werden. Die Wiederholrate des Experiments liegt bei 40 Hz und die Zeitauflösung wird durch die Genauigkeit der Zeit-Referenzkorrektur $\Delta t = 3.8$ ps (Standardabweichung) begrenzt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.7c aufgetragen. Man beobachtet bei allen Abschneidewellenlängen eine oszillierende Besetzung zwischen den Mulden, wobei die Gesamtpopulation über die Dauer der Aufnahme verschwindet. Für Abschneidewellenlängen $\lambda_c \leq 560$ nm kommt es darüber hinaus nach einer raschen Abnahme der Gesamtpopulation zu einer Wiederkehr der Photonen und entsprechenden Oszillationen.

Zur genaueren Studie werden die Zeitspuren der Photonendichten ausgewertet (gestrichelte Linien in Abbildung 6.7), beginnend mit den Daten bei $\lambda_c = 594$ nm, wie in Abbildung 6.8a halb-logarithmisch aufgetragen ist. Die Photonendichten von Mulde 1 und 2 (blaue bzw. rote Punkte) sind hier auch zur Gesamtpopulation zusammengefasst (gelbe Linie). Letztere weist im Gegensatz zu den einzelnen Muldenbesetzungen kein ausgeprägtes oszillatorisches Verhalten auf. Eine verbleibende Restamplitude ist höchstwahrscheinlich auf die Wahl der räumlichen Schnitte durch die Streak-Aufnahmen zurückzuführen. Die bereits qualitativ beobachtete Abnahme der Gesamtpopulation stellt sich als exponentieller Abfall mit Rate $\Gamma = (15.3 \pm 0.1)$ GHz heraus (schwarze Linie), welche die Gesamtverlustrate im dissipativen System charakterisiert (hierin sind Γ und Γ' kombiniert). Für eine genauere Untersuchung der Oszillationen ist es hilfreich, die Photonendichte zu jedem Zeitpunkt normiert zu betrachten. Es gilt dann zu allen Zeitpunkten $\rho_{11}(t) + \rho_{22}(t) = 1$. Die normierten Besetzungen sind in Abbildung 6.8b,c aufgetragen. Aus den (kohärenten) Oszillationen ergibt sich gemäß der optischen Bloch-Gleichungen durch Anpassen von $\sim \sin^2(\tilde{\Omega}t/2 + \phi_0)$ (schwarze Linie) die Rabi-Frequenz $\tilde{\Omega}/2\pi = (42.17 \pm 0.05)$ GHz, mit $\Delta\phi_0 = \pi$ zwischen den Mulden. Daneben beobachtet man einen limitierten Kontrast der Oszillationen (Abbildung 6.8b,c), welcher sich durch die Genauigkeit der Zeit-Referenzkorrektur $\Delta t = 3.8$ ps erklären lässt. Unabhängig davon beobachtet man einen leichten Unterschied in den mittleren Besetzungen $\bar{\rho}_{11}, \bar{\rho}_{22}$ (horizontale Linien) zwischen den Mulden. Eine mögliche Erklärung für diesen Effekt ist eine verbleibende Verstimmung zwischen den Mulden². Aus den Anpassungen lässt sich unter Zuhilfenahme von Gleichungen (2.105) und (2.106) die Tunnelrate $J = \sqrt{2\tilde{\Omega}} / \sqrt{\bar{\rho}_{11}/\bar{\rho}_{22} + 1} = (38 \pm 3)$ GHz berechnen. Dieser Wert stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der für das Doppelmuldenpotential numerischen bestimmten Tunnelkopplung überein.

Analog ist die Auswertung der Daten bei Abschneidewellenlänge 557 nm in Abbildung 6.8d-f aufgetragen. Hier wird, anders als zuvor, zunächst ein rascher (exponentieller) Abfall der Gesamtpopulation mit einer Rate $\Gamma_1 = (51 \pm 1)$ GHz beobachtet. Danach wächst die Zahl an Photonen

² Vor der Messung werden die Mulden über Verkipfung der Spiegel in Resonanz gebracht. Dazu wird die Fluoreszenz mit dem Gitterspektrometer beobachtet. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass erstens die Präzision der Verkipfung nicht ausreichend ist und zweitens, die Verkipfung sich über die Messung geringfügig verändert.

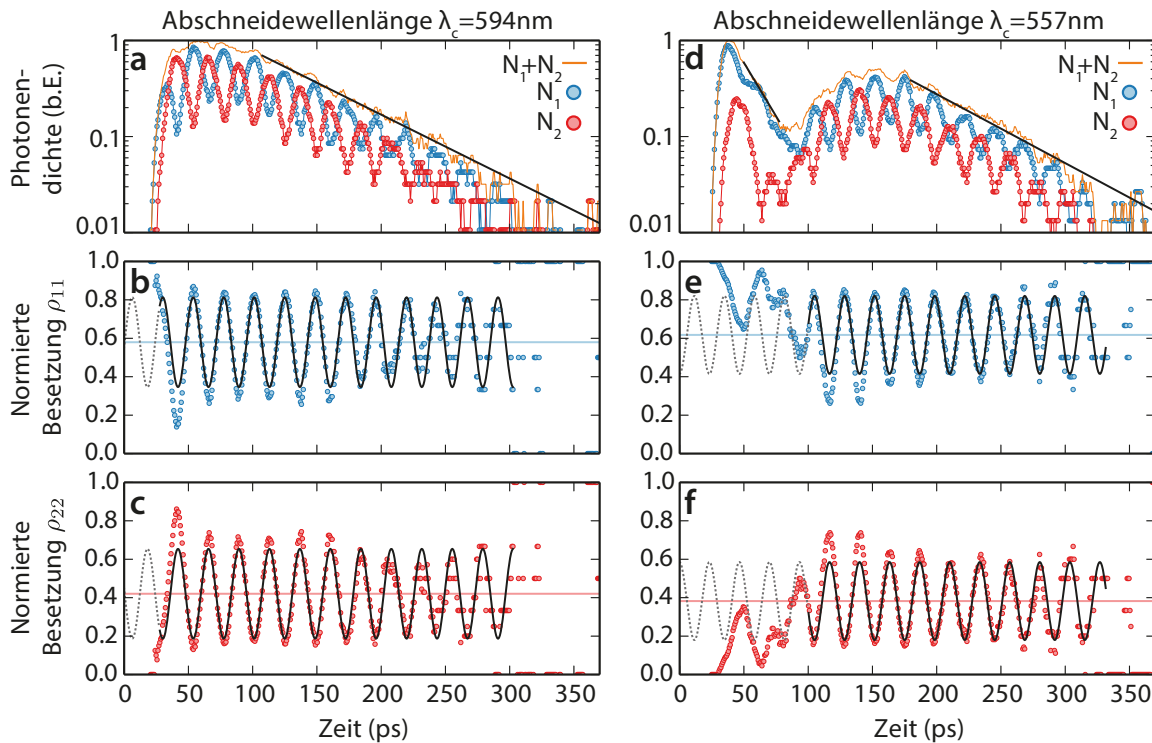


Abbildung 6.8 | Analyse der Besetzung im Doppelmuldenpotential – **a,d** Halblogarithmische Darstellung der Photonenendichten von Mulde 1 (blaue Punkte), Mulde 2 (rote Punkte) und der Gesamtpopulation (gelbe Linie) und angepassten exponentiellen Abfällen (schwarze Linien) als Funktion der Zeit für die Abschneidewellenlänge 594 nm (**a**) bzw. 557 nm (**d**). Weiter sind die normierten Besetzungen aufgetragen für $\lambda_c = 594$ nm (**b,c**) und $\lambda_c = 557$ nm (**e,f**) mit angepassten Oszillationen (schwarze Linien) und mittleren Besetzungen (horizontale Linien).

wieder an, verbunden mit einer Wiederkehr der Oszillation nach rund 80 ps und schlussendlich einem erneuten Abfall mit $\Gamma_2 = (16.5 \pm 0.2)$ GHz ähnlich den Daten von $\lambda_c = 594$ nm. Diese Beobachtungen geben Hinweise darauf, dass möglicherweise die zunächst in Mulde 1 emittierten Photonen nach dem Tunneln in Mulde 2 aufgrund der bei $\lambda_c = 557$ nm deutlich höheren Reabsorptionsrate, dort hauptsächlich in molekulare Anregungen umgewandelt werden. Dazu trägt auch der zunächst vernachlässigbare Anregungsgrad der Farbstoffmoleküle im räumlichem Überlapp mit Mulde 2 bei. In Folge kommt es mehr und mehr zu einer Gleichgewichtsbesetzung zwischen der mittleren Photon- und Anregungszahl im System, wodurch sich eine wiederkehrende Photonenemission erklären ließe. Weiter geben die Daten in Abbildungen 6.8e,f Evidenzen auf einen Phasensprung der Oszillation am Zeitpunkt 80 ps, bei dem auch das lokale Minimum in der Gesamtpopulation beobachtet wird. Eine genaue Untersuchung dieses Sachverhaltes steht bislang aus, auch können die Daten nicht klären, ob das Verhalten mit Thermalisierung in Verbindung gebracht werden kann. Um diese Fragestellung umfangreicher zu untersuchen, wird derzeit in der Arbeitsgruppe von Prof. Johann Kroha (Universität Bonn) eine theoretische Studie des dissipativen Systems durchgeführt.

Abschließend sind die ermittelten Raten für alle untersuchten Abschneidewellenlängen in Tabelle 6.1 zusammengefasst. Hierbei zeigt sich mit Ausnahme der Messung bei $\lambda_c = 565$ nm, eine Übereinstimmung der Tunnelkopplung mit dem numerischen Wert für das Doppelmuldenpotential³.

λ_c (nm)	Γ_1 (GHz)	Γ_2 (GHz)	$\tilde{\Omega}/2\pi$ (GHz)	$J/2\pi$ (GHz)
594	15.3 ± 0.1	-	42.17 ± 0.05	38 ± 3
580	19.1 ± 0.2	-	40.85 ± 0.07	35 ± 3
565	30.3 ± 0.2	-	39.60 ± 0.10	25 ± 5^3
560	44.8 ± 0.7	16.4 ± 0.3	43.15 ± 0.09	37 ± 6
557	51.3 ± 1.0	16.5 ± 0.2	42.80 ± 0.10	37 ± 6

Tabelle 6.1 | Übersicht der experimentell ermittelten Größen im dissipativen Doppelmuldenpotential für verschiedenen Abschneidewellenlängen λ_c mit den Raten für den Abfall der Gesamtpopulation Γ_1, Γ_2 , der Rabi-Frequenzen $\tilde{\Omega}$ und Tunnelkopplung J .

Es kann zusammengefasst werden, dass sowohl in polymerbasierten, wie in delaminierten Mikropotentialen das Tunneln von Photonen des Kondensats durch die Potentialbarriere beobachtet wird und sich damit beide Methoden für die Erzeugung von variablen Potentialstrukturen für gekoppelte Photonenkondensate eignen. Die realisierten Tunnelkopplungen liegen allesamt im Gigahertz-Bereich und skalieren mit dem Abstand der Mulden, bzw. der Höhe der Potentialbarriere. Neben einer Hybridisierung der Eigenzustände werden auch Rabi-Oszillationen beobachtet mit denen sich in zukünftigen Arbeiten der dissipative Charakter des Systems weiter untersuchen lässt. Welches der beiden Erzeugungsverfahren für Mikropotentiale für weitere Arbeiten geeigneter ist, lässt sich pauschal nicht beantworten. Der Vorteil der polymerbasierten Potentiale ist die Variabilität der Tunnelkopplung im Experiment, welche mit dem Heizlaser und Galvo-Scanner über den Abstand der Mulden und die Potentialtiefe dynamisch verändert werden kann. Andererseits muss technisch sichergestellt werden, dass das Potential über viele Realisierungen möglichst konstant bleibt. Diese Bedingung ist im delaminierten Potential leichter realisierbar, da Muldenabstand und Barrierenhöhe konstant sind und somit nur die Mikroresonatorlänge stabilisiert sein muss. Außerdem können die Potentiale und erwarteten Tunnelkopplungen bereits vorab, nach Messung des Oberflächenprofils mit einem Mirau-Interferometer, numerisch abgeschätzt werden. Dafür muss für jede zu untersuchende Konfiguration zuvor eine geeignete delaminierte Struktur erzeugt werden.

³ Möglicherweise kommt es bei der Messung $\lambda_c = 565$ nm bereits zu einer starken Reabsorption der Photonen auf der Zeitskala des Tunnels. Anders als bei den Messungen $\lambda_c \leq 560$ nm bleibt hier jedoch eine Wiederkehr der Oszillationen aus, sodass für die Bestimmung der mittleren Besetzung und damit der Tunnelkopplung der Bereich der rasch abfallenden Photonenzahl ($t < 100$ ps) herangezogen werden muss. Die Messwerte im Bereich starker Reabsorption, beispielsweise bei $\lambda_c = 557$ nm (Abbildungen 6.8e,f), legen jedoch nahe, dass eine mittlere Besetzung erst für Zeiten $t > 100$ ps vorliegt. Dies würde erklären, dass hier eine Abweichung von der theoretischen Erwartung beobachtet wird.

Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Doktorarbeit wurden variable Fallenpotentiale für Licht in einem farbstoffgefüllten Mikroresonator realisiert, und das Photonengas in diesen Fallenpotentialen untersucht. Die Resultate lassen sich dabei in drei wesentliche Punkte zusammenfassen:

1. Maßgeschneiderte Fallenpotentiale können sowohl durch Brechungsindexmodulation mit einem thermosensitiven Polymer, als auch durch lokale Änderung der Mikroresonatorlänge durch Auswölbung der Spiegeloberfläche mittels Delamination erzeugt werden. Dabei eignen sich beide Techniken variable Fallenpotentiale zu realisieren die gleichzeitig hohe Speicherzeiten für das Photonengas garantieren. Der Vorteil der Brechungsindexmodulation ist die Möglichkeit einer dynamischen Veränderung der Potentiale, wohingegen die Stärke der statischen Strukturen durch Delamination ihre Stabilität und ihre Anwendungsmöglichkeit zur Oberflächenoptimierung der Spiegel, einhergehend mit einer Reduktion der Streuverluste, ist.
2. Experimentell können sowohl Thermalisierung, als auch Bose-Einstein-Kondensation des Photonengases in einem einzelnen (harmonischen) Mikrofallenpotential spektral nachgewiesen werden. Hierbei zeigt sich, dass sich das Photonengas trotz der geringen Systemgröße der Mikrofalle weit abseits des thermodynamischen Limes durch die Bose-Einstein Verteilung beschreiben lässt, wobei die Kondensation bereits bei 68 Photonen im Fallenpotential beobachtet wird. Darüber hinaus lässt sich eine (schwache) retardierte thermooptische Selbstwechselwirkung des Photonenkondensats von $g_{\text{eff}} \sim 10^{-5}$ durch den Nachweis einer Vergrößerung des Modendurchmessers um wenige Prozent ausmachen.
3. Abschließend zeigen Experimente im Doppelmuldenpotential eine Tunnelkopplung von Kondensatmoden, einhergehend mit der Hybridisierung der Eigenzustände des Zwei-Niveau-Systems. Die Kopplungsfrequenz liegt im Gigahertz-Bereich und skaliert dabei wie erwartet mit der Potentialgeometrie. Eine Betrachtung der Muldenbesetzungen im Picosekundenbereich mit einer Streak-Kamera zeigt ausgeprägte kohärente (Rabi-) Oszillationen, die durch die Kopplung der Photonen an das Farbstoffreservoir signifikant beeinflusst werden.

Aus den Resultaten und der technischen Möglichkeit variable Fallenpotentiale für das Photonengas realisieren zu können, ergeben sich eine Reihe neuer physikalischer Fragestellungen: Beispielsweise ist es lohnenswert, die Eigenschaften des gekoppelten dissipativen Doppelmuldenystems genauer zu untersuchen und den Einfluss der unterschiedlichen Prozesse auf die Dynamik der Zustandsbesetzungen weiter zu verstehen, etwa durch Messungen des Einflusses der anfänglichen Besetzungen in beiden Mulden oder bei unterschiedlichen Farbstoffkonzentrationen.

Eine weitere spannende Frage ist, wie man größere Wechselwirkungen zwischen den Photonen realisieren könnte. Sowohl die Untersuchungen im Experiment mit einem makroskopischen Photonenkondensat [20, 21], wie auch die in dieser Doktorarbeit durchgeführten Experimente im Mikropotential, finden nur thermooptische, effektive Wechselwirkungen zwischen den Photonen, die klein sind und zudem zeitlich verzögert. Größere Wechselwirkungsstärken wären ein wichtiger Schritt für die Untersuchung von Suprafluidität, Josephson-Oszillationen und um verschränkte Zustände aus Licht im Mikroresonator zu realisieren [14, 131]. Zukünftig wird dazu die Realisierung von Wechselwirkungen durch den optischen Kerr-Effekt untersucht. Hier werden der Farbstofflösung Materialien mit möglichst großen Kerr-Koeffizienten hinzugefügt. Ein möglicherweise geeigneter Kandidat sind Nanoröhrchen aus Polydiacetylen (PTS) für welches Kerr-Koeffizienten von $n_2 \sim 10^{-7} \text{ cm}^2\text{W}^{-1}$ in der Literatur zu finden sind [132]. Damit könnten sich unter experimentellen Bedingungen Wechselwirkungen bis $g \sim 10^{-2}$ erreichen lassen.

Eine interessante Perspektive eines solchen Systems, ist es Photonen direkt in einen verschränkten Mehrteilchenzustand zu kühlen, was möglich ist wenn dieser den Grundzustand im Gitter darstellt. Ein erster Schritt in diese Richtung ist die Erweiterung des Doppelmuldenpotentials durch ein makroskopisches, harmonisches Fallenpotential. Dies kann entweder mit einem polymerbasierten Doppelmuldenpotential in Kombination mit einem herkömmlichen gekrümmten Spiegel realisiert werden, oder durch die direkte Mikrostrukturierung von sowohl harmonischem als auch Doppelmuldenpotential. Ziel der Untersuchung ist es, wie bei den Arbeiten zum „makroskopischen“ Photonenkondensat [20, 51] eine thermische Verteilung der Photonen über viele $k_B T$ in den Transversalmoden des Mikroresonators zu realisieren und dann im niederenergetischsten Zustand des Systems, nämlich dem ψ_- -Zustand des hybridisierten Doppelmuldenpotentials, ein Bose-Einstein-Kondensat zu realisieren. Im nächsten Schritt wäre es spannend, entsprechende Untersuchungen auf Photonengase mit effektiver Kerr-Wechselwirkung, sowie größere Gittersysteme zu erweitern, mit dem Ziel in einem thermischen Gleichgewichtsprozess hochverschränkte Mehrteilchenzustände zu erzeugen. Die entsprechenden Zustände könnten als Resource für Quantenrechnungen sowie für die Quantenkommunikation dienen [133, 134].

Eine andere Perspektive des photonischen Gitters sind Quantensimulationen [135]. Dabei lassen sich die Phasen der Kondensate auf den Gitterplätzen als Spins und die Tunnelkopplung als effektive Spin-Spin Wechselwirkung auffassen. Somit sollte es möglich sein beispielsweise das XY-Modell zu realisieren. Dabei erlauben die in dieser Doktorarbeit vorgestellten Verfahren zur Erzeugung von variablen Potentialen, die Auswirkungen von Störungen in Periodizität oder Energieniveaus der Gitterplätze zu untersuchen. Auch ist bereits bekannt, dass von der Kopplung der Photonen an das Molekülreservoir deren Statistik stark beeinflusst wird, was eine

effektive Temperatur einstellt und somit im Gegensatz zu atomaren Quantensimulatoren, hier kein isoliertes System vorliegt [36, 39, 40].

Neben der in dieser Arbeit vorgestellten Tunnelkopplung soll noch auf die Möglichkeit der externen Manipulation der Photonen hingewiesen werden: Durch eine phasenstabile Wiedereinkopplung von transmittierten Photonen des Mikroresonators durch Rückreflektion ist es denkbar, phasenkontrollierbare Kopplung extern über beispielsweise eine Kombination aus elektrooptischem Modulator (EOM) und räumlichen Modulator für Licht (engl.: *spatial light modulator*) zu realisieren. Dabei würden die transmittierten Photonen aus Gitterplatz i beispielsweise in Gitterplatz $i + 1$ zurückreflektiert werden, was effektiv einer Tunnelkopplung entspricht. Moduliert man dabei gleichzeitig mit dem EOM die Phase der zurückgeschickten Photonen, ließen sich beispielsweise effektive Magnetfelder für Photonenkondensate in variablen Fallenpotentialen erzeugen.

Abschließend ergeben sich aus den Resultaten der vorliegenden Arbeit auch neue technische Fragestellungen: Unter Anwendungsgesichtspunkten ist es interessant zu prüfen, ob die Mikrostrukturierung und Optimierung der Spiegeloberflächenrauigkeit durch Delamination technisch weiter verbessert werden kann, sodass auch Realisierungen von Höhenunterschieden im Bereich der Wellenlänge und darüber hinaus möglich wären, beispielsweise durch eine Modifizierung der dünnen Schichten des Spiegels mit Siliziumschicht. Damit könnte man beispielsweise ultrahochreflektive Beugungsgitter herstellen oder hochreflektive Spiegel zur spezifischen holographischen Strahlformung von Laserstrahlen.

Numerische Methode – Schießverfahren

Das „Schießverfahren“ (engl.: *shooting method*) ist ein numerisches Verfahren zur Lösung von Randwertproblemen gewöhnlicher Differentialgleichungen, indem das Problem auf die Lösung eines Anfangswertproblems reduziert wird [136]. Damit lässt sich z.B. die eindimensionale stationäre Schrödinger-Gleichung

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dx^2} \psi(x) + (V(x) - E)\psi(x) = 0 \quad (\text{A.1})$$

mit Randbedingungen $\psi(x \rightarrow \pm\infty) = 0$ numerisch lösen. Die Idee des Schießverfahrens ist Lösungen der Differentialgleichung durch systematisches Raten des Energieeigenwerts E zu bestimmen. Dabei kann die Gültigkeit der berechneten Wellenfunktion für den eingesetzten Energieeigenwert E mit den Randbedingungen überprüft werden.

Eine Vorgehensweise ist dabei die Wellenfunktion auf einem diskreten Gitter (x_0, \dots, x_n) zu integrieren, mit Anfangsbedingung $\psi(x_0) = 0$. Ist E ein gültiger Eigenwert so konvergiert die Wellenfunktion $\psi(x \rightarrow x_n) \rightarrow 0$, andernfalls divergiert sie (gegen $\pm\infty$). Beispielhaft sind berechnete Wellenfunktionen für $E = E_0$, $E = 0.99E_0$ und $E = 1.01E_0$ in Abbildung A.1 aufgetragen, wobei $E_0 = h \times 630$ GHz ein Eigenwert des gezeigten Potentials ist. Die ungültigen Lösungen weisen eine starke Divergenz auf, mit wechselndem Vorzeichen zwischen $E < E_0$ und $E > E_0$. Dieser Umstand lässt sich nutzen, um effizient ein Potential auf Energiezustände zu überprüfen. Dabei berechnet man mit dem Schießverfahren ausgehend von einer Energie E_{\min} in vorgegebenen Schritten $E_i = i \times \delta E$ die Wellenfunktion und überprüft jeweils, ob diese am Ort x_n gegen $+\infty$ oder $-\infty$ divergiert. Kommt es zu einem Vorzeichenwechsel, so liegt im Intervall $E = (E_{i-1}, E_i)$ eine gültige Lösung der Differentialgleichung, welche sich mittels Bisektionsverfahren dann in nur wenigen Schritten bis zur Maschinengenauigkeit bestimmen lässt. Somit lassen sich in nur wenigen Sekunden numerisch alle Energieniveaus und Wellenfunktionen eines Potentials bestimmen, wie die Beispiele in Abschnitt 4.2 vorführen.

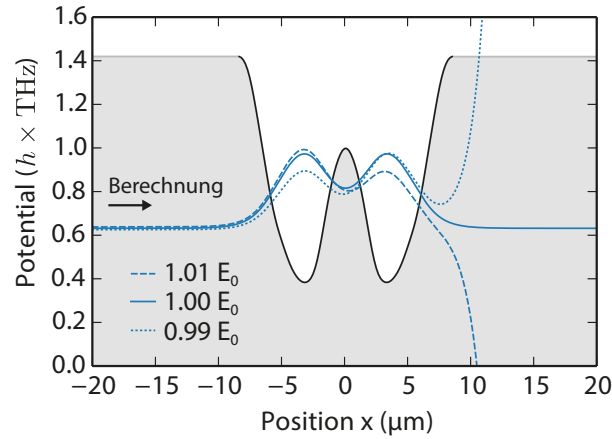


Abbildung A.1 | Prinzip des Schießverfahrens – Aus Mirau-Aufnahme umgerechnetes Potential im Mikroresonator (schwarze Linie), interpoliert auf diskretisierte x-Achse ($dx = 100 \text{ nm}$). Für eine bessere Überprüfung der Randbedingungen wird das Potential in beide Richtungen der x-Achse an den Maximalstellen erweitert (Graue Linie). Für den gültigen Energieeigenwert $E_0 = h \times 630 \text{ GHz}$ konvergiert die Wellenfunktion $\psi(20 \mu\text{m}) \rightarrow 0$ (durchgezogene blaue Linie), wohingegen bereits geringe Abweichungen zu divergierenden Wellenfunktionen führen (gepunktete und gestrichelte Linie).

Im folgenden Abschnitt wird aus den numerischen Lösungen die Tunnelkopplung bestimmt. Wie in den Grundlagen hergeleitet, gilt für den Energieabstand zwischen den hybridisierten Eigenzuständen E_{\pm}

$$\Delta E = \sqrt{\Delta\omega^2 + (2J)^2}. \quad (\text{A.2})$$

Auf Resonanz ergibt sich die Kopplung also direkt über den numerisch bestimmten Energieabstand. Bei der Untersuchung experimentell erzeugter Potentiale findet sich jedoch häufig eine Verstimmung zwischen den Mulden. Dies kann zum einen durch den Delaminationsprozess oder eine nicht ausreichende Korrektur der Verkippung des gesamten Spiegels bei der Mirau-Aufnahme verursacht werden. Da im Mikroresonator der delaminierte Spiegel einem Planspiegel gegenüber liegt ist es durch Justage möglich, solche Verkippungen zu eliminieren und die Mulden damit auf Resonanz zu bringen. Formal verändert man das Potential V_{Mirau} dann gemäß

$$V(x) = V_{\text{Mirau}}(x) + m \cdot x \quad (\text{A.3})$$

durch eine Verkippung m linear in x . Um nun mit dem Schießverfahren an die Kopplung zu gelangen, werden in dieser Arbeit zwei Methoden verwendet: Bei der ersten wird der Mischungswinkel zwischen den Wellenfunktionen ψ_{sym} , ψ_{antisym} bestimmt. Durch Anpassung einer Überlagerung aus zwei Gaußfunktionen an die numerisch gefundenen Wellenfunktionen ergibt sich das Amplitudenverhältnis $\alpha = |A/B|$. Mit Gleichungen (2.93) und (A.2) für den Mischungswinkel lässt sich daraus die Tunnelkopplung berechnen

$$J = \frac{\alpha}{1 + \alpha^2} \Delta E \quad (\text{A.4})$$

Beispielhaft ist das Verfahren in Abbildung A.2a dargestellt. Bei dieser Methode ist zu beachten, dass bei größeren Verstimmungen die Aufenthaltswahrscheinlichkeit in einer Mulde nahezu verschwindet und dadurch eine Anpassung fehleranfällig wird, was bei einer automatisierten Analyse von vielen Potentials zu Problemen führen kann.

Bei der zweiten Methode wird dieser Umstand gelöst, indem die Verstimmung zwischen den Mulden mathematisch eliminiert wird. Dazu wird das experimentell ermittelte Potential im Zentrum der Barriere gespiegelt und mit dem ursprünglichen Potential zu $\bar{V}(x)$ gemittelt. Etwaige von x abhängende Verkipnungen und Delaminationsunterschiede werden so ausgeglichen:

$$\bar{V}(x) = \frac{1}{2}(V(x) + m \cdot x) + \frac{1}{2}(V(-x) + m \cdot (-x)) = \frac{1}{2}(V(x) + V(-x)). \quad (\text{A.5})$$

Für automatisierte Analysen ist diese Methode technisch einfach umsetzbar, da keine Funktionsanpassungen nötig sind, erfordert aber grundsätzlich spiegelsymmetrische Potentiale, da es sonst zu unpräzisen Vorhersagen der Kopplung kommt.

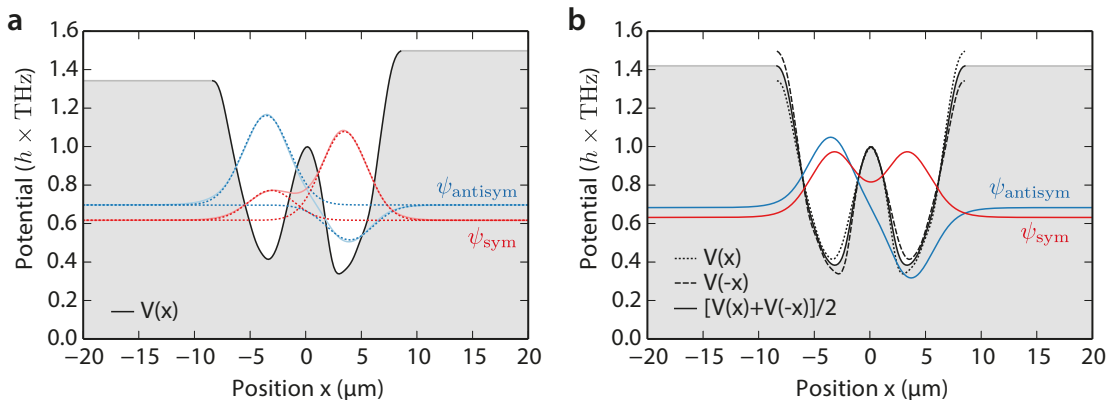


Abbildung A.2 | Bestimmung der Tunnelkopplung über den Mischungswinkel und über eine Potentialspiegelung – **a**, Die Wellenfunktionen des (verstimmten) Potentials (schwarze Linie) werden mittels Schießverfahren gelöst (durchgezogene Linien). Für die Randbedingungen wird das Potential in beide Richtungen an den Maximalstellen erweitert (Graue Linie). An die numerisch bestimmten Wellenfunktionen werden überlagerte Gaußfunktionen angepasst (gepunktete Linien). Über das Amplitudenverhältnis der Gaußfunktionen zwischen linker und rechter Mulde kann dann der Mischungswinkel zwischen den hybridisierten Zuständen bestimmt werden und damit auf die Tunnelrate geschlossen werden. **b**, Das experimentell bestimmte Potential (gepunktete Linie) wird mit dem an der Potentialbarriere gespiegelten Potential (gestrichelte Linie) gemittelt (schwarze durchgezogene Linie). Durch dieses Vorgehen werden Verstimmungen zwischen den Mulden ausgeglichen. Daher kann die Tunnelkopplung anschließend mit dem Schießverfahren direkt aus dem halben Energieabstand der Zustände abgelesen werden. Die weiteren numerischen Parameter sind identisch zur ersten Methode (**a**).

Literatur

- [1] L. Pearce Williams, *History of Science*, 2017, URL: <https://www.britannica.com/science/history-of-science> (besucht am 04. 09. 2017).
- [2] U. Niederer, *Galileo Galilei und die Entwicklung der Physik*, Vierteljahrsschrift der Naturforschenden Gesellschaft in Zürich **127**, 205 (1982).
- [3] 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).
- [4] K. Davis, M. Mewes, M. Andrews, N. van Druten, D. Durfee, D. Kurn und W. Ketterle, *Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms*, Physical Review Letters **75**, 3969 (1995).
- [5] S. N. Bose, *Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese*, Zeitschrift für Physik **26**, 178 (1924).
- [6] A. Einstein, *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases - Zweite Abhandlung*, Sitzungsberichte der Preussischen Akademie der Wissenschaften, 3 (1925).
- [7] W. Ketterle, *Happy birthday BEC*, Nature Physics **11**, 982 (2015).
- [8] W. Ketterle und M. W. Zwierlein, *Making, probing and understanding ultracold Fermi gases*, Proceedings of the Enrico Fermi summer school (2008).
- [9] W. Ketterle, D. S. Durfee und D. M. Stamper-Kurn, *Making, probing and understanding Bose-Einstein condensates*, Proceedings of the Enrico Fermi summer school (1999).
- [10] I. Bloch und W. Zwerger, *Many-body physics with ultracold gases*, Reviews of Modern Physics **80**, 885 (2008).
- [11] M. Nixon, E. Ronen, A. A. Friesem und N. Davidson, *Observing Geometric Frustration with Thousands of Coupled Lasers*, Physical Review Letters **110**, 184102 (2013).
- [12] J. W. Fleischer, M. Segev, N. K. Efremidis und D. N. Christodoulides, *Observation of two-dimensional discrete solitons in optically induced nonlinear photonic lattices.*, Nature **422**, 147 (2003).
- [13] T. Schwartz, G. Bartal, S. Fishman und M. Segev, *Transport and Anderson localization in disordered two-dimensional photonic lattices*, Nature **446**, 52 (2007).
- [14] I. Carusotto und C. Ciuti, *Quantum fluids of light*, Reviews of Modern Physics **85**, 299 (2013).
- [15] C. W. Lai, N. Y. Kim, S. Utsunomiya, G. Roumpos, H. Deng, M. D. Fraser, T. Byrnes, P. Recher, N. Kumada, T. Fujisawa und Y. Yamamoto, *Coherent zero-state and π -state in an exciton-polariton condensate array*, Nature **450**, 529 (2007).

- [16] K. Lagoudakis, B. Pietka, M. Wouters, R. André und B. Deveaud-Plédran, *Coherent Oscillations in an Exciton-Polariton Josephson Junction*, Physical Review Letters **105**, 120403 (2010).
- [17] T. Jacqmin, I. Carusotto, I. Sagnes, M. Abbarchi, D. D. Solnyshkov, G. Malpuech, E. Galopin, A. Lemaître, J. Bloch und A. Amo, *Direct Observation of Dirac Cones and a Flatband in a Honeycomb Lattice for Polaritons*, Physical Review Letters **112**, 116402 (2014).
- [18] M. Abbarchi, A. Amo, V. G. Sala, D. D. Solnyshkov, H. Flayac, L. Ferrier, I. Sagnes, E. Galopin, A. Lemaître, G. Malpuech und J. Bloch, *Macroscopic quantum self-trapping and Josephson oscillations of exciton polaritons*, Nature Physics **9**, 275 (2013).
- [19] P. Cristofolini, A. Dreismann, G. Christmann, G. Franchetti, N. G. Berloff, P. Tsotsis, Z. Hatzopoulos, P. G. Savvidis und J. J. Baumberg, *Optical Superfluid Phase Transitions and Trapping of Polariton Condensates*, Physical Review Letters **110**, 186403 (2013).
- [20] J. Klaers, J. Schmitt, F. Vewinger und M. Weitz, *Bose-Einstein condensation of photons in an optical microcavity*, Nature **468**, 545 (2010).
- [21] J. Klaers, *Bose-Einstein-Kondensation von paraxialem Licht*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2011).
- [22] M. Planck, *Über das Gesetz der Energieverteilung im Normalspectrum*, Annalen der Physik **309**, 553 (1901).
- [23] K. Huang, *Statistical Mechanics*, Wiley, New York (1987).
- [24] R. Y. Chiao, *Bogoliubov dispersion relation for a 'photon fluid': Is this a superfluid?*, Optics Communications **179**, 157 (2000).
- [25] R. Y. Chiao und J. Boyce, *Bogoliubov dispersion relation and the possibility of superfluidity for weakly interacting photons in a two-dimensional photon fluid*, Physical Review A **60**, 4114 (1999).
- [26] 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).
- [27] J. Marelic und R. A. Nyman, *Experimental evidence for inhomogeneous pumping and energy-dependent effects in photon Bose-Einstein condensation*, Physical Review A **91**, 033813 (2015).
- [28] S. Greveling und D. van Oosten, *Interactions and polarization of a Bose-Einstein condensate of light*, Sonderkolloquium, Institut für Angewandte Physik - Universität Bonn (2017).
- [29] E. H. Kennard, *On the thermodynamics of fluorescence*, Physical Review **11**, 29 (1918).
- [30] E. H. Kennard, *The excitation of fluorescence in fluorescein*, Physical Review **29**, 466 (1927).
- [31] B. I. Stepanov und L. P. Kazachenko, *Universal relationship between absorption and emission spectra taking the solvent effect into account*, Thurnal Prikladnoi Spektroskopii **14**, 819 (1971).
- [32] B. I. Stepanov, *Universal relation between the absorption spectra and luminescence spectra of complex molecules*, Doklady Akademii Nauk SSSR **112**, 839 (1957).
- [33] D. Sawicki und R. Knox, *Universal relationship between optical emission and absorption of complex systems: An alternative approach*, Physical Review A **54**, 4837 (1996).

-
- [34] J. Klaers, *Tutorial: The thermalization, condensation and flickering of photons*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **47**, 243001 (2014).
- [35] 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**, 1 (2012).
- [36] 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).
- [37] C. Wahl, *Phase dynamics of a statistically flickering photon Bose-Einstein condensate*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2014).
- [38] 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).
- [39] J. Schmitt, *Dynamik und Korrelationen eines Bose-Einstein-Kondensats aus Licht*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2015).
- [40] J. Schmitt, T. Damm, D. Dung, F. Vewinger, J. Klaers und M. Weitz, *Thermalization kinetics of light: From laser dynamics to equilibrium condensation of photons*, Physical Review A **92**, 011602 (2015).
- [41] 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).
- [42] T. Damm, *Kalorimetrie und Phasenkorrelationen eines zweidimensionalen Photonengases*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2017).
- [43] 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 **8**, 158 (2017).
- [44] J. Marelic, L. F. Zajiczek und R. A. Nyman, *Spatiotemporal coherence of non-equilibrium photon condensates*, New Journal of Physics **18**, 103012 (2016).
- [45] J. Schmitt, *Thermodynamik eines zweidimensionalen Photonengases im Polymerfilm*, Diplomarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2011).
- [46] D. Dung, *Quantum Gas of Light in a Quantum Dot Microcavity*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2012).
- [47] W. Pauli, *Über den Zusammenhang des Abschlusses der Elektronengruppen im Atom mit der Komplexstruktur der Spektren*, Zeitschrift für Physik **31**, 765 (1925).
- [48] C. J. Pethick und H. Smith, *Bose-Einstein condensation in dilute gases*, Cambridge University Press, Cambridge (2008).
- [49] V. Bagnato und D. Kleppner, *Bose-Einstein condensation in low-dimensional traps*, Physical Review A **44**, 7439 (1991).
- [50] A. Einstein, *Zur Quantentheorie der Strahlung*, Physikalische Zeitschrift **18**, 121 (1917).
- [51] 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).
- [52] J. R. Lakowicz, *Principles of Fluorescence Spectroscopy*, Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York (1999).

- [53] 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).
- [54] K. H. Drexhage, *Structure and properties of laser dyes*, Springer, Berlin (1973).
- [55] G. G. Stokes, *On the change of refrangibility of light*, Philosophical Transactions of the Royal Society of London **142**, 463 (1852).
- [56] M. Kasha, *Characterization of electronic transitions in complex molecules*, Discussions of the Faraday Society (1950).
- [57] 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).
- [58] 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).
- [59] 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**, 33307 (2009).
- [60] 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**, 63002 (2014).
- [61] 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**, 22510 (2017).
- [62] D. P. Landau und K. Binder, *A Guide to Monte Carlo Simulations in Statistical Physics*, Cambridge University Press (2009), 488.
- [63] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller und E. Teller, *Equation of State Calculations by Fast Computing Machines*, The Journal of Chemical Physics **21**, 1087 (1953).
- [64] T. Fließbach, *Lehrbuch zur theoretischen Physik - 3 Quantenmechanik*, Spektrum Akademischer Verlag (2005).
- [65] H. Kogelnik und T. Li, *Laser Beams and Resonators*, Applied Optics **5**, 1550 (1966).
- [66] P. W. Milonni und J. H. Eberly, *Lasers*, Wiley, New York N.Y. (1988), 731.
- [67] 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).
- [68] M. E. Lusty und M. H. Dunn, *Refractive indices and thermo-optical properties of dye laser solvents*, Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry **44**, 193 (1987).
- [69] U. Fischer, *Private Kommunikation*.
- [70] E. P. Gross, *Structure of a quantized vortex in boson systems*, Il Nuovo Cimento **20**, 454 (1961).
- [71] L. P. Pitaevskii, *Vortex lines in an imperfect Bose gas*, Soviet Physics JETP **13**, 451 (1961).

- [72] D. Vudragović, I. Vidanović, A. Balaž, P. Muruganandam und S. K. Adhikari, *C programs for solving the time-dependent Gross-Pitaevskii equation in a fully anisotropic trap*, Computer Physics Communications **183**, 2021 (2012).
- [73] 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).
- [74] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu und F. Laloe, *Quantenmechanik. Bd. 1*, de Gruyter (2009).
- [75] F. Schwabl, *Statistische Mechanik*, Springer (2006).
- [76] R. Loudon, *The Quantum Theory Of Light*, Oxford Science Publications (1997).
- [77] M. Heskins und J. E. Guillet, *Solution Properties of Poly(N-isopropylacrylamide)*, Journal of Macromolecular Science: Part A - Chemistry **2**, 1441 (1968).
- [78] S. Fujishige, K. Kubota und I. Ando, *Phase transition of aqueous solutions of poly(N-isopropylacrylamide) and poly(N-isopropylmethacrylamide)*, The Journal of Physical Chemistry **93**, 3311 (1989).
- [79] M. Ishikawa, H. Misawa, N. Kitamura, R. Fujisawa und H. Masuhara, *Infrared Laser-Induced Photo-Thermal Phase Transition of an Aqueous Poly(N -isopropylacrylamide) Solution in the Micrometer Dimension*, Bulletin of the Chemical Society of Japan **69**, 59 (1996).
- [80] C. Wu und X. Wang, *Globule-to-Coil Transition of a Single Homopolymer Chain in Solution*, Physical Review Letters **80**, 4092 (1998).
- [81] M. Panayiotou, *Synthesis and characterization of thermoresponsive polymers, hydrogels and microgels, based on poly(N-substituted acrylamides)*, (2004).
- [82] R. K. Root und R. G. Petersdorf, *Chills and fever*, Harrison's Principles of Internal Medicine, 12th edn. New York: McGraw-Hill, 125 (1991).
- [83] J. Chung, M. Yokoyama, M. Yamato, T. Aoyagi, Y. Sakurai und T. Okano, *Thermoresponsive drug delivery from polymeric micelles constructed using block copolymers of poly(N-isopropylacrylamide) and poly(butylmethacrylate)*, Journal of Controlled Release **62**, 115 (1999).
- [84] M. Reufer, P. Díaz-Leyva, I. Lynch und F. Scheffold, *Temperature-sensitive poly(N-Isopropyl-Acrylamide) microgel particles: A light scattering study*, European Physical Journal E **28**, 165 (2009).
- [85] H. Inoue, K. Katayama, K. Iwai, A. Miura und H. Masuhara, *Conformational relaxation dynamics of a poly(N-isopropylacrylamide) aqueous solution measured using the laser temperature jump transient grating method.*, Physical chemistry chemical physics : PCCP **14**, 5620 (2012).
- [86] J. Hutchinson, M. Thouless und E. Liniger, *Growth and configurational stability of circular, buckling-driven film delaminations*, Acta Metallurgica et Materialia **40**, 295 (1992).
- [87] G. Gioia und M. Ortiz, „Delamination of Compressed Thin Films“, *Adv. Appl. Mech.* Bd. 33, 1997, 119.
- [88] F. Spaepen, *Interfaces and stresses in thin films*, Acta Materialia **48**, 31 (2000).
- [89] H. K. Pulker, *Mechanical properties of optical films*, Thin Solid Films **89**, 191 (1982).
- [90] C. Coupeau, J. Grilhé, E. Dion, L. D. De Morais und J. Colin, *Evidence of vacuum between buckled films and their substrates*, Thin Solid Films **518**, 5233 (2010).

- [91] K. Kumar, K. K. Lee, J. Li, J. Nogami, N. P. Kherani und P. R. Herman, *Quantized structuring of transparent films with femtosecond laser interference*, *Light: Science & Applications* **3**, 157 (2014).
- [92] T. W. Allen, J. Silverstone, N. Ponnampalam, T. Olsen, A. Meldrum und R. G. DeCorby, *High-finesse cavities fabricated by buckling self-assembly of a-Si/SiO₂ multilayers*, *Optics Express* **19**, 18903 (2011).
- [93] E. Epp, N. Ponnampalam, W. Newman, B. Drobot, J. N. McMullin, A. F. Meldrum und R. G. DeCorby, *Hollow Bragg waveguides fabricated by controlled buckling of Si/SiO₂ multilayers*, *Optics Express* **18**, 24917 (2010).
- [94] T. Rublack und G. Seifert, *Femtosecond laser delamination of thin transparent layers from semiconducting substrates*, *Optical Materials Express* **1**, 543 (2011).
- [95] S. Hermann, N.-P. Harder, R. Brendel, D. Herzog und H. Haferkamp, *Picosecond laser ablation of SiO₂ layers on silicon substrates*, *Applied Physics A* **99**, 151 (2009).
- [96] M. O. Thompson, G. J. Galvin, J. W. Mayer, P. S. Peercy, J. M. Poate, D. C. Jacobson, A. G. Cullis und N. G. Chew, *Melting Temperature and Explosive Crystallization of Amorphous Silicon during Pulsed Laser Irradiation*, *Physical Review Letters* **52**, 2360 (1984).
- [97] R. Alfano, S. Shapiro und W. Yu, *Effect of soap on the fluorescent lifetime and quantum yield of rhodamine 6G in water*, *Optics Communications* **7**, 191 (1973).
- [98] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser*, Vieweg+Teubner, Wiesbaden (2008).
- [99] *PhotochemCAD database of the Journal of Photochemistry and Photobiology*, 2012, URL: <http://omlc.org/spectra/PhotochemCAD/index.html>.
- [100] H. El-Kashef, *The necessary requirements imposed on polar dielectric laser dye solvents*, *Physica B: Condensed Matter* **279**, 295 (2000).
- [101] G. M. Hale und M. R. Query, *Optical Constants of Water in the 200-nm to 200- μ m Wavelength Region*, *Applied Optics* **12**, 555 (1973).
- [102] C. Schilz, *Farbstoff-Polymer Lösungen zur Erzeugung von Bose-Einstein Kondensaten von Photonen in variablen Potentialen*, Bachelorarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2014).
- [103] C. R. Cabrera Cordova, *Variable External Potentials for Photon Quantum Gases*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2013).
- [104] W. Zou, C. Visser, J. Maduro und M. Pshenichnikov, *Broadband dye-sensitized upconversion of near-infrared light*, *Nature* (2012).
- [105] T. Iwashita und S. Ando, *Preparation and characterization of ZnS thin films by the chemical bath deposition method*, *Thin Solid Films* **520**, 7076 (2012).
- [106] P. Hankare, P. Chate und D. Sathe, *CdS thin film: Synthesis and characterization*, *Solid State Sciences* **11**, 1226 (2009).
- [107] B. E. McCandless, *Chemical surface deposition of ultra-thin cadmium sulfide films for high performance and high cadmium utilization*, *Proceedings of 3rd World Conference on Photovoltaic Energy Conversion 2003* **1**, 562 (2003).
- [108] I. O. Oladeji, *Optimization of Chemical Bath Deposited Cadmium Sulfide Thin Films*, *Journal of The Electrochemical Society* **144**, 2342 (1997).

-
- [109] W. W. Yu und X. Peng, *Formation of high-quality CdS and other II-VI semiconductor nanocrystals in noncoordinating solvents: tunable reactivity of monomers*, *Angewandte Chemie* **41**, 2368 (2002).
- [110] J. Franc, N. Morgado, R. Flaminio, R. Nawrodt, I. Martin, L. Cunningham, A. Cumming, S. Rowan und J. Hough, *Mirror thermal noise in laser interferometer gravitational wave detectors operating at room and cryogenic temperature*, *Einstein Telescope note ET-021-09* (2009).
- [111] D. Bashir-Elahi, *Thermo-optically induced microstructured potentials for photonic condensates and all-optical gates*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2015).
- [112] D. Malacara, *Optical shop testing*, Wiley-Interscience (2007), 862.
- [113] C. Schilz, *Microstructuring and surface characterization of mirror surfaces for optical quantum gas confinement*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [114] J. Schmit und K. Creath, *Extended averaging technique for derivation of error-compensating algorithms in phase-shifting interferometry*, *Applied Optics* **34**, 3610 (1995).
- [115] M. A. Herráez, D. R. Burton, M. J. Lalor und M. A. Gdeisat, *Fast two-dimensional phase-unwrapping algorithm based on sorting by reliability following a noncontinuous path*, *Applied Optics* **41**, 7437 (2002).
- [116] P. Balling und J. Schou, *Femtosecond-laser ablation dynamics of dielectrics: basics and applications for thin films*, *Reports on Progress in Physics* **76**, 036502 (2013).
- [117] K. D. Skeldon, J. Mackintosh, M. von Gradowski, S. Thieux und R. Lee, *Qualification of supermirrors for ring-laser-gyros based on surface roughness and scatter measurements*, *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* **3**, 183 (2001).
- [118] A. O'Keefe und D. A. G. Deacon, *Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources*, *Review of Scientific Instruments* **59**, 2544 (1988).
- [119] M. D. Wheeler, S. M. Newman, A. J. Orr-Erwing und M. N. R. Ashfold, *Cavity ring-down spectroscopy*, *Journal of the Chemical Society* **94**, 337 (1998).
- [120] S. W. Youn, M. Takahashi, H. Goto und R. Maeda, *A study on focused ion beam milling of glassy carbon molds for the thermal imprinting of quartz and borosilicate glasses*, *Journal of Micromechanics and Microengineering* **16**, 2576 (2006).
- [121] D. Hunger, T. Steinmetz, Y. Colombe, C. Deutsch, T. W. Hänsch und J. Reichel, *A fiber Fabry-Perot cavity with high finesse*, *New Journal of Physics* **12**, 065038 (2010).
- [122] D. Hunger, C. Deutsch, R. J. Barbour, R. J. Warburton und J. Reichel, *Laser micro-fabrication of concave, low-roughness features in silica*, *AIP Advances* **2**, 012119 (2012).
- [123] C. Palmer und E. Loewen, *Diffraction Grating Handbook*, 7. Aufl., Newport Corporation (2014).
- [124] C.-S. Chuu, F. Schreck, T. P. Meyrath, J. L. Hanssen, G. N. Price und M. G. Raizen, *Direct Observation of Sub-Poissonian Number Statistics in a Degenerate Bose Gas*, *Physical Review Letters* **95**, 260403 (2005).

- [125] R. Kamikawachi, I. Abe, A. Paterno, H. Kalinowski, M. Muller, J. Pinto und J. Fabris, *Determination of thermo-optic coefficient in liquids with fiber Bragg grating refractometer*, Optics Communications **281**, 621 (2008).
- [126] MEGlobal Companies, *Ethylene glycol product guide*, 2008.
- [127] C. Kurtscheid, *Photon Bose-Einstein condensation and thermo-optical effects in micro-potentials*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [128] L. S. Herculano, L. C. Malacarne, V. S. Zanuto, G. V. B. Lukasiewicz, O. A. Capeloto und N. G. C. Astrath, *Investigation of the Photobleaching Process of Eosin Y in Aqueous Solution by Thermal Lens Spectroscopy*, Journal of Physical Chemistry B **117**, 1932 (2013).
- [129] R. Kaiser und D. Wiersma, Hrsg., *Two-dimensional Bose fluids: An atomic physics perspective*, Vol. CLXXIII of the Proceedings of the International School of Physics 'Enrico Fermi', 2009.
- [130] E. Busley, *Coupled Photon Condensates in a Microstructured Double Well Potential*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [131] J. Klaers, 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“, *Proc. SPIE*, Bd. 8600, 2013.
- [132] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, Academic Press (2003).
- [133] H. J. Briegel, D. E. Browne, W. Dür, R. Raussendorf und M. Van den Nest, *Measurement-based quantum computation*, Nature Physics **5**, 19 (2009).
- [134] M. Zwerger, H. J. Briegel und W. Dür, *Measurement-based quantum communication*, Applied Physics B **122**, 50 (2016).
- [135] N. G. Berloff, K. Kalinin, M. Silva, W. Langbein und P. G. Lagoudakis, *Realizing the XY Hamiltonian in polariton simulators*, in press, Nature Materials, arXiv:1607.06065 (2016).
- [136] B. Mielnik und M. A. Reyes, *The classical Schrödinger equation*, Journal of Physics A: Mathematical and General **29**, 6009 (1996).

Danksagung

Mein Dank gilt im Besonderen meinem Doktorvater Prof. Dr. Martin Weitz, der mir die spannende Arbeit ermöglicht hat, variable Potentiale für Photonenkondensate voranzutreiben. Für die Übernahme des Korrektorats und die Betreuung im Rahmen der Bonn-Cologne Graduate School of Physics and Astronomy (BCGS) möchte ich auch Prof. Dr. Stefan Linden und Prof. Dr. Achim Rosch herzlich danken.

Ein besonderer Dank gilt auch meinen langjährigen Kollegen im Photonen-BEC-Team, Dr. Jan Klärs, Dr. Frank Vewinger, Dr. Julian Schmitt, Dr. Tobias Damm und Christian Wahl. Neben all der spannenden Physik die wir erforschen konnten, hätte ich mir auch keine schönere Büro-/Arbeitsumgebung erträumen können! Dazu trägt auch die unheimlich gute Atmosphäre in der gesamten Arbeitsgruppe bei. Auch gilt mein Dank den Bachelor- und Masterstudenten, die ich während meiner Promotion betreuen durfte. Danke Christian Schilz, Dario Bashir-Elahi, Erik Busley und Christian Kurtscheid. Dabei freut es mich sehr, das Experiment mit den Doktorarbeiten von Christian Kurtscheid, Erik Busley und Fahri Öztürk auch in Zukunft in besten Händen zu wissen. Auch wäre eine Doktorarbeit weit anstrengender, wäre da nicht eine immer unterstützende Verwaltung des Instituts. Danke Fien Latumahina, Annelise von Rudloff-Miglo, Kerstin Steinseifer und Dietmar Haubrich. Ebenfalls einen herzlichen Dank an die Werkstätten!

Für all die Unterstützung und ein nie endendes Verständnis möchte ich von ganzem Herzen meinen Freunden, meinen Eltern, Teresa und Karla danken.