

Bose-Einstein-Kondensation in einen photonischen Superpositionszustand

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

vorgelegt von

Christian Philipp Kurtscheid

aus Neuwied

Bonn 2021

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

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

Tag der Promotion: 1. April 2022
Erscheinungsjahr: 2022

Zusammenfassung

Die Bose-Einstein-Kondensation ist ein Phasenübergang zu einem Zustand bei dem bosonische Teilchen den Systemgrundzustand makroskopisch besetzen und sich somit eine Vielzahl von Teilchen quasi wie ein einzelnes verhält. Dieser besondere Aggregatzustand konnte zunächst mit atomaren Gasen bei Temperaturen im Nanonkelvin-Bereich realisiert werden. Mit diesen ultrakalten Gasen konnten viele Effekte der Festkörpertheorie an einem sehr reinen und defektarmen Modellsystem in optischen Potentialen realisiert werden. Darunter fällt unter anderem die Beobachtung eines Phasenübergangs eines Quantengases von einer suprafluiden in eine Mott-Isolator-Phase. Dazu wurde das frei einstellbare Verhältnis von Tunnelkopplung und Teilchenwechselwirkung in einem optischen Gitterpotential variiert. Seit 2010 gelingen Experimente zur Bose-Einstein-Kondensation auch mit Photonen, den quantisierten Teilchen des Lichts, in mit Farbstoff gefüllten optischen Mikroresonatoren. Dabei wird das Photonengas durch wiederholte teilchenzahlerhaltende Stöße mit den Farbstoffmolekülen ins thermische Gleichgewicht überführt. Ein geringer Abstand der Resonatorspiegel von nur wenigen Halbwellenlängen sorgt dabei durch den daraus folgenden hohen freien Spektralbereich für die Farbstoffemission lediglich in transversale Resonatorzustände einer Longitudinalmode. Diese niederenergetische Begrenzung verleiht dem nun zwei-dimensionalen Photonengas eine effektive Masse. Darüber hinaus ergibt sich aus der Krümmung der Resonatorspiegel ein harmonisches Potential für die Photonen. Die Gesamtphotonenzahl wird durch optische Pumpenanregung der Moleküle eingestellt und kann durch Erhöhung dieser über den kritischen Punkt, bei der es zur Kondensation kommt, geführt werden.

In den letzten Jahren wurden mehrere Methoden entwickelt, um die Potentialfalle für Photonen im Mikroresonatorsystem variabel zu gestalten. Ein Ansatz verfolgt dabei die Variation des Brechungsindex der Farbstofflösung durch lokale Erwärmung eines beigemischten thermosensitiven Polymers. Aus der ortsselektiven Erhöhung des optischen Weges ergeben sich reversible attraktive harmonische Potentiale mit hohen Fallenfrequenzen. In anderen Ansätzen wird die Potentialgeometrie durch räumliche Variationen der Spiegeloberfläche gewählt. Dabei kann dies durch die Strukturierung der Spiegelsubstrate vor der Beschichtung mit dielektrischen Schichten geschehen oder bereits beschichtete Spiegel werden durch wärmeinduzierte Delamination der Schichten mikrostrukturiert.

In Rahmen der vorliegenden Dissertation gelang die Demonstration eines Bose-Einstein-Kondensats in einen kohärent aufgespaltenen Zustand des Lichts. Dazu wurden Photonen in einem Potential mit zwei Minima thermalisiert. Zu Beginn der Arbeit wurde die oben beschriebene auf wärmeinduzier-

ter Delamination der dielektrischen Schichten basierende Technik zur Oberflächenverformung von Spiegeln erweitert um die Erzeugung von komplexen Strukturen mit kleinen Abweichungen zum gewünschten Oberflächenprofil der reflektierenden Schicht zu ermöglichen. Durch die wiederholte Abfolge von interferometrischer Oberflächenvermessung und kleinschrittiger Deformation werden Resonatorspiegel mit einer longitudinalen Auflösung nahe einem Angström mikrostrukturiert.

Mit dem beschriebenen Verfahren wurde im nächsten Schritt ein Doppelmuldenpotential für Photonen im farbstoffgefüllten Mikroresonator strukturiert, das von einem schwachen harmonischen Fallenpotential überlagert ist. Aufgrund der Tunnelkopplung zwischen den Plätzen des Doppelmuldenpotentials ist der niederenergetischste Zustand für Resonatorphotonen der symmetrische Superpositionszustand der Doppelmulde. Als nächst höherenergetische Resonatormode folgt die anti-symmetrische Superposition, wobei sich die energetische Differenz aus der Tunnelkopplung, deren Vermessung ebenfalls ausführlich besprochen wird, ergibt. Höhere Zustände in der gegebenen Fallengeometrie sind höhere Harmonischer-Oszillator-Moden. Die spektrale sowie räumliche Aufteilung des durch Kontakt mit den Farbstoffmolekülen thermalisierten Photonengases zeigt eine Besetzung der Systemmoden nach der Bose-Einstein-Statistik und deutet auf ein erzeugtes Quantengas im thermischen Gleichgewicht hin. Insbesondere ist beim Überschreiten der kritischen Teilchenzahl eine makroskopische Besetzung des symmetrischen Superpositionszustandes im Fallenzentrum zu sehen. Sowohl die beobachtete räumliche Verteilung der Resonatoremission, als auch eine spektrale Analyse, weisen die Beobachtung eines Bose-Einstein Kondensats im räumlich aufgespaltenen Grundzustand, der die symmetrische Linearkombination der beiden lokalisierten Eigenzustände der Doppelmulde darstellt, nach.

In weiteren Experimenten wurde die Tunneldynamik eines Photonengases in Doppelmulden tiefergehend untersucht. Dazu wird ein kohärentes Wellenpaket in einer der Mulden angeregt. Die Zeitentwicklung dessen kann mit Pikosekunden-Auflösung beobachtet und die zeitliche Oszillation der Muldenbesetzungen, die äquivalent ist zu Rabi-Oszillationen im atomaren Zwei-Niveau-System, aufgelöst werden. Dieser Verlauf wird durch die theoretische Zeitentwicklung des initial präparierten Zustands als Superposition von symmetrischem und anti-symmetrischem Zustand gut beschrieben und lässt auf die Stärke der Tunnelkopplung schließen. Das Verfahren wird auch zur Vermessung der Photonendynamik in Dreifachmulden verwendet. Dabei konnten die Eigenmoden der Wellenpaketoszillation sowohl in gekoppelten linearen als auch in dreiecks-förmigen Gitterpotentialen beobachtet werden, wobei in der letztgenannten zweidimensionalen Anordnung, bei geeigneter Anregung, auch eine kreisförmige Photonendynamik beobachtet werden konnte.

Zukünftige Perspektiven der Arbeiten beinhalten die Thermalisierung von Licht in komplexen optischen Gitterstrukturen. Wenn der Grundzustand in einem solchen System mit einer effektiven Photonen-Wechselwirkung einen komplexen verschränkten Quantenzustand darstellt, kann dieser direkt durch Thermalisierung besetzt werden, was die Erzeugung neuartiger Quantenzustände des Lichts ermöglichen kann.

Publikationen

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

- C. Kurtscheid, D. Dung, E. Busley, F. Vewinger, A. Rosch und M. Weitz, Thermally condensing photons into a coherently split state of light, *Science* **366**, 894 (2019)
DOI: <https://doi.org/10.1126/science.aay1334>
- C. Kurtscheid, D. Dung, A. Redmann, E. Busley, J. Klaers, F. Vewinger, J. Schmitt und M. Weitz, Realizing arbitrary trapping potentials for light via direct laser writing of mirror surface profiles, *Europhysics Letters* **130**, 54001 (2020)
DOI: <https://doi.org/10.1209/0295-5075/130/54001>

Weitere im Rahmen der Arbeiten zu dieser Dissertation entstandene Veröffentlichungen:

- 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)
DOI: <https://doi.org/10.1038/nphoton.2017.139>
- E. Busley, L. Espert Miranda, A. Redmann, C. Kurtscheid, K. K. Umesh, F. Vewinger, M. Weitz und J. Schmitt, Compressibility and the equation of state of an optical quantum gas in a box, *Science*, **375**, 1403 (2022)
DOI: <https://doi.org/10.1126/science.abm2543>

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Bose-Einstein-Kondensation	5
2.2	Thermisches Photonengas im farbstoffgefüllten optischen Mikroresonator	10
2.3	Superpositionszustände im Doppelmuldenpotential	24
3	Mikrostrukturierung hochreflektiver Resonatorspiegel	27
3.1	Interferometrische Analyse von Spiegeloberflächen	27
3.2	Potentiale für Photonengase durch Deformation von Spiegeloberflächen	32
3.3	Iteratives Verfahren zur hochpräzisen Strukturierung von Spiegeloberflächen	35
4	Experimente zur Bose-Einstein-Kondensation von Licht in einen Superpositionszustand	37
4.1	Experimenteller Aufbau	37
4.2	Tunnelkopplung von Photonen im Doppelmuldenpotential	41
4.3	Thermalisierung und Kondensation eines Photonengases in einer harmonisch umschlossenen Doppelmulde	45
4.4	Monte-Carlo-Simulation in einer isolierten Doppelmulde	52
5	Dynamik eines Photonengases im Doppel- und Dreifachmuldenpotential	57
5.1	Experimenteller Aufbau	57
5.2	Kohärente Dynamik im Doppelmuldenpotential	60
5.3	Photonendynamik im Dreifachmuldenpotential	65
5.4	Beobachtung der Tunneldynamik in Korrelationen zweiter Ordnung	70
6	Ausblick	75
	Literaturverzeichnis	79

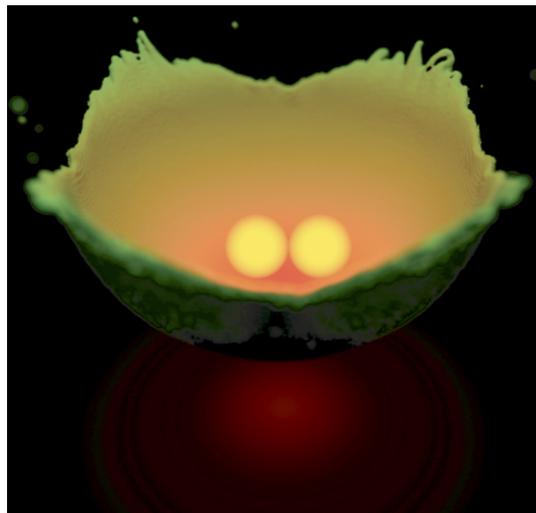
Einleitung

Entartete Quantengase haben sich in den letzten Jahrzehnten als hervorragende experimentelle Plattform erwiesen um Effekte der Quantenvielteilchenphysik genauer zu verstehen [1]. Für massive bosonische Teilchen tritt im Bereich der Quantenentartung der Effekt der Bose-Einstein-Kondensation auf, der sich durch die makroskopische Besetzung des Grundzustandes auszeichnet. Die erste experimentelle Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats erfolgte 1995 mit ultrakalten atomaren Gasen [2, 3] und geschah somit 70 Jahre nach Albert Einsteins theoretischer Vorhersage des Phasenübergangs [4]. Diese hatte er aus einem von Satyendranath Bose entwickelten Modell zur Quantenstatistik masseloser Teilchen abgeleitet [5]. Die daraus hervorgehende Bose-Einstein-Statistik beschreibt dabei die energetische Verteilung eines Quantengases aus massiven bosonischen Teilchen im thermischen Gleichgewicht. Aus dieser resultiert die Vorhersage der makroskopischen Besetzung des energetischen Grundzustands bei Temperaturen unterhalb einer kritischen Temperatur. Die experimentelle Herausforderung jenen kritischen Punkt zu erreichen, konnte erst nach der Erfindung des Lasers [6] und der daraus in Folge entwickelten Kühlverfahren von atomaren Gasen geringer Dichte bewältigt werden [7, 8]. Neben der Kondensation in Experimenten mit Alkaliatomen konnte dieser Zustand bei einer Vielzahl von weiteren Atomspezies nachgewiesen werden [9–13].

Photonen spielen bei der Realisierung von atomaren Kondensaten im Kühlverfahren, bei der Beobachtung, aber auch bei der anschließenden Manipulation eine zentrale Rolle. Die Realisierung der Kondensation der bosonischen Lichtquanten selbst gelang jedoch erst viel später. Die Schwarzkörperstrahlung gilt zwar als Musterbeispiel eines thermischen Gases und war zentraler Anhaltspunkt für Boses Überlegungen, eignet sich allerdings nicht um photonische Kondensate zu realisieren, da sich bei der Kühlung des Schwarzkörpers ebenfalls die Anzahl der Photonen reduziert und so die benötigte kritische Phasenraumdichte nicht erzielt werden kann. Theoretische Überlegungen eine teilchenzahlerhaltende Thermalisierung durch gemeinhin schwache Photon-Photon-Wechselwirkung in einem nichtlinearen Fabry-Perot-Resonator zu erzeugen, konnten bislang nicht verwirklicht werden [14, 15]. Mit der Bose-Einstein-Kondensation von Exziton-Polaritonen 2005 [16], gelang erstmals die Beobachtung eines Kondensats lichtartiger bosonischer (Quasi-)teilchen, welche der starken Kopplung eines optischen Strahlungsfeldes in einem Resonator mit Elektronen-Loch-Paaren (Exzitonen) entspringen, möglich. Dabei wird die Thermalisierung durch die Wechselwirkung des materieartigen Teils dieses Mischzustandes vermittelt. Ein rein photonisches Gas im thermischen Gleichgewicht konnte wenige Jahre später in einem farbstoffgefüllten Mikroresonator, bei welchem der Spiegelab-

stand ähnlich wie bei Experimenten mit Exziton-Polaritonen nur wenige Lichtwellenlängen beträgt, erstmalig realisiert werden [17, 18]. Der daraus resultierende große freie Spektralbereich des Resonators übersteigt dabei die spektrale Farbstofffluoreszenzbreite und sorgt somit für die Beschränkung der Photonendynamik auf die transversalen Resonatorzustände, wobei der Freiheitsgrad in longitudinaler Richtung ausgefroren wird. Der daraus resultierende Grundzustand nichtverschwindender Energie dieses zweidimensionalen Gases entspricht dabei einer effektiven Masse. Ferner werden die Photonen durch die inkohärente Kopplung an die sich bei Raumtemperatur befindenden Farbstoffmoleküle durch wiederholte teilchenzahlerhaltende Absorption- und Reemissionszyklen in ein thermisches Gleichgewicht überführt. Beim Überschreiten einer kritischen Teilchenzahl lässt sich dann die Kondensation in die gaußförmige Grundmode beobachten [19–21]. Diesem neuartigen Zustand von Licht konnte unter anderem seine durch die Kopplung an das Farbstoffreservoir resultierende großkanonische Natur nachgewiesen [22] und der Thermalisierungsmechanismus zeitaufgelöst untersucht werden [23, 24]. Durch die geringe Wechselwirkung des Photongases kann es als nahezu ideales Bose-Gas betrachtet werden und es erlaubte so die Vermessung kalorimetrischer Eigenschaften eines solchen [25]. Jüngst konnte durch die Analyse der zeitlichen Korrelationsfunktion zweiter Ordnung ein neuentdeckter nicht-hermitescher Phasenübergang des thermalisierten Photonengases charakterisiert werden [26].

Da die Thermalisierung des Photonengases durch ein Farbstoff-Wärmebad vermittelt und nicht wie bei atomaren Kondensaten ein mehrstufiges Kühlverfahren mit variabler Potentialgeometrie benötigt wird, kann von einer direkten Kondensation in den vom Resonator vorgegeben Grundzustand gesprochen werden. Diese Bedingungen erlauben es im Prinzip Kondensate in komplexen Grundzuständen ohne nachträgliche Manipulationen zu realisieren und stellen eine potentielle Plattform für Quantensimulationen oder Optimierungsprobleme dar [27].



Künstlerische Illustration des thermalisierten Photonengases mit hochenergetischen grünlichen Photonen am oberen Rand des harmonischen Fallenpotentials und niederenergetischen rötlichen Photonen die sich im Zentrum zu einem gespaltenen Bose-Einstein-Kondensat, dargestellt durch zwei leuchtende Kugeln, formieren.

Zur Erzeugung von Fallenpotentialen für Photonen-gase, die solche nicht-triviale Zustände bereitstellen, werden Methoden zur Strukturierung der Resonatorgeometrie benötigt. Dabei wurden bereits mehrere Ansätze verfolgt: Zum einen konnte der Brechungsindex der Farbstofflösung, welcher ein thermosensitives Polymer zugegeben wird, durch Erwärmung erhöht und somit die optische Resonatorlänge lokal erweitert werden [28]. Daraus entstehen näherungsweise harmonische, attraktive Fallenpotentiale, die in Punktgittern angeordnet werden können. Die Tunnelkopplung zwischen benachbarten Gittermulden, sowie die Kondensation in einen gaußförmigen Grundzustand in einer einzelnen Mulde konnten

so beobachtet werden [29]. Alternative vielversprechende Ansätze verfolgen die Manipulation der Resonatorgeometrie durch permanente Deformationen der Spiegeloberfläche, welche die Komplexität von Punktgittern übersteigen. Dazu kann das Spiegelsubstrat entweder vor der Beschichtung strukturiert werden [30] oder die Spiegeloberfläche wird nachträglich unter Ausnutzung laser-induzierter Delamination der dielektrischen Schichten strukturiert [29–31]. Neben der deutlich besseren Höhengauflösung beim Erzeugen der Oberflächenstrukturen mit Hilfe der letztgenannten Methode, ermöglicht diese auch das schnelle Erstellen von Potentialprototypen direkt im Optik-Labor, welche nach der Erzeugung sofort im Resonatorsystem untersucht werden können.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit gelang die Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensates von Licht in einen kohärent aufgespaltenen Überlagerungszustand. Dies wurde durch die Weiterentwicklung des oben beschriebenen Spiegelstrukturierungsverfahrens zur hochpräzisen Gestaltung von Fallenpotentialen im farbstoffgefüllten Mikroresonator ermöglicht, da mit diesem ein harmonisch umschlossenes gekoppeltes Doppelmuldenpotential erzeugt werden konnte, dessen Grundzustand der symmetrischen Superposition der ungestörten Muldeneigenzustände entspricht. Neben der Thermalisierung und Kondensation eines Photonengases in diesem System konnte in weiterführenden Untersuchungen unter anderem die kohärente Tunneldynamik in Doppelmuldenpotentialen in zeitaufgelösten Messungen beobachtet, analysiert und theoretisch beschrieben werden. Die komplexere Dynamik in Dreifachmulden wird sowohl in linearer als auch geschlossener Anordnung der Potentialtöpfe zeitaufgelöst studiert und ermöglicht die Beobachtung zweidimensionaler photonischer Kreisströme.

Struktur der Arbeit

Im nachfolgenden, zweiten Kapitel werden zunächst die theoretischen Grundlagen zu den in dieser Arbeit ausgeführten Experimenten erörtert. Folgend wird in Kapitel 3 der experimentelle Aufbau zur Charakterisierung und Mikrostrukturierung von Spiegeloberflächen präsentiert. Auf diese Weise erzeugte Doppelmuldenpotentiale werden in Kapitel 4 untersucht und die Bose-Einstein-Kondensation von Licht in einen Superpositionszustand demonstriert. In Kapitel 5 wird die zeitaufgelöste Tunneldynamik eines Photonengases in gekoppelten Doppel- und Dreifachmuldensystemen untersucht. Kapitel 6 enthält die Zusammenfassung der Arbeit und gibt einen Ausblick auf weiterführende Experimente des realisierten, experimentellen Systems.

Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden zunächst die Grundlagen der Bose-Einstein-Kondensation eingeführt. Dabei wird auf die Realisierung eines Bose-Einstein-Kondensats in einem nicht-wechselwirkenden Photonengas eingegangen. Der dazu notwendige, teilchenzahlerhaltende Thermalisierungsprozess, welcher durch den absorptiven Kontakt der Photonen an eine Farbstofflösung realisiert wird, wird im Detail diskutiert. Das experimentelle Mikroresonatorsystem und die daraus für das Photonengas resultierenden Potentialfallen werden für harmonische Fallengeometrien, sowie Doppelmuldenpotentiale diskutiert. Experimentelle Ansätze zur Implementierung dieser Systeme durch die Verwendung gekrümmter Resonatorspiegel oder ortsselektiver Brechungsindexvariation des Resonatormediums werden vorgestellt, sowie ein Ratengleichungsmodell zur Beschreibung der Dynamik und der stationären Zustände des Photonengases im getriebenen-dissipativen Systems eingeführt.

2.1 | Bose-Einstein-Kondensation

Für Bosonen, also Teilchen mit ganzzahligem Spin, ist die Wellenfunktion unter Vertauschung zweier Teilchen symmetrisch. Dies ermöglicht die mehrfache Besetzung eines Ein-Teilchen-Zustandes, welche für Fermionen, d.h. Teilchen mit halbzahligem Spin und anti-symmetrischer Wellenfunktion, nicht möglich ist (Pauli-Prinzip). Insbesondere wird eine Mehrfachbesetzung im Vergleich zur Situation der Statistik klassischer Teilchen sogar präferiert, was zur Formation eines Bose-Einstein-Kondensats bei niedrigen Temperaturen führen kann. Dabei findet ein Phasenübergang zu einem Zustand mit makroskopischem Anteil der Teilchen eines bosonischen Gases im Grundzustand des Systems statt. Zuerst wurde dieses Verhalten phänomenologisch bei supraflüssigem Helium beobachtet. Dabei konnten maximale Grundzustandsbesetzungen von $\sim 10\%$ beobachtet werden [32], eine Begrenzung, die der starken interatomaren Wechselwirkung geschuldet ist. Mit Hilfe der Laser- und der evaporativen Kühlung atomarer Gase auf Temperaturen von $\sim 10^{-7}$ K konnte hingegen mit einer Vielzahl von Atomspezies eine annähernd reine Kondensation beobachtet werden. Das folgende Kapitel soll die Formation eines solchen Kondensats und die Umstände, die diese ermöglichen, beleuchten.

Thermisches atomares Bose-Gas

Für ein ideales atomares Bose-Gas im thermischen Gleichgewicht bei der Temperatur T gilt für die Besetzung eines Zustandes mit der Energie ϵ über dem energetischen Grundzustand der Energie ϵ_0

die Bose-Einstein-Statistik [33]:

$$n_{T,\mu}(\epsilon) = \frac{g(\epsilon)}{\exp[(\epsilon - \mu)/k_B T] - 1}, \quad \mu \leq 0. \quad (2.1)$$

Dabei gibt $g(\epsilon)$ die Entartung des jeweiligen Zustandes an. Bei einem kontinuierlichen Energiespektrum tritt an deren Stelle die energieabhängige Zustandsdichte. Die Gesamtteilchenzahl N des Systems wird über das chemische Potential μ implizit festgelegt. Wegen der Teilchenzahlerhaltung gilt dann stets

$$\sum_{\epsilon} n_{T,\mu}(\epsilon) \stackrel{!}{=} N, \quad (2.2)$$

auch wenn die Temperatur des Bose-Gases verändert wird. Zunächst soll der Fall eines homogenen, ungefangenen dreidimensionalen Bose-Gases zur Beschreibung der Bose-Einstein Kondensation betrachtet werden. In diesem Fall gilt für die Zustandsdichte

$$g(\epsilon) = \frac{V m^{3/2}}{2^{1/2} \pi^2 \hbar^3} \epsilon^{1/2} \quad (2.3)$$

für Atome mit der Masse m im Volumen V . Für ein homogenes d -dimensionales Gas gilt im Allgemeinen $g(\epsilon) \propto \epsilon^{d/2-1}$ [34]. Ferner lässt sich die energetische Skalierung der Zustandsdichte in einem Fallenpotential über den Parameter α charakterisieren und auch das Niedertemperaturverhalten des Bose-Gases darüber einordnen. Allgemein kann der Zusammenhang

$$g(\epsilon) = C_{\alpha} \epsilon^{\alpha-1}, \quad (2.4)$$

mit der potentialabhängigen Konstante C_{α} aufgestellt werden [34]. Aus Gl. 2.1 ist ersichtlich, dass die Besetzung jedes Zustandes mit nicht verschwindender Energie $\epsilon > 0$ durch das maximal mögliche chemische Potential $\mu = 0$ limitiert ist. Die Teilchenzahl in angeregten Moden kann dann zu

$$N_c = C_{\alpha} \int_0^{\infty} d\epsilon \epsilon^{\alpha-1} \frac{1}{\exp[\epsilon/(k_B T)] - 1} = C_{\alpha} \Gamma(\alpha) \zeta(\alpha) (k_B T_c)^{\alpha} \quad (2.5)$$

berechnet werden. Dabei bezeichnet Γ die Eulersche Gamma-Funktion [35] und ζ die Riemannsche Zeta-Funktion [36]. Übersteigt die Gesamtteilchenzahl N des Systems den kritischen Wert N_c in Gl. 2.5, so kondensieren $N - N_c$ Teilchen in den energetischen Grundzustand. Umgekehrt ist die kritische Temperatur, unter der es bei konstanter Gesamtteilchenzahl N zu dieser makroskopischen Besetzung kommt, über

$$T_c = \frac{N^{1/\alpha}}{[C_{\alpha} \Gamma(\alpha) \zeta(\alpha)]^{1/\alpha} k_B} \quad (2.6)$$

gegeben. Wie aus Abb. 2.1 entnommen werden kann, erfolgt keine Sättigung der Besetzung angeregter Zustände bei $\alpha = 1$, da durch $\zeta(1) \rightarrow \infty$ der Ausdruck in Gl. 2.5 für endliche Temperaturen divergiert. Die energetische Skalierung der Zustandsdichte, definiert über den Parameter α , ist somit

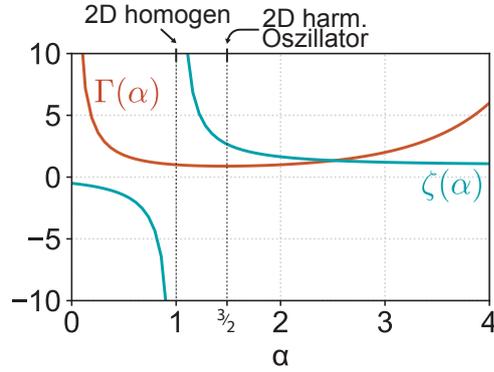


Abbildung 2.1 Gamma- und Zetafunktion als Funktion des Zustandsdichte-Parameters α – Bei Divergenz des Produktes dieser Funktionen, bei $\alpha = 1$, ist die Bose-Einstein-Kondensation bei einer nicht-verschwindenden Temperatur unmöglich. Dies gilt beispielsweise für ein zweidimensionales homogenes Gas.

entscheidend für das Niedrigtemperaturverhalten des Quantengases. Ein zwei-dimensionales Gas mit der energieunabhängigen Zustandsdichte

$$g_{2D, \text{frei}}(\epsilon) = g_{2D, \text{frei}} = \frac{Am}{\pi \hbar^2}, \quad (2.7)$$

wobei A die Fläche bezeichnet, kann also keinen Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat bei $T \neq 0$ vollziehen, da die kritische Teilchenzahl

$$N_c = \int_{>0}^{\infty} \frac{Am/\pi \hbar^2}{\exp(\epsilon/k_B T) - 1} d\epsilon \rightarrow \infty \quad (2.8)$$

divergiert. Im zuvor behandelten drei-dimensionalen Fall ($\alpha = 3/2$) hingegen lässt sich die kritische Temperatur

$$T_c = \frac{2\pi}{k_B m} \left(\frac{\hbar^3}{\zeta(3/2)} \frac{N}{V} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (2.9)$$

mit der in Gl. 2.3 gegebenen Zustandsdichte bestimmen. Somit ist die Formation eines Bose-Einstein-Kondensates in diesem System bei Unterschreitung von T_c möglich. Experimentell werden atomare Gase üblicherweise in harmonischen Potentialen gefangen. Allgemein kann hier die Zustandsdichte über

$$g(\epsilon) = \frac{\epsilon^{d-1}}{(d-1)! \prod_i \hbar \Omega_i} \propto \epsilon^{\alpha-1}, \quad \alpha = d \quad \text{mit } i = x, y, z \quad (2.10)$$

mit den Fallenfrequenzen Ω_i bestimmt werden [34]. Nach Gl. 2.10 ergibt sich so für eine eindimensionale harmonische Falle die Zustandsdichte $g_{1D, \text{harm}} = 1/(\hbar \Omega)$. Da somit $\alpha = 1$ gilt, ist der Phasenübergang zum Bose-Einstein-Kondensat bei einer endlichen Temperatur erneut unterdrückt. Im folgenden Abschnitt wird beleuchtet wie es durch eine Begrenzung der Potentialtiefe in ähnlichen Systemen dennoch zur Kondensation kommen kann.

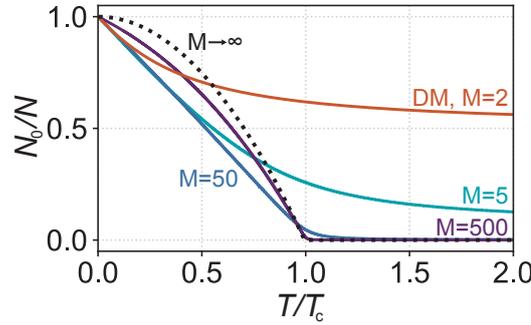


Abbildung 2.2 Temperaturabhängigkeit des Kondensatanteils in endlichen zweidimensionalen harmonisch gefangenen Systemen – Der numerisch berechnete Anteil der Grundzustandspopulation ändert sich mit der über die maximale Potentialtiefe E_{\max} und die Fallenfrequenz Ω gegebene variierende Zahl gebundener Zustände $M = E_{\max}/(\hbar\Omega)$, wobei stets $\Omega = 2\pi \times 39$ GHz gewählt wurde. Für das Doppelmuldensystem (DM) mit nur zwei gebundenen Moden, wurde eine Aufspaltung von $\Delta E = \hbar \times 10$ GHz angenommen. Für diese Konfiguration mit $M = 2$ sowie den Fall $M \rightarrow \infty$ sind die im Text diskutierten analytischen Lösungen gezeigt.

Kondensatanteil und Phasenübergang in endlichen Systemen

Allgemein lässt sich nach Gl. 2.5 die Gesamtzahl an Teilchen im angeregten Zustand unterhalb der kritischen Temperatur T_c und somit bei verschwindendem chemischen Potential $\mu = 0$ berechnen. Für $\alpha > 1$ konvergiert dieser Ausdruck und lässt sich mit Gl. 2.6 umschreiben zur temperaturabhängigen Anzahl angeregter Teilchen

$$N_a(T) = N \left(\frac{T}{T_c} \right)^\alpha. \quad (2.11)$$

Der Anteil der Teilchen im Grundzustand n_0 , andererseits der Kondensatanteil, ist dann

$$n_0 = \frac{N_0}{N} = \frac{N - N_a}{N} = 1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^\alpha. \quad (2.12)$$

Der Ausdruck gilt nur für ein unendlich tiefes Potential mit $\hbar\Omega/(k_B T) \ll 1$. In Experimenten ist die Potentialtiefe jedoch oft limitiert (engl. *finite-size*) und das Integral in Gl. 2.5 kann nicht mehr als unbegrenzt angenommen werden. Es wird nun durch die Energie E_{\max} des höchstenergetischen Zustands begrenzt:

$$N_a(T) = \int_0^{E_{\max}} d\epsilon n(\epsilon, T, \mu = 0) \quad (2.13)$$

Zweidimensionale Systeme von Photonen in solch endlich tiefen Potentialen werden in dieser Arbeit experimentell untersucht. Der Kontrollparameter für den Grad der Quantenentartung ist dabei die Gesamtteilchenzahl N , wobei die Temperatur T konstant gehalten wird. Numerisch lässt sich zu jeder Teilchenzahl die kritische Temperatur bestimmen, sodass Gl. 2.13 erfüllt wird. Abb. 2.2 zeigt den Kondensatanteil als Funktion der skalierten Temperatur T/T_c für zweidimensionale harmonische Potentiale variierender Tiefe und gleicher Fallenfrequenz Ω . Bei steigender Zahl der gebundenen

Zustände M , entsprechend einer zunehmenden Falltiefe, nähert sich der Verlauf dem in Gl. 2.12 gegebenen Grenzfall mit $\alpha = 2$. Dabei ist ein zunehmendes Aufweichen des Übergangverhaltens von N_0/N um T_c bei der Reduktion von M beobachtbar. Es wird maximal in einem System von zwei nichtentarteten Moden, welche sich energetisch um ΔE unterscheiden. In diesem speziellen Fall ist die Anzahl von Teilchen im angeregten Zustand

$$N_a(T) = \frac{1}{\exp(\Delta E/k_B T) - 1} \quad (2.14)$$

und die kritische Temperatur

$$T_c(N) = \frac{\Delta E}{\ln(1/N + 1) k_B}. \quad (2.15)$$

Dieser Verlauf ist in einem gekoppelten Doppelmuldenpotential, wie in dieser Arbeit untersucht wird, zu erwarten. Auch in anderen nicht-harmonischen Systemen spielen finite-size Effekte eine wichtige Rolle für die Kondensation des Bose-Gases. Durch räumlich endliche Ausdehnung eines Boxpotentials konnte jüngst die Bose-Einstein-Kondensation eines homogen zweidimensionalen Photonen-gases beobachtet werden [37], welche mit $\alpha = 1$ in einem unendlich großen System bei $T \neq 0$ unmöglich wäre.

Thermisches Photonengas – Schwarzkörperstrahlung

Ein bekanntes Photonengas im thermischen Gleichgewicht ist die Schwarzkörperstrahlung. Ihr thermisches Spektrum lässt sich mit der folgenden, von Albert Einstein aufgestellten, Argumentation herleiten und verstehen [38]. Dazu werden Photonen in einem Hohlraumresonator betrachtet. Die Absorption eines Photons mit Energie $\hbar\omega$ durch die in den Hohlraumwänden befindlichen Zwei-Niveau-Systeme erhöht die Wärmeenergie des Resonators. Gleichzeitig kann diese durch die Emission eines Photons in den Resonator reduziert werden. Für die zeitliche Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeit p_a des angeregten und p_g des Grundzustands des Zwei-Niveau-Systems lässt sich aus der Gesamtheit spontaner und stimulierter Emission und der Absorption mit der spektralen Photondichte n der folgende Zusammenhang aufstellen:

$$\frac{\partial}{\partial t} p_a = -(A + \hbar\omega B n) p_a + \hbar\omega B n p_g, \quad \frac{\partial}{\partial t} p_g = -\frac{\partial}{\partial t} p_a. \quad (2.16)$$

Die Raten für spontane und stimulierte Prozesse (A und Bn) sind dabei durch die Einstein-Koeffizienten A und B gegeben. Im stationären Gleichgewichtszustand, $\partial p_g / \partial t = \partial p_a / \partial t = 0$, gilt somit:

$$(A + \hbar\omega B n) p_a = \hbar\omega B n p_g \quad (2.17)$$

Da die Zwei-Niveau-Systeme sich im thermischen Gleichgewicht befinden, gilt für das Verhältnis der Besetzungen von angeregtem Zustand und Grundzustand

$$\frac{p_a}{p_g} = \exp(-\hbar\omega/k_B T), \quad (2.18)$$

wobei T die Temperatur des Schwarzkörpers bezeichnet. Einsetzen dieser Relation in Gl. 2.17 liefert die spektrale Photonendichte

$$n(\omega, T) = \frac{A}{\hbar\omega B} \frac{1}{\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1}. \quad (2.19)$$

Mit der spektralen Zustandsdichte im dreidimensionalen Raum, $A/(\hbar\omega B) = \omega^2/(\pi^2 c^3)$, ergibt sich das aus der statistischen Physik bekannte Plancksche Strahlungsgesetz [5]:

$$n(\omega, T) = \frac{\omega^2/(\pi^2 c^3)}{\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1} \quad (2.20)$$

Bei Vergleich mit der Bose-Einstein-Statistik in Gl. 2.1 fällt auf, dass das chemische Potential μ in der Schwarzkörperstrahlung verschwindet. Es gibt somit keine Randbedingung zur Teilchenzahlerhaltung. Eine Reduzierung der Schwarzkörpertemperatur führt automatisch auch zur Verringerung der Photonendichte. Durch Integration von Gl. 2.20 über alle Frequenzen ergibt sich die Temperaturabhängigkeit der Photonendichte

$$N/V = \int_0^\infty n(\omega, T) d\omega \propto T^3. \quad (2.21)$$

Mit $T \rightarrow 0$ gilt somit $N/V \rightarrow 0$ und eine makroskopische Grundzustandsbesetzung ist selbst am absoluten Nullpunkt unmöglich. Der experimentelle Aufbau, welcher die teilchenzahlerhaltende Thermalisierung eines Photonengases und dessen Bose-Kondensation zum ersten Mal erlaubte, wird in den folgenden Abschnitten ausführlich besprochen.

2.2 | Thermisches Photonengas im farbstoffgefüllten optischen Mikroresonator

Wie in den vorherigen Abschnitten gezeigt, kann es in einem bosonischen Gas unterhalb einer kritischen Temperatur zur Bose-Einstein-Kondensation kommen. Dabei ist die Existenz eines teilchenzahlerhaltenden Thermalisierungsprozesses und ein nicht verschwindendes chemisches Potential essentiell. Anders als bei stoßinduzierter Thermalisierung atomarer Gase, ist dies für ein thermalisiertes Spektrum eines Schwarzkörpers nicht gegeben. Im Folgenden wird erklärt, wie die Thermalisierung und Kondensation eines photonischen Bose Gases dennoch in einem farbstoffgefüllten optischen Resonator möglich ist und wie dies in Experimenten realisiert wird.

2.2.1 | Farbstoffinduzierte Thermalisierung eines Photonengases

Ein die Gesamtteilchenzahl erhaltender Thermalisierungsprozess wird experimentell durch die inkohärente Kopplung von Photonen in einem Mikroresonator an Farbstoffmoleküle über wiederholte Absorption und Re-Emission erzielt. Entscheidend ist dabei der proportionale Zusammenhang [40, 41]

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \omega^3 \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right), \quad (2.22)$$

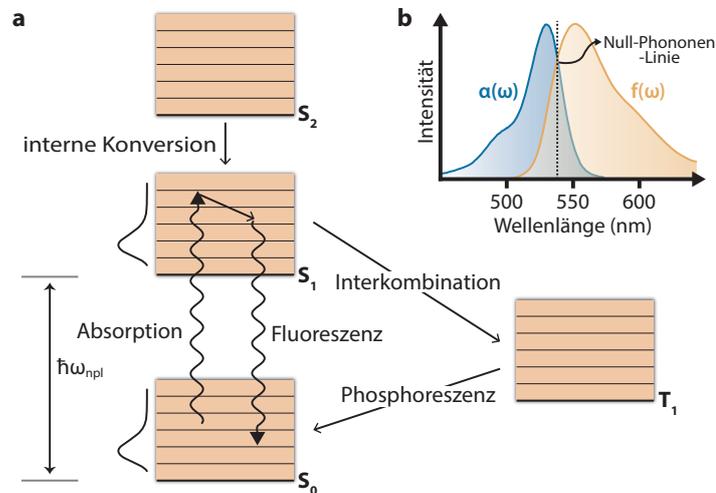


Abbildung 2.3 Jablonski Diagramm und Spektren des Farbstoffes Rhodamin 6G – **a**, Vereinfachtes Energieschema mit drei elektronischen Singulettzuständen S_1 , S_2 und S_3 und dem Triplettzustand T_1 mit den dazugehörigen in orange hinterlegten Energiebändern. Der energetische Abstand zwischen S_0 und S_1 beträgt $\hbar\omega_0$ (Null-Phononen-Linie). Die thermalisierten Besetzungen der Energiebänder sowie die möglichen Übergänge zwischen den Zuständen sind schematisch dargestellt. **b**, Absorptions- und Fluoreszenzstärke $\alpha(\omega)$ und $f(\omega)$ von Rhodamin 6G, Daten nach [39].

welcher das Verhältnis von Absorption und Fluoreszenz über den Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ und die mittlere emittierte Energie pro Frequenzintervall $f(\omega)$ bei der Lichtfrequenz ω mit einem Boltzmann-Faktor verknüpft. Folgend wird diese sogenannte Kennard-Stepanov-Relation für Farbstoffmoleküle schematisch hergeleitet und anschließend anhand von Markov-Prozessen gezeigt, wie die Molekül-Photon-Wechselwirkung das photonische Quantengas ins thermische Gleichgewicht überführen kann.

Kennard-Stepanov-Relation der Farbstoffmoleküle

Fluoreszenzfarbstoffe, wie der in dieser Arbeit verwendete Farbstoff Rhodamin 6G (R6G), sind chemische Verbindungen, welche sich dadurch auszeichnen, dass nach optischer Anregung des Moleküls in einen höheren elektronischen Zustand mit hoher Wahrscheinlichkeit die Emission eines Photons folgt. Die Fluoreszenzausbeute eines Farbstoffes, welche angibt mit welcher Effizienz dieser Prozess stattfindet, beträgt im Falle von R6G in einer Ethylen-Glykol-Lösung etwa 95 % [42]. Die Absorptions- und Fluoreszenzspektren von Farbstoffen weisen üblicherweise ähnliche Eigenschaften auf. Zum einen erfüllen sie die Kasha-Regel, welche besagt, dass das Fluoreszenzspektrum unabhängig von der optischen Anregungsfrequenz ist [43]. Ferner lässt sich eine Rotverschiebung relativ zum Absorptionsspektrum (Stokes-Shift) sowie eine Spiegelung an der spektralen Achse beobachten (Spiegel-Bild-Regel) [44]. Anhand des in Abbildung 2.3a dargestellten Jablonski-Diagramms kann das vereinfachte Energieschema von Rhodamin 6G nachvollzogen und der Ursprung der genannten Eigenschaften, welche auch dem in Abb. 2.3b gezeigten Spektrum dieses Farbstoffes zu entnehmen sind, verstanden werden.

Das Energieschema ist in elektronische Singulett- und Triplettzustände unterteilt. Bedingt durch die hohe Komplexität des Farbstoffmoleküls existiert eine Mannigfaltigkeit an Rotations- und Vibrationszuständen, welche bei nicht-verschwindender Umgebungstemperatur T die elektronischen Zustände zu höheren Energien hin verbreitert (orange unterlegt). Die Energiedifferenz des ersten angeregten Zustands S_1 und des Grundzustands S_0 von $\hbar\omega_{\text{npl}}$ bei $T = 0$ wird als Null-Phononen-Linie bezeichnet und beträgt im Fall von Rhodamin 6G etwa 2.3 eV. Folglich ist die Wahrscheinlichkeit einer thermischen Anregung dieses Übergangs bei Raumtemperatur stark unterdrückt ($e^{-E/(k_{\text{B}}T)} \sim 10^{-40}$). Die optische Anregung höherer elektronischer Zustände ist möglich, die Abstrahlung eines Photons erfolgt jedoch ausschließlich vom ersten angeregten Zustand. Grund dafür sind Konversionsprozesse, bedingt durch die überlappenden Energiebänder der höheren Niveaus, welche das Molekül über nicht radiative Prozesse in den ersten angeregten Zustand führen. Die Fluoreszenzlebensdauer in diesem Niveau beträgt etwa 4 ns.

Wie in Abb. 2.3 eingezeichnet, sind die verbreiterten Energiebänder der elektronischen Zustände thermisch besetzt, denn über wiederholte Stöße des Farbstoffmoleküls mit den umgebenden Lösungsmittelmolekülen wird überschüssige Energie dissipiert und im Gleichgewicht eine thermische Verteilung der rovibronischen Anregungen induziert. Dieser Thermalisierungsprozess findet in der zeitlichen Größenordnung von Pikosekunden statt und ist somit meist vor der Desaktivierung des angeregten elektronischen Zustands abgeschlossen. Vereinfacht lässt sich somit sagen, unabhängig von der Energie des anregenden optischen Photons befindet sich das emittierende Farbstoffmolekül statistisch im selben Zustand. Daran lässt sich einfach die Unabhängigkeit des Farbstofffluoreszenzspektrums von der Anregungswellenlänge (Kashas Regel), dessen Rotverschiebung (Stokes-Shift) sowie seine Spiegelung relativ zum Absorptionsspektrum verstehen.

Neben strahlungsloser Abregung existiert ein weiterer Verlustkanal, welcher die Photonenzahlerhaltung durch erneute Emission nach erfolgter Absorption einschränkt. Es handelt sich um den Prozess der Fluoreszenzlöschung. Dabei wird durch Wechselwirkung der Farbstoffmoleküle untereinander oder mit den Lösungsmittelmolekülen die Energie des zuvor absorbierten Photons nichtradiativ abgegeben. Neben dynamischen Prozessen, die das Molekül zurück in den elektronischen Grundzustand führen, kann hierbei in statischen Prozessen die Struktur des Farbstoffmoleküls dauerhaft verändert werden und seine Fähigkeit zur Fluoreszenz reduziert oder ausgelöscht werden. Da die Wahrscheinlichkeit für das Eintreten dieses Photobleichens mit der Verweildauer in angeregten Zuständen steigt, tritt dieser Effekt vor allem bei Molekülen in den in Abb. 2.3 dargestellten Triplettzuständen auf, da diese Lebensdauern bis zu einer Sekunde aufweisen. Die Anregung dieser Zustände findet hauptsächlich durch Interkombination hoch angeregter Molekülzustände statt. Sie sind ebenfalls verantwortlich für die sogenannte Triplett sättigung: Dabei gelangen Moleküle fortlaufend durch die kontinuierliche Bestrahlung mit einem Pumplaser oder durch Reabsorption zuvor emittierter Photonen in Triplettzustände und können wegen ihrer langen Lebensdauer bis zur Abregung durch Phosphoreszenz nicht zu erneuten Absorptionsprozessen beitragen. Bei hohen Pumpleistungen wird die Farbstofflösung somit zunehmend transparent für die Pump photons. Im Speziellen würde so der in den folgenden Abschnitten beschriebene teilchenzahlerhaltende Thermalisierungsprozess der Photonen durch Absorption-Emission-Zyklen bei hohen Pumpleistungen unterbunden. Aus diesem Grund wird der Farbstoff mit Laserpulsen (Pulsdauer 100 ns–1 μ s) von geringer Wiederholrate (1–100 Hz) angeregt, um den beschriebenen Effekt zu minimieren. Dieser geringe Tastgrad hat den weiteren Vorteil, dass die

Erwärmung der Lösung durch nicht-radiative Abregung und die Dissipation überschüssiger Energie in die als Wärmebad fungierenden Lösungsmittelmoleküle unterdrückt wird. Dies ist deshalb wichtig, da eine Temperaturerhöhung am Ort der Pumpanregung ebenfalls eine Brechungsindexänderung mit sich bringt, welche das Fallenpotential in einem Resonator (vgl. Abschnitt 2.2.2) während eines oder mehrerer aufeinanderfolgender Pumppulse variieren kann [29, 45].

Mit den im Farbstoffmolekül stattfindenden Prozessen lässt sich nun die Kennard-Stepanov-Relation in Gl. 2.22 herleiten [46–48]. Der Absorptionskoeffizient und die Fluoreszenzstärke des Farbstoffmoleküls ergeben sich über die Beiträge von einzelnen rovibronischen Energieniveaus mit den Energien ϵ_a im angeregten und ϵ_g im elektronischen Grundzustand unter Berücksichtigung der jeweiligen Zustandsdichte $g_{a,g}(\epsilon)$. Für ihr Verhältnis gilt mit den Einstein-Koeffizienten $A(\epsilon, \omega)$ und $B(\epsilon, \omega)$ für spontane Emission und Absorption

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{\int g_a(\epsilon_a) p_a(\epsilon_a) A(\epsilon_a, \omega) d\epsilon_a}{\int g_g(\epsilon_g) p_g(\epsilon_g) B(\epsilon_g, \omega) d\epsilon_g}. \quad (2.23)$$

Mit der zuvor getroffenen Annahme einer thermischen Besetzung dieser Niveaus im elektronisch angeregten sowie im Grundzustand gilt für die Besetzungswahrscheinlichkeiten

$$p_a(\epsilon) = p_g(\epsilon) = \exp\left(\frac{-\epsilon}{k_B T}\right). \quad (2.24)$$

Betrachtet man nun einen Absorptionsprozess eines Photons mit der Energie $\hbar\omega$ so gilt durch Energieerhaltung:

$$\hbar\omega + \epsilon_g = \hbar\omega_{\text{npl}} + \epsilon_a \rightarrow \epsilon_a = \hbar(\omega - \omega_{\text{npl}}) \quad (2.25)$$

für die rovibronische Energie des angeregten Zustands. Ferner gilt mit der A - B -Relation der Einstein-Koeffizienten [46, 49]

$$g_a(\epsilon_a) A(\epsilon_a, \omega) d\epsilon_a = \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} g_g(\epsilon_g) B(\epsilon_g, \omega) d\epsilon_g. \quad (2.26)$$

Eingesetzt in Gl. 2.23 ergibt sich somit das Gesetz von Kennard und Stepanov:

$$\frac{f(\omega)}{\alpha(\omega)} \propto \frac{2\hbar\omega^3}{\pi c^2} \exp\left[\frac{-\epsilon - \hbar(\omega - \omega_{\text{npl}})}{k_B T}\right] / \exp\left(\frac{-\epsilon}{k_B T}\right) \propto \omega^3 \exp\left[\frac{-\hbar(\omega - \omega_{\text{npl}})}{k_B T}\right]. \quad (2.27)$$

Diese Relation von Fluoreszenz und Absorption ist experimentell gut über limitierte Spektralbereiche erfüllt. Es lässt sich andererseits häufig beobachten, dass die über Anpassung der Relation bestimmte Temperatur, auch spektrale Temperatur genannt, von der gemessenen Umgebungstemperatur abweicht [50]. Trotz dieser geringen Unstimmigkeiten, welche üblicherweise durch unabgeschlossene Thermalisierung im angeregten Zustand und imperfekte Quanteneffizienz erklärt werden, konnte diese Relation in einer Vielfalt von experimentellen Systemen bestätigt werden, u.a. bei flüssigen Farbstoff- und Quantenpunkt-lösungen [17, 51, 52], bei in Polymermatrizen eingeschlossenen Farbstoffmolekülen [53] und auch bei ultradichten atomaren Gasen [54].

Übergang des Photonengases ins thermische Gleichgewicht

Als Markov-Kette wird ein stochastisches Modell bezeichnet, bei dem eine Sequenz von Systemkonfigurationen betrachtet wird in der jedes Folgeereignis nur von der aktuellen Anordnung des Systems abhängt [55]. Als eine Abfolge von stochastisch gewichteten Übergängen lässt sich auch der Thermalisierungsprozess eines Photonengases bei der Interaktion mit Farbstoffmolekülen über wiederholte Absorption und Emission betrachten. Dabei wird das System kontinuierlich in neue Konfigurationen, hier durch die modifizierte Besetzung der Systemmoden, überführt [18]. Die zeitliche Änderung der Wahrscheinlichkeit $p_C(t)$ eine bestimmte Konfiguration C zum Zeitpunkt t gegenüber dem Folgeschritt $t + 1$ vorzufinden, ist über die Differenz der Wahrscheinlichkeitszu- und abflüsse bestimmt. Mit den Konfiguration-Übergangsraten Γ gilt dann die Mastergleichung

$$p_C(t) - p_C(t + 1) = \sum_{C'} p_{C'}(t) \cdot \Gamma(C' \rightarrow C) - \sum_{C'} p_C(t) \cdot \Gamma(C \rightarrow C'). \quad (2.28)$$

Erreicht das System bei $t \rightarrow \infty$ thermisches Gleichgewicht, so ist die Wahrscheinlichkeit das System in der Konfiguration C mit der Energie E_C vorzufinden mit dem entsprechenden Boltzmann-Faktor

$$p_C(t \rightarrow \infty) = \exp(-E_C/(k_B T))/Z \quad (2.29)$$

gewichtet. Dabei bezeichnet Z die Zustandssumme. In diesem asymptotischen Fall gilt für die Mastergleichung dann ferner:

$$0 = \sum_{C'} \exp(-E_{C'}/(k_B T)) \cdot \Gamma(C' \rightarrow C) - \sum_{C'} \exp(-E_C/(k_B T)) \cdot \Gamma(C \rightarrow C'). \quad (2.30)$$

Eine der Lösungen von Gl. 2.30 wird als detailliertes Gleichgewicht bezeichnet. Für sie gilt

$$0 = \exp(-E_{C'}/(k_B T)) \cdot \Gamma(C' \rightarrow C) - \exp(-E_C/(k_B T)) \cdot \Gamma(C \rightarrow C'), \quad \forall C, C'. \quad (2.31)$$

Es gibt somit keinen effektiven Wahrscheinlichkeitsfluss zwischen verschiedenen Systemkonfigurationen. Nach Gl. 2.31 folgt weiter für das Verhältnis der Übergangsraten

$$\frac{\Gamma(C' \rightarrow C)}{\Gamma(C \rightarrow C')} = \exp[(E_{C'} - E_C)/(k_B T)]. \quad (2.32)$$

Es lässt sich schließen, dass in einem System über die Abfolge statistisch gewichteter Prozesse in einer Markov-Kette thermisches Gleichgewicht erreicht wird, wenn Gl. 2.32 für die Übergangsraten erfüllt ist.

Folgend wird diese Bedingung für das im Vergleich zum Experiment vereinfachte System einer mit Farbstoff gefüllten Box, wie in Abb. 2.4 dargestellt, überprüft. Da eine perfekte Reflektivität der Boxwände angenommen wird, können Photonen nur über die zwei eingezeichneten Öffnungen in das System eindringen und es verlassen. Beispielhaft können Photonen eines Pumpasers in die Box eingestrahlt werden. Vernachlässigt man Verluste, so wird das Pumpphoton während seines Aufenthaltes in der Box mehrmals von Farbstoffmolekülen absorbiert und re-emittiert, variiert von Emission zu Emission in seiner Wellenlänge und verändert dabei fortlaufend die Konfiguration, also die Besetzung der Moden des Systems. Betrachtet man den Übergang der Konfiguration $|x\rangle$ zu $|y\rangle$ durch die

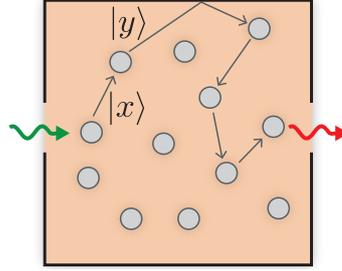


Abbildung 2.4 Schema des Thermalisierungsprozesses von Photonen in einer farbstoffgefüllten Box – Photonen können nur über die zwei Öffnungen in die Box mit spiegelnden Wänden eindringen und sie verlassen. Nach initialem Eindringen eines Photons (grüner Pfeil) wird die Konfiguration des Systems fortlaufend durch Absorption und darauffolgende Re-Emission durch Farbstoffmoleküle modifiziert. Beispielphaft ist hier die Änderung der Konfiguration $|x\rangle$ zu $|y\rangle$ eingezeichnet.

Absorption eines Photons der Mode i und der damit einhergehenden Reduktion der Besetzung n_i und die darauffolgende Emission in die Mode j , so lassen sich $|x\rangle$ und $|y\rangle$ relativ zueinander mit

$$|x\rangle = |n_1^x, n_2^x, \dots, n_i^x, \dots, n_j^x, \dots\rangle$$

$$|y\rangle = |n_1^y, n_2^y, \dots, n_i^y, \dots, n_j^y, \dots\rangle = |n_1^x, n_2^x, \dots, n_i^x - 1, \dots, n_j^x + 1, \dots\rangle$$

ausdrücken. Für die Absorptions- und Emissionswahrscheinlichkeit P_{Abs}^k und P_{Ems}^k von und in eine Mode k lassen sich unter der Berücksichtigung spontaner und stimulierter Prozesse folgende Proportionalitäten aufstellen:

$$P_{\text{Abs}}^k \propto n_k \cdot \alpha(\omega_k), \quad P_{\text{Ems}}^k \propto (n_k + 1) \cdot \frac{f(\omega_k)}{\hbar\omega_k g(\omega_k)} \quad (2.33)$$

Für die Übergangsrate gilt dann über das Produkt dieser Wahrscheinlichkeiten folgende Relation:

$$\Gamma(|x\rangle \rightarrow |y\rangle) \propto P_{\text{Abs}}^i \cdot P_{\text{Ems}}^j \propto n_i^x \alpha(\omega_i) \cdot (n_j^x + 1) \frac{f(\omega_j)}{\hbar\omega_j g(\omega_j)} \quad (2.34)$$

Analog gilt für den umgekehrten Prozess

$$\Gamma(|y\rangle \rightarrow |x\rangle) \propto n_j^y \alpha(\omega_j) \cdot (n_i^y + 1) \frac{f(\omega_i)}{\hbar\omega_i g(\omega_i)} = (n_j^x + 1) \alpha(\omega_j) \cdot n_i^x \frac{f(\omega_i)}{\hbar\omega_i g(\omega_i)}. \quad (2.35)$$

Für das Verhältnis dieser Raten ergibt sich mit der Zustandsdichte $g(\omega_k) = \omega_k^2/\pi^2 c^3$ über die Kennard-Stepanov-Relation

$$\frac{\Gamma(|x\rangle \rightarrow |y\rangle)}{\Gamma(|y\rangle \rightarrow |x\rangle)} = \frac{\alpha(\omega_i) f(\omega_j) \omega_i^3}{\alpha(\omega_j) f(\omega_i) \omega_j^3} \stackrel{\text{KSR}}{\propto} \exp\left(\frac{\hbar(\omega_i - \omega_0)}{k_B T}\right) \cdot \exp\left(\frac{-\hbar(\omega_j - \omega_0)}{k_B T}\right) \quad (2.36)$$

$$\propto \exp\left(\frac{-\hbar(\omega_j - \omega_i)}{k_B T}\right), \quad (2.37)$$

sodass die in Gl. 2.32 gegebene Bedingung für detailliertes Gleichgewicht in diesem System hinreichend erfüllt wird. Tatsächlich müssen bei genauerer Beschreibung des Systems optische Verluste und

die Deaktivierung der Farbstoffmoleküle durch nichtradiative Übergänge und Strahlung in ungefangene Moden berücksichtigt werden. Diese verletzen die Annahme der Teilchenzahlerhaltung und stellen Verlustkanäle dar. Durch Kompensation dieser mit Hilfe einer Pumpquelle wird jedoch die mittlere Photonenzahl die relevante konstante Größe. Die im Mikroresonator stattfindenden mikroskopischen Prozesse lassen sich mit einem Ratengleichungsmodell, wie es in Abschnitt 2.2.4 besprochen wird, beschreiben und erlauben so die numerische Modellierung des experimentellen Systems.

2.2.2 | Dispersionsrelation im optischen Mikroresonator

Wird der freie Spektralbereich eines farbstoffgefüllten Resonators größer als die spektrale Breite des Farbstoffs, so können vom Farbstoff emittierte Photonen in guter Näherung nur noch eine longitudinale Mode mit der Modenzahl q besetzen. Allgemein gilt für die Dispersionsrelation eines Photons in einem Medium mit dem Brechungsindex n_0

$$E(\vec{k}) = \hbar \frac{c}{n_0} |\vec{k}| = \hbar \frac{c}{n_0} \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2} \quad (2.38)$$

mit der Vakuum-Lichtgeschwindigkeit c und dem Wellenvektor \vec{k} mit seinen longitudinalen und transversalen Anteilen k_z und k_x und k_y . Über die von der Spiegelgeometrie vorgegebenen Randbedingungen gilt im Resonator mit transversal variierendem Spiegelabstand $D(x, y)$ für den longitudinalen Wellenvektor

$$k_z(x, y) = \frac{q\pi}{D(x, y)}. \quad (2.39)$$

Der Ausdruck in Gl. 2.38 kann nun zu

$$E = \hbar \frac{c}{n_0} \sqrt{\left(\frac{q\pi}{D(r)}\right)^2 + k_x^2 + k_y^2} \quad (2.40)$$

umgeformt werden und mit der paraxialen Näherung ($k_{x,y} \ll k_z$) zu

$$E \approx \hbar \frac{c}{n_0} \left(\frac{q\pi}{D(x, y)} + \frac{(k_x^2 + k_y^2)D(x, y)}{2q\pi} \right) \quad (2.41)$$

weiter approximiert werden. Der lokale Spiegelabstand $D(x, y) = D_0 - \Delta d(x, y)$ ist über den maximalen Abstand der Spiegel D_0 und die lokale Abweichung $\Delta d(x, y)$ definiert. Somit gilt für die Dispersionsrelation

$$E \approx \hbar \frac{c}{n_0} \left(\frac{q\pi}{D_0 - \Delta d(x, y)} + \frac{(k_x^2 + k_y^2)(D_0 - \Delta d(x, y))}{2q\pi} \right) \quad (2.42)$$

$$\approx \hbar \frac{c}{n_0} \left(\frac{q\pi}{D_0} + \frac{q\pi \Delta d(x, y)}{D_0^2} + \frac{(k_x^2 + k_y^2)D_0}{2q\pi} \right). \quad (2.43)$$

Dabei wurden im letzten Schritt die Variationen Δd als klein gegen den minimalen Spiegelabstand D_0 angenommen. Die minimale Energie der Photonen im Resonator ($k_{x,y} = \Delta d = 0$) lässt sich in dem

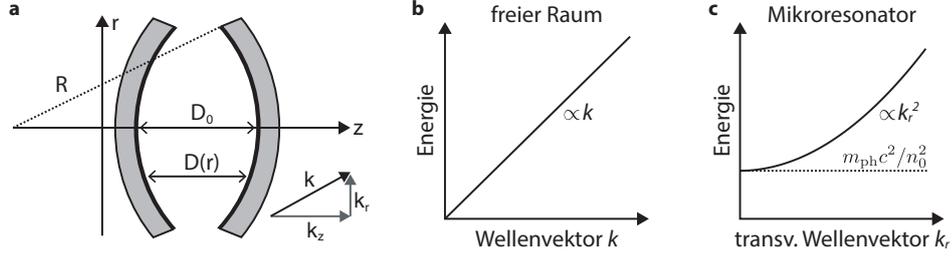


Abbildung 2.5 Dispersionsrelation im Mikroresonator – **a**, Schematische Darstellung eines Resonators, welcher aus zwei Spiegeln mit Krümmungsradius R mit transversal variierendem Abstand $D(r)$ geformt wird. Im Gegensatz zur linearen Dispersionsrelation im freien Raum (**b**), erhalten Photonen im Mikroresonator eine von Null verschiedene effektive Ruhemasse und die Photonenenergie skaliert quadratisch mit dem transversalen Wellenvektor k_r (**c**).

zwei-dimensionalen Bild als Ruheenergie mit der effektiven Masse $m_{\text{ph}} = \hbar q \pi n_0 / (D_0 c)$ auffassen und somit Gl. 2.43 schreiben als

$$E \approx m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n_0^2} + \frac{\hbar^2 (k_x^2 + k_y^2)}{2m_{\text{ph}}} + \frac{\hbar c q \pi \Delta d(x, y)}{n_0 D_0^2} = m_{\text{ph}} \frac{c^2}{n_0^2} + \frac{\hbar^2 (k_x^2 + k_y^2)}{2m_{\text{ph}}} + V(x, y). \quad (2.44)$$

Die Dispersionsrelation gleicht somit der Energie eines massiven Teilchens im zwei-dimensionalen Potential $V(x, y)$. Nimmt man ferner neben lokalen Abstandsvariationen der Spiegel ebenfalls kleine transversale Variationen des Brechungsindex $n(x, y) = n_0 + \Delta n(x, y)$ an, so lässt sich das Potential mit der Näherung $\Delta n \Delta d \approx 0$ zu

$$V(x, y) = \frac{\hbar c q \pi}{n_0 D_0^2} \Delta d(x, y) - \frac{\hbar c q \pi}{n_0^2 D_0} \Delta n(x, y) \quad (2.45)$$

ausdrücken. Es ist also möglich durch gezielte Strukturierung der Spiegeloberfläche oder durch Modulation des Brechungsindex die Potentiallandschaft für ein zwei-dimensionales Photonengas im Mikroresonator zu kontrollieren. Außerdem können mögliche durch die Photonen selbst induzierte Brechungsindexänderungen über den Kerr-Effekt oder thermo-optische Effekte berücksichtigt werden, die als (retardierte) Selbst-Wechselwirkungen der Photonen interpretiert werden können [18, 29].

Beispielhaft soll nun ein Mikroresonator aus zwei Spiegeln mit Krümmungsradius R betrachtet werden. In diesem System konnte erstmals ein Photonen-Bose-Einstein-Kondensat beobachtet werden [19]. Aus Abb. 2.5a ist ersichtlich, dass für den lokalen Spiegelabstand als Funktion des radialen Abstands r zur optischen Achse

$$D_R(r) = D_0 - 2 \left(R - \sqrt{R^2 - r^2} \right) \approx D_0 - 2 \left(R - R + \frac{r^2}{2R} \right) \quad (2.46)$$

$$\approx D_0 - \frac{r^2}{R} = D_0 - \Delta d(r) \quad (2.47)$$

gilt und folglich das durch die Resonatorgeometrie geformte Potential durch

$$V(r) = \frac{\hbar c q \pi r^2}{n_0 D_0^2 R} = \frac{1}{2} m_{\text{ph}} \Omega^2 r^2, \quad \Omega = \frac{c}{n_0 \sqrt{D_0 R / 2}} \quad (2.48)$$

mit der Fallenfrequenz Ω beschrieben wird. Wie in den Abbildungen 2.5b und c dargestellt, ergibt sich im Vergleich zur linearen Dispersion im freien Raum ein quadratischer Zusammenhang zwischen Photonenergie und transversalem Wellenvektor $k_r = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$. Die Eigenzustände Ψ_{n_x, n_y} dieses Systems entsprechen denen eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators mit den Hermite-Polynomen $H_n(x)$ [56]:

$$\Psi_{n_x, n_y}(x, y) = \psi_{n_x}(x)\psi_{n_y}(y) \quad (2.49)$$

$$\psi_n(x) = \sqrt{\frac{1}{2^n n!}} \left(\frac{m_{\text{ph}} \Omega}{\pi \hbar} \right)^{1/4} e^{-\frac{m_{\text{ph}} \Omega x^2}{2\hbar}} H_n \left(\sqrt{\frac{m_{\text{ph}} \Omega}{\hbar}} x \right) \quad (2.50)$$

Dabei sind $\psi_n(x)$ die Eigenzustände des eindimensionalen harmonischen Oszillators. Mit den transversalen Modenzahlen n_x und n_y gilt

$$E_{n_x, n_y} = \frac{m_{\text{ph}} c^2}{n_0^2} + \hbar \Omega (n_x + n_y + 1) \quad (2.51)$$

für die dazugehörigen Eigenenergien des Systems. Für die Energieentartung, also die Anzahl an Moden mit selber Energie, gilt somit mit $n = n_x + n_y$:

$$g(u_i) = 2 \cdot [(n(u_i) + 1)] = 2 \cdot [u_i/(\hbar \Omega) + 1] \quad (2.52)$$

Dabei wird hier die zweifache Polarisationsentartung für Photonen berücksichtigt. Des Weiteren bezeichnet $u = i \cdot \hbar \Omega$ die Energie der Mode i über der Grundzustandsenergie $E_0 = (m_{\text{ph}} c^2/n_0^2 + \hbar \Omega)$ des Systems.

Betrachtet man nun ein thermisches Photonengas in dem durch den Mikroresonator gegebenen Fallenpotential, so gilt nach der Bose-Einstein-Statistik für die Besetzung der entarteten Mode i

$$n_i(u_i) = \frac{g(u_i)}{\exp[(u_i - \mu)/k_B T] - 1} = \frac{2(i + 1)}{\exp[(i\hbar \Omega - \mu)/k_B T] - 1}. \quad (2.53)$$

Wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, gilt für die maximale Besetzung angeregter Zustände und somit für die kritische Teilchenanzahl

$$N_c = \sum_{i>0} n_i(\tilde{\mu} = 0) = \sum_{i>0} \frac{2(i + 1)}{\exp[(i\hbar \Omega)/k_B T] - 1} \quad (2.54)$$

$$\approx \int_0^\infty \frac{2(i + 1)}{\exp[(i\hbar \Omega)/k_B T] - 1} di = 2\Gamma(2)\zeta(2) \left(\frac{k_B T}{\hbar \Omega} \right)^2 = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B T}{\hbar \Omega} \right)^2. \quad (2.55)$$

In der Näherung wurde hier das Energiespektrum als kontinuierlich angenommen ($\hbar \Omega \ll k_B T$). Für die kritische Temperatur T_c bei konstanter Teilchenzahl N gilt somit:

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

Drückt man die Fallenfrequenz wieder in Parametern des Mikroresonatorssystems aus, so erhält man

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

für die kritischen Werte der Teilchenzahl und der Temperatur am Phasenübergang des Quantengases zum Bose-Einstein-Kondensat.

2.2.3 | Erste Experimente zur Photon-Bose-Einstein-Kondensation

Das erste rein photonische Bose-Einstein-Kondensat konnte 2010 im Rahmen der Dissertation von Jan Klärs realisiert werden [18, 19]. Der experimentelle Aufbau, der diese Beobachtung erlaubte, ist in Abb. 2.6a schematisch dargestellt. Die zentrale Komponente ist ein optischer Hochfinesse-Resonator, welcher durch zwei sphärische Spiegel mit Krümmungsradien von 1 m und einer Reflektivität von über 99.997 % im Wellenlängenbereich 500–590 nm gebildet wird und dessen Hohlraum mit einer Rhodamin-6G-Methanol-Farbstofflösung gefüllt ist. Der Spiegelabstand ist so gewählt, dass der freie Spektralbereich in der Größenordnung der spektralen Emissionsbreite des Farbstoffes liegt und somit nur eine longitudinale Resonatormode, hier $q = 7$, durch Photonen im Resonator besetzt werden kann. Ferner resultiert aus der Krümmung der Spiegel ein harmonisches Potential mit einer Fallenfrequenz von etwa $2\pi \times 41$ GHz (siehe Gl. 2.48). Des Weiteren erhalten die Photonen durch die longitudinale Abschneidewellenlänge von etwa 585 nm eine effektive Masse von 6.7×10^{-36} kg im Resonator. Um den Resonator mit Photonen zu befüllen, wird die Farbstofflösung unter einem Winkel von 42° (Transmissionsmaximum der Spiegel) zur Spiegelnormalen mit einem Pump Laserstrahl bei der Wellenlänge 532 nm bestrahlt und so Molekulanregungen im Farbstofffilm erzeugt. Die darauffolgend von den Molekülen in die Resonatormoden emittierten Photonen durchlaufen wiederholt Emissions- und Absorptionsereignisse in dem zuvor beschriebenen teilchenerhaltenden Thermalisierungsprozess. Dieser ist dabei statistisch betrachtet vor dem Verlust durch Spiegeltransmission abgeschlossen [23, 24]. Die mittlere Gesamtphotonenzahl wird über die Intensität des Pump Laserstrahles eingestellt und die Transmissionsverluste durch diesen während der Pulsdauer von 500 ns ausgeglichen. Mit einer Wiederholrate von 50 Hz wird der Tastgrad so gewählt, dass der Effekt des Photobleichens der Farbstoffmoleküle eine geringe Rolle spielt. Die während des Pump pulses durch die Spiegel transmittierte Farbstofffluoreszenz wird spektral und örtlich analysiert und ermöglicht die direkte Beobachtung des Quantengases. Die Photonenzahl im Resonator und somit die Intraresonatorleistung wird über den freien Parameter der Pumpleistung eingestellt, während die Temperatur des Resonatorsystems konstant bei der Raumtemperatur von 300 K verbleibt. In Abb. 2.6a sind die auf diese Weise gemessenen Spektren der Resonatoremision für variierende Photonenzahlen dargestellt. Mit steigender Teilchenzahl ist dabei eine zunehmende Besetzung bei der Abschneidewellenlänge und somit des Grundzustandes zu beobachten. Ebenfalls ist eine Sättigung der angeregten Zustände über einer kritischen Gesamtphotonenzahl von $N_{c,\text{exp}} = 6.6(25) \times 10^4$ ersichtlich, während es an diesem kritischen Punkt zur makroskopischen Besetzung des Grundzustands kommt und das Photonengas somit den Übergang zum Bose-Einstein-Kondensat erfährt. Dieses Verhalten lässt sich auch in der, in Abb. 2.6b gezeigten, räumlichen Verteilung der Photonen im Resonator erkennen. Hochenergetische (grüne) Photonen besetzen den äußeren Rand der thermischen Wolke, wobei sich niederenergetische, orangefarbene Photonen im Zentrum konzentrieren. Die starke Besetzung der zentralen, gaußförmigen Grundmode

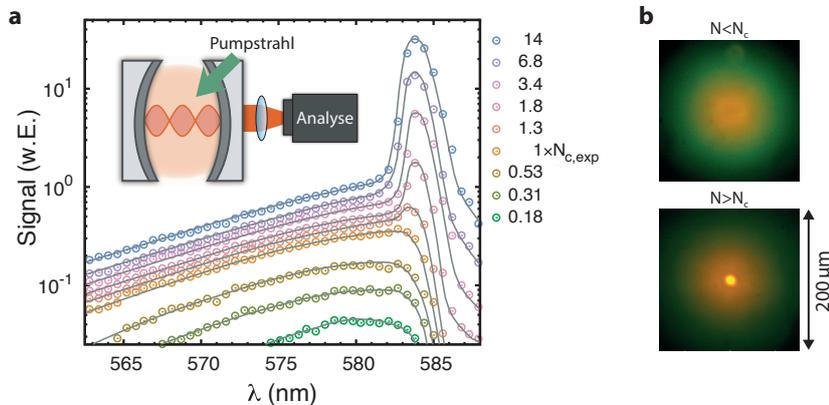


Abbildung 2.6 Erste Realisierung eines Photonen-Bose-Einstein-Kondensates – **a**, Spektrale Verteilung der Fluoreszenz in einem sphärischen farbstoffgefüllten Mikroresonatorsystem für verschiedene Gesamtphotonenzahlen relativ zur kritischen Teilchenzahl $N_{c,\text{exp}}$, bei der es zur Kondensation in den Grundzustand bei einer Wellenlänge von 585 nm kommt. Der experimentelle Aufbau ist im Bildeinschub schematisch dargestellt. **b**, Räumliche Abbildung der Resonatoremission bei einer Photonenzahl N unter- und oberhalb der kritischen Teilchenzahl N_c . Die Teilabbildungen wurden Referenz [18] entnommen und überarbeitet.

über der Kondensatschwelle wird durch die hohe Intensität in der Bildmitte deutlich. Die Besetzung der Moden wird durch die Bose-Einstein-Statistik, wie sie in Gl. 2.53 explizit für dieses System aufgestellt ist, bei einer Temperatur von 300 K, sehr gut beschrieben und die theoretisch zu erwartende kritische Gesamtphotonenzahl, welche sich mit Gl. 2.57 zu etwa 77000 bestimmen lässt, liegt im Fehlerbereich des experimentellen Wertes. Gegenüber Experimenten mit atomaren Bose-Gasen muss das photonische Quantengas keine aufwändigen mehrstufigen Kühlverfahren durchlaufen, ehe es kondensiert. Hier wird die kritische Phasenraumdichte durch Erhöhung der Photonenzahl bei konstant bleibender Temperatur erreicht. Experimente in ähnlichen Aufbauten wurden in einer Vielzahl von Arbeiten ausführlich untersucht [17, 20, 21]. So konnte unter anderem die Thermalisierungsdynamik zeitaufgelöst betrachtet und die kalorimetrischen Eigenschaften des Photonengases in der Umgebung des kritischen Punktes vermessen werden [24, 25, 37].

In weiteren Arbeiten konnte der experimentelle Aufbau so erweitert werden, dass mehrere harmonische Potentiale innerhalb eines Resonatorsystems angeordnet werden konnten [28, 29, 57]. Dazu wird, wie in Abb. 2.7a dargestellt, ein Resonator aus zwei Planspiegeln mit einer Farbstoff-Wasser-Lösung gefüllt, welcher ein thermo-sensitives Polymer (NIPAM) hinzugefügt wird [58, 59]. Durch ortsselektive Bestrahlung einer unter den dielektrischen Schichten befindlichen absorptiven, 30 nm dicken Siliziumschicht kann die Lösung erwärmt werden. Oberhalb der kritischen Temperatur von etwa 32 °C werden die bei niedrigeren Temperaturen gelösten Polymere unlöslich. Dieser Übergang wird auch Globuli-Knäuel-Übergang genannt [60] und weist im Falle von NIPAM eine Temperaturbreite von etwa 0.2 °C auf, innerhalb welcher sich der Brechungsindex der Lösung von $n \simeq 1.35$ auf bis zu $\simeq 1.46$ erhöht [61]. Im experimentellen Aufbau führt diese reversible lokale Brechungsindexzunahme $\Delta n(x, y) > 0$ im planen Resonatorsystem ($\Delta d(x, y) = 0$) zu einer ortsabhängigen Vertiefung des Potentials (vgl. Abschnitt 2.2.2 und Gl. 2.45). Wie in den in Abb. 2.7b dargestellten

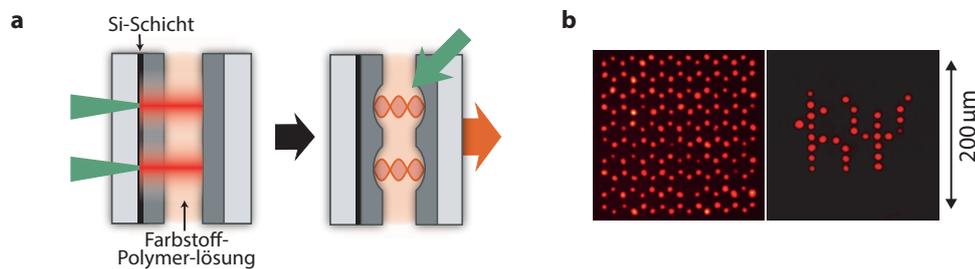


Abbildung 2.7 Erzeugung variabler Gitterstrukturen im farbstoffgefüllten Mikroresonator – **a**, Schematischer Aufbau zur Erzeugung variabler Potentiale in einem Mikroresonator aus zwei Planspiegeln. Über die Fokussierung eines hier in grün dargestellten Heizlaserstrahls auf eine absorptive Siliziumschicht, welche sich unter den dielektrischen Schichten befindet, wird die Farbstoff-Polymer-Lösung örtlich selektiv erwärmt und so lokal der Brechungsindex der Lösung erhöht. Durch die induzierte Verlängerung des optischen Weges entstehen lokale Potentialminima am Ort der Lasereinstrahlung. **b**, Beispielhafte Emission von photonischen Mikrokonensaten in entsprechend erzeugten Gitterpotentialen. Teilabbildung **b** wurde Referenz [29] entnommen und überarbeitet.

Ortsbildern der Resonatoremision zu sehen, lässt sich in den generierten Fallenpotentialen Licht fangen. Dabei wird der Spiegel zur Erzeugung von Punkt-Strukturen zwischen Pumpimpulsen mit dem Heizlaser abgefahren, wobei die Tiefe der Potentiale durch die lokale Heizleistung einstellbar ist. Da die zeitliche Abnahme der induzierten Brechungsindexänderung in der Größenordnung von 100 ms liegt und somit deutlich länger ist als die Pumpimpulsdauer von unter $1 \mu\text{s}$, kann die Potentialstruktur während des Pulses als statisch angenommen werden [62]. Die spektrale Untersuchung der Emission eines Photonengases in einem einzelnen, mit dieser Technik erzeugten, Mikropotential zeigt eine dem Heizlaserprofil folgende gaußförmige, näherungsweise harmonische Potentialform mit einer Fallenfrequenz von $2\pi \times 1.18 \text{ THz}$ und 7 diskreten Energieniveaus innerhalb der Potentialtiefe. Die Besetzung der Oszillatoreigenzustände folgt der Bose-Einstein-Statistik und ermöglichte somit, bedingt durch die vergleichsweise hohe Fallenfrequenz, die Beobachtung eines Bose-Einstein-Kondensats von Licht bei einer kleinen kritischen Teilchenzahl von nur 68 Photonen. Eine Kopplung von zwei Gitterplätzen in einem Doppelmuldenpotential, welches in Abschnitt 2.3 näher diskutiert wird, war in diesem System mit Kopplungsraten von bis zu $2\pi \times 20 \text{ GHz}$ ebenfalls erstmals möglich.

2.2.4 | Ratengleichungsmodell der Photonen- und Moleküldynamik im farbstoffgefüllten Mikroresonator

Die in Abschnitt 2.2.1 diskutierte Thermalisierung durch die Abfolge stochastischer Markov-Prozesse beruht auf der Annahme einer sich wiederholenden teilchenzahlerhaltenden Überführung des Systems in neue Konfigurationen von Photonenpopulationen in unterschiedlichen Moden. Dabei wird eine unendlich lange Photonen-speicherzeit implizit vorausgesetzt. Wie in Abschnitt 2.2.3 bereits erläutert, ist diese Voraussetzung im Mikroresonator-Experiment nicht erfüllt. Photon-Verluste über verschiedene Kanäle werden hier durch die Zufuhr von Molekülanregungen durch Pump-Photonen ausgeglichen. Somit wird ein stationärer Zustand mit konstanter mittlerer Photonenzahl über die Dauer des Pump-pulses realisiert. Im Folgenden sollen die im Resonator stattfindenden Prozesse über ein Ratengleichungsmodell der Besetzung der Systemmoden betrachtet und ihr stationärer Zustand mit der Bose-Einstein-Statistik verglichen werden.

In Abb. 2.8 ist zur Veranschaulichung des experimentellen Systems ein farbstoffgefüllter Resonator dargestellt. Vereinfacht ist eine einzelne Mode eingezeichnet, welche maximale Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Ort des größten Abstands des weitestgehend planen Spiegelpaares aufweist. Von außen werden Farbstoffmoleküle über Pump-Photonen mit der von der transversalen Position \vec{x} abhängigen Rate $R_p(\vec{x})$ angeregt. Die Abregung der Moleküle kann nun über gerichtete Emission eines Photons mit der Energie $\hbar\omega_i$ in eine Resonatormode i spontan mit der Rate $B_{\text{ems}}(\omega_i)$ oder stimuliert mit der Rate $B_{\text{ems}}(\omega_i)n_i$ erfolgen. Die photonische Besetzung n_i der Resonatormode i mit der Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung $|\psi_i(\vec{x})|^2$ kann durch diese Prozesse erhöht werden und durch molekulare Absorption mit der Rate $B_{\text{abs}}(\omega_i)$ reduziert werden. Außerdem können molekulare Anregungen mit der Rate Γ_{iso} isotrop abgestrahlt werden. Strahlungslose Übergänge werden in diesem Modell ebenfalls in dieser Verlustrate mitberücksichtigt, denn in beiden Fällen stellen diese Prozesse den Verlust einer Anregung aus dem Resonator dar. Einen weiteren zentralen (photonischen) Verlustkanal mit der Rate $\Gamma_{\text{res}}(\omega_i)$ stellt die Transmission der Photonen durch die Spiegel dar.

Die zeitliche Änderung des Anteils der Moleküle im angeregten Zustand, dem sogenannten Anregungsgrad $f(\vec{x})$, und die zeitlich variierende Photonen-Besetzung der Resonatormoden kann mit den genannten Prozessen in folgendem Ratengleichungssystem mit der Annahme eines geringen Anregungsgrades $f(\vec{x}) \ll 1$ aufgestellt werden (vgl. [63]):

$$\frac{d}{dt}n_i \approx B_{\text{em}}(\omega_i)(n_i + 1) \int |\psi_i(\vec{x})|^2 f(\vec{x}) d^3x - [B_{\text{abs}}(\omega_i) + \Gamma_{\text{res}}(\omega_i)] n_i \quad (2.58)$$

$$\frac{d}{dt}f(\vec{x}) \approx \sum_i B_{\text{abs}}(\omega_i) |\psi_i(\vec{x})|^2 n_i - f(\vec{x}) \left[\sum_i B_{\text{em}}(\omega_i) |\psi_i(\vec{x})|^2 (n_i + 1) + \Gamma_{\text{iso}} \right] + R_p(\vec{x}) \quad (2.59)$$

Dabei wird mit dem, als effektiver Anregungsgrad bezeichneten, Integral $f_{\text{eff},i} = \int |\psi_i(\vec{x})|^2 f(\vec{x}) d^3x$ die Emissionsrate mit dem örtlichen Überlapp der Mode i mit der lokalen Anregung gewichtet. Im stationären Zustand, d.h. $df(\vec{x})/dt = dn_i/dt = 0$, lässt sich Gl. 2.58 nach n_i lösen. Dies lässt sich im nächsten Schritt mit der für ein thermalisiertes Gas zu erwartenden Bose-Einstein-Statistik

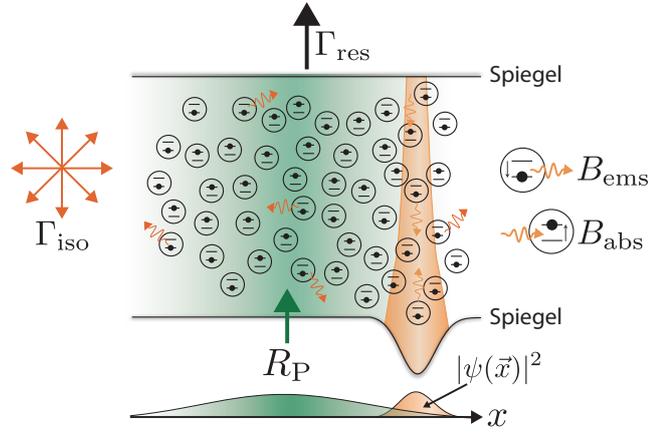


Abbildung 2.8 Schematische Darstellung der Prozesse in einem farbstoffgefüllten Resonator – Moleküle innerhalb des Resonators können durch externes ortsabhängiges optisches Pumpen mit der Rate R_P angeregt werden und zerfallen durch isotrope Spontanemission oder gerichtete stimulierte Emission in die orange dargestellte Resonatormode mit den jeweiligen Raten Γ_{iso} und B_{ems} . In die Mode mit der Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung $|\psi(\vec{x})|^2$ emittierte Photonen können von Molekülen reabsorbiert werden oder verlassen den Resonator (Raten jeweils B_{abs} und Γ_{res}).

gleichsetzen:

$$n_i = \frac{1}{\frac{B_{\text{abs}}(\omega_i) + \Gamma_{\text{res},i}}{B_{\text{em}}(\omega_i) f_{\text{eff},i}} - 1} \stackrel{!}{=} \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_i - \mu_i}{k_B T}\right) - 1} \quad (2.60)$$

Eine formale Lösung ist möglich, wenn ein modenabhängiges chemisches Potential μ_i eingeführt wird, welches für ein thermisches Gas unabhängig von der Mode i sein sollte. Löst man nach μ_i auf, so findet man jedoch folgende Abhängigkeit:

$$\mu_i = -\ln\left(1 + \frac{\Gamma_{\text{res},i}}{B_{\text{abs}}(\omega_i)}\right) k_B T + \ln\left(\frac{B_{\text{em}}(\omega_i)}{B_{\text{abs}}(\omega_i)}\right) k_B T + \ln(f_{\text{eff},i}) k_B T + \hbar\omega_i \quad (2.61)$$

Nach der Kennard-Stepanov-Relation gilt annähernd $B_{\text{em}}(\omega_i)/B_{\text{abs}}(\omega_i) \approx \exp[-\hbar(\omega_i - \omega_{\text{npl}})/(k_B T)]$ [64]. Somit lässt sich Gl. 2.61 weiter vereinfachen zu

$$\mu_i = \hbar\omega_{\text{npl}} - \ln\left(1 + \frac{\Gamma_{\text{res},i}}{B_{\text{abs}}(\omega_i)}\right) k_B T + \ln(f_{\text{eff},i}) k_B T. \quad (2.62)$$

Daraus wird leicht ersichtlich, dass das chemische Potential mit steigendem Anregungsgrad steigt und mit größeren Transmissionsverlusten sinkt. Unter der Annahme kleiner Spiegeltransmissionen $\Gamma_{\text{res},i} \ll B_{\text{abs}}(\omega_i)$ gilt weiter

$$\mu_i = \hbar\omega_{\text{npl}} + \ln(f_{\text{eff},i}) k_B T. \quad (2.63)$$

Aus einem ortsunabhängigen Anregungsgrad $f(\vec{x}) \equiv f_{\text{eff}}$ folgt somit ein modenunabhängiges chemisches Potential $\mu_i = \mu$ und bei geringen Transmissionsverlusten ist die Modenbesetzung in Gl. 2.60

nur von der jeweiligen Modenenergie $\hbar\omega_i$ abhängig. Übersteigen Verluste durch isotrope Spontaneission deutlich die Emission in Resonatormoden (bei kleiner Photonenpopulation n_i), so folgt aus Gl. 2.59 $f(\vec{x}) \approx R_P(\vec{x})/\Gamma_{\text{iso}}$. Somit lässt sich der effektive Angrad in diesem Grenzfall als Funktion der Pumprate wie folgt beschreiben:

$$f_{\text{eff},i} = \frac{1}{\Gamma_{\text{iso}}} \int |\psi_i(\vec{x})|^2 R_P(\vec{x}) d^3x. \quad (2.64)$$

Auch hier kann mit einer ortsunabhängigen Pumprate $R_P(\vec{x}) \equiv R_P$ nach Gl. 2.63 ein modenunabhängiges chemisches Potential generiert werden. Die daraus resultierende thermische Besetzung der Systemmoden ist dann jedoch durch Verluste bestimmt, denn der in Abschnitt 2.2.1 beschriebene Thermalisierungsprozess wird vorwiegend nach der ersten Photonabsorption unterbrochen, da eine erneute Emission in die Resonatormoden extrem unwahrscheinlich wird. Aus Gl. 2.58 lässt sich daraus weiter folgern, dass bei geringer Besetzung der Moden ($n_i \ll 1$)

$$n_i = B_{\text{em}}(\omega_i) f_{\text{eff},i} / [B_{\text{abs}}(\omega_i) + \Gamma_{\text{res}}(\omega_i)] \propto \int |\psi_i(\vec{x})|^2 R_P(\vec{x}) d^3x \quad (2.65)$$

für den stationären Zustand gilt. In solch einem Grenzfall ist die Besetzung einer Mode somit direkt proportional zu ihrem räumlichen Überlappintegral mit der Pumprate zu erwarten.

2.3 | Superpositionszustände im Doppelmuldenpotential

In den in dieser Arbeit untersuchten Experimenten spielt das Doppelmuldenpotential eine zentrale Rolle. Hier soll der Einfluss der Tunnelkopplung auf Eigenenergien und -zustände dieses Systems erarbeitet werden. Zunächst lassen sich die annähernd harmonischen Muldenpotentiale ungekoppelt betrachten. Der Hamiltonoperator lautet dann:

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix} \quad (2.66)$$

Dabei bezeichnen $E_{1,2}$ die Eigenenergien der in Abb. 2.9a eingezeichneten gaußförmigen Eigenzustände $\psi_{1,2}$. Die energetische Differenz dieser wird fortan als Verstimmung $\Delta E = E_2 - E_1$ bezeichnet. Vereinfacht lässt sich E_1 nun als globaler energetischer Versatz verstehen. Berücksichtigt man weiter die Störung des Systems durch die Tunnelkopplung $\hbar J$ zwischen den Mulden, wobei J als Tunnelrate bezeichnet wird, so lautet der Hamiltonoperator des gekoppelten Systems (vgl. [34]):

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \Delta E \end{pmatrix} - \hbar J \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -\hbar J \\ -\hbar J & \Delta E \end{pmatrix} \quad (2.67)$$

Dabei ist zu beachten, dass Wechselwirkungen der Teilchen in diesem System nicht berücksichtigt wurden, da diese in den in dieser Arbeit realisierten Experimenten mit Photonen vernachlässigbar sind. Gl. 2.67 stellt somit die maximal reduzierte Form des Hubbard-Hamiltonian, bzw. den Hamiltonian eines Josephson-Kontakts ohne Wechselwirkung dar [65, 66] und kann analog zum atomaren Zwei-Niveau-System mit der Störung $-\hbar J$ betrachtet werden [29, 67]. Durch Diagonalisierung des Hamiltonoperators lassen sich nun die Eigenzustände des gestörten Systems zu

$$\psi_+ = \cos \vartheta/2 \cdot \psi_1 + \sin \vartheta/2 \cdot \psi_2, \quad \psi_- = \sin \vartheta/2 \cdot \psi_1 - \cos \vartheta/2 \cdot \psi_2 \quad (2.68)$$

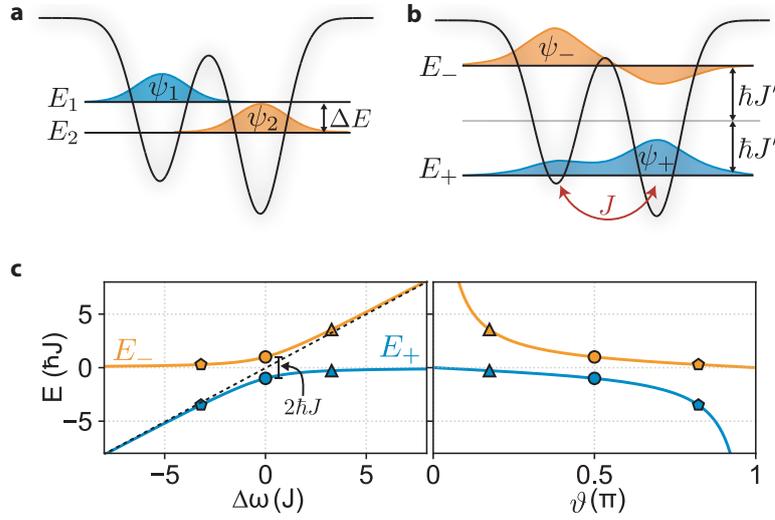


Abbildung 2.9 Eigenzustände und -energien im Doppelmuldenpotential – **a**, Schematische Darstellung der ungestörten Eigenzustände ψ_1 und ψ_2 und Eigenenergien E_1, E_2 der Einzelmulden, welche um ΔE zueinander verstimmt sind. **b**, Eigenenergien $E_{+,-}$ und Eigenzustände $\psi_{+,-}$ des gleichen, nun mit der Tunnelkopplung $\hbar J$ gekoppelten, Systems. **c**, Eigenenergien als Funktion der Verstimmung $\Delta\omega$ und des Mischungswinkels ϑ . Zur Zuordnung von beiden Graphen untereinander sind drei Datenpunkte in verschiedenen Stilen eingezeichnet. Auf Resonanz ($\Delta\omega = 0$) ergibt sich die eingezeichnete Aufspaltung von $2\hbar J$. Die gestrichelte schwarze Linie stellt den Verlauf bei verschwindender Kopplung dar.

mit dem Mischungswinkel

$$\vartheta = \arctan\left(\frac{2J}{\Delta\omega}\right) \quad (2.69)$$

und den ungestörten Eigenzuständen der einzelnen Mulden ψ_1 und ψ_2 bestimmen. Sie sind mit ihren entsprechenden Eigenenergien

$$E_{\pm} = \hbar \left(\Delta\omega/2 \mp \sqrt{J^2 + (\Delta\omega/2)^2} \right) = \hbar \left(\Delta\omega/2 \mp J' \right), \quad \Delta E_{\pm} = 2\hbar J' \quad (2.70)$$

schematisch in Abb. 2.9b dargestellt. Dabei bezeichnet $\Delta\omega = \Delta E/\hbar$ die Verstimmungskreisfrequenz und ΔE_{\pm} die Energiedifferenz proportional zur effektiven Tunnelkopplung $\hbar J'$. Der niedereenergetische Zustand ψ_+ wird als symmetrischer und der höherenergetische Zustand ψ_- als antisymmetrischer Superpositionszustand bezeichnet. In Abb. 2.9c sind ihre Eigenenergien als Funktion der Verstimmung und des daraus resultierenden Mischungswinkels graphisch dargestellt. Auf Resonanz ($\Delta\omega = 0$) ergibt sich mit $\vartheta = \pi/2$ für die Eigenzustände und -energien

$$\psi_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\psi_1 \pm \psi_2), \quad E_{\pm} = \mp \hbar J. \quad (2.71)$$

An diesem Punkt ist somit eine Gleichbesetzung der einzelnen Mulden, sowie das Erreichen der minimalen energetischen Differenz der Zustände $\Delta E_{\pm} = 2\hbar J$ zu erwarten. Im Grenzfall großer Verstimmung $|\Delta\omega| \rightarrow \infty$ und folglich in Gl. 2.69 verschwindendem Mischungswinkel gehen die

Eigenenergien wieder in die ungekoppelte Form über, wie in Abb. 2.9c durch die eingezeichnete Gerade veranschaulicht. Da im Experiment sowohl die Energie als auch Form der Zustände zugänglich ist können die Beziehungen in Gl. 2.70 und 2.71 später zur Charakterisierung der Tunnelkopplung realisierter Doppelmuldenpotentiale herangezogen werden.

Mikrostrukturierung hochreflektiver Resonatorspiegel

Im Kapitel zu den Grundlagen zur Bose-Einstein-Kondensation von Photonen wurde beschrieben, dass Fallenpotentiale im farbstoffgefüllten Resonator aus transversalen Variationen des Brechungsindex der Farbstofflösung oder der Spiegelabstände resultieren (s. Abs. 2.2.2). Letztere werden im Rahmen dieser Arbeit gezielt induziert. Dabei bleibt der Brechungsindex der Lösung ortsunabhängig $n(x, y) = n_0$. Somit vereinfacht sich Gl. 2.45 zu

$$V(x, y) = \frac{\hbar c q \pi}{n_0 D_0^2} \Delta d(x, y) = \frac{2 \hbar c n_0}{q \lambda^2} \Delta d(x, y). \quad (3.1)$$

Abweichungen der Spiegeloberfläche $\Delta d(x, y)$ vom maximalen Abstand D_0 eines gegenüberstehenden planen Spiegels resultieren somit in einem variablen Fallenpotential $V(x, y)$, dessen Tiefe über die Wahl der longitudinalen Mode q mit der Wellenlänge λ verstellbar ist. Um theoretische Vorhersagen zu Photonengas-Experimenten mit Spiegeln variabler Oberflächenstruktur treffen zu können, ist deren unabhängige Bestimmung essentiell. In diesem Kapitel wird zunächst eine Methode zur präzisen Vermessung von Spiegeloberflächen präsentiert, bevor ein Verfahren zur ortsselektiven permanenten Spiegelmikrostrukturierung beschrieben wird.

3.1 | Interferometrische Analyse von Spiegeloberflächen

Zur Oberflächencharakterisierung von Resonatorspiegeln wird ein auf dem in Abb.3.1a schematisch gezeigten Michelson-Interferometer basierendes optisches Interferenzverfahren verwendet. Ein Lichtstrahl mit der Intensität I_{in} wird über einen Strahlteiler auf zwei plane Spiegel S_1 und S_2 geführt, welche sich im Abstand s_1 und s_2 befinden. Die Strahlen passieren nach der Reflexion erneut den Strahlteiler und werden so auf einem Detektor überlagert. Wird als Lichtquelle ein kohärenter Laserstrahl mit der Intensität I_{in} angenommen, so ergibt sich am Ort des Detektors die Gesamtintensität I_{Det} aus der Interferenz der Teilstrahlen mit Intensitäten I_1 und I_2 [68]

$$I_{\text{Det}} = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos(2k\Delta s + \varphi_0) \quad (3.2)$$

mit dem Weglängenunterschied Δs und zusätzlichen Phasenversatz von φ_0 , der beispielsweise Brechungsindexvariationen berücksichtigt. Des Weiteren bezeichnet $k = 2\pi/\lambda$ den Wellenvektor. Unter der

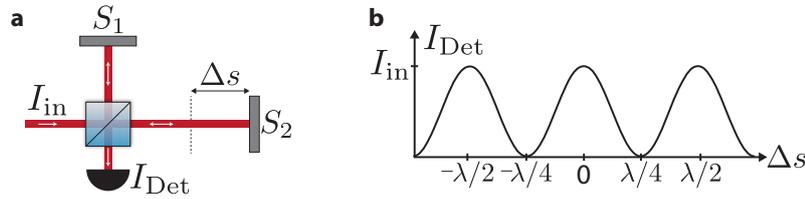


Abbildung 3.1 Schematische Darstellung eines Michelson-Interferometers – **a**, Ein einlaufender Strahl der zentralen Wellenlänge λ wird an einem Strahlteiler aufgeteilt und an zwei Spiegeln die sich im Abstand zum Strahlteiler um Δs unterscheiden zurückreflektiert. Am vierten Ausgang des Strahlteilers wird die Intensität der Überlagerung beider Strahlen detektiert. **b**, Detektierte Intensität I_{Det} als Funktion von Δs für eine kohärente Lichtquelle und einen idealen 50:50-Strahlteiler, wobei I_{in} die Intensität des einlaufenden Lichtstrahls bezeichnet.

Annahme eines idealen 50:50-Strahlteilers gilt $I_1 = I_2 = I_{\text{in}}/4$ und somit vereinfacht

$$I_{\text{Det}} = \frac{I_{\text{in}}}{2} [1 + \cos(\varphi + \varphi_0)] , \quad \varphi = 2k\Delta s. \quad (3.3)$$

Abb. 3.1b zeigt schematisch den Verlauf der detektierten Intensität als Funktion des Weglängenunterschieds bei $\varphi_0 = 0$. Über dieses grundlegende Prinzip lassen sich kleinste Änderungen des Weglängenunterschieds hochpräzise vermessen. Dies ermöglichte in einem weiterentwickelten Aufbau u.a. die Beobachtung von Gravitationswellen [69]. Lokale Abweichungen der Spiegeloberflächen $h(x, y)$ von einer planen x - y -Ebene orthogonal zur optischen Achse übersetzen sich direkt in Gangunterschiede und somit in Intensitätsvariationen am Ort des Detektors. Demnach kann mit einer ortsauflösenden CCD-Kamera ein zwei-dimensionales Interferogramm aufgenommen werden. Diese Methode ermöglichte beispielhaft die Beobachtung von Oberflächenvibrationen mit Sub-Ångström-Auflösung [70]. Aus einer Aufnahme bei festem Gangunterschied Δs lässt sich so die Phase

$$\varphi(x, y) = \arccos\left(\frac{2I_{\text{Det}}(x, y)}{I_{\text{in}}} - 1\right) + m \cdot 2\pi = 2k(\Delta s + h(x, y)) \quad (3.4)$$

ortsaufgelöst bestimmen. Durch die Nicht-Bijektivität der arccos-Funktion muss die Phase durch ein Vielfaches von 2π mit der natürlichen Zahl m korrigiert werden. Unter der Annahme einer annähernd glatten Oberfläche mit kontinuierlichen Übergängen lässt sich algorithmisch (engl. *phase unwrapping algorithm*) die Phase über den Bereich von 0 bis 2π hinaus extrahieren [71]. Somit kann das Höhenprofil eines Probenspiegels unter Annahme eines planen Referenzspiegels aus der ermittelten Phase φ_{kor} gemäß

$$h(x, y) = \varphi_{\text{kor}}(x, y) \frac{\lambda}{4\pi} - \Delta s \quad (3.5)$$

rekonstruiert werden. Obwohl der Spiegelabstand Δs unbekannt ist, kann dennoch der transversale relative Höhenunterschied berechnet werden. Aus der Ableitung von Gl. 3.4 nach der Intensität folgt für den minimal auflösbaren Phasenunterschied

$$\Delta\varphi = \Delta I / \sqrt{I_{\text{Det}} \cdot (I_{\text{in}} - I_{\text{Det}})}. \quad (3.6)$$

als Funktion vom kleinsten mit dem Detektor messbaren Intensitätsunterschied ΔI . Die beste Auflösung ist an den Wendepunkten der cos-Funktion ($I_{\text{Det}} = I_{\text{in}}/2$) zu erwarten, also dort, wo die Ableitung maximal wird. Für sie gilt $\Delta\varphi_{\text{min}} = 2\Delta I/I_{\text{in}}$. Nimmt man als Detektor, wie im Experiment verwendet, eine CCD-Kamera mit 8-Bit-Auflösung an, so kann minimal ein Phasenunterschied von $\Delta\varphi_{\text{min}} = 1/127 = 2.5 \times 10^{-3} \pi$ anhand einer einzelnen Aufnahme gemessen werden. Dies entspricht bei einer Wellenlänge von $\lambda = 530 \text{ nm}$ einem Höhenunterschied von $\Delta h = 0.3 \text{ nm}$. Dieser Wert ist allerdings nur unter der Annahme eines idealen Strahlteilers und verschwindendem Hintergrund- und Pixelrauschen zu realisieren, und lässt sich somit nicht auf Experimente anwenden. Dennoch ermöglicht diese Methode eine grobe Analyse der Spiegeloberfläche, welche aus Einzelaufnahmen der CCD-Kamera bestimmt werden kann. Weitaus bessere Ergebnisse lassen sich durch wiederholte Aufnahmen der Interferenz während der schrittweisen Reduktion des Spiegelabstands durch das Verfahren eines der Spiegel auf der optischen Achse erzielen (Scan). Dabei sollte die Schrittweite zwischen Aufnahmen kleiner als $\lambda/4$ sein (Abtastung nach Nyquist) und konstant bleiben. Dies lässt sich üblicherweise mit Piezotranslationsbühnen gut erreichen. Des Weiteren sollte der Gesamtverfahrweg $\lambda/2$ überschreiten, um eine Anpassung der cos-Funktion gemäß Gl. 3.3 an den gemessenen Intensitätsverlauf und die Bestimmung der relativen Phase sowie des Höhenprofils zu ermöglichen.

Experimenteller Aufbau zur Oberflächenanalyse

Zur Vermessung der Oberflächenprofile von dielektrischen Spiegeln wird im Rahmen dieser Dissertation der in Abb. 3.2a dargestellte ‘‘Weißlicht‘‘-Interferometrie-Aufbau verwendet. Ein Mirau-Objektiv (Hersteller: Nikon, Typ: CF Plan 20x DI) realisiert gleichzeitig das abbildende Element mit einer transversalen Auflösung von $0.74 \mu\text{m}$ [29, 72], sowie das kompakte Michelson-Interferometer. Wie schematisch gezeigt, wird ein kollimierter Lichtstrahl über einen Strahlteiler in das Objektiv geführt. Hier durchläuft er ein fokussierendes Linsensystem und darauffolgend einen teilreflektiven Spiegel, welcher die Funktion des Strahlteilers in Abb. 3.1a übernimmt. Der transmittierte Teilstrahl wird auf die sich außerhalb befindliche zu untersuchende Spiegelprobe und der reflektierte Teilstrahl auf einen Referenzspiegel innerhalb des Objektivs abgebildet. Die nun jeweils reflektierten Strahlen werden durch Reflexion bzw. Transmission am teilreflektiven Spiegel überlagert, durchlaufen erneut das Objektiv-Linsensystem und werden final mit einer Sammellinse auf eine CCD-Kamera (Hersteller: Thorlabs, Typ: DCC1240M) abgebildet. Zur Ausleuchtung wird eine LED mit einer kurzen Kohärenzlänge $L_c \approx 3.3 \mu\text{m}$ und der zentralen Wellenlänge $\lambda_{\text{LED}} = 530 \text{ nm}$ verwendet [73]. Aufgrund von Interferenz ist die detektierte Intensität als Funktion des transversal variierenden relativen Weglängenunterschiedes $\Delta s + h(x, y)$ dann [74, 75]

$$I(\Delta s(x, y)) = \frac{I_{\text{in}}}{2} \left(1 + \exp \left[-4 \left(\frac{\Delta s + h(x, y)}{L_c} \right)^2 \right] \cos [2k(\Delta s + h(x, y))] \right). \quad (3.7)$$

Mit der Annahme einer hochkohärenten Lichtquelle ($\Delta s/L_c \ll 1$), vereinfacht sich dies zum zuvor in Gl. 3.3 angeführten Ausdruck. Die Verwendung von Weißlicht, also einer spektral breiten Lichtquelle, zur Illumination der Spiegelprobe hat einige Vorteile gegenüber der Nutzung eines Lasers. Da sich kontrastreiche Interferogramme nur nahe des Weglängenunterschieds $\Delta s = 0$ ergeben, wird ungewollte Interferenz von jeglichen Reflexionen an optischen Elementen und die Entstehung von störender Speckle-Interferenz verhindert. Der Experimentaufbau garantiert, dass die optimale transversale

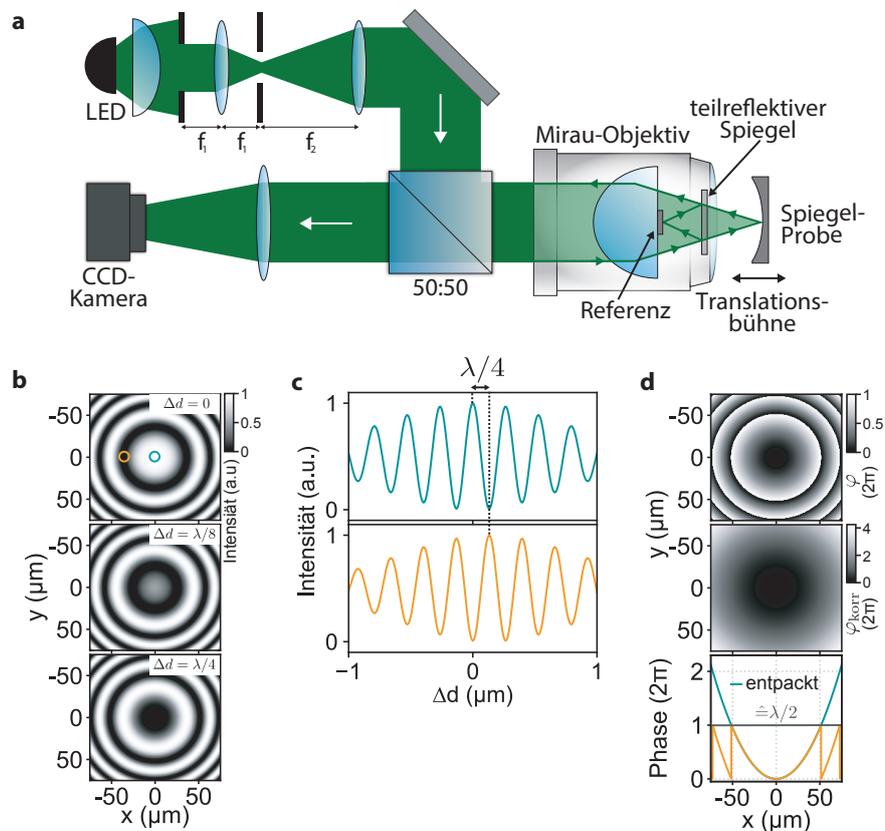


Abbildung 3.2 Schematischer Aufbau und Funktionsweise des Mirau-Interferometers zur Höhenvermessung deformierter Spiegel – **a**, Das divergente Licht einer LED mit der zentralen Wellenlänge 530 nm wird mit einer Kondensorlinse aufgefangen und passiert eine Blende bevor es mit einer Sammellinse fokussiert wird. Der Strahl wird am Ort der Abbildung durch eine weitere Blende beschnitten und anschließend durch eine zweite Sammellinse kollimiert. Über einen Strahlteiler wird er dann in das Mirau-Objektiv geführt. Hier passiert der Strahl ein Linsensystem und einen teildurchlässigen Spiegel bevor er das Objektiv verlässt und auf eine Spiegelprobe fokussiert wird. Die beiden an verschiedenen Spiegeln reflektierten Strahlen durchlaufen erneut das Objektiv und werden auf eine CCD-Kamera abgebildet. **b**, Exemplarische Interferogramme bei relativen Spiegelverschiebungen Δd bei einer Spiegeloberfläche mit Krümmungsradius von 5 mm. **c**, Intensitätsverlauf für zwei ausgewählte transversale Positionen, welche in **b** mit einem blauen und orangenen Kreis markiert sind. **d**, Aus Anpassungen von Cosinusfunktionen bestimmte relative Phasen (oben) und durch Entpackung berechnete Relativphasen über das Limit von 2π hinaus (mittig). Außerdem ist der Verlauf der Phasen im Profil bei $y=0\ \mu\text{m}$ dargestellt (unten).

Auflösung bei diesem maximalem Interferenzkontrast (um $\Delta s = 0$) und somit auch bei maximaler longitudinaler Auflösung erreicht wird. Einen weiteren Vorteil bietet solch eine Lichtquelle bei der Bestimmung von tiefen Stufen in Spiegeloberflächen [76]. Hier kann die relative Höhe der Stufen über die Detektion des maximalen Interferenzkontrastes als Funktion des bekannten Verfahrenswegs bestimmt werden. Außerdem wird der im vorigen Abschnitt angesprochene Phasen-Entpackungs-Algorithmus theoretisch nicht mehr zur Weglängenunterschiedsbestimmung benötigt, denn durch den exponentiellen Vorfaktor in Gl. 3.7 ist die Höhendifferenz anhand des Interferenzkontrasts bestimm-

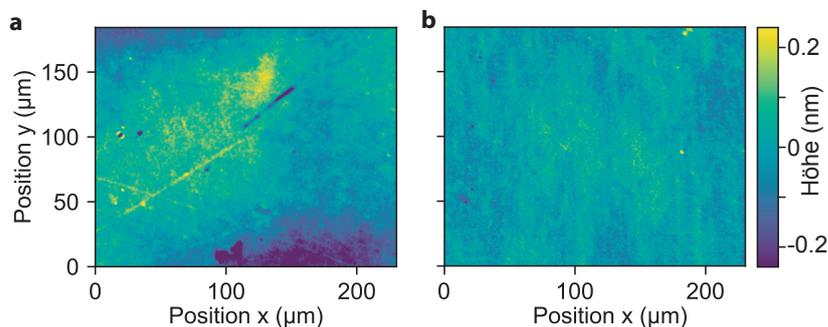


Abbildung 3.3 Höhenprofil des Mirau-Referenzspiegels und eines Resonatorspiegels – **a**, Durch Mittelung von 10 transversal zueinander verschobenen Oberflächenaufnahmen eines Planspiegels bestimmte Oberfläche des Mirau-Referenzspiegels. Die RMS-Oberflächenrauigkeit des gemittelten Profils beträgt 0.39 \AA . **b**, Einzelnes, um die Referenz in **a** korrigiertes Resonatorspiegelprofil mit einer für diese Spiegelart typischen Rauigkeit von 0.32 \AA .

bar. Um das Interferenzmaximum eindeutig auszumachen, bedarf es allerdings eines kleinschrittigen Scans des Probenspiegels entlang der optischen Achse um eine Gesamtstrecke in der Größenordnung der Kohärenzlänge, sowie einer Anpassung von Gl. 3.7. Im Experiment bedeutet dies einen großen zeitlichen und rechnerischen Mehraufwand, weshalb stattdessen wenige Maxima des Interferenzsignals nahe des absoluten Maximums abgefahren werden, sodass wie bei einer kohärenten Lichtquelle annähernd $\Delta s/L_c \ll 1$ gilt. Durch Anpassen einer Cosinus-Funktion und des *phase unwrapping*-Algorithmus lässt sich dann der transversale relative Höhenunterschied bestimmen. Teilabbildungen 3.2b-d zeigen die experimentelle Methodik. Die theoretischen Interferogramme bei Spiegelabständen von $\Delta s = \{0, \lambda/8, \lambda/4\}$ sind für eine Spiegelprobe mit einem Krümmungsradius von 5 mm berechnet. Zudem ist der Intensitätsverlauf für zwei sich in der Höhe um $\Delta h = \lambda/4$ unterscheidende gewählte transversale Punkte nach Gl. 3.7 dargestellt. Die in Abb. 3.2d dargestellte angepasste Phase wird entfaltet und mit Hilfe der bekannten zentralen Wellenlänge der LED in das entsprechende Höhenprofil umgerechnet. Mit dem experimentellen Aufbau ist eine Höhenauflösung von 0.1 \AA erzielbar [29].

Für die Simulationen wurde idealisiert eine plane Oberfläche des Referenzspiegels frei von jeglichen Defekten angenommen. Tatsächlich verfälscht das wahre Höhenprofil des Referenzspiegels das Messergebnis des Probenspiegels. Um dies weitestgehend zu verhindern, wird das Referenzspiegelhöhenprofil nach folgendem Schema bestimmt: Ein planer Probenspiegel wird mehrmals an zufällig ausgewählten transversalen Positionen abgescannt. Unter der Annahme, dass dessen Höhenprofilrauschen zufällig variiert, ergibt sich für die Mittelung dieser Aufnahmen das von Messung zu Messung konstante Höhenprofil des Referenzspiegels, siehe Abb. 3.3a. Hier sind Defekte mit maximalen Höhen von wenigen \AA sichtbar. Die Unebenheit von Oberflächen wird üblicherweise mit dem RMS-Wert, also dem quadratische Mittel (engl. *root mean square*) der Abweichungen zur mittleren Oberflächenhöhe, angegeben. So ergibt sich für die Rauigkeit des Mirau-Referenzspiegels ein geringer RMS-Wert von 0.39 \AA , wie er sich nur bei superpolierten Spiegeloberflächen finden lässt ($\text{RMS} < 1 \text{ \AA}$). Bei Vermessungen einer Spiegelprobe lässt sich nun die Höhe um diesen Versatz korrigieren und die Oberfläche unverfälscht untersuchen. Abb. 3.3b zeigt die so vermessene Oberfläche eines planen

Spiegels, wie er im farbstoffgefüllten Resonator in dieser Arbeit verwendet wird. Die Oberflächenrauigkeit dieses Spiegels beträgt lediglich 0.32 \AA . Diese Oberflächenbeschaffenheit ist wichtig, da bei der Potentialberechnung nur das Profil eines strukturierten Resonatorspiegels berücksichtigt und der gegenüberliegende Resonatorspiegel gleicher Rauigkeit als makellos angenommen wird. Des Weiteren werden bei der Wahl von Resonatorspiegeln mit einer solchen Oberflächenbeschaffenheit Streuverluste im Resonator reduziert. Bei den Spiegeln handelt es sich um Spezialanfertigungen. Dazu werden superpolierte Spiegelsubstrate mit einer RMS-Rauigkeit von unter 1 \AA vom Hersteller *WZW Optic AG* durch die *Laseroptik GmbH* mit einer hochreflektiven dielektrischen Beschichtung bedampft.

3.2 | Potentiale für Photonengase durch Deformation von Spiegeloberflächen

Zur Herstellung von dielektrischen Spiegeln variabler Form wird üblicherweise zunächst ein Glassubstrat strukturiert und anschließend mit dielektrischen Schichten bedampft. Mechanisches Schleifen ermöglicht so beispielsweise die Erstellung gekrümmter Spiegelstücke [77]. Superpolierte Oberflächen können dabei jedoch nur bei relativ großen Krümmungsradien ($\gtrsim 10 \text{ cm}$) erreicht werden. Zudem ist die Erstellung von Gitterstrukturen mit diesen Verfahren aufgrund der limitierten räumlichen Auflösung unzugänglich. In jüngerer Zeit wurden Techniken entwickelt mit denen Spiegelsubstrate vielseitiger gestaltet werden können. Unter anderem konnten so mit einem Gallium-Ionen-Strahl in einem *Sputtering*-Verfahren Krümmungsradien von wenigen Mikrometern erstellt werden [78, 79]. Dabei lassen sich beliebige Strukturen auf einem Substrat vor der Beschichtung einbrennen. Die resultierende Rauigkeit beträgt dabei etwa 1 nm . Auf diese Weise strukturierte Spiegel erlaubten im farbstoffgefüllten Resonatorsystem, bedingt durch die starke Spiegelkrümmung ($\hat{=}$ hohe Fallenfrequenz), die Beobachtung von Photonen-Kondensaten bei kritischen Teilchenzahlen von nur 7 Photonen [30]. Es ist wichtig zu erwähnen, dass neben der limitierten Tiefenauflösung und der mangelnden Vielseitigkeit des Schleifverfahrens, diese Methoden nicht zur schnellen Prototyp-Entwicklung von Oberflächenstrukturen geeignet sind, da hier die Struktur der Spiegeloberflächen bereits vor der Beschichtung festgelegt werden muss.

Im Rahmen der Dissertation von David Dung wurde eine Methode entwickelt, mit der bereits beschichtete Spiegeloberflächen ortsselektiv deformiert werden können [29]. Das Verfahren ist vereinfacht in Abb. 3.4 dargestellt. Die zu strukturierenden Spiegelproben weisen eine 30 nm dicke Schicht aus amorphem Silizium zwischen den dielektrischen Schichten und dem Glassubstrat auf. Zur Strukturierung wird ein Laserstrahl der Wellenlänge 532 nm auf diese Schicht durch das Glassubstrat hindurch fokussiert. Bei ausreichender Laserleistung kann eine lokale Wölbung der Spiegeloberfläche am Ort der Lasereinstrahlung beobachtet werden. Diese Oberflächendeformation wird auf Mikrodelaamination der dielektrischen Schichten zurückgeführt, ein Prozess, wie er bei Dünnschichten häufig zu beobachten ist [80, 81]. Durch die Absorption des Laserlichts ($>30 \%$) im Silizium werden die alternierenden dielektrischen Schichten (SiO_2 und Ta_2O_5) lokal geheizt, was thermische Spannung aufgrund der unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten induziert. Im Zusammenspiel mit durch Fehlstellen in den Schichten bereits bestehenden intrinsischen Spannungen führt dies zur Überwindung der Kohäsion der Schichten und zu derer permanenten Ablösung. Erste Hinweise auf

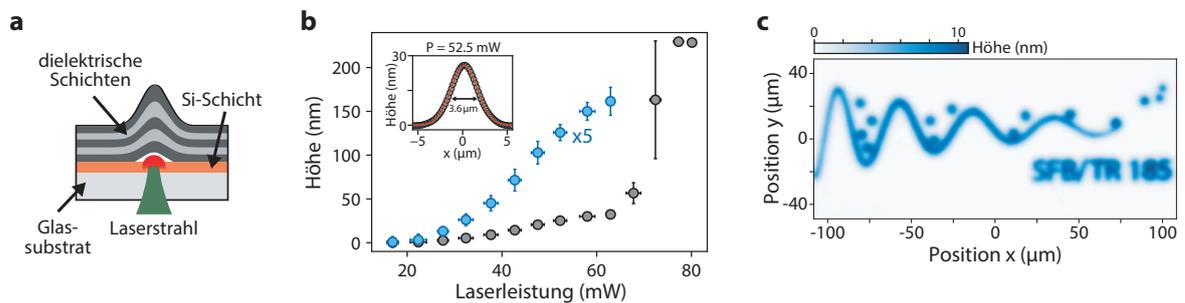


Abbildung 3.4 Laserinduzierte Spiegeloberflächendeformation – **a**, Schema eines dielektrischen Spiegels mit absorptiver Siliziumschicht (orange) auf die ein Laserstrahl fokussiert und teilweise absorbiert wird. Am Ort der Lasereinstrahlung wird die Spiegeloberfläche deformiert. Ob es dabei, wie dargestellt, tatsächlich zur gleichförmigen Ablösung der dielektrischen Schichten kommt, ist Gegenstand aktueller Untersuchungen. **b**, Messung der Deformationshöhe als Funktion der Heizlaserleistung mit statistischen Fehlern. Der Bildeinschub zeigt das Gauß-Profil einer punktförmigen Oberflächenstruktur mit der Breite $d = 3.6 \mu\text{m}$. **c**, Permanente Spiegeloberflächenstruktur, die das Logo des Sonderforschungsbereiches OSCAR zeigt. Teilabbildung **b** wurde Referenzen [29, 31] entnommen und überarbeitet.

die bei diesem Verfahren stattfindende Veränderung der Schichtstruktur geben auch Rasterelektronenmikroskopaufnahmen, welche in aktuellen Untersuchungen in Kooperation mit der Nanophotonik-Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Stefan Linden an einer um 50 nm deformierten Fläche durchgeführt wurden [82]. Anhand dieser lässt sich im Bereich der strukturierten Oberfläche eine Ausdehnung weniger dielektrischer Schichten nahe der Siliziumschicht ausmachen, während die Dicke der obersten Schichten unverändert zu bleiben scheint. Es ist schwer einzuschätzen, inwiefern die Präparation der Probe zur Untersuchung mit dem Rasterelektronenmikroskop die Schichtstruktur verändert. Besonders beim Aufschneiden der Spiegelfläche könnten eventuelle, durch die Strukturierung entstandene Vakuum-Hohlräume, wie sie in ähnlichen Systemen im Bereich der Delamination beobachtet wurden [83], zerstört werden und die zu beobachtbare Schichtstruktur dadurch verfälscht werden. Die Untersuchungen legen dennoch die Vermutung nahe, dass nur wenige dielektrische Schichten nahe der Siliziumschicht eine strukturelle Veränderung erfahren. In zukünftigen Experimenten soll dieses Verhalten tiefergehender auch bei variierenden Deformationshöhen untersucht werden.

In Abb. 3.4b sind die in Ref. [29] mit Weißlicht-Interferometrie bestimmten Höhen der Spiegeldeformation als Funktion der eingestrahlten Laserleistung dargestellt. Der Laserstrahl weist dabei einen Durchmesser von $\sim 1.8 \mu\text{m}$ im Fokus auf. Wie zu sehen, setzt eine messbare gaußförmige Verformung mit einer Breite von $3.6 \mu\text{m}$ bei einer Leistung von etwa 25 mW ein. Danach ist eine stetige Zunahme der Deformation bis zu einer Höhe von $\sim 50 \text{ nm}$ zu beobachten, wobei die Breite der Verformung konstant bleibt. Darüber zeigt sich ein schwer vorauszusagendes Verhalten, welches sich anhand der großen statistischen Fehlerbalken bemerkbar macht, bei dem sich die Delaminationshöhe rasch von 100 nm auf 200 nm erhöht. In diesem Bereich zeigen Messungen der Spiegeltransmission eine Erhöhung von wenigen ppm auf einige Prozent [84]. Die Reflektivität der Spiegel bricht somit bei solch hohen Deformationen ein. In dem im folgenden Abschnitt beschriebenen experimentellen Aufbau, welcher auf dieser Methodik basiert, wird die Strukturierung der Spiegeloberfläche dementsprechend auf solche Höhen nicht angewandt.

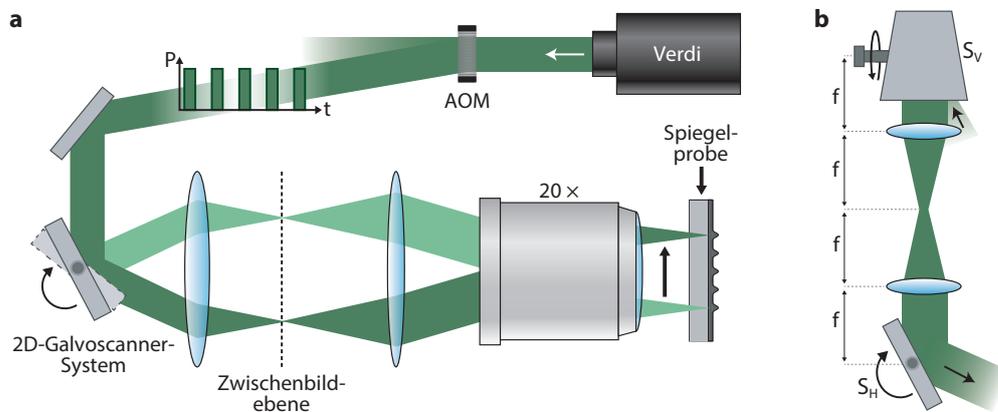


Abbildung 3.5 Schematische Darstellung des Aufbaus zur Spiegeloberflächenstrukturierung – **a**, Der Strahl eines Dauerstrichlasers der Wellenlänge 532 nm wird über einen akusto-optischen Modulator (AOM) zeitlich in der Leistung moduliert und räumlich in einem zwei-dimensionalen Galvoscan-System variabel abgelenkt. Die folgende Linse erzeugt ein Zwischenbild, welches anschließend mit Linse und Objektiv auf die Spiegelprobe abgebildet wird. Der so auf die Siliziumschicht fokussierte Laserstrahl wird absorbiert und erhitzt die Spiegelschichten, welche sich lokal deformieren. **b**, Detailliertere Darstellung des Galvoscan-Systems. Der eintretende kollimierte Strahl wird zunächst auf einem Spiegel S_V abgelenkt, bevor er zwei Linsen durchläuft, kollimiert auf von einem weiteren Spiegel S_H trifft und erneut abgelenkt wird. Die Spiegel sind dabei computergesteuert um ihre orthogonal zueinander orientierten Achsen rotierbar. Die Abstände der optischen Elemente ist äquidistant und entspricht den Linsenbrennweiten von $f=5$ cm.

Experimenteller Aufbau zur Spiegelstrukturierung

Mit dem in Abb. 3.5 dargestellten Aufbau kann gezielt ein Punkt auf einer Spiegelprobe ausgewählt und mit einem fokussierten Laserstrahl geheizt werden. Dazu passiert ein Dauerstrichlaserstrahl bei der Wellenlänge 532 nm (Hersteller: Coherent, Typ: Verdi-G12) einen akusto-optischen Modulator (AOM) dessen Beugungseffizienz über die computergesteuerte Verstärkung des verbundenen spannungsgetriebenen Oszillatoren (VCO) zeitlich variiert werden kann. Der auf diese Weise in der Leistung modulierte Strahl wird in ein zwei-dimensionales Galvo-Scanner-System geführt (Hersteller: Thorlabs, Typ: GVS002). Dieses besteht aus zwei Spiegeln deren Drehung um ihre zueinander orthogonal stehenden Rotationsachsen über das Anlegen einer zeitlich variablen Spannung kontrolliert werden kann (vgl. Abb. 3.5b). Zwischen ihnen ist ein Teleskop aus zwei Sammellinsen gleicher Brennweite angeordnet, sodass sich die Spiegel ebenfalls im Abstand der Brennweite befinden. Dabei handelt es sich um einen üblichen Laser-Scan-Aufbau (s. z.B. [85]), welcher sicherstellt, dass sich beide Scanner-Spiegel für die nachfolgenden abbildenden Elemente in der gleichen optischen Ebene befinden. Vereinfacht gesagt, wird durch die beschriebene Anordnung des Linsensystems die Ablenkung des Laserstrahls an den Spiegeln in eine Positionsänderung in der Zwischenbildebene umgewandelt. Final wird dieses Zwischenbild über eine Linse und das folgende Mikroskopobjektiv mit der numerischen Apertur von $NA=0.26$ auf die Spiegelprobe projiziert. Der Heizlaserstrahldurchmesser beträgt dabei $\sim 1.8 \mu\text{m}$. In Gänze ist es also mit diesem Aufbau möglich die Probe abzuscannen und dabei lokal selektiv die Laserleistung einzustellen. Neben punktueller Deformierung können so auch zusammenhängende Bereiche angehoben werden. Dazu wird der Laserstrahl in parallelen Linien über

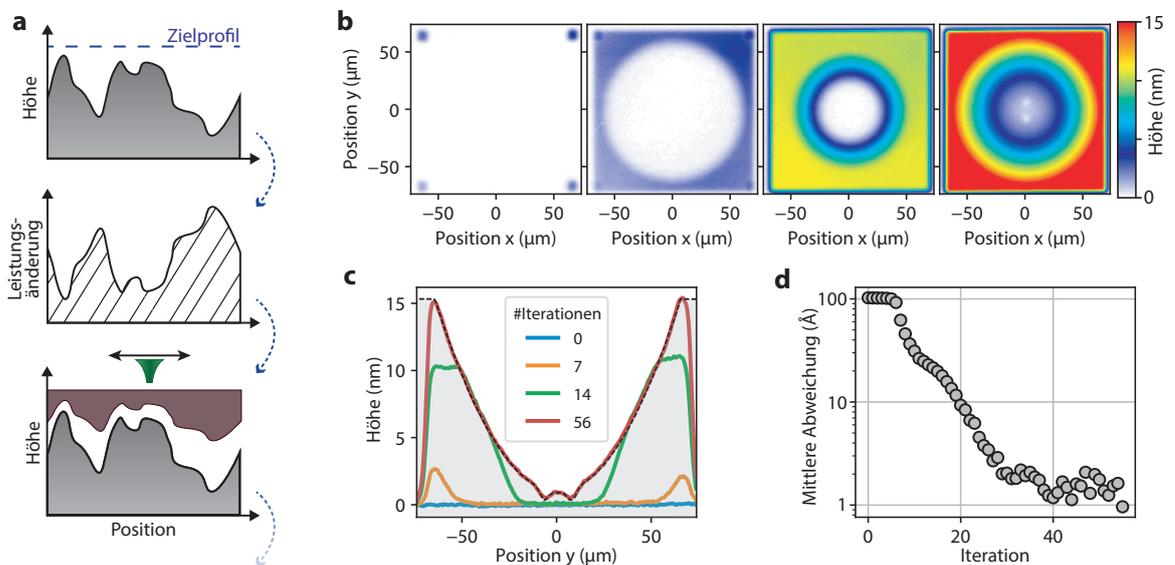


Abbildung 3.6 Schema und Beispiel zur Funktionsweise der Spiegeloberflächenstrukturierung mit Hilfe eines iterativen Verfahrens – **a**, Einzelner Iterationszyklus beginnend mit der Bestimmung der Höhendifferenz der Spiegeloberfläche zum Zielprofil, gefolgt von einer dazu gewählten Leistungserhöhung der Heizlasermaske, mit welcher im dritten Schritt der Spiegel abgefahren wird. **b**, Spiegeloberfläche für die Iterationsschritte $\{0, 7, 14, 56\}$ bei der Realisierung einer von einer Krümmung umschlossenen Doppelmuldenstruktur. Dabei wird vor der Spiegelstrukturierung (Schritt 0) zunächst über die Deformierung von Quadraten an den Eckpunkten jedem Pixel eine am Galvo-Scanner anliegende Spannung zugeordnet. **c**, Zugehörige vertikale Schnitte der Oberflächen und des gewählten Zielprofils bei $x = 0$. **d**, Mittlere Abweichung zur Zieloberfläche.

die Probe geführt. Innerhalb dieser Linien wird die Laserleistung positionsabhängig verändert und proportional zu den Grauwerten einer im Steuerungsprogramm ausgewählten Bilddatei angepasst. So können mit dem beschriebenen Aufbau arbiträre Heizprofile abgefahren werden (vgl. Abb. 3.4c).

3.3 | Iteratives Verfahren zur hochpräzisen Strukturierung von Spiegeloberflächen

Mit den beschriebenen Verfahren zur Erzeugung und interferometrischen Vermessung von Spiegeloberflächenverformungen lässt sich nach dem in Abb. 3.6a gezeigten Ablauf iterativ die Spiegeloberfläche einer gewünschten Struktur anpassen. Dazu wird zunächst ein Zielhöhenprofil festgelegt und die Abweichung der Spiegelprobenstruktur zu diesem interferometrisch bestimmt. Proportional zur Differenz wird eine Leistungsmaske für den Heiz-Laserstrahl berechnet. Entsprechend wird der Laserstrahl über den Spiegel geführt und somit die Oberflächenbeschaffenheit verändert. Dieses Verfahren wiederholt sich nun mehrere Male bis eine hinreichend geringe mittlere Abweichung von wenigen Å zum Zielprofil erreicht wurde. In den Abbildungen 3.6b und c sind exemplarisch Iterationsschritte bei der Erstellung einer typischen Struktur dargestellt. Zunächst wird dabei durch die Deformation der Struktureckpunkte von wenigen Nanometern Höhe den minimal und maximal angelegten Galvoscanerspannungen in x - und y -Richtung eine Position auf dem Kameraausschnitt des interferometrischen Aufbaus zugeordnet. Somit kann jedem Pixel des Zielprofils eine Position auf der Kamera zugeordnet werden und die Leistung dementsprechend angepasst werden. Des Weiteren zeigt diese Kalibrierung

eventuelle abbildungsbedingte Verzerrungen auf, welche ebenfalls in der Berechnung des Heizprofils korrigiert werden können.

Abb. 3.6c zeigt, wie sich das Spiegelprofil in 56 Iterationen immer weiter dem eingezeichneten Zielprofil annähert. Die verbleibende mittlere Höhenabweichung in jedem dieser Schritte ist in Abb. 3.6d dargestellt. Hier zeigt sich zunächst in den ersten Iterationen nur eine geringe Reduktion der Abweichung, da die eingestellte Laserleistung noch kaum dazu ausreicht die Spiegeloberfläche anzuheben. In den folgenden Schritten wird die Laserleistung dann weiter pro Pixel proportional zur verbleibenden Abweichung erhöht. Übersteigt die Deformation das Zielprofil an einer Position oder nähert sich diesem auf unter 0.1 \AA , so wird an dieser Stelle in sukzessiven Scans keine weitere Wärme eingetragen. Wie zu sehen, nähert sich die mittlere Abweichung rasch 1 \AA . Das verbleibende Rauschen um diesen Wert liegt im Bereich der Messungenauigkeit des Mirau-Aufbaus. Mit dem beschriebenen Verfahren können somit komplexe Strukturen mit hoher Genauigkeit auf die Spiegeloberfläche geprägt werden. Im Rahmen der Masterarbeit von Andreas Redmann ist mit dieser Technik zudem der Einfluss der Spiegeldeformation auf Spiegelreflektivität untersucht worden. Dazu wurden relativ große plane Flächen unterschiedlicher Höhe mit den Kantenlängen von $500 \mu\text{m}$ kreiert [86]. Diese Flächen wiesen Rauigkeiten von $\sim 1 \text{ \AA}$ auf. Die ähnliche Oberflächenbeschaffenheit stellt dabei sicher, dass die Streuverluste geringen Einfluss auf die mit einem *Cavity-Ringdown*-Aufbau (s. z.B. auch [87]) vermessene Reflektivität haben. Dabei konnte festgestellt werden, dass sich diese bis zu einer Deformationshöhe von etwa 18 nm nicht signifikant verändert. Darüber konnte jedoch eine deutliche Erhöhung der Verluste vermessen werden. Um diese erhöhten Verluste zu vermeiden wird eine Limitierung der Strukturen auf eine Höhe von $\sim 15 \text{ nm}$, wie in der beispielhaften Struktur in Abb. 3.6b zu sehen, gewählt. In jüngeren Arbeiten konnte die Veränderung des Transmissionsprofils der Spiegel als Funktion der Deformationshöhe ebenfalls beobachtet werden [82].

Experimente zur Bose-Einstein-Kondensation von Licht in einen Superpositionszustand

Die Technik der laserinduzierten Strukturierung von Spiegeloberflächen wird in dieser Arbeit verwendet, um Photonengase in gekoppelten Mikroresonator-Anordnungen zu untersuchen. Im Folgenden wird zunächst der experimentelle Aufbau rund um einen farbstoffgefüllten Mikroresonator skizziert. Aus der spektralen und räumlichen Analyse eines Photonengases wird dabei die Tunnelkopplung in variabel verstimmbaren Doppelmuldensystemen demonstriert. In einer von einem harmonischen Potential umschlossenen Doppelmulde wird die Thermalisierung sowie die Kondensation in den symmetrischen Grundzustand des Systems untersucht. Zuletzt wird das Verhalten eines Photonengases in einer Doppelmulde unter variabler ortsabhängiger Pumpanregung untersucht und mit dem in Abschnitt 2.2.4 diskutierten Ratengleichungsmodell verglichen.

4.1 | Experimenteller Aufbau

Der in Abb. 4.1 gezeigte experimentelle Aufbau ermöglicht die Untersuchung von zwei-dimensionalen Photonengasen in einem farbstoffgefüllten Mikroresonator. Aus zwei hochreflektiven Spiegeln geformt, stellt dieser den Kern des Aufbaus dar. Dabei steht einem oberflächenstrukturierten Spiegel ein planer Spiegel mit der selben dielektrischen Beschichtung aber ohne Siliziumschicht gegenüber. Das entsprechende vom Hersteller angegebene Transmissionsprofil ist in Abb. 4.2a dargestellt. Der Spiegel lässt sich durch angebrachte Piezoelemente computergesteuert verkippen (Hersteller: Thorlabs, Typ: Polaris Mirror Mount). Zudem ist der Spiegelabstand ebenfalls über ein an einer Verschiebephase angebrachtes Piezoelement einstellbar. Im Folgenden wird der Aufbau zum optischen Pumpen der Ethylen-Glykol-Rhodamin 6G Farbstofflösung mit der Konzentration 1 mmol/l (Brechungsindex $n_0 = 1.44$) im Resonator beschrieben. Des Weiteren wird die spektrale und örtliche Analyse der transmittierten Fluoreszenz besprochen.

Pumpquelle

Ein linear polarisierter Dauerstrich-Laserstrahl der Wellenlänge 532 nm (Hersteller: Coherent, Typ: Verdi-G12) dient als optische Pumpquelle, um Farbstoffmoleküle innerhalb des Resonators anzuregen. Dazu passiert der vom Pumplaser emittierte Laserstrahl einen akusto-optischen Modulator (AOM), dessen Beugungseffizienz durch die variable Verstärkung des verbundenen spannungsgetriebenen

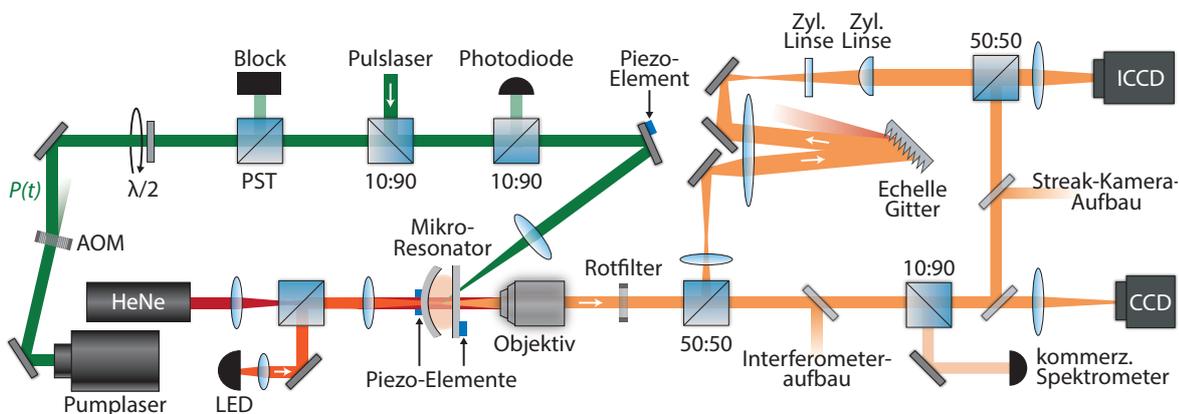


Abbildung 4.1 Schema des experimentellen Aufbaus – Die zeitlich variierende Leistung $P(t)$ des Pumplaserstrahls (grün, $\lambda = 532 \text{ nm}$) wird durch Beugung am AOM eingestellt. Die Leistung kann mit einer $\lambda/2$ -Platte und einem polarisierenden Strahlteiler (PST) eingestellt werden. In den Strahlengang kann außerdem ein Puls laserstrahl gleicher Wellenlänge eingekoppelt werden. Mit einer Photodiode wird die Laserleistung überwacht. Der Strahl wird über einen piezo-verkippbaren Spiegel geführt und dann durch eine Sammellinse in den Mikroresonator fokussiert. Ein kollimierter He-Ne-Laserstrahl (633 nm) passiert den Resonator von der gegenüberliegenden Seite kollimiert. Über einen Strahlteiler wird gleichzeitig die Emission einer LED ($\sim 640 \text{ nm}$) in den Resonator abgebildet. Einer der Resonatorspiegel lässt sich über Piezoelemente verkippeln. Der Spiegelabstand ist ebenfalls durch ein Piezoelement, welches mittig auf dem Spiegelhalter angebracht ist, einstellbar. Die transmittierte Fluoreszenz aus dem Mikroresonator wird mit einem Objektiv kollimiert und passiert einen variablen Rot-Filter. Folgend durchläuft der Strahl einen Strahlteiler und einen Spektrometernaufbau. In diesem wird er über ein Teleskop aufgeweitet bevor er auf ein Echelle-Gitter trifft. Die spektral aufgeteilte Reflexion passiert die zweite Sammellinse des Teleskops erneut, welche nun mit den zwei folgenden orthogonal zueinander angeordneten Zylinderlinsen jeweils ein Teleskop bildet. Der auf diese Weise ungleichmäßig aufgeweitete und kollimierte Strahl wird schließlich auf eine ICCD-Kamera auf der spektralen Achse gestaucht abgebildet. Dem anderen Ausgang des Strahlteilers folgt die mögliche Kopplung in einen Interferometernaufbau. Des Weiteren kann dieser Teilstrahl wahlweise auf die ICCD-Kamera oder eine CCD-Kamera abgebildet oder in den Streak-Kamera-Aufbau geführt werden. Zuvor wird ein geringer Teil des Lichts über einen Strahlteiler in ein kommerzielles Spektrometer eingekoppelt.

Oszillators zeitlich einstellbar ist (vgl. elektronischer Aufbau in [45]). So werden im Experiment typischerweise optische Pulse konstanter Leistung mit Dauern von mehreren hundert Nanosekunden eingestellt. Die Wiederholrate dieser liegt in der Regel im Bereich von $1\text{--}100 \text{ Hz}$ um das Fotobleichen der Farbstofflösung zu minimieren. Die Laserpulse passieren weiter eine $\lambda/2$ -Platte, welche mit ihrem Halter computergesteuert um die optische Achse rotiert werden kann. Durch die so frei einstellbare Polarisation des Strahls lässt sich die Transmission durch den folgenden polarisierenden Strahlteiler wählen und die Leistung der zum Pumpen verwendeten Lichtpulse global festlegen. Über zwei weitere nicht-polarisierende Strahlteiler kann nun zum einen ein Puls laserstrahl in den Pfad eingekoppelt werden (s. Kap. 5) und zum anderen die Gesamtpumpleistung durch die Führung eines Teilstrahls auf eine Photodiode zeitlich überwacht werden. Schließlich wird der Strahl wahlweise mit einer Linse ($f = 40 \text{ cm}$) oder einem Mikroskopobjektiv ($\text{NA} = 0.42$) in den Resonator fokussiert. Zur besseren Justage der Pumpstrahlposition im Resonator ist die Verkippung des letzten Spiegels vor dem Resonator über computergesteuerte Piezoelemente einstellbar.

Spektrale und räumliche Analyse der Resonatoremision

Zur Analyse der räumlichen und energetischen Verteilung des Photonengases wird die Resonatoremision zunächst mit einem Mikroskopobjektiv kollimiert. Anschließend wird der Strahl über einen Strahlteiler in zwei Pfade aufgeteilt. Auf einem der Pfade wird er in einen in Littrow-Konfiguration angeordneten Spektrometernaufbau geführt, in welchem er durch ein Teleskop aufgeweitet wird und kollimiert auf ein Echelle-Gitter trifft. Der gebeugte Strahl durchläuft daraufhin erneut die zweite Linse des Teleskops, welche mit den im Pfad folgenden Zylinderlinsen jeweils ein Teleskop auf den beiden zur optischen Achse orthogonalen Achsen bildet. Das sorgt dafür, dass die Abbildung des aufgefächerten Strahls auf der spektralen Achse (horizontal) um einen Faktor 5, welcher dem Verhältnis der Brennweiten entspricht, gestaucht wird. Das Spektrometer ist bewusst spaltfrei gewählt um sicher zu stellen, dass die Gesamtzahl an transmittierten Photonen der transversal ausgedehnten Moden detektiert werden kann. Dies ist wichtig, um die Besetzung der Moden genau zu bestimmen und festzustellen ob das Photonengas eine thermische Gleichgewichtsverteilung aufweist. Des Weiteren stellt der Aufbau ohne Spalt sicher, dass die räumliche Wahrscheinlichkeitsverteilung der Moden auch im Spektrometernaufbau charakterisiert werden kann. Die Aufnahme des Spektrums erfolgt mit einer ICCD-Kamera (engl. *Intensified charge-coupled device*). Diese setzt sich aus einer Bildverstärkereinheit und einer CMOS-Kamera zusammen (Hersteller: Hamamatsu, Typ: C9546-02 & OrcaFlash 4.0). Die Funktionsweise lässt sich wie folgt kurz zusammenfassen [88]: Photonen lösen aus der Photokathode der Bildverstärkereinheit Elektronen aus. Diese werden durch eine angelegte Spannung in Richtung einer Mikrokanalplatte beschleunigt, in welcher sie vervielfacht werden und auf einen Phosphorschirm treffen. Die Phosphoreszenz wird nun mit einem Linsensystem auf den Chip der CMOS-Kamera abgebildet. Extern kann ausgewählt werden, wann und wie lange die Beschleunigungsspannung angelegt wird (Gate) und somit bestimmt werden, zu welchem Zeitpunkt der Bildverstärker aktiv ist. Mit dem hier verwendeten System lassen sich Gate-Zeiten bis zu minimal 10 ns einstellen. Es ist somit möglich die Resonatoremision mit dieser Auflösung zeitlich zu untersuchen. Im Gate-Modus wird die Detektion von Hintergrundstrahlung während der vergleichsweise langen Belichtungszeit der CMOS-Kamera von wenigen Millisekunden stark unterdrückt, da diese keine Verstärkung erfährt. Das System eignet sich somit hervorragend für die Messung von Lichtquellen sehr geringer Intensität. Neben dem Spektrum kann über den zweiten Pfad hinter dem Strahlteiler die örtliche Verteilung der Emission durch die Abbildung auf die ICCD-Kamera oder eine Farb-CCD-Kamera beobachtet werden. Zudem kann das Licht in einem Interferometer- oder einem Streak-Kamera-Aufbau analysiert werden (s. Kap. 5). Des Weiteren wird ein kommerzielles Spektrometer (Hersteller: Thorlabs, Typ: CCS175/M) verwendet, um das selbstgebaute Spektrometer zu kalibrieren und Farbstoffemissionsspektren über einen großen Wellenlängenbereich mit einer Auflösung von ~ 1 nm zu messen.

Justage des Messaufbaus

Um Licht in den erzeugten Spiegelstrukturen zu fangen, ist es wichtig die Resonatorspiegel möglichst parallel zueinander auszurichten. Um eine Verkipfung der Spiegel auszumachen wird ein He-Ne-Laserstrahl bei 633 nm kollimiert durch den Mikroresonator geführt. Die nun hinter dem Resonator beobachtbaren Interferenzstreifen geben Aufschluss über die Parallelität des Spiegelpaares [89]. Die grobe Einstellung wird zunächst händisch durch die Stellschrauben der Spiegelhalter eingestellt und

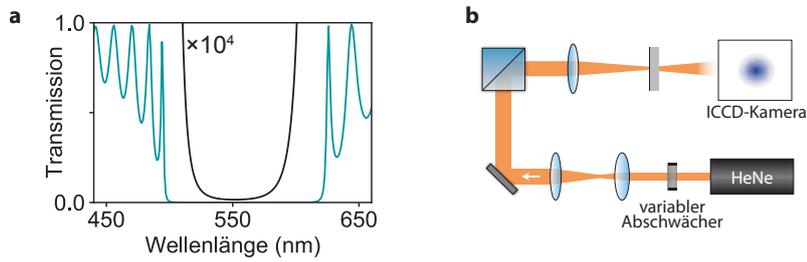


Abbildung 4.2 Spiegeltransmission und Photonenzahlkalibration – **a**, Vom Hersteller angegebene wellenlängenabhängige Spiegeltransmission der im Experiment verwendeten dielektrischen Resonatorspiegelbeschichtung. **b**, Schematischer Aufbau zur Bestimmung der Photonenzahl im Resonator. Die Emission eines He-Ne-Lasers bei 594 nm wird abgeschwächt in den Analysepfad des experimentellen Aufbaus geführt. Die integrierten Pixelwerte der ICCD-Kamera werden als Funktion der Kamera-Verstärkung und Laserleistung kalibriert.

dann über die angelegte Spannung am Piezoelement, mit dem Ziel die Streifenbreite zu maximieren, feinjustiert. Neben der Verkippung lässt sich über ein weiteres Piezoelement der Spiegelabstand entlang der optischen Achse einstellen. Außerdem ermöglicht die Ausleuchtung des Resonators mit einer LED mit der zentralen Wellenlänge von ~ 640 nm die Beobachtung der strukturierten Oberfläche. Somit lässt sich das zu untersuchende Potential über Translationsplattformen an den festen Ort des Pumpstrahls bewegen. Ein weiteres Werkzeug zur Kalibrierung und Justage des Analyseaufbaus stellt ein weiterer He-Ne-Laser dar, dessen Ausgangsstrahl vor oder hinter dem Mikroresonator mit dessen Emission überlagert werden kann. Durch seinen Dauerbetrieb bei einer Leistung von etwa 1 mW ist er deutlicher zu sehen als die Kondensatemission ($\lesssim 1$ nW) und macht den Pfad, den das Licht im Analyseaufbau verfolgt, sichtbar. Vorteilhaft ist dabei seine Wellenlänge von 594 nm, die zu einer ähnlichen Beugungswinkeln des Lichts am Spektrometergitter führt wie das experimentell untersuchte Kondensatlicht ($570 \text{ nm} < \lambda < 600 \text{ nm}$). Über diesen Strahl lässt sich die Photonenzahl im Resonator kalibrieren, wie im Folgenden beschrieben wird.

Bestimmung der mittleren Photonenzahl im Resonator

Um die mittlere Gesamtphotonenzahl im Resonator angeben zu können, wird die ICCD-Kamera mit Hilfe eines Dauerstrich-He-Ne-Lasers der Wellenlänge 594 nm kalibriert (s. Abb. 4.2 b). Dazu wird der strukturierte Spiegel des Resonators entnommen und der Laserstrahl auf den Auskoppelspiegel abgebildet. Das transmittierte Licht durchläuft nun den selben Analyseaufbau wie die Resonatoremmission. Der Laserstrahl simuliert somit eine im Resonator umherlaufende Mode deren zirkulierende Leistung P der Laserleistung entspricht. Für eine Mode mit der Kreisfrequenz ω gilt [18]

$$P = N\hbar\omega/\tau = N\hbar\omega c/(q\lambda) = Nhc^2/(q\lambda^2). \quad (4.1)$$

Dabei bezeichnet τ die Umlaufzeit im Resonator und N die Anzahl an Photonen in der jeweiligen Mode. Transmittierte Photonen des He-Ne-Lasers durchlaufen dann den Analyseaufbau und treffen auf die ICCD-Kamera. Die integrierten Pixelwerte C der Kamera über die eingestellte Gate-Zeit Δt_G ($\sim 10 \mu\text{s}$) lassen sich dann einer im Resonator zirkulierenden Leistung mit dem verstärkungsabhängigen Proportionalitätsfaktor κ_V zuordnen. Betrachtet man nun im Experiment die tatsächliche,

durch Pumppulse der Länge Δt_P , hervorgerufene Resonatoremision, so ist bei der Photonenzahlberechnung die mögliche Abweichung der mittleren Wellenlänge der Emission $\bar{\lambda}$ von 594 nm durch die in Abb. 4.2a dargestellte wellenlängenabhängige Transmission $T(\lambda)$ des Auskoppelspiegels zu berücksichtigen. Mit den gegebenen experimentellen Parametern kann somit die mittlere Gesamtphotonenzahl im Resonator aus den räumlichen ICCD Aufnahmen zu

$$N = Pq\lambda^2/(hc^2), \quad \text{wobei} \quad P = \kappa_V C \cdot \frac{\Delta t_G}{\Delta t_P} \cdot \frac{T(594 \text{ nm})}{T(\bar{\lambda})}, \quad (4.2)$$

bestimmt werden. Die Bestimmung von N ist besonders wichtig um das Verhalten des Photonengases als Funktion dieses Kontrollparameters untersuchen zu können und Phasenübergänge bei kritischen Werten von N zu quantifizieren.

Frequenzstabilisierung der Resonatoremision

Eine selbstentwickelte Experimentsoftware ermöglicht die Analyse und die Fernsteuerung des Messaufbaus. Während die genaue Einstellung der in Abb. 4.1 gezeigten rotierbaren Halbwellenplatte und somit die präzise Wahl der Pumpleistung vorgenommen wird oder die auf den Piezospiegeln anliegenden Spannungen angepasst werden, können simultan die Daten des kommerziellen Spektrometers, der CCDs und des ICCD-Spektrometers dargestellt und analysiert werden. So kann bei letzterem die Wellenlänge der niederenergetischsten Mode oder wahlweise der höchsten Intensität von Puls zu Puls bestimmt werden. Über die variierende Differenz dieser zu einer einstellbaren Sollwellenlänge wird über einen digitalen PID-Regler durch die Steuerung der Translationsbühne der Resonatorspiegel der Spiegelabstand so eingestellt, dass das Spektrum auf die Zielwellenlänge stabilisiert wird. Dabei können Bild zu Bild Schwankungen der Modenfrequenzen im Rahmen der Spektrometerauflösung von ~ 15 GHz stabilisiert werden. Die Stabilisierung ist wichtig, um über mehrere Pulse aufgenommene Signale mitteln zu können. Dies ist besonders bedeutsam bei niedrigen Intensitäten. Damit wird sichergestellt, dass die Fallengeometrie während einer Messreihe oder in mehreren Messreihen mit veränderter Pumpstrahlintensität vergleichbar bleibt.

4.2 | Tunnelkopplung von Photonen im Doppelmuldenpotential

Zunächst wird eine Methode zur experimentellen Bestimmung der Tunnelkopplung in einem Doppelmuldenpotential vorgestellt. Im Experiment ergibt sich ein solches Potential durch die Zusammensetzung des Mikroresonators aus dem in Abb. 4.3a dargestellten deformierten Spiegel und einem planen Spiegel. Die Resonatorlänge wird so eingestellt, dass nur die longitudinale Mode $q = 8$ bei einer Wellenlänge von 594 nm durch Photonen besetzt werden kann. Mit diesen Parametern kann aus dem lokal variierenden Spiegelabstand nach Gl. 2.45 das induzierte Fallenpotential des Resonators berechnet werden. Dieses ist in Abb. 4.3 dargestellt. Dabei handelt es sich um eine Doppelmulde mit zwei im Abstand von etwa $10.5 \mu\text{m}$ befindlichen Minima, welche durch eine Barriere der Energie $\sim h \times 0.4 \text{ THz}$ voneinander getrennt sind. Dazu sind numerisch bestimmte Eigenzustände gezeigt [90], welche zur Berechnung neben der Potentialgeometrie auch die effektive Masse der Photonen $m = 7.7 \times 10^{-36} \text{ kg}$ als Parameter benötigen. Der symmetrische sowie anti-symmetrische Eigenzustand, wie in Abschnitt 2.3 eingeführt, sind durch ihre Parität zu unterscheiden. Die anti-symmetrische Superposition weist hierbei eine höhere Energie auf. Die Energiedifferenz beträgt bei

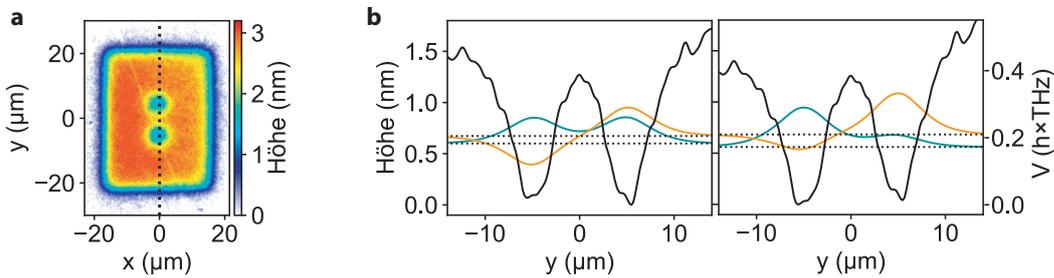


Abbildung 4.3 Mikrostrukturierte Doppelmulde mit numerisch bestimmten Eigenzuständen – **a**, Mit dem Mirau-Interferometer gemessenes Höhenprofil einer zu einer Doppelmulde deformierten Spiegeloberfläche. Die gestrichelte Linie gibt den Ort des in **b** dargestellten vertikalen Schnitts an. Die gewonnenen Höhenprofile sind in einer zweiten Skala ebenfalls in eine Potentialhöhe umgerechnet. In türkis und orange sind die zwei niedrigsten numerisch bestimmten Eigenzustände des Potentials eingezeichnet. Ihre jeweilige Energie ist durch gestrichelte schwarze Linien dargestellt. Nahe der Resonanz ergibt sich eine Energiedifferenz von $h \times 22.1$ GHz (links). Bei einer Verkippung des Resonatorspiegels um einen Winkel von $10 \mu\text{rad}$ erhöht sich die energetische Aufspaltung auf $h \times 37.2$ GHz und die Mulden werden durch die ungekoppelten Zustände nicht mehr mit gleicher Amplitude besetzt, d.h. der Mischungswinkel ändert sich (rechts).

verschwindender Verstimmung der ungekoppelten Einzelmulden $h \times 22.1$ GHz und erhöht sich auf $h \times 37.2$ GHz bei einem Verkippungswinkel der Spiegel von $10 \mu\text{rad}$. Diese energetischen Abstände entsprechen der zweifachen effektiven Tunnelkopplung $2\hbar J'$ des Systems.

Zur experimentellen Bestimmung der Tunnelkopplung in ähnlichen Doppelmuldenpotentialen wurde in vorherigen Arbeiten zu Photon Bose-Einstein-Kondensaten nur eine der Mulden örtlich gepumpt [29, 62, 67]. Während eines Pumpulses verringert sich hier die Potentialtiefe durch die kontinuierliche Reduktion des lokalen Brechungsindex der Farbstofflösung. Dieser thermo-optische Effekt wird hervorgerufen durch die Erwärmung der Lösung im Bereich des Pumpstrahls. Dabei induzieren strahlungslose Übergänge der Farbstoffmoleküle und die überschüssige thermische Energie nach der Emission eines Kondensatphotons diesen Temperaturanstieg von wenigen Kelvin. Bei geeigneter gewählter anfänglicher Potentialtiefe der gepumpten Mulde ist es dann möglich, dass die Eigenenergien beider Mulden während des Pumpulses temporär auf Resonanz liegen. Anhand der Besetzung der zweiten Mulde als Funktion der linear steigenden Verstimmung während des Pumpulses lässt sich mit Hilfe der Bloch-Gleichungen die Tunnelkopplung bestimmen [28]. Zudem kann im über den Pumpuls integrierten Spektrum neben der Besetzung der zweiten Mulde eine Energielücke in der Emission der ersten Mulde beobachtet werden, welche der zweifachen Tunnelkopplung entspricht. Im Folgenden wird eine weitere Methode zur Bestimmung der Kopplung im Doppelmuldenpotential, welche ohne die thermo-optisch induzierten Verstimmung auskommt, theoretisch erörtert und experimentell untersucht. Dabei wird die Verstimmung durch die während einer Messung konstant bleibende Spiegelverkippung auf der Doppelmuldenachse eingestellt und die thermo-optisch induzierte Verstimmung während eines Pumpulses minimiert.

Wie in Abschnitt 2.3 diskutiert, lassen sich die Eigenzustände $\psi_{s,a}$ des gekoppelten Doppelmulden-

systems über den Mischungswinkel ϑ als Kombination der ungestörten Zustände $\psi_{1,2}$ zu

$$\psi_s = \cos \vartheta/2 \cdot \psi_1 + \sin \vartheta/2 \cdot \psi_2, \quad \psi_a = \sin \vartheta/2 \cdot \psi_1 - \cos \vartheta/2 \cdot \psi_2 \quad (4.3)$$

schreiben. Die Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung $P(x)$ als Funktion des Ortes x lautet dann

$$P_s(x) = |\psi_s(x)|^2 = |\cos \vartheta/2 \cdot \psi_1(x) + \sin \vartheta/2 \cdot \psi_2(x)|^2 \quad (4.4)$$

$$P_a(x) = |\psi_a(x)|^2 = |\sin \vartheta/2 \cdot \psi_1(x) - \cos \vartheta/2 \cdot \psi_2(x)|^2. \quad (4.5)$$

Da die einzelnen Mulden für sich gesehen ein harmonisches Potential formen, ist eine gaußförmige Grundmode der Form

$$\psi_i(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_i} \exp[-(x - x_{0,i})/(2\sigma_i^2)] \quad (4.6)$$

mit dem Modenzentrum $x_{0,i}$ und der Standardabweichung σ_i (Breite) für die ungekoppelten Eigenzustände ψ_i zu erwarten (vgl. Simulation in Abb. 4.3). Aus den Wahrscheinlichkeitsdichteverteilungen in Gl. 4.4 und 4.5 lässt sich mit dieser Annahme der Mischungswinkel extrahieren:

$$\vartheta = \arctan(2J/\Delta\omega) \quad (4.7)$$

Daraus lässt sich mit der Tunnelrate J die Verstimmung $\Delta\omega = 2J/\tan(\vartheta)$ bestimmen. Die effektive Tunnelrate J' kann somit ebenfalls als Funktion des Mischungswinkels und der normierten Verstimmung $\Delta\omega/J$

$$J'(\vartheta) = J\sqrt{1 + \frac{1}{\tan^2(\vartheta)}}, \quad J'(\Delta\omega/J) = J\sqrt{1 + \left(\frac{\Delta\omega}{J}\right)^2/4}, \quad (4.8)$$

aus der energetischen Differenz der hybridisierten Eigenzustände $\Delta E_{\pm} = 2\hbar J'$ spektral vermessen werden.

Spektrale Vermessung der Tunnelkopplung

In Abb. 4.4a ist das gemessene Spektrum der Resonatoremision aus einer Doppelmulde bei drei verschiedenen durch Spiegelkipfung eingestellten Verstimmungen zwischen den Eigenfrequenzen der einzelnen Gitterplätze dargestellt. Hier wurden (anders als bei Experimenten in früheren Arbeiten) beide Mulden gleichzeitig gepumpt. Die Pumpstrahlgeometrie und -intensität wurde dabei so gewählt, dass beide Mulden gleich stark besetzt sind. Dies stellt sicher, dass sowohl der symmetrische als auch der anti-symmetrische Eigenzustand stets besetzt wird. Ferner sorgt dies für eine ähnliche wärmeinduzierte Verstimmung über die Dauer des Pumpimpulses von 800 ns (Wiederholrate 50 Hz). Die variierende energetische spektrale Aufspaltung $\Delta E_{a,s}$ der Resonatoremision ist in den dargestellten Spektren deutlich zu sehen. Aus ihr kann, wie zuvor beschrieben, die effektive Tunnelrate J' berechnet werden. Durch Anpassung der in Gln. 4.4-4.6 aufgestellten Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung an die Intensitätsprofile beider Moden lässt sich ferner der Mischungswinkel extrahieren. In Abb. 4.4 sind die effektiven Tunnelraten J' als Funktion dieses Winkels ϑ aufgetragen. Die Anpassung des in Gl. 4.8 beschriebenen funktionalen Zusammenhangs ergibt für die Tunnelrate als freien Anpassungsparameter $J = 2\pi \times 10.8(2)$ GHz. Sie beschreibt gut den experimentell gemessenen Zusammenhang.

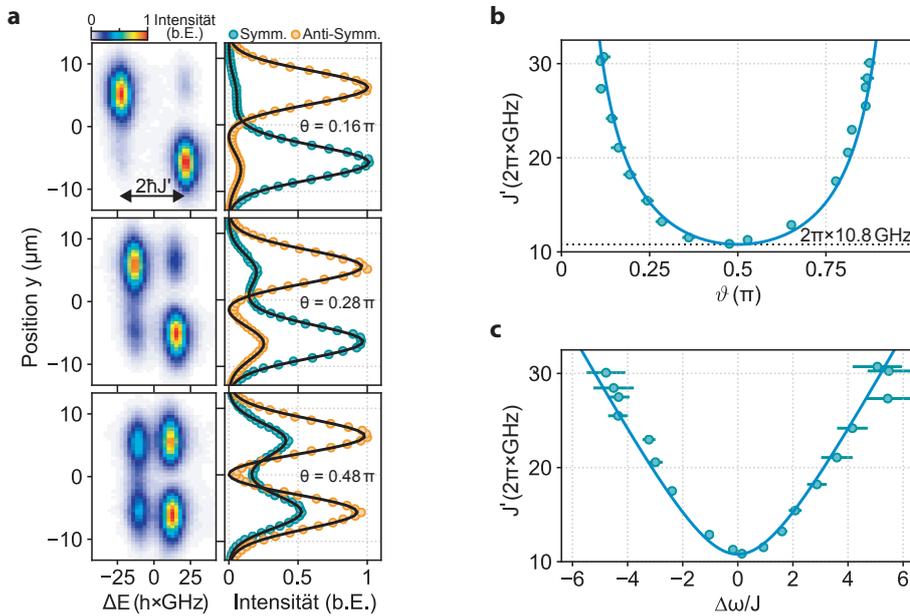


Abbildung 4.4 Bestimmung der Verstimmung und Tunnelrate eines Doppelmuldenystems über die beobachteten Emissionsspektren – **a**, Spektren der Doppelmuldenemission für variierende Verstimmung (linke Spalte). Der Abstand der Moden ist durch die effektive Tunnelrate $J' = 2\pi \times \{21.1, 13.2, 10.9\}$ GHz quantifiziert. Aus den vertikalen Schnitten durch die räumlichen Intensitätsprofile der Moden (rechts) wird der Mischungswinkel ϑ durch Anpassung (durchgezogene schwarze Linien) bestimmt. **b,c** Effektive Tunnelrate als Funktion des Mischungswinkels und der normierten Verstimmung $\Delta\omega/J$ der ungestörten Eigenzustände. Die durchgezogenen Linien stellen den angepassten theoretischen Verlauf dar.

Die daraus folgende energetische Aufspaltung bei Resonanz von $2\hbar J$ stimmt dabei ebenfalls mit der aus der numerischen Lösung des Fallenpotentials bestimmten energetischen Aufspaltung von $h \times 22.1$ GHz gut überein. In Abb. 4.4c ist in gleicher Weise die effektive Tunnelrate als Funktion der aus dem Mischungswinkel berechneten normierten Verstimmung $\Delta\omega/J$ aufgetragen. Diese stimmt ebenfalls gut mit den Messergebnissen überein. Die präsentierte Methode erlaubt also die Bestimmung der Tunnelrate und Verstimmung in einem Doppelmuldenpotential. Dabei lässt sich anmerken, dass eine einzelne Messung, wie in Abb. 4.4a dargestellt, prinzipiell genügen würde um diese Unbekannten über

$$J = J' / \sqrt{1 + 1/\tan^2(\vartheta)}, \quad \Delta\omega = 2J/\tan(\vartheta) \quad (4.9)$$

zu bestimmen. Des Weiteren kann in einer Messung durch Verkipfung der Spiegel die Verstimmung und somit die effektive Tunnelrate minimiert werden, sodass $J' \approx J$. Dies gilt im Falle gleicher Aufenthaltswahrscheinlichkeit in beiden Mulden für beide Moden. Es ist zu beachten, dass die hier angewandte Methodik es durch eine geschickt eingestellte Verstimmung ermöglicht die Tunnelrate auch dann zu bestimmen, wenn die Moden durch die limitierte spektrale Auflösung von etwa $\Delta\omega_{\text{res}} = 2\pi \times 15$ GHz des Analyseaufbaus auf Resonanz untrennbar bei $J = 2\pi \times 7.5$ GHz überlappen würden. Dazu ist es nötig den Mischungswinkel messen zu können. D.h. beide Moden müssen eine messbare Aufenthaltswahrscheinlichkeit in beiden Mulden aufweisen. Nimmt man den im Experiment minimal

gemessenen Mischungswinkel von ca. $\vartheta_{\min} = 0.15\pi$ an, so wäre theoretisch eine Tunnelrate von $J_{\min} = 2\pi \times 3.6 \text{ GHz}$ über das Spektrum messbar. In Kapitel 5 wird eine weitere Vermessung dieser Größe vorgestellt, welche sich aus der mit einem Streak-Kamera-Aufbau gemessenen zeitlichen Dynamik eines in nur einem der Mulden initial angeregten kohärenten Wellenpaketes extrahieren lässt.

4.3 | Thermalisierung und Kondensation eines Photonengases in einer harmonisch umschlossenen Doppelmulde

Das reine Doppelmuldenpotential soll im Folgenden mit einem schwachen harmonischen Potential überlagert werden um die Bose-Einstein Kondensation von Licht in einem neuartigen Zustand zu realisieren. Das resultierende zweidimensionale Potential weist keine gaußförmige Grundmode wie in bislang realisierten Experimenten mit Photonenkondensaten auf [19, 28, 30], sondern zeichnet sich durch den symmetrischen Superpositionszustand der Doppelmulde als Grundzustand aus. Als nächst höherenergetische Zustände folgen der anti-symmetrische Superpositionszustand sowie die spektral annähernd äquidistant verteilten Moden des umgebenden harmonischen Potentials, wie idealisiert in Abb. 4.5 dargestellt. Das Energieschema kann dann vereinfacht durch drei Größen beschrieben werden. Zunächst ist über die Tunnelrate J der energetische Abstand zwischen den Doppelmuldenmoden $2\hbar J$ gegeben. Mit der Energiedifferenz $\hbar\Delta$ zur folgenden harmonischen Mode und der Fallenfrequenz Ω wird die reduzierte Beschreibung des Potentials komplettiert. Im Gegensatz zum alleinstehenden Doppelmuldenpotential mit zwei Moden, existiert nun eine Vielzahl an angeregten (thermischen) Moden über der Grundzustandsenergie. Betrachtet man dieses Potential im farbstoffgefüllten Mikroresonator, so sagt der in Abschnitt 2.2 ausgiebig beschriebene Thermalisierungsprozess eine Besetzung der Zustände nach der Bose-Einstein-Statistik voraus. Oberhalb einer kritischen Teilchenzahl ist somit die makroskopische Besetzung des symmetrischen Superpositionszustandes zu erwarten. Im Gegensatz zu Experimenten mit atomaren Bosonen, in denen üblicherweise Kondensate in harmonischen Fallen präpariert und nachfolgend in Gitterpotentiale umgeladen werden, ist hier eine direkte Kondensation in Superpositionszustände möglich. Während der Thermalisierung des Photonengases und auch nach der Kondensation bleibt die Potentialgeometrie in den hier beschriebenen Experimenten unverändert.

Experimentelle Realisierung der Potentialgeometrie

Das hybride Potential kann mit der in Kapitel 3 beschriebenen iterativen Mikrostrukturierungstechnik erzeugt werden. Abb. 4.6a zeigt die resultierende Spiegeloberfläche. Sie weist einen Krümmungsradius von etwa $R = 15 \text{ cm}$ auf und erreicht eine Maximalhöhe von $\sim 15 \text{ nm}$ im Abstand von $70 \mu\text{m}$ zum Zentrum. Die Begrenzung auf diese Deformationshöhe soll einer Zunahme von Transmissionsverlusten vorbeugen (vgl. Abs. 3.2). Der strukturierte Spiegel wird nun wie in Abs. 4.2 einem planen Spiegel gegenübergestellt. Der Abstand wird so gewählt, dass allein die longitudinale Mode $q = 11$ bei der Abschneidewellenlänge von $\lambda_{\text{abs}} = 586 \text{ nm}$ durch die Farbstofffluoreszenz besetzt werden kann. Diesbezüglich lässt sich die Fallenfrequenz für das harmonische Teilpotential ähnlich wie in Gl. 2.48 über

$$\Omega = \frac{c}{n_0 \sqrt{Rq\lambda/(2n_0)}} \approx 57 \text{ GHz} \quad (4.10)$$

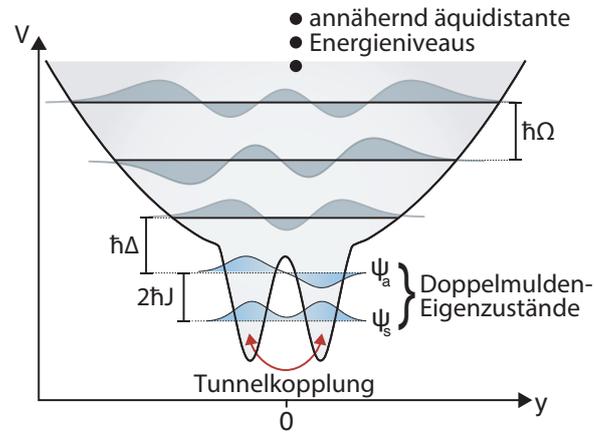


Abbildung 4.5 Hybridpotential mit Superpositionsgrundzustand – Das Fallenpotential V setzt sich aus einer Doppelmulde im Zentrum und aus einem es umgebenden harmonischen Potential zusammen. Gezeigt sind die beiden Eigenzustände niedrigster Energie, also die des tunnelgekoppelten Doppelmulden mit den symmetrischen und anti-symmetrischen Wellenfunktionen ψ_s und ψ_a . Der energetische Abstand dieser ergibt sich aus der Tunnelrate J zu $2\hbar J$. Darüber sind im energetischen Abstand $\hbar\Delta$ quasi-äquidistante Energieniveaus des harmonischen Oszillators mit der Fallenfrequenz Ω eingezeichnet.

berechnen. Dabei wird die einseitige Krümmung des Mikroresonators durch den zusätzlichen Faktor $\sqrt{1/2}$ berücksichtigt. Nach Gl. 2.45 kann hier die lokale Wölbung des Spiegels in ein Fallenpotential umgerechnet werden. Ein vertikaler Schnitt durch das Fallenzentrum ist in Abb. 3b rechts dargestellt. Dabei wird neben der maximalen Tiefe von etwa $h \times 3.4$ THz hier auch die Doppelmuldenstruktur im Zentrum der Falle sichtbar. Die Mulden weisen einen Abstand von $\sim 11 \mu\text{m}$ auf und sind durch eine $h \times 0.11$ THz hohe Barriere voneinander getrennt.

Ähnlich wie in Abschnitt 4.2 lässt sich die theoretische Modenstruktur numerisch bestimmen. Dazu werden die Matrixelemente des Hamiltonoperators in der Basis Harmonischer-Oszillator-Zustände berechnet und diese Matrix diagonalisiert, um die Eigenzustände des Systems zu finden. Um die experimentelle Analyse über das Spektrometer zu simulieren, werden die Eigenzustände entsprechend ihrer Energie auf einer spektralen Achse angeordnet. Dabei wird um den Modenschwerpunkt die Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung in x und y -Richtung eingezeichnet, wobei die relative Stauchung dieser Abbildung auf der spektralen (x -)Achse dem Analyseaufbau entsprechend berücksichtigt wird. Diese Simulation ist in Abb. 4.6 dargestellt und wurde von Prof. Dr. Achim Rosch innerhalb der Zusammenarbeit zu Ref. [91] durchgeführt. Gezeigt sind Spektren bei verschiedenen chemischen Potentialen μ und bei der Raumtemperatur $T = 300$ K. Diese führen zu einer variablen Intensität der Moden i mit den Wellenlängen λ_i , welche mit

$$n_i(\mu) = \frac{1}{\exp[(E_i - \mu)/(k_B T)] - 1}, \quad \text{mit } E_i = h(c/\lambda_i) - h(c/\lambda_0) \quad (4.11)$$

gewichtet sind. Hier zeigt sich die deutlich erhöhte Besetzung der niedrigsten Energie, welche hier als symmetrischer Grundzustand des Systems ausgemacht werden kann. Darüber folgt der anti-symmetrische Zustand (hier $n_x = 0, n_y = 1$) mit verschwindender Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Fallenzentrum mit einer Energie von $E_1 = E_a = 2\hbar J = \hbar \times 36$ GHz. Die nächste Mode folgt auf

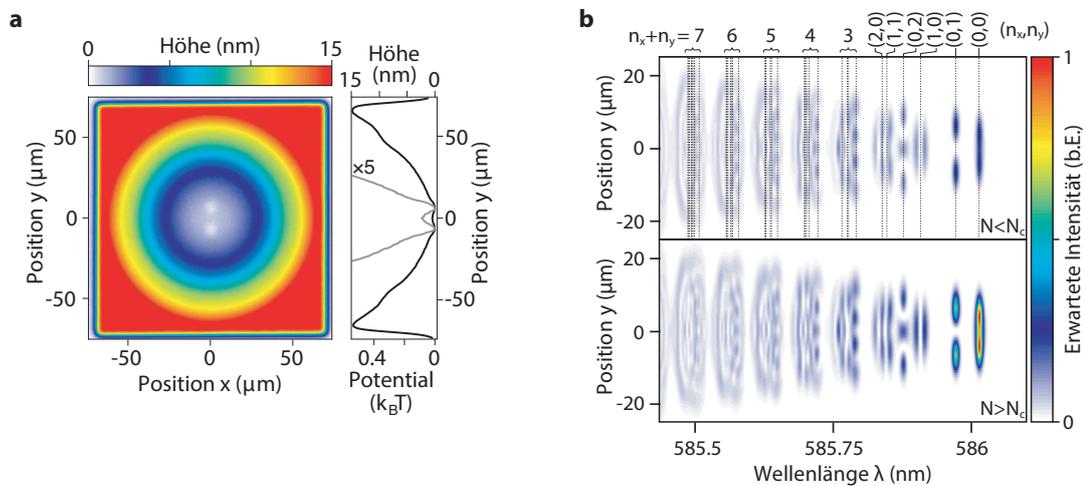


Abbildung 4.6 Numerische Berechnung der Eigenzustände der experimentell realisierten harmonisch umschlossenen Doppelmulde – **a**, Strukturierte Oberfläche eines Resonatorspiegels. Die Deformationshöhen sind für die longitudinale Modenzahl $q = 11$ und die Abschneidewellenlänge von $\lambda_0 = 586$ nm in Potentialhöhen umgerechnet. Es ergibt sich eine harmonische Falle mit einem Doppelmuldenpotential im Zentrum. **b**, Mit der Bose-Einstein-Statistik bei einer Temperatur $T = 300$ K gewichtete Intensitäten der zum Potential in **a** berechneten Eigenzustände des harmonisch umschlossenen Doppelmuldensystems bei zwei verschiedenen chemischen Potentialen $\mu = -0.024 k_B T$ (oben) und $\mu = -0.006 k_B T$. Durch gestrichelte Linien werden den Resonatormoden die äquivalenten Modenzahlen des harmonischen Oszillators n_x und n_y zugeordnet. Bei überlappenden Intensitätsverteilungen höherenergetischer Moden ist die Gesamtmodenzahl n angegeben.

diese Doppelmuldenzustände mit einem energetischen Abstand von $\hbar\Delta = \hbar \times 2\pi \times 55$ GHz und ist als die horizontal angeordnete Mode mit (1,0) ($\rightarrow n_x = 1, n_y = 0$) auszumachen. Die folgenden Oszillatormoden können ebenfalls eindeutig den Modenzahlen n_x und n_y zugeordnet werden (vgl. Gl. 2.50). Niederenergetische Moden deren Gesamtmodenzahl $n = n_x + n_y$ gleich ist, weisen dabei nicht die selbe Energie auf und können, wie in Abb. 4.6b gezeigt, spektral voneinander getrennt werden. So setzt der durch den spaltfreien Spektrometeraufbau bedingte räumliche Überlapp der Zustandsaufenthaltswahrscheinlichkeiten erst bei $n \gtrsim 5$ ein. Dieses Verhalten macht den Einfluss der Abweichung von einem rein harmonischen Potential deutlich und zeigt, dass der Einfluss dieser Diskrepanz mit steigender Modenzahl sinkt. Wie in den folgenden Abschnitten gezeigt wird, ist die Entartung der Resonatorzustände extrem relevant um experimentelle Spektren nachzuvollziehen. Dabei wird die Anzahl an Moden, welche sich überlappen, durch eine effektive Besetzung beim gemeinsamen spektralen Schwerpunkt berücksichtigt.

Spektrale und räumliche Analyse der Resonatoremision

Das in Abb. 4.6a gezeigte Potential wird nun von einem Photonengas besetzt im farbstoffgefüllten Mikroresonator untersucht. Die zentrale Pumpanregung mit einem Durchmesser von $80(8)$ μm erfolgt mit Pulsen der Dauer 1 μs mit einer Wiederholrate von 50 Hz. Die Resonatorlänge ist dabei so eingestellt, dass nur die transversalen Anregungen zur longitudinalen Mode $q = 11$ mit der Abschneidewellenlänge von ~ 586 nm besetzt werden. Für die Photonen ergibt sich damit eine

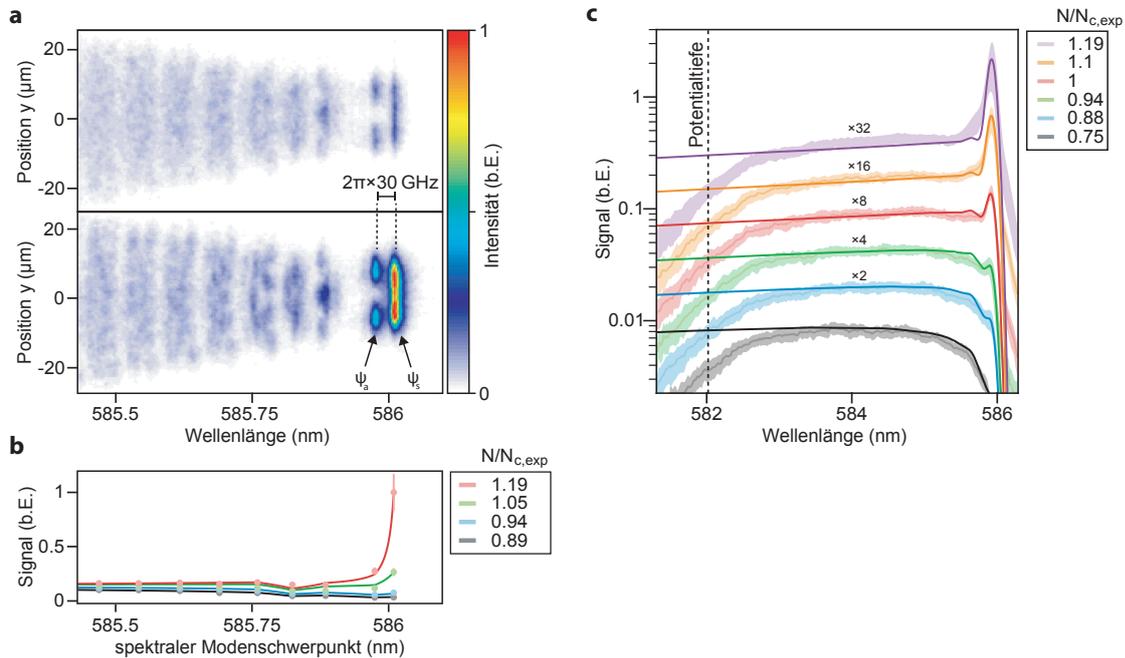


Abbildung 4.7 Spektren der Resonatoremmission – **a**, Hochauflösende spektrale Verteilung der Resonatoremmission bei experimentell bestimmten Photonenzahlen $N = 0.94 N_{c,exp}$ (oben) und $N = 1.05 N_{c,exp}$. Dazu wurden jeweils 200 Einzelmessungen um leichte spektrale Versätze korrigiert und gemittelt. **b**, Aus diesen und weiteren Messungen extrahierte Modenbesetzung mit Anpassung der Bose-Einstein-Statistik mit Berücksichtigung der Modenentartung (durchgezogene Linien). **c**, Gesamtes Emissionsspektrum in reduzierter Auflösung ebenfalls mit Anpassung der mit einem Gaußprofil der Breite der Auflösung von 0.17 nm gefalteten Bose-Einstein-Statistik. Zur besseren Übersicht sind die Spektren bei steigender Gesamtphotonenzahl durch Multiplikation mit dem eingezeichneten Faktor vertikal verschoben.

effektive Masse von 7.8×10^{-36} kg. In mehreren Messreihen wird die Gesamtphotonenzahl durch Variation der Pumpleistung verändert. Sie wird über die räumliche ICCD-Aufnahme der Resonatoremmission, wie in Abschnitt 4.1 erläutert, bestimmt. Gleichzeitig wird das Spektrum aufgenommen. Dabei wird bei unveränderten Parametern ein hochauflösendes Echelle-Gitter als auch ein Blaze-Gitter mit der Auflösung von 0.17 nm verwendet, um auch die Breitbandaufnahme des gesamten Emissionsspektrums zu erreichen. Um in beiden Fällen die energetische Verteilung der Photonen im Resonator zu bestimmen, wird die gemessene Intensität mit der wellenlängenabhängigen, in Abb. 4.2a aufgeführten, Spiegeltransmission korrigiert. Neben dieser Korrektur werden, begründet durch die geringe Signalstärke einer einzelnen Messung, 200 Spektren gemittelt. Dabei ist zu beachten, dass kleine Schwankungen der Resonatorlänge von Aufnahme zu Aufnahme zu einer leichten Verbreiterung des gesamten Spektrums führen. Zur Mittelung wird diese Verschiebung korrigiert. Dies ist besonders bei der hochauflösenden Variante des Spektrometers von Bedeutung. Nur durch diese Korrektur wird die Modenstruktur in den in Abb. 4.7a dargestellten Spektren sichtbar. Sie weist eine deutliche Ähnlichkeit mit der zuvor simulierten Intensitätsverteilung auf. Der symmetrische Grundzustand ψ_s bei einer Wellenlänge knapp über 586 nm und der darauffolgende anti-symmetrische Zustand ψ_a sind eindeutig anhand ihrer vertikalen räumlichen Verteilung zu erkennen. Aus ihrem energetischen

Abstand von $h \times 30(1)$ GHz ergibt sich eine Tunnelrate von $J_{\text{exp}} = 2\pi \times 15$ GHz. Im Gegensatz zur numerischen Simulation überlappen die nächsten beiden höheren Moden in einem Abstand von $h \times 76$ GHz. Sie können anhand der räumlichen Verteilung als die beiden Harmonischer-Oszillator-Moden mit den Modenzahlen (0,1) und (0,2) identifiziert werden. Die Moden (1,1) und (2,0) lassen sich als nächstes identifizieren, sie überschneiden sich ebenfalls. Zu niedrigeren Wellenlängen hin sind weitere Moden zu erkennen, welche nun in deutlich trennbaren spektralen Clustern angeordnet sind. Es wird angenommen, dass alle Moden der jeweiligen Gruppierung die selbe Gesamtmodenzahl n aufweisen und somit $n + 1$ Zustände zusammengeschlossen werden (Entartung). Die Modenzahl eines solchen Clusters lässt sich anhand der maximal beobachtbaren vertikalen Knoten der Mode $(n,0)$ in diesem Bereich gut erkennen. Der energetische Abstand der Clusterzentren höherer Entartung lässt eine Bestimmung der Fallenfrequenz $\Omega_{\text{exp}} = 2\pi \times 63(2)$ GHz des harmonischen Teilpotentials zu. Diese zeigt eine geringe Abweichung vom aus der Spiegelkrümmung analytisch bestimmten Wert. Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass obwohl das simulierte Spektrum der experimentell gemessenen Modenstruktur ähnelt, doch auch Unterschiede auszumachen sind. So wird die Tunnelrate leicht überschätzt und die energetischen Abstände der niedrigsten Moden werden ebenfalls nicht korrekt vorhergesagt. Zweiteres lässt sich durch eine experimentelle oder numerische Verkippung der Spiegeloberfläche orthogonal zur Doppelmuldenachse erklären. Verstimmungen auf der vertikalen Achse würden ebenfalls größere Aufspaltungen der Doppelmuldenmoden erklären, würden sich jedoch auch in der ungleichmäßigen Besetzung der Mulden äußern. Eine mögliche Erklärung ist eine potentiell fehlerbehaftete Bestimmung der transversalen Ausdehnung der Struktur im Mirau-Interferometer-Aufbau. Folglich könnte der Abstand der Mulden leicht unterschätzt werden, was große (exponentielle) Auswirkungen auf die Tunnelrate hätte. Eine weitere mögliche Fehlerquelle ist die unbekannte Oberfläche des gegenüberliegenden Spiegels, welche das Potential entsprechend dieser verzerren könnte. Dennoch ist die numerische Berechnung der Systemzustände ein gutes Hilfsmittel um Voraussagen über die zu erwartende Modenanordnung zu treffen.

Die in Abb. 4.7a gezeigten Spektren unterscheiden sich in der Gesamtphotonenzahl von ~ 7500 und ~ 8400 . Dieser Unterschied äußert sich in den sich verändernden Intensitäten der einzelnen Moden. Dabei ist bei höherer Gesamtbesetzung eine deutlich überproportionale Besetzung des symmetrischen Zustands zu erkennen, während höhere Moden nur leicht an Intensität zunehmen. Diese Unterschiede lassen sich, wie in Abb. 4.7b dargestellt, durch die Integration der Spektren entlang der y -Achse besser quantifizieren. Dabei werden die zur Photonenzahl proportionalen Signale ferner spektral in den definierten Clustern zusammengefasst. Jeder dieser Datenpunkte beschreibt somit eine effektive Mode mit einer effektiven Entartung g_i , welche über die Anzahl an Zuständen im spektralen Bereich um die zentrale Wellenlänge λ_i bestimmt wird. Über die Bose-Einstein-Statistik ist dann eine spektrale Verteilung nach

$$n_i(\mu) = \frac{2g_i}{\exp[(E_i - \mu)/(k_B T)] - 1} \quad (4.12)$$

zu erwarten. Dabei ist die Polarisationsentartung ebenfalls durch den Faktor 2 berücksichtigt und E_i bezeichnet die mittlere energetische Differenz der jeweiligen Modengruppe zum Grundzustand. Zur Anpassung der Bose-Einstein-Statistik an die gemessenen Besetzungen bei verschiedenen Gesamtphotonenzahlen, wird ein global für alle Messreihen gültiger Vorfaktor eingeführt um die Photonenzahlen in die gemessenen Signalstärken in beliebigen Einheiten umzurechnen. Dieser wird über alle

Messreihen, sowie das chemische Potential in einzelnen Messungen, angepasst. Des Weiteren wird die Temperatur des Photonengases zu $T = 300$ K eingesetzt. Die so bestimmten theoretischen Spektren sind ebenfalls in Abb. 4.7b eingezeichnet und beschreiben die experimentellen Verläufe sehr gut. Aus den Anpassungen können ferner aus den in Abb.4.7a dargestellten ICCD-Aufnahmen die chemischen Potentiale $\mu = -0.024 k_B T$ und $\mu = -0.006 k_B T$ extrahiert werden.

Aus den hochaufgelösten Spektren lässt sich schließen, dass die niederenergetischen Moden durch Resonatorphotonen thermisch besetzt werden. Das Spektrometer deckt allerdings nur einen kleinen Ausschnitt der Resonatoremission ab. Messungen mit geringerer Auflösung sind in Abb. 4.7c dargestellt. Hier können einzelne Intensitätsmaxima der Moden nicht mehr aufgelöst werden, jedoch ist die gesamte spektrale Verteilung des Photonengases über die gesamte Falltiefe einsehbar. Auffällig ist der Abfall der Spektren nahe einer Wellenlänge von 582.5 nm, obwohl das Potential bedingt durch seine Tiefe Moden bis zu ~ 582 nm aufweisen sollte. Diese geringere Besetzung, resultiert vermutlich aus höheren Verlusten hochenergetischer Moden. Neben erhöhter Spiegeltransmission, könnten auch Tunnelereignisse in Moden außerhalb des Potentials durch die schmale äußerliche Barriere diese Verluste erklären. An den populierten spektralen Bereich kann nun eine Bose-Einstein-Statistik angepasst werden. Dazu wird die theoretische Verteilung der limitierten experimentellen Auflösung entsprechend mit einer Gauß-Funktion der Breite 0.17 nm gefaltet und über das chemische Potential angepasst. Erneut ist hier eine gute Übereinstimmung der Theorie mit den experimentellen Daten bei variierender Gesamtphotonenzahl ersichtlich. Aus diesen Graphen lässt sich die kritische Photonenzahl, bei der die makroskopische Besetzung des Grundzustands ersichtlich wird, zu $N_{c,exp} = 8000(2500)$ bestimmen. Der relativ große Fehler ergibt sich dabei aus statistischen Schwankungen und dem systematischen Fehler der Spiegeltransmissionen (ähnlich wie in Ref. [18]). Über diesem kritischen Wert ist eine makroskopische Besetzung des Grundzustands in beiden Spektren zu beobachten. Die gezeigten Messungen weisen auf die Kondensation des Photonengases bei einer Temperatur von 300 K in einen Superpositionszustand hin, welche sich auch in der in den Abbildungen 4.8a und b dargestellten räumlichen Verteilung der Photonen widerspiegelt. Hier ist über der kritischen Teilchenzahl eine deutliche Besetzung der Mulden im Zentrum, deren Intensität deutlich aus der sie umgebenden gauß-verteiltern thermischen Wolke heraussticht, zu sehen. In Abb. 4.8 ist ebenfalls eine Aufnahme der Farb-CCD-Kamera dargestellt. Zu sehen ist die gelbe Emission aus der Doppelmulde, welche von grünlicherem Licht umrandet wird. Wie sehr die Farben der Realität entsprechen ist aufgrund der hocheingestellten CCD-Verstärkung schwer einzuschätzen. Der Übergang zu höherenergetischen Photonen am Rand der Falle wird dennoch deutlich und ist mit Farb-Aufnahmen aus früheren Experimenten im farbstoffgefüllten Mikroresonatorsystem vergleichbar [19, 20]. Über die räumliche Überlagerung der Emission aus den einzelnen Mulden kann ferner die Phasenkohärenz der Superposition der Einzelmuldenzustände sichtbar gemacht werden. Dazu wird die Resonatoremission kollimiert in einen Mach-Zehnder-Interferometeraufbau geführt und die Interferometerpfade so justiert, dass die Resonatoremission bei der anschließenden Abbildung auf die ICCD-Kamera räumlich um den halben Muldenabstand vertikal verschoben mit sich selbst überlagert wird. Im in Abb. 4.8d gezeigten, auf diese Weise aufgenommenen Interferogramm des Photonengases über der Kondensationsschwelle ist ein kontrastreiches Interferenzstreifenmuster im zentralen Bereich

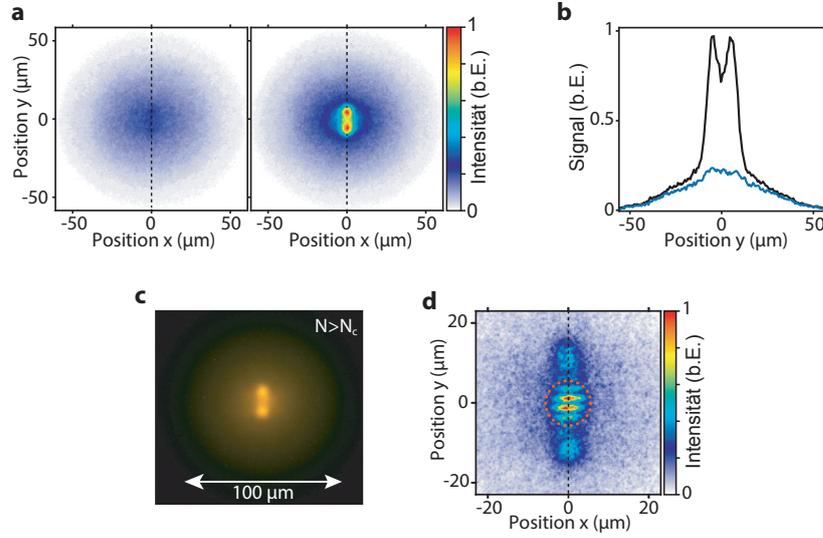


Abbildung 4.8 Räumliche Verteilung und Interferenz des thermalisierten Photonengases – **a**, Räumliche ICCD-Kameraaufnahmen der Resonatoremmission bei experimentell bestimmten Gesamtphotonenzahlen $N=0.89 N_{c,\text{exp}}$ (links) und $N=1.19 N_{c,\text{exp}}$. **b**, Vertikale Intensitätsprofile entlang der in **a** gestrichelt eingezeichneten Doppelmuldenachse bei gleichen Gesamtbesetzungen. **c**, Farb-CCD-Aufnahme der Resonatoremmission über der kritischen Teilchenzahl $N_{c,\text{exp}}$. **d**, Räumliche Überlagerung der Resonatoremmission mit sich selbst bei einem vertikalen Versatz, der dem halben Muldenabstand entspricht. Der eingezeichnete orangene Kreis kennzeichnet den Bereich, in welchem die Emission aus den einzelnen Mulden miteinander interferiert. Die Gesamtphotonenzahl beträgt hier $N=1.18 N_{c,\text{exp}}$.

der Überlagerung der Muldenemissionen zu sehen¹, welches die erwartete, über die Pumpulsdauer von 1 μs konstant bleibende Phasenbeziehung dieser zueinander bestätigt.

Zuletzt lässt sich die experimentell bestimmte Kondensationschwelle mit der theoretischen Erwartung vergleichen. Durch die Begrenzung der Potentialtiefe werden dabei zur Bestimmung der theoretischen kritischen Photonenzahl $N_{c,\text{theo}}$ des Systems die in Abs. 2.1 präsentierten Korrekturen relevant. Zunächst lässt sich aber mit Gl. 2.55 die Photonenzahl für ein rein harmonisches und unendlich tiefes Potential mit der experimentell bestimmten Fallenfrequenz Ω_{exp} zu

$$N_{c,\text{theo,inf}} = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B T}{\hbar \Omega_{\text{exp}}} \right)^2 \approx 32600 \quad (4.13)$$

berechnen. Bestimmt man nun die kritische Summe der über die Potentialtiefe von ~ 3.4 THz limitierte Anzahl an Zuständen, unter der Berücksichtigung der zuvor bestimmten niederenergetischen Modenstruktur und der Annahme darauf folgender äquidistanter Energieniveaus mit entsprechend steigender Entartung, so ergibt sich eine reduzierte kritische Photonenzahl von $N_{c,\text{theo}} = 9800$. Mit einer Reduktion auf 30 % der Kondensatschwelle im uneingeschränkten Fallenpotential stimmt diese Teilchenzahl gut mit der experimentell beobachteten überein.

¹Die Interferometerarme wurden bewusst so eingestellt, dass die Wellenvektoren der Teilstrahlen vertikal einen nicht verschwindenden Winkel einschließen und sich somit ein Interferenzstreifenmuster ergibt.

4.4 | Monte-Carlo-Simulation in einer isolierten Doppelmulde

Im Folgenden wird die Molekül- und Photonendynamik im farbstoffgefüllten Mikroresonatorsystem simuliert und mit experimentellen Beobachtungen verglichen. Dazu wird, wie oft bei statistischen physikalischen Problemen, welche sich schwer oder nicht analytisch lösen lassen, das Monte-Carlo-Verfahren verwendet [92]. Dabei wird die zeitliche Evolution eines Systems schrittweise berechnet. Jeder dieser Berechnungsschritte besteht darin, zufällig und stochastisch gewichtet, ein gewisses Ereignis auszuführen. Im Bereich der Teilchenphysik wird mit diesem Verfahren zum Beispiel die Interaktion von Teilchen und ihrer möglichen (ebenfalls berechneten) Zerfallsprodukte mit Detektoren zur besseren Planung der Experimente simuliert [93]. Dies ermöglicht beispielsweise eine Abschätzung des aus dem Standardmodell zu erwartenden Detektionsuntergrunds um neue Theorien über dieses hinaus aufzuspüren oder zu bestätigen [94].

Simulation des verlustbehafteten Resonators

Im Rahmen dieser Arbeit lässt sich mit dem Monte-Carlo-Verfahren die in Abschnitt 2.2.1 besprochene Markov-Kette numerisch realisieren. Die im Ratengleichungsmodell (vgl. Abs. 2.2.4) benannten, im farbstoffgefüllten Resonator stattfindenden, Prozesse verändern fortlaufend die Systemkonfiguration. Diese beinhaltet nicht nur die photonische Modenbesetzung, sondern auch den örtlich variierenden Anregungsgrad der Moleküle. Um das nächste stattfindende Ereignis zu bestimmen, wird zufällig und entsprechend der in Gln. 2.58 und 2.59 aufgeführten Raten stochastisch gewichtet einer der folgenden Prozesse ausgeführt:

- ◇ **Molekülanregung** am Ort \vec{x} durch Absorption eines Pumpphotons und daraus resultierende örtliche Erhöhung des molekularen Anregungsgrades $f(\vec{x})$ mit der Pumprate $R_P(\vec{x})$.
- ◇ **Emission eines Photons in eine Resonatormode** Das stochastische Gewicht für jede einzelne Mode i ist proportional zum effektiven Anregungsgrad und unter Berücksichtigung stimulierter Emission ebenfalls proportional zur Modenbesetzung n_i über die Rate $B_{em}(\omega_i)(n_i + 1) \int |\psi_i(\vec{x})|^2 f(\vec{x}) d^3x$ gegeben. Beim Ausführen dieses Ereignisses wird zufällig, mit $|\psi_i(\vec{x})|^2 f(\vec{x})$ gewichtet, ein Ort \vec{x} gewählt, an welchem ein Molekül abgeregt wird.
- ◇ **Strahlungslose Desaktivierung eines Moleküls oder isotrope Abstrahlung** mit der Rate $f(\vec{x})\Gamma_{iso}$.
- ◇ **Absorption eines Photons der Mode i** . Das Eintreten dieses Ereignisses ist für jede Mode einzeln mit der Rate $B_{abs}(\omega_i)n_i$ gewichtet. Der Ort der daraus resultierenden Anregung eines Moleküls wird ebenfalls mit der Gewichtung durch die Wahrscheinlichkeitsdichte der Mode $|\psi_i(\vec{x})|^2$ zufällig gewählt.
- ◇ **Verlust eines Photons durch Spiegeltransmission** mit der Rate $n_i\Gamma_{res}$ und folgende Reduktion der Besetzung der Mode i .

Die relative Gewichtung dieser Prozesse ändert sich zwischen den Simulationsschritten fortlaufend durch die Variation der Modenbesetzung und des Anregungsgrades. So wird die Dynamik zunächst durch die Pumpanregung dominiert, da die anderen Prozesse wegen des geringen Anregungsgrades

und der geringen Besetzung der Moden stark unterdrückt sind. Um den zeitlichen Verlauf der Systemkonfiguration zu beschreiben, wird als Maß für die zwischen Ereignissen vergehende Zeit ebenfalls zufällig aus einer exponentiellen Verteilung mit einer Zerfallskonstante, welche dem Inversen der Summe aller Raten entspricht, ein Wert gezogen. Ähnliche Ansätze zur Simulation des Resonatorsystems finden sich beispielsweise in Referenzen [63, 95].

Doppelmuldenpotential bei ortsselektiver Pumpstrahlanregung

Anwendung findet dieses Modell in der Simulation der Photonen-Besetzung einer Doppelmulde als Funktion der Pumpstrahlposition mit endlicher räumlicher Ausdehnung. Anlass dazu gibt die experimentelle Beobachtung, dass bei hohen Pumpleistungen im begrenzten Doppelmuldenpotential (ohne harmonische Falle), die Besetzung des symmetrischen und anti-symmetrischen Zustands deutlich vom örtlichen Schwerpunkt der Pumpstrahlanregung abhängt. So wurde bei einer räumlich auf eine Mulde begrenzter Pumpstrahlanregung in einer verstimzten Doppelmulde nur die Besetzung des Zustandes mit der höheren Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der gepumpten Mulde beobachtet [28]. Dieses Verhalten kann Verlusten zugeschrieben werden, wurde aber bislang nicht weiter quantifiziert. Die Monte-Carlo-Simulation soll zum besseren Verständnis dieser Beobachtung führen. Dabei wird sie explizit mit einem experimentell realisierten resonanten Muldensystem mit der Tunnelrate $J = 2\pi \times 24$ GHz, über welches ein Pumpstrahl bewegt wird, verglichen. Zur Reduktion der Rechenzeit ist eine Vereinfachung des Problems auf eine Dimension sinnvoll. Für die Simulation werden so die in Abb. 4.9a dargestellten Wahrscheinlichkeitsdichteverteilungen der Superpositionszustände $|\psi_s|^2$ und $|\psi_a|^2$ angenommen. Diese wurden den experimentellen Spektren der Doppelmuldenemission durch Anpassung entnommen (vgl. Abs. 4.2). Wie eingezeichnet soll nun in wiederholten Simulationen der Schwerpunkt eines gaußförmigen Pumpstrahls mit dem Durchmesser $8\ \mu\text{m}$ relativ zum Modenschwerpunkt verschoben und seine Pumprate variiert werden. Bei der Wellenlänge von $586\ \text{nm}$ ergibt sich für die Absorptionsrate von Photonen im symmetrischen Zustand $B_{\text{abs},s} = 3.11 \times 10^9\ \text{1/s}$. Für Photonen im anti-symmetrischen Zustand gilt mit der etwas kürzeren Wellenlänge von $585.94\ \text{nm}$ eine Absorptionsrate von $B_{\text{abs},a} = 3.14 \times 10^9\ \text{1/s}$, welche sich aus dem aus der Literatur gegebenen Wirkungsquerschnitt σ von Rhodamin 6G in Ethylen-Glykol [96] über

$$B_{\text{abs}} = \sigma \rho c / n, \quad \text{mit} \quad \rho = N_{\text{Av}} C \quad (4.14)$$

berechnet. Dabei ergibt sich mit der Avogadro-Konstante N_{Av} und der Farbstoffkonzentration $C = 1\ \text{mmol/l}$ für die Dichte an Farbstoffmolekülen in der Lösung $\rho \approx 6 \times 10^{23} / \text{m}^3$. Über den Faktor $B_{\text{ems}}/B_{\text{abs}} \approx 470$ aus der Kennard-Stepanov-Relation lassen sich nun weiter die Emissionsraten $1.469 \times 10^{12}\ \text{1/s}$ und $1.467 \times 10^{12}\ \text{1/s}$ bestimmen [23]. Die Rate, mit der Photonen spontan in ungefangene Moden emittiert werden, wird über die Lebensdauer zu $1/4\ \text{ns} = 250 \times 10^6\ \text{1/s} \times M$ mit der Gesamtmolekülzahl M pro räumlichen Simulationspixel abgeschätzt. Zuletzt können die Spiegelverluste mit der vom Hersteller gegebenen Spiegeltransmission $T \approx 10\ \text{ppm}$ zu

$$\Gamma_{\text{res}} = \frac{c}{q\lambda/2} \cdot T = 1.14 \times 10^9\ \text{1/s} \quad (4.15)$$

berechnet werden. Zur Bestimmung des Anregungsgrades wird ferner die Molekülanzahl auf einem numerischen Raumpixel der Länge $0.4\ \mu\text{m}$ benötigt. Da die Breite der Moden orthogonal zur Tunnel-

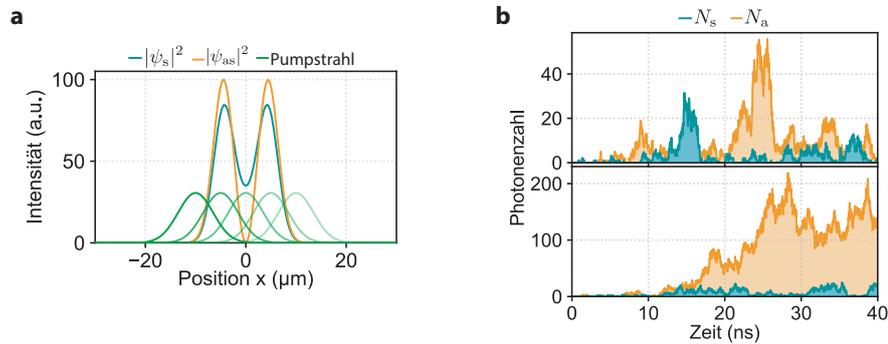


Abbildung 4.9 Monte-Carlo-Simulation im Doppelmuldenpotential – **a**, Auf die Verbindungsachse einer Doppelmulde projizierte Eigenzustände bei resonanter Kopplung. Die Verschiebung des Pumpstrahls mit einem Durchmesser von $8 \mu\text{m}$ ist ebenfalls angedeutet. **b**, Simulierte Zeitspuren der photonischen Besetzung des symmetrischen sowie anti-symmetrischen Zustandes (N_s und N_a), für einen Pumpstrahlschwerpunkt der $x = 8 \mu\text{m}$ vom Ursprung versetzt bei den gewählten räumlich aufintegrierten Pumpspannungsraten von $5.5 \times 10^{13} \text{ 1/s}$ (oben) und $6.1 \times 10^{13} \text{ 1/s}$.

achse etwa $5 \mu\text{m}$ beträgt, deckt solch ein Pixel ein Volumen von $\sim 2 \mu\text{m}^3 \text{ ab}^2$. Die Molekülanzahl in diesem Bereich kann somit mit der zuvor angegebenen Dichte zu etwa $M = 1.2 \times 10^6$ abgeschätzt werden.

Die Monte-Carlo-Simulation ist nun mit den gegebenen Parametern ausführbar und liefert die zeitliche Entwicklung der photonischen Besetzung beider hybridisierter Doppelmuldenmoden. Exemplarisch sind in Abb. 4.9b Zeitspuren für verschiedene Pumpspannungsraten dargestellt, durch welche sich die mittleren Gesamtphotonenzahlen von $N \sim 10$ (unten) und ~ 130 (oben) im bei großen Zeiten erreichten Gleichgewichtszustand des Systems ergeben. Wie zu sehen, zeigen sich für geringere Besetzungen höhere Teilchenzahlfluktuationen und eine relativ gleichmäßige Besetzung der beiden Moden. Bei höheren Leistungen hingegen zeigt sich bei asymmetrischer Pumpstrahlanregung die dominante Besetzung des anti-symmetrischen Zustandes mit reduzierten Fluktuationen³. In Abb. 4.10a ist die relative Besetzung der Moden als Funktion der Gesamtphotonenzahl für Simulationen für verschiedene Versätze des Pumpstrahles Δx_P dargestellt. Es ist ersichtlich, dass sich Photonen bei geringer Gesamtbesetzung für alle gezeigten Δx_P annähernd auf beide Zustände gleichmäßig aufteilen. Aufgrund des im Vergleich zu $k_B T$ kleinen Energieabstands wäre eine Gleichbesetzung bei sehr kleinen Photonenzahlen im thermischen Gleichgewicht zu erwarten. Bei erhöhter Pumprate ist allerdings, bei einer damit einhergehenden höheren Gesamtteilchenzahl von 100–300, die ausschließliche Besetzung einer Mode zu beobachten. Dabei entscheidet die Pumpstrahlposition eindeutig darüber, welcher der Superpositionszustände makroskopisch besetzt wird. So dominiert bei zentraler Pumpspannung der symmetrische Zustand ($\Delta x_P \lesssim 4 \mu\text{m}$), während bei äußerer Anregung die Besetzung des anti-symmetrischen Zustandes überwiegt. Die deutliche Abweichung der Besetzungen von der Bose-

²Diese Aufteilung ermöglicht eine ausreichend exakte Modellierung der räumlichen Moden bei annehmbarem Rechenaufwand. Die Resonatorlänge zur Berechnung des Pixelvolumens wurde auf die Eindringtiefe von etwa 4 Halbwellen korrigiert, sodass $L_{\text{res,eff}} = (q - 4)\lambda/(2n)$ gilt (vgl. [18]).

³Die Rechendauer solcher Verläufe mit der Berechnung von $\sim 1 \times 10^7$ Ereignissen beträgt typischerweise $\sim 1\text{--}3$ Stunden (Python-Skript).

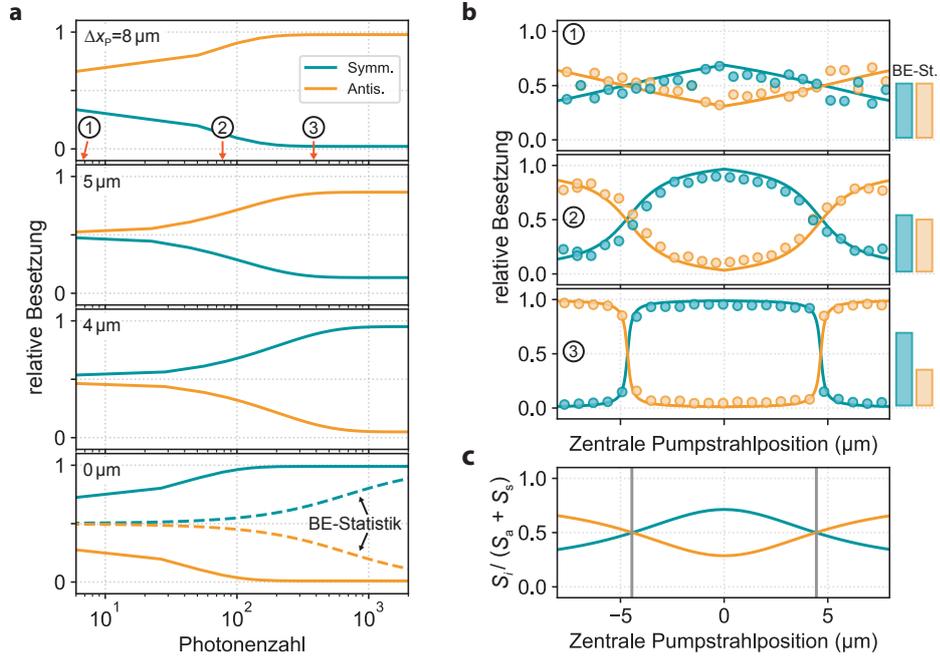


Abbildung 4.10 Simulierte und gemessene relative Besetzung der Doppelmuldeneigenmoden – **a**, Mit dem Monte-Carlo-Verfahren simulierte Besetzungsanteile des symmetrischen und anti-symmetrischen Eigenzustands als Funktion der Gesamtphotonenzahl für variierende Pumpstrahlschwerpunkte Δx_P bei konstantem Strahldurchmesser von $8 \mu\text{m}$. Die erwartete Besetzung nach der Bose-Einstein-Statistik ist eingezeichnet (unten). **b**, Besetzungen als Funktion von Δx_P für konstante, in **a** eingezeichnete, Photonenzahlen von $N = \{7, 78, 414\}$. Als Punkte sind Messungen bei den entsprechend eingestellten Parametern eingetragen. Die Balkendiagramme (rechts) zeigen die erwartete relative Besetzung der Moden für ein Gas im thermischen Gleichgewicht. **c**, Räumliche Überlappintegrale S_s und S_a der symmetrischen und anti-symmetrischen Mode mit dem Pumpstrahl, normiert auf die Summe $S_s + S_a$.

Einstein-Statistik, welche nur die makroskopische Besetzung des symmetrischen Grundzustandes erlaubt, sind in Abb. 4.10a ebenfalls ersichtlich und lassen darauf schließen, dass sich das Photonen-gas im simulierten System nicht im thermischen Gleichgewicht befindet. Weiteren Aufschluss über dieses Verhalten gibt die Betrachtung der relativen Besetzung bei konstanter Gesamtphotonenzahl als Funktion von Δx_P , wie in Abb. 4.10b zusammen mit experimentelle Daten gezeigt. Bei der Messung wurde der Pumpstrahl computergesteuert über das Potential verschoben und dessen Intensität zur Einhaltung einer konstanten Photonenzahl während einer Messreihe jeweils angepasst. Die Besetzung wird durch die Simulation gut beschrieben. Es ist deutlich zu sehen, wie je nach Pumpstrahlposition die Besetzung einer Mode überwiegt. Wie signifikant dieser Besetzungsunterschied ist, hängt von der Gesamtphotonenzahl ab. Dennoch ist stets eine Umkehr des Besetzungsverhältnisse bei einem Pumpstrahlzentrum von $|\Delta x_P| \sim 4.45 \mu\text{m}$ zu beobachten, welcher mit steigender Gesamtbesetzung steiler wird. An eben jener Position gilt für die Überlappintegrale von Pumpstrahl und den beiden Superpositionsmoden:

$$S_a = \int |\psi_a(x)|^2 R_P(x) dx = \int |\psi_s(x)|^2 R_P(x) dx = S_s. \quad (4.16)$$

Der Verlauf dieser auf das Gesamtüberlappintegral $S_a + S_s$ normierten Größen ist in Abb. 4.10c dargestellt und weist eine deutliche Ähnlichkeit zur Besetzungsverteilung auf. Diese Proportionalität deutet daraufhin, dass die isotropen Strahlungsverluste bei geringen Photonenzahlen die Dynamik dominieren, so wie es in Abschnitt 2.2.4 für einen Grenzfall bereits betrachtet wurde. Grund dafür ist die hohe Verlustwahrscheinlichkeit durch diesen Kanal von über 99 % nach der Absorption eines Photons, welche sich aus den Verhältnissen der berechneten Simulationsereignisse ergibt. Erst mit steigender Photonenzahl wird die Dynamik durch stimulierte Emissionsprozesse bestimmt und die Wahrscheinlichkeit für eine Re-Emission steigt. Dabei wird die durch den Pumpstrahl präferierte Mode verstärkt und dominiert die Besetzung. Die gute Übereinstimmung der auf dem präsentierten Ratengleichungsmodell basierenden Simulation und Näherung lässt auf eine gute Beschreibung des gegebenen Systems schließen. Dabei scheinen auch die gewählten (berechneten) Raten realistisch zu sein. Das beobachtete Photonengas befindet sich in diesem experimentellen System nicht im thermischen Gleichgewicht. Die numerischen Simulationen deuten daraufhin, dass dies der hohen Verlustwahrscheinlichkeit von molekularen Anregungen und der damit einhergehenden stark unterdrückten Kopplung der Photonen an das Farbstoff-Reservoir geschuldet ist.

Ein vergleichbares Verhalten konnte bei ähnlichen Experimenten in einem Dreifachmuldensystem beobachtet werden [57]. Hier wird nur eine der äußeren Mulden gepumpt. Die Tiefe der mittleren Mulde wird in Messreihen variiert, während die äußeren Mulden resonant bleiben. Die Dreifachmuldeneigenzustände mit dem größten räumlichen Überlapp mit dem Pumpstrahl werden am stärksten besetzt und weisen dabei je nach Muldentiefe unterschiedliche Paritäten auf. Sie wechseln somit von symmetrischen und anti-symmetrischen Zuständen beim kontinuierlichen Senken des Potentialminimums hin und her. Dieser Übergang wird durch Änderung der Fallengeometrie hervorgerufen, während im hier vorliegenden Experiment der Übergang allein durch die Pumpstrahlposition und Leistung bestimmt wird. Inwiefern die thermische Besetzung in größeren harmonischen Systemen mit einer deutlich höheren Zahl an Moden allein durch die Absorptions- und damit in dieser Simulation einhergehenden Verlustwahrscheinlichkeit bestimmt wird, oder ob wirklich wiederholte Absorptions- und Emissionszyklen dazu führen, ist Gegenstand aktueller experimenteller und theoretischer Untersuchungen [95, 97].

Dynamik eines Photonengases im Doppel- und Dreifachmuldenpotential

War im vorherigen Kapitel die Tunnelrate in Doppelmuldenpotentialen über die hochaufgelöste spektrale Vermessung der Resonatoremision möglich, so wird im vorliegenden Kapitel die zeitaufgelöste Tunneldynamik experimentell mit Hilfe eines Streak-Kamera-Systems untersucht. Dazu wird die Zeitentwicklung eines mit einem Pikosekunden-Pulslaser angeregten kohärenten Wellenpaketes in gekoppelten Doppelmuldenpotentialen untersucht. Darüber hinaus wird das experimentelle Protokoll auch auf Dreifachmuldenpotentiale in eindimensional linearer und zweidimensional geschlossener Anordnung angewendet und die kohärente Photonendynamik untersucht.

5.1 | Experimenteller Aufbau

Mit dem in Abbildung 5.1a dargestellten experimentellen Aufbau lassen sich zeitliche Änderungen der Resonatoremision entlang einer ausgewählten räumlichen Achse mit Pikosekundenauflösung untersuchen. Das Detektionssystem des Aufbaus bildet eine Streak-Kamera (engl. für Streifen), deren Funktionsprinzip in Abb. 5.2 dargestellt ist und wie folgt zusammengefasst werden kann. Die zu untersuchende Lichtquelle mit räumlich und zeitlich variierender Intensität $I(x, y)$ wird auf einen am Anfang des Kamerasystems angeordneten Spalt abgebildet. Mit einem Linsensystem wird das transmittierte Licht nun auf eine Photokathode fokussiert und proportional zur Lichtintensität freie Elektronen aus dieser ausgelöst. Die Elektronen passieren ein Gitter aus Elektroden, wodurch sie in Richtung der optischen Achse beschleunigt werden. Folgend durchlaufen sie einen orthogonal zur Spaltachse angeordneten Plattenkondensator, dessen elektrisches Feld durch eine von einem externen Trigger ausgelöste Spannungsrampe zeitlich variiert wird. Durch den daraus resultierenden zeitabhängigen Ablenkungswinkel passieren die Elektronen die im Aufbau folgende Mikrokanalplatte in unterschiedlichen transversalen Abständen von der optischen Achse. Dort wird der Elektronenstrom vervielfacht, ehe er auf einem Phosphorschirm Phosphoreszenz erzeugt, welche mit einer CCD-Kamera aufgenommen wird [23, 98]. Die vertikale Ausdehnung der Bildaufnahme (640 Pixel) entspricht einer variablen Messzeit deren Dauer durch Wahl der Spannungsamplitude der Rampe ausgewählt werden kann. Bei dem in dieser Arbeit verwendeten Streak-Kamera-System (Hersteller: Hamamatsu, Typ: C10910) können so die Zeitfenster $\Delta t = \{50, 20, 10, 5, 2, 1, 0.5, 0.2, 0.1\}$ ns mit einer zeitlichen Auflösung von $\delta t \simeq 0.01 \cdot \Delta t$ eingestellt werden.

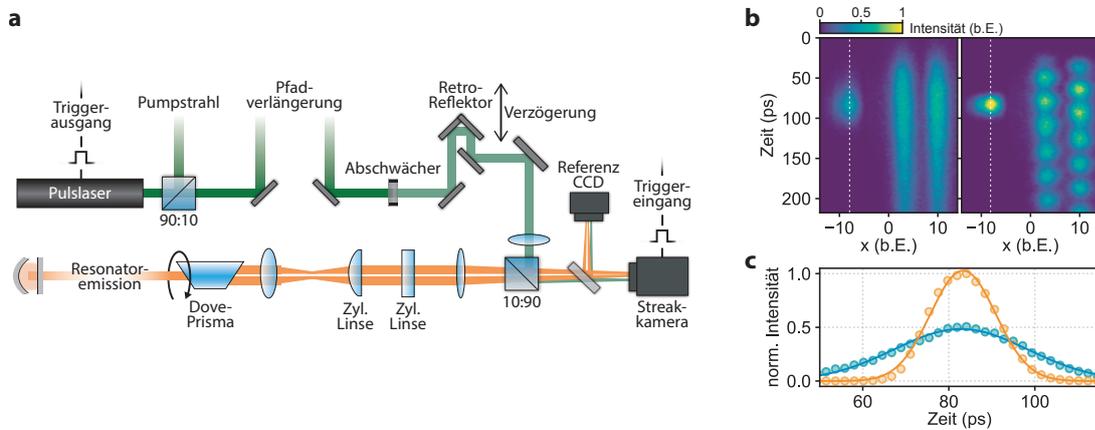


Abbildung 5.1 Apparativer Aufbau zur Beobachtung der Resonatoremission und Photonendynamik mit Pikosekundaauflösung – **a**, Vereinfachte Darstellung des experimentellen Aufbaus. Die mit dem Pulslaserstrahl angeregte Resonatoremission wird mit einem Dove-Prisma orthogonal zur optischen Achse örtlich gedreht und mit einem Linsensystem bestehend aus einer bikonvexen Linse und zwei senkrecht zu einander angeordneten Zylinderlinsen orthogonal zum Streak-Kamera-Spalt verbreitert und anschließend mit einer bikonvexen Linse mit verändertem Seitenverhältnis auf diesen abgebildet. Gleichzeitig wird über einen Strahlteiler ein Teil des gepulsten Pumpstrahlstrahls auf den Spalt fokussiert. Dieser durchläuft zuvor einen Abschwächer und einen in der Länge durch einen Retro-Reflektor anpassbaren variablen Pfad. Die Abbildung auf den Streak-Kamera-Spalt kann durch einen klappbaren Spiegel auf einer Referenz-CCD-Kamera ohne Spalteingang beobachtet werden. **b**, Streak-Kamera-Beispielaufnahme des Laserreferenzpulses und der Resonatoremission links unkorrigiert und rechts korrigiert auf zeitliche Schwankungen des Pulslasertriggers. **c**, Zeitliche Profile der Pulslaseremission vor (blau) und nach der Korrektur (orange), mit angepasster Normalverteilung (durchgezogene Linien).

Im Experiment wird mit diesem System die Resonatoremission zeitlich und räumlich, wenn auch nur eindimensional, untersucht. Die Fluoreszenz wird durch die gepulste Molekülanregung im Resonator mit Hilfe eines Pulslasersystems (Hersteller: Ekspla, Typ: PL2230-SH), welches Lichtpulse mit der Wellenlänge 532 nm und Dauer von 20(2) ps mit einstellbarer Wiederholrate von 1-100 Hz emittiert, erzeugt. Die Resonatoremission passiert nach der Kollimation durch ein Objektiv (vgl. Abs. 4.1) ein Dove-Prisma, mit dem sie in beliebigen Winkeln um die optische Achse und somit relativ zum Spalt der Streak-Kamera rotiert werden kann. Damit lässt sich im Experiment die zu untersuchende Achse der zweidimensionalen Emission mit dem Streak-Kamera-Eintrittsspalt überlagern. Nun passiert der Strahl ein Linsensystem in dem zwei orthogonal zueinander angeordnete Zylinderlinsen jeweils ein Teleskop mit einer vorangestellten Sammellinse bilden. Der Strahl verlässt dieses System kollimiert und ausschließlich senkrecht zum Streak-Kamera-Spalt verbreitert. Dies sorgt dafür, dass die anschließende Abbildung mit einer Sammellinse auf der vertikalen Achse verkleinert und die Intensität, welche den Spalt passiert, erhöht wird. Um die Resonatoremission nun mit der Streak-Kamera zeitlich aufgelöst aufzunehmen, muss die Spannungsrampe dieser zum richtigen Zeitpunkt getriggert werden. Da die Resonatoremission zeitlich dem Pumpstrahl folgt, wird das Triggerausgangssignal des Pulslasers als Auslöser verwendet und zuvor durch einen Pulsgenerator relativ dazu verzögert. Bei richtiger Einstellung der Verzögerung lässt sich so die Fluoreszenzemission auf der Streak-Kamera-

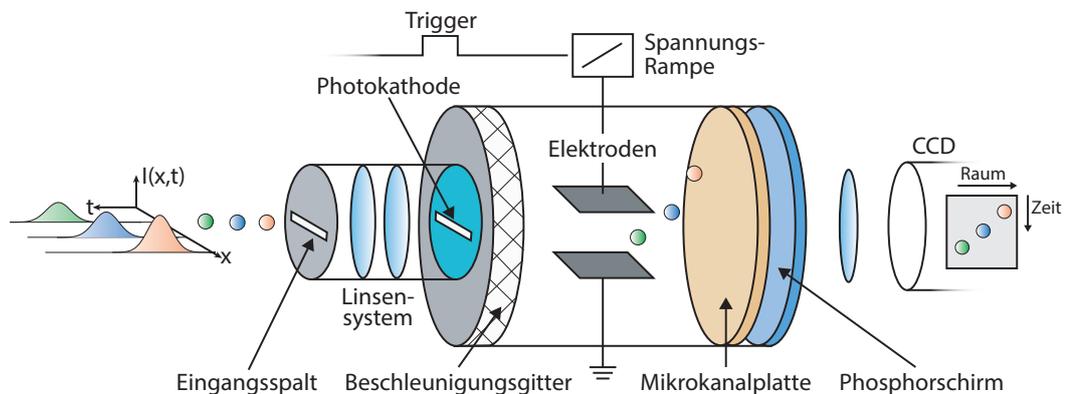


Abbildung 5.2 Schematischer Aufbau und Funktionsprinzip einer Streak-Kamera nach [98] – Zeit- und ortsabhängige Lichtpulse mit Intensität $I(x, t)$ passieren einen Eingangsspalt und werden nach der Abbildung auf eine Photokathode in Elektronen umgewandelt. Diese werden auf der optischen Achse beschleunigt und durchlaufen einen Plattenkondensator mit zeitlich veränderlicher Spannungsrampe. Daraufhin werden sie in einer Mikrokanalplatte vervielfacht und treffen auf einen Phosphorschirm. Die Phosphoreszenz wird mit einer CCD-Kamera detektiert.

Aufnahme beobachten. Der Triggerzeitpunkt schwankt laut Hersteller weniger als 24 ps zwischen Pulsen. Durch die geringe Quanteneffizienz von $\sim 1.5\%$ der Streak-Kamera setzen sich Messungen typischerweise aus mehreren tausend Einzelaufnahmen zusammen. Die zuvor erwähnte Triggerschwankung (engl. *jitter*) führt bei einfacher Integration der Aufnahmen zu einer ausgewaschenen Zeitentwicklung. Zur Behebung dieser Problematik wird ein deutlich abgeschwächter Teil des Pumpulses, wie in Abb. 5.1a dargestellt, als zeitliche und optische Referenz über einen Strahlteiler mit auf den Spalt der Streak-Kamera abgebildet. Um sicherzustellen, dass die Laseremission im eingestellten Zeitfenster des Streak-Kamera-Systems zu beobachten ist, wird die Laufzeit des Pulses durch Anpassung einer variablen Verzögerungsstrecke mit Hilfe eines auf einer Schiene verschiebbaren Retroreflektors eingestellt. So wird sichergestellt, dass in jeder Einzelaufnahme sowohl Resonatoremmission als auch Referenzpuls zu beobachten sind. Das Funktionsprinzip der daraus resultierenden Korrektur der Messung lässt sich anhand eines Messbeispiels nachvollziehen.

In Abb. 5.1b ist links eine typische über 10.000 Einzelrealisierungen integrierte Streak-Kamera-Messung dargestellt, dabei wurde die Kamera im Photonenzählmodus bei einer Experimentwiederholrate von 100 Hz synchron zur PulsLaserrate betrieben. Im linken Bereich des Spalts ist der Referenzstrahl des PulsLasers und rechts daneben die Resonatoremmission aus einer gepumpten Doppelmulde abgebildet worden. Um den Effekt des von Puls zu Puls zeitlich variierenden Triggers zu korrigieren wird in jeder Einzelmessung der zeitliche Schwerpunkt der Intensität des Referenzpulses und seine Abweichung zur ersten Realisierung bestimmt und die Zeiten der Photonendetektion dieser Aufnahme um diese Zeit verschoben. Die Integration aller korrigierten Detektionsereignisse dieser Messung sind in Abb. 5.1b rechts dargestellt. In der Doppelmuldenemission lässt sich nun eine zuvor nicht erkennbare Oszillation der Intensität erkennen. Weiterhin hat sich die Dauer des Referenzpulses, wie im in Abb. 5.1c dargestellten zeitlichen Profil zu sehen, deutlich von $\Delta t_{\text{Total}} = 36.7(5)$ ps auf $\Delta t_{\text{Puls}} = 17.9(2)$ ps reduziert. Da sich die integrierte Länge des Referenzsignals aus der Faltung

des Laserpulses mit der normalverteilten zeitlichen Schwankung des Kameratriggers ergibt, lässt sich nach $\Delta t_{\text{Total}} = (\Delta t_{\text{Puls}} + \Delta t_{\text{Trig}})^{1/2}$ [98] die zeitliche Halbwertsbreite des Triggerzeitpunktes zu $\Delta t_{\text{Trig}} = 32.0(5)$ ps bestimmen. Die zeitliche Breite der Verteilung des Triggerzeitpunktes wird vom Hersteller mit $\Delta t_{\text{Trig,Lit}} < 24$ ps deutlich kleiner beziffert als experimentell bestimmt. Diese Diskrepanz ist nicht verwunderlich, da dieser Wert sich allein auf den Triggerausgang des Lasers bezieht und die im Aufbau folgende Elektronik mitberücksichtigt werden muss. Aus der gemessenen totalen (gefalteten) Länge des Referenzpulses lässt sich schließen, dass die Aufnahme selbst beim kleinsten wählbaren Zeitfenster der Streak-Kamera von $100 \text{ ps} > \Delta t_{\text{Total}}$ korrigiert werden kann.

5.2 | Kohärente Dynamik im Doppelmuldenpotential

Um die Tunneldynamik im Doppelmuldenpotential zu untersuchen, wird ein kohärentes Wellenpaket in einer der Mulden präpariert und dessen Zeitentwicklung mit der Streak-Kamera analysiert. In früheren Experimenten im aus gekrümmten Spiegeln geformten Mikroresonator [23, 24] erfolgte die Erzeugung eines solchen Wellenpakets als Überlagerung harmonischer Oszillatormoden durch die örtlich selektive Anregung der Farbstoffmoleküle mit einem Puls laser hoher Intensität. Dabei konnte die räumliche Oszillation des Wellenpaketes mit der Fallenfrequenz des harmonischen Potentials beobachtet werden. Gleichermäßen soll in Experimenten im Doppelmuldenpotential ein Wellenpaket als Superposition des symmetrischen und anti-symmetrischen Zustands erzeugt werden, um so die Tunneldynamik zu untersuchen. Idealisiert wird dabei rein der ungestörte Eigenzustand ψ_1 einer der Mulden zum Zeitpunkt $t = 0$ angeregt. Aus Gl. 2.68 folgt, dass dieser Zustand in Abhängigkeit der Verstimmung $\Delta\omega$ als Superposition der Eigenzustände ψ_{\pm} des gekoppelten Systems beschrieben werden kann:

$$\psi_1 = \sin(\vartheta/2)\psi_+ + \cos(\vartheta/2)\psi_- = \psi(t_0), \quad \tan \vartheta = 2J/\Delta\omega \quad (5.1)$$

Dabei bezeichnet ϑ wie zuvor den Mischungswinkel. Bei verschwindender Verstimmung vereinfacht sich dieser Ausdruck zu:

$$\psi_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi_+ + \psi_-) = \psi(t_0) \quad \text{mit} \quad \vartheta = \pi/2. \quad (5.2)$$

Allgemein lässt sich mit dem Hamiltonoperator \mathcal{H} der Zustand ψ zeitentwickeln. Mit den Eigenenergien E_{\pm} gilt dann für die Zeitentwicklung des Zustandes:

$$\begin{aligned} \psi(t) &= \exp(-i\mathcal{H}t/\hbar) \psi(t_0) \\ &= \sin(\vartheta/2) \exp(-iE_+t/\hbar) \psi_+ + \cos(\vartheta/2) \exp(-iE_-t/\hbar) \psi_- \end{aligned} \quad (5.3)$$

Nun kann die zeitliche Evolution der relativen Besetzungen der Mulden $N_{1,2}$ durch Projektion des Zustandes $\psi(t)$ auf die Eigenzustände $\psi_{1,2}$ des ungekoppelten Systems wie folgt bestimmt werden:

$$N_i(t) = |\langle \psi(t) | \psi_i \rangle|^2, \quad N_2(t) = 1 - N_1(t). \quad (5.4)$$

Für die angenommene ausschließliche Besetzung der ersten Mulde zum Zeitpunkt t_0 und den in Gl. 2.70 bestimmten Eigenenergien ergibt sich somit

$$N_1(t) = \frac{\Delta\omega^2}{4J^2 + \Delta\omega^2} + \frac{4J^2}{4J^2 + \Delta\omega^2} \cos\left(\sqrt{J^2 + (\Delta\omega/2)^2}t\right)^2 \propto \cos(2J't). \quad (5.5)$$

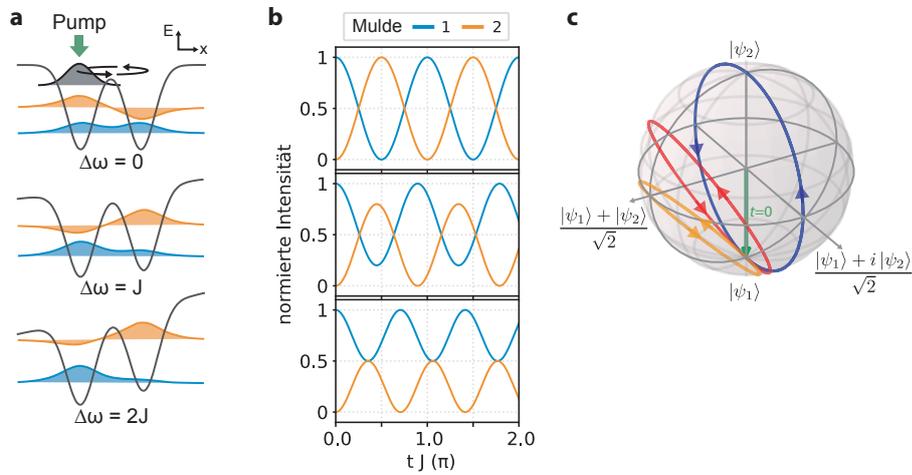


Abbildung 5.3 Theoretisch erwartete Tunneldynamik im verstimmten Doppelmuldenpotential – **a**, Schematische Darstellung der aus der angegebenen Verstimmung $\Delta\omega$ resultierenden Eigenzustände im Doppelmulden. **b**, Entsprechende zeitlich variierende Besetzung in beiden Mulden bei initialer Anregung eines Wellenpaketes in der linken Hälfte des Doppelmulden-systems mit Tunnelkopplung $\hbar J$. **c**, Repräsentation der zeitlichen Zustandsentwicklung auf einer Bloch-Kugel bei den in **a** gegebenen Verstimmungen.

Daraus lässt sich schließen, dass die relative Besetzung der Mulden mit der zweifachen effektiven Tunnelrate $J' = \sqrt{J^2 + (\Delta\omega/2)^2}$, üblicherweise auch Rabi-Frequenz genannt, oszilliert. Wie in Abb. 5.5b in drei beispielhaften Zeitspuren dargestellt, erhöht sich diese mit steigender Verstimmung $\Delta\omega$, während sich die Amplitude der Oszillation reduziert. Diese Reduktion des Oszillationskontrastes ist als direkte Folge der ungleichförmigen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Eigenzustände in den Mulden und der daraus resultierenden unausgeglichene Mischung ($\vartheta \neq \pi/2$) des Anfangszustandes zu interpretieren und wird in folgenden Messungen untersucht. Die Dynamik des im Anfangszustand ψ_1 präparierten Wellenpaketes lässt sich ebenfalls als Qubit oder Zwei-Niveau-System auf der Blochkugel betrachten. Wie in Abb. 5.5c zu sehen kann dabei die Zeitentwicklung bei verschiedenen Verstimmungen über die veränderten Orbits auf der Kugeloberfläche und die damit einhergehende Reduktion der Amplitude der Rabi-Oszillationen nachvollzogen werden.

5.2.1 | Resonante Oszillationen im Doppelmuldenpotential

Zunächst wird die zeitliche Dynamik in einer annähernd resonanten Doppelmulde untersucht und nachvollzogen. Frühere Messungen zu diesem System mit ähnlichem experimentellen Aufbau zeigten bei einseitiger Anregung die zu erwartende oszillatorische Dynamik des erzeugten kohärenten Wellenpakets. Bei diesen Messungen handelte es sich um eine Machbarkeitsstudie mit dem Ausblick auf in Zukunft folgende Experimente. Dabei war neben der Tunneldynamik zwischen den beiden Mulden eine Auslöschung und Wiederkehr der Photonenpopulation mit einer phasenverschobenen Oszillation zu beobachten [29]. Dieses Verhalten, welches sich mit den gegebenen experimentellen Parametern theoretisch nicht beschreiben ließ, konnte im Rahmen dieser Arbeit zunächst aufgelöst werden. Durch die Benutzung von Farbfiltern wurde dabei nachgewiesen, dass es sich um zwei unabhängig von einander oszillierende longitudinale Moden mit zeitlicher Verzögerung zueinander handelt. Bei den

im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Messungen wurde stets überprüft, dass im zu beobachtenden System bei einer Abschneidewellenlänge von $\lambda_{\text{abs}} = 586 \text{ nm}$ nur eine longitudinale Mode bei $q = 9$ besetzt wird.

Exemplarisch sind Streak-Kamera-Aufnahmen der Tunneldynamik in einer Doppelmulde mit zwei verschiedenen gewählten Zeitfenstern in Teilabb. 5.4a dargestellt. Die Oszillation der Muldenbesetzungen mit einer Frequenz von $2\pi \times 24.3(1) \text{ GHz}$ ($\cong 2J'$) wird in beiden Aufnahmen deutlich, wobei das 500 ps-Zeitfenster die kontrastreiche Auflösung der Oszillation ermöglicht und das breitere 1 ns-Fenster den verlustbedingten zeitlichen Verfall der Gesamtbesetzung zeigt. Dieser Verlauf ist ebenfalls in Abb. 5.4b zu sehen. Durch Anpassung ergibt sich hier eine Zerfallskonstante von $\tau = 189(3) \text{ ps}$. Abbildung c zeigt ferner die Simulation der Besetzung mit Hilfe eines Ratengleichungsmodells [99]. Dabei wird die zeitlich variierende Besetzung jeder Mulde und die Anregung in ihren getrennten Molekülreservoirs berechnet. Mit den experimentellen Parametern ergibt sich somit ein zeitlich ähnlicher Verlauf wie er experimentell beobachtet wird. Dabei ist der steile zeitliche Anstieg der Gesamtbesetzung und die schon währenddessen stattfindende Tunneloszillation zwischen den beiden Mulden wiederzuerkennen. Der relative Zeitpunkt maximaler Emission wird dabei durch die Pumprate eingestellt (vgl. [100]). Der exponentielle Abfall, bedingt durch isotrope Strahlungsverluste und Spiegeltransmission, wird ebenfalls gut wiedergegeben. Die Entwicklung der Gesamtphotonenzahl kann als Einhüllende der Tunneldynamik betrachtet werden. Normiert man die Besetzung der einzelnen Mulden auf diese, so kann das System mit der zuvor ausgearbeiteten zeitlichen Entwicklung eines kohärenten Wellenpaketes beschrieben werden. Es sei angemerkt, dass in diesen Messungen die Gesamtphotonenzahl im Resonator deutlich höher als in den vorherigen Kapiteln beschriebenen Experimenten ist ($> 1 \times 10^6$) und stimulierte Prozesse das Emissionsgeschehen deutlich dominieren (vgl. [24]). Thermalisierungsprozesse scheinen eine untergeordnete Rolle zu spielen, denn eine zunehmende Besetzung des Grundzustandes würde sich, wie in vorherigen Mikroresonator-Experimenten im harmonischen Fallenpotential beobachtet, durch die Dekohärenz des Wellenpaketes und der damit einhergehenden Dämpfung der Oszillationen äußern [24]. In jüngeren Arbeiten zu gekoppelten Mulden konnte dieses Phänomen ebenfalls beobachtet werden und wurde einem Thermalisierungsprozess zugeschrieben [101]. Es sei allerdings angemerkt, dass diese Untersuchung bei großen Spiegelabständen von $30 \mu\text{m}$ ($q \sim 70$) durchgeführt wurde. Da das Photonengas in diesem Fall nicht mehr als zwei-dimensional betrachtet werden kann, ist ein direkter Vergleich zu den Messungen dieser Arbeit schwierig.

Wie gut das vereinfachte Modell eines kohärenten Wellenpaketes die hier beobachtete Dynamik beschreibt, wird im nächsten Abschnitt bei der Untersuchung einer verstimzten Doppelmulde deutlich. Dabei wird auch eine Methode zur Bestimmung der zeitlichen Auflösung aufgeführt, deren Limitierung sich auch in den in Abb. 5.4d dargestellten Beispielmessungen in Doppelmulden variierender Tunnelrate durch die Reduktion des Oszillationskontrastes bemerkbar macht. Diese gezeigten Messungen geben einen Überblick über die realisierbaren Tunnelraten. Erneute Untersuchungen der Abhängigkeit der Tunnelrate von Barrierehöhe und -breite wie sie bereits in vorherigen Arbeiten mit anderen Methoden untersucht wurden [29, 67], werden im Rahmen dieser Arbeit nicht vollzogen.

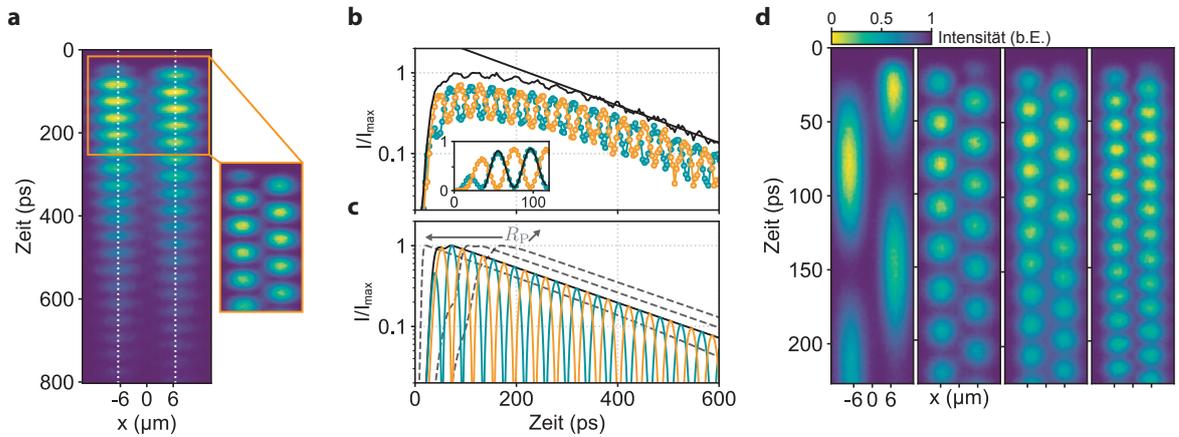


Abbildung 5.4 Streak-Kamera Messungen der zeitlichen Besetzungsdynamik eines annähernd resonanten Doppelmuldenpotentials bei einseitiger Pumpanregung – **a,b**, Beispielhafte Messung der Tunneldynamik in einem Doppelmuldenpotential in verschiedenen Zeitfenstern der Streak-Kamera. Die Anpassung einer Exponentialfunktion an die Gesamtintensität (schwarz) ermöglicht die Bestimmung der Abfallszeit. **c**, Numerisch berechneter Intensitätsverlauf beider Töpfe mit den zuvor bestimmten Parametern der Tunnelrate und des Zerfalls. Die Pumprate R_P , experimentell nicht zugänglich, ist dem experimentellen Verlauf angepasst. **d**, Weitere beispielhafte Messungen der Tunneldynamik mit bestimmten Tunnelraten $J = \{4.1(1), 17.6(1), 24.4(1), 30.1(1)\}$ GHz.

5.2.2 | Oszillationen im verstimmtten Doppelmuldenpotential

In diesem Abschnitt wird die Tunneldynamik im Doppelmuldenpotential bei variabler Verstimmung beobachtet. Der Puls laser wird auf eine Mulde eines ausgewählten Resonatorpotentials mit Muldenabstand $d \approx 10 \mu\text{m}$ fokussiert (Strahldurchmesser $\sim 8 \mu\text{m}$) und ein kohärentes Wellenpaket im ungestörten Muldeneigenzustand erzeugt ($q = 10$, $\lambda_{\text{co}} = 586 \text{ nm}$). Die zeitliche Entwicklung wird bei variabler über die anliegende Piezospannung U_P kontrollierbare Spiegelverkipfung entlang der Potentialachse beobachtet. Die dadurch eingestellte Verstimmung der Mulden zueinander und die beobachtbaren Oszillationsraten werden untersucht und mit theoretischen Voraussagen verglichen. Dabei wird angenommen, dass für die Verstimmung in Abhängigkeit des Spiegelverkipfungswinkels α annähernd der folgende lineare Zusammenhang mit der Proportionalitätskonstanten κ gilt (vgl. Gl. 2.45):

$$\Delta\omega = \Delta V/\hbar = \frac{4\pi cn}{\lambda_c^2 q} \cdot \Delta h = \frac{4\pi cn}{\lambda_c^2 q} \kappa_\alpha U_P d = \kappa U_P. \quad (5.6)$$

Dabei beschreibt $\Delta h \approx \alpha d \approx \kappa_\alpha U_P d$ die Differenz der Resonatorlängen an den Orten beider Muldenzentren in Abhängigkeit der spiegel-spezifischen Spannungs-Winkel-Übersetzung κ_α .

In Abb. 5.5a sind exemplarisch Streak-Kamera-Aufnahmen zu drei verschiedenen Spiegelverkipfungen dargestellt. Die daraus bestimmte zeitlich variierende relative Besetzung ist in Abb. 5.5b zu sehen. Dabei wurde jeweils eine Cosinus-Funktion an die Daten angepasst um die Oszillationsfrequenz und somit die effektive Tunnelrate J' zu bestimmen. Für die Beispielmessungen ergeben sich so die Werte $J' = 2\pi \times \{12.02(1), 12.82(3), 14.69(2)\}$ GHz. In Abb. 5.5c ist J' als Funktion der angelegten

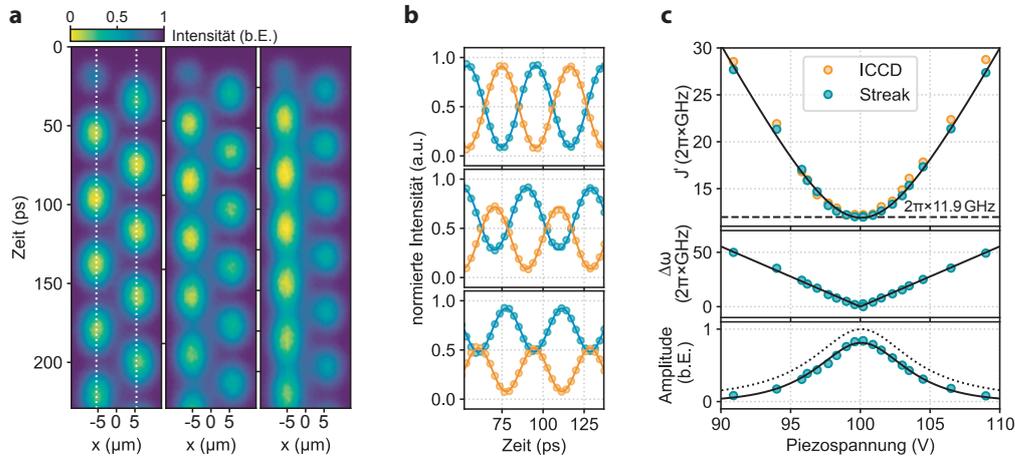


Abbildung 5.5 Messungen zur Tunnelndynamik in einer Doppelmulde in Abhängigkeit der Muldenverstimmung – Experimentelle Streak-Kamera-Aufnahmen **(a)** und daraus bestimmte zeitliche Profile **(b)** der Rabi-Oszillationen in einem Doppelmuldenpotential mit einer gemessenen Tunnelrate von $J = 2\pi \times 11.9$ GHz. In den drei dargestellten Messbeispielen wurden die durch Resonatorspiegelverkipfung eingestellten Muldenverstimmungen zu $\Delta\omega = \{0.26, 0.79, 1.45\} J$ bestimmt. **c**, In Streak-Kamera-Messungen aus der Tunnelndynamik und aus dem Spektrum bestimmte effektive Tunnelraten J' (oben), die Verstimmung (mittig) und die relative Oszillationsamplitude (unten) als Funktion der auf den Piezo angelegten Spannung. Eingezeichnet ist zudem eine Anpassung für die effektive Tunnelrate und die daraus folgende theoretische Vorhersage für die Verstimmung. Der daraus resultierende theoretische spannungsabhängige Verlauf der Oszillationsamplitude (gestrichelte Linie) sowie einer durch Anpassung der zeitlichen Auflösung korrigierte Verlauf (durchgezogene Linie) sind eingezeichnet.

Piezospaltung U_P aufgetragen. Diese zeigt, wie zu erwarten, eine sehr gute Übereinstimmung mit den ebenfalls dargestellten, aus der spektralen Aufspaltung der Zustände $\Delta E_{\pm}/\hbar$, bestimmten Werten für die effektive Tunnelrate $J' = \Delta E_{\pm}/(2\hbar)$ (vgl. Abs 4.2). Mit der in Gl. 5.6 aufgestellten Annahme lässt sich die effektive Tunnelrate mit

$$J'(U_P) = \sqrt{J^2 + (\kappa/2 \cdot (U_P - U_{P,0}))^2} \quad (5.7)$$

in Abhängigkeit der Piezospaltung beschreiben. Dabei wurde mit $U_{P,0}$ eine additive Spannungskonstante angenommen, bei welcher die Mulden auf Resonanz sind. Wie anhand der in Abb. 5.5c dargestellten Anpassung zu sehen, wird der Verlauf der Messdaten durch diese Funktion sehr gut beschrieben. Aus der Anpassung lässt sich die Tunnelkopplung des Doppelmuldenystems zu $\hbar J = \hbar \times 11.9(2)$ GHz bestimmen. Weiterhin gilt für die Proportionalitätskonstante $\kappa_{\text{exp}} = 5.54(4)$ GHz/V. Sie weist eine geringe Abweichung vom mit Hilfe der Angaben des Herstellers berechenbaren Wertes von $\kappa_{\text{lit}} = 5.21(3)$ GHz/V auf [102]. Ein möglicher Grund für diese Abweichung könnten langsame (im Experiment oft zu beobachtende) über die Messzeit stattfindende Verkipfungen des gegenüberliegenden Resonatorspiegels sein, welche die Verstimmung in gleicher Weise beeinflussen. Der lineare Zusammenhang zwischen Piezospaltung und Verstimmung ist im mittleren Teil von Abb. 5.5c zu sehen. Dabei wurde $\Delta\omega$ aus der zuvor bestimmten Tunnelkopplung und der effektiven Tunnelrate berechnet. Der gezeigte Piezospaltungsbereich von 90–110 V entspricht hier einem Höhenunterschied $\Delta h = 7.2$ nm. Mit der kleinsten gemessenen Verstimmung von etwa

0.7 GHz ergibt sich somit für den minimal bestimmten Höhenunterschied $\Delta h_{\min} = 0.4 \text{ \AA}$, welcher die longitudinale Auflösung der interferometrischen Vermessungsmethode leicht übersteigt. Im untersten Teil der Abbildung ist weiterhin die im Experiment bestimmte sowie die aus Verstimmung und Tunnelrate zu erwartende Amplitude der Besetzungszustände $A = J^2/J'^2$ nach Gl. 5.5 dargestellt. Dabei übersteigt die theoretische Erwartung die experimentellen Daten im gesamten Messbereich. Dies ist der zeitlichen Auflösung geschuldet, welche sich interessanterweise mit dem durchgeführten Experiment wie folgt hervorragend bestimmen lässt. Numerisch wird eine limitierte Auflösung über die Faltung der cosinusförmigen Oszillationen mit einem Gaußprofil mit der Standardabweichung σ simuliert. Dabei wird die Reduktion der Amplitude als Funktion der Oszillationsfrequenz bestimmt. Der über diese Faktoren korrigierte Amplitudenverlauf wird nun den experimentellen Daten durch die Anpassung der angenommenen zeitlichen Auflösung der verwendeten Streak-Kamera angeglichen, wie in der Abbildung dargestellt. Dabei ergibt sich ein Wert von $\sigma_{\text{res}} = 4.33 \text{ ps}$. Eine entsprechende Begrenzung würde sich durch die limitierter Spaltbreite (Abbildung) sowie eine imperfekte Jitter-Korrektur erklären lassen. Es sei anzumerken, dass spontane Emissionsprozesse sowie die mögliche simultane Pumpulsanregung der zweiten Mulde den Kontrast der Oszillationen ebenfalls reduzieren können.

5.3 | Photonendynamik im Dreifachmuldenpotential

Der nächste natürliche Schritt hin zu ausgedehnten, gekoppelten Gitterstrukturen ist ein System aus drei Gitterplätzen, welches im Folgenden erstmals für Photonengase realisiert und untersucht wird. Ähnlich zur gekoppelten Doppelmulde lässt sich der Hamiltonoperator für ein gekoppeltes Dreifachmuldensystem aufstellen:

$$\mathcal{H} = \hbar \begin{pmatrix} 0 & -J_{12} & -J_{13} \\ -J_{12} & \Delta\omega_2 & -J_{23} \\ -J_{13} & -J_{23} & \Delta\omega_3 \end{pmatrix} \quad (5.8)$$

Dabei bezeichnet J_{ij} die Tunnelkopplung zwischen den Gitterplätzen mit Index i und j und $\Delta\omega_i$ die relative Verstimmung zur ersten Mulde. Im folgenden Abschnitt wird die zeitliche Evolution eines kohärent angeregten Wellenpakets in einer Dreifachmulde in linearer (offener) und geschlossener Konfiguration behandelt.

5.3.1 | Dreifachmuldenpotential in linearer Anordnung

Zunächst wird die in Abbildung 5.6a dargestellte lineare Muldenkonfiguration behandelt. Hier wird die Tunnelkopplung zwischen den äußeren Töpfen durch die höhere örtliche Distanz als verschwindend gering ($J_{13} \approx 0$) und die Kopplung direkt benachbarter Mulden uniform angenommen ($J_{12} = J_{23} = J$). Im resonanten Fall ($\Delta\omega_2 = \Delta\omega_3 = 0$) ergeben sich die dargestellten Eigenzustände:

$$\psi_- = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ \sqrt{2} \\ 1 \end{pmatrix}, \psi_0 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \psi_+ = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -\sqrt{2} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (5.9)$$

mit den entsprechenden Eigenenergien:

$$E_- = -\sqrt{2}\hbar J, E_0 = 0, E_+ = \sqrt{2}\hbar J \quad (5.10)$$

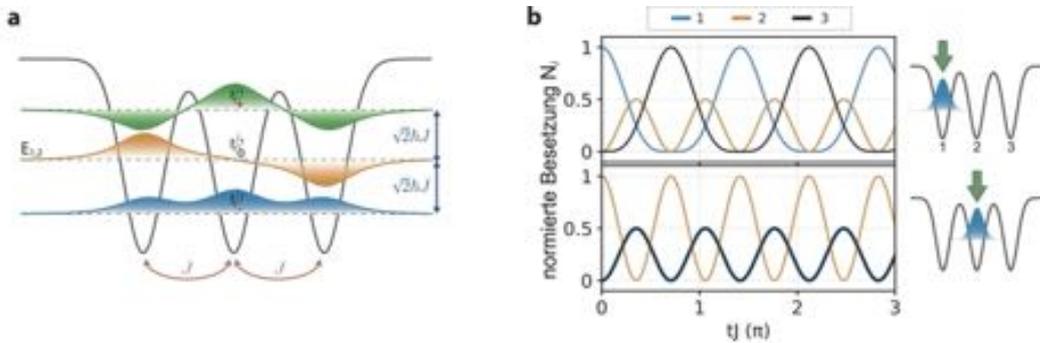


Abbildung 5.6 Erwartete Wellenpaketdynamik im Dreifachmuldenpotential – **a**, Schema eines resonanten Dreifachmuldenpotentials, bei dem benachbarte Mulden durch eine Tunnelrate J gekoppelt sind. Die neue Basis der Eigenzustände des gekoppelten Systems ψ_- , ψ_0 und ψ_+ stellen eine Mischung der ungestörten gaußförmigen Wellenfunktionen der einzelnen Mulden dar. Die Eigenenergien betragen $\pm\sqrt{2}\hbar J$ und 0 relativ zur ungestörten Grundzustandsenergie $E_{1,2,3}$ der Mulden. **b**, Zeitliche Entwicklung der auf die Gesamtphotonenzahl normierten Muldenbesetzungen N_i bei linker oder mittlerer Anregung eines kohärenten Wellenpakets zum Zeitpunkt $t = 0$.

Die ungestörten Eigenzustände ψ_i lassen sich in der neuen Basis wie folgt ausdrücken:

$$\psi_{1/3} = (\psi_+ + \psi_- + / - \sqrt{2}\psi_0)/2, \quad \psi_2 = (\psi_+ - \psi_-)/\sqrt{2} \quad (5.11)$$

Es fällt auf, dass der ungestörte Eigenzustand der mittleren Mulde ψ_2 ohne Anteile des neuen Eigenzustandes ψ_0 beschrieben wird. Im Experiment wird nun ähnlich wie im Doppelmulden die zeitliche Entwicklung der Muldenpopulation für variierte initiale Anregung durch den Puls laser untersucht. Durch das selektive Pumpen der ersten Mulde wird somit ein Wellenpaket mit $\psi(t_0) = \psi_1$ präpariert. Wie in Abschnitt 2.3 lassen sich durch Zeitentwicklung des Anfangszustandes die relativen Muldenbesetzungen zum Zeitpunkt t wie folgt bestimmen:

$$N_1(t) = \cos(Jt/\sqrt{2})^4, \quad N_2(t) = \sin(\sqrt{2}Jt)^2/2, \quad N_3(t) = \sin(Jt/\sqrt{2})^4. \quad (5.12)$$

Die zeitliche Entwicklung ist in Abbildung 5.6b dargestellt. Es lässt sich einfach interpretieren, dass die Photonen mit der Frequenz $J/\sqrt{2}$ zwischen den äußeren Mulden kohärent hin und her oszillieren und dabei die mittlere Mulde passieren. Die Besetzung der mittleren Mulde variiert somit mit der zu erwartenden doppelten Frequenz $\sqrt{2}J$. Bei initialer Anregung des Wellenpaketes im mittleren Topf $\psi(t_0) = \psi_2$, ergibt sich ein deutlich anderes Bild. Hier gilt:

$$N_1(t) = N_3(t) = \sin(\sqrt{2}Jt)^2/2 = \left[1 - \cos\left(2\sqrt{2}Jt\right)\right]/4$$

$$N_2(t) = \cos(\sqrt{2}Jt)^2 = \left[1 + \cos\left(2\sqrt{2}Jt\right)\right]/4 = \left[1 - \cos\left(2\sqrt{2}Jt + \pi\right)\right]/4 \quad (5.13)$$

Photonen fließen somit von der inneren aus gleichzeitig in die äußeren Mulden. Die Besetzung der äußeren Mulden oszilliert somit um π phasenverschoben Innen und Außen mit der gleichen Frequenz von $2\sqrt{2}J$ (vgl. Abb. 5.6b). Dies symbolisiert eine Art Streckschwingung (engl. *breathing mode*).

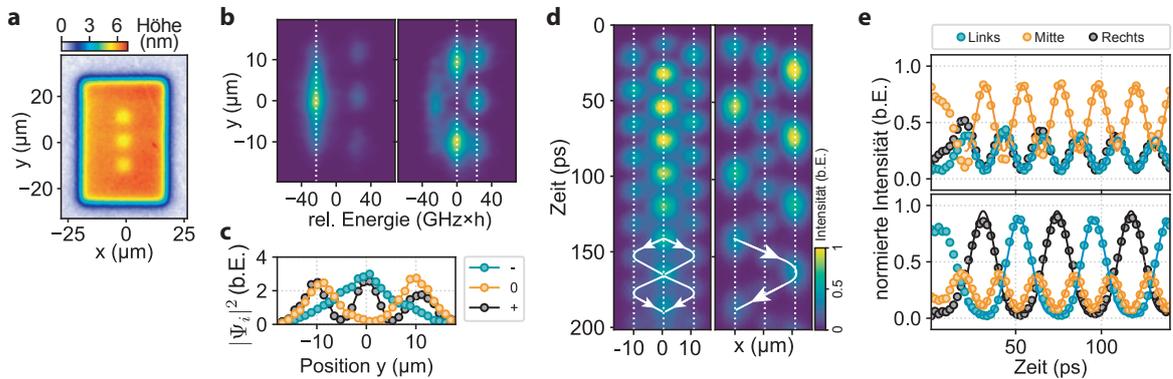


Abbildung 5.7 Experimentell beobachtete Modenbesetzung und zeitliche Entwicklung nach Zustandsinitialisierung in innerer oder äußerer Mulde im Dreifachmuldenpotential – **a**, Höhenprofil der untersuchten Dreifachmuldenstruktur in linearer Anordnung auf der Oberfläche des Resonatorspiegels. **b**, Mit der ICCD-Kamera gemessenes Spektrum der Resonatoremission aus dem Dreifachmulden bei Positionierung des Pumpstrahls auf der zentralen (links) und der oberen Mulde (rechts) nahe der Resonanz. **c**, Daraus bestimmte örtliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Moden ψ_+ , ψ_0 und ψ_- . **d**, Den Spektren zugeordnete Streak-Kamera-Aufnahmen der Dreifachmuldenemission. Weiße Pfeile deuten jeweils die Trajektorie des Wellenpakets an. **e**, Aus den Aufnahmen bestimmter zeitlicher Verlauf der relativen Muldenbesetzung mit jeweiliger Anpassung von Cosinusfunktionen zweiter und vierter Ordnung (durchgezogene Linien).

Die oben diskutierten Fälle der örtlich selektiven Anregung eines Wellenpaketes werden nun experimentell in einem Dreifachmuldenpotential untersucht. Der Abstand der Mulden liegt dabei bei $\sim 7 \mu\text{m}$, wie im in Abb. 5.7a dargestellten Höhenprofil zu sehen. Abbildung 5.7b zeigt das Spektrum der Emission bei der Ausrichtung des Pumpstrahls auf die Mulde im Zentrum (links) und Außen (rechts). Zu sehen sind die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der drei Eigenmoden ψ_- , ψ_0 und ψ_+ des gekoppelten Systems mit den innerhalb ihrer Fehlergrenzen äquidistanten energetischen Abständen von $\Delta E_{-,0} = h \times 22.9(6) \text{ GHz}$ und $\Delta E_{0,+} = h \times 22.7(5) \text{ GHz}$. Neben dieser gleichförmigen Aufspaltung bestätigt auch die örtliche Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung entlang der Potentialachse die Präparation des Dreifachmulden nahe der Resonanz, da die in Abb. 5.7c gezeigten vertikalen Profile der Moden mit der theoretischen Erwartung übereinstimmen (Abb. 5.6). Betrachtet man nun die zeitliche Entwicklung der Muldenbesetzung und die daraus bestimmten zeitlichen, auf die Gesamtphotonenzahl normierten Profile in den Abbildungen 5.7d,e, so lassen sich für die zwei gewählten Pumppositionen Unterschiede feststellen. Bei zentraler Anregung kann ein kohärenter Photonfluss aus der Mitte nach Außen und zurück, wie durch die weißen Pfeile angedeutet, beobachtet werden. Die äußeren Besetzungen oszillieren dabei ohne Phasenverschub zueinander. Die Anpassung von Cosinus-Funktionen nach Gl. 5.13 ergibt für die Oszillationsfrequenzen $\omega = 2\pi \times 45.4(6) \text{ GHz}$, in sehr guter Übereinstimmung mit der spektralen Aufspaltung der Zustände ψ_+ und ψ_- . Folglich lässt sich ebenfalls die (effektive) Tunnelrate zu $\omega/(2\sqrt{2}) = 16.1(2) \text{ GHz}$ bestimmen. Im Falle der äußeren Anregung eines Wellenpakets in der links außen liegenden Mulde ist die Oszillation von der linken zur rechten Mulde zu erkennen. Dabei durchläuft das Wellenpaket immer wieder die mittlere Mulde. Die angepassten Funktionen in Abb. 5.7e sind nach Gl. 5.12 gewählt. Wie daraus zu erwarten, oszilliert die Besetzung der äußeren Mulden um π phasenversetzt mit der Frequenz $\omega_a = 2\pi \times 11.5(5) \text{ GHz}$ und die mittige Besetzung mit der doppelten Frequenz $\omega_i = 2\pi \times 23.0(4) \text{ GHz}$. Weiterhin stimmt die in dieser

Pumpstrahl-Anordnung gemessene Tunnelrate $\sqrt{2}\omega_a = 16.3(7)$ GHz erwartungsgemäß mit der zuvor bestimmten überein. Aus diesen Messungen lässt sich schließen, dass das experimentelle System mit der Theorie sehr gut beschrieben wird. Die präsentierten Experimente stellen eine Möglichkeit zur Untersuchung der Kopplungsgrößen in eindimensionalen Gittern über die spektrale Analyse hinaus dar.

5.3.2 | Dreifachmuldenpotential in geschlossener Anordnung

Die Mikrostrukturpotentiale erlauben die Erzeugung komplizierterer Gitteranordnungen über ein-dimensionale Ketten hinaus. Das minimalistischste zweidimensionale Gitter ist das Dreifachmuldenpotential in ‘Delta’ oder ‘Dreiecks’-Anordnung. Dabei sind alle Mulden über eine nichtverschwindende Tunnelkopplung periodisch miteinander verbunden (geschlossen), d.h. nun gilt $J_{ij} \neq 0$. Vereinfacht wird der resonante Fall ($\Delta\omega_2 = \Delta\omega_3 = 0$) bei einheitlicher Tunnelkopplung ($J_{ij} = J$) betrachtet. Die Eigenvektoren lauten nun

$$\psi_- = \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad \psi_{+,1} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad \psi_{+,2} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

mit den Eigenenergien:

$$E_- = -2\hbar J, \quad E_{+,1} = \hbar J, \quad E_{+,2} = \hbar J. \quad (5.15)$$

Die beiden höherenergetischen Moden $\psi_{+,1,2}$ sind entartet und die Grundmode des Systems ist über alle Mulden delokalisiert. Experimentell wird erneut eine Mulde einzeln gepumpt. Um die Dynamik des Systems zu betrachten, kann zunächst der ungestörte Eigenzustand der ersten Mulde in der neuen Basis aufgestellt werden

$$\psi_1 = \frac{1}{\sqrt{3}}\psi_- - \frac{\sqrt{2}}{3}(\psi_{+,1} + \psi_{+,2}). \quad (5.16)$$

Für die zeitliche Variation der Besetzung der Mulden ergibt sich dann

$$\begin{aligned} N_1(t) &= \frac{1}{9}[5 + 4 \cos(3Jt)], \\ N_{2,3}(t) &= \frac{1}{9}[2 - 2 \cos(3Jt)] = N_{2,3}(t) = \frac{1}{9}[2 + 2 \cos(3Jt + \pi)]. \end{aligned} \quad (5.17)$$

Ähnlich wie bei linearer Konfiguration der Mulden und zentraler Pumptankordnung ist eine Oszillation der Besetzung der anderen (äußeren) Mulden in Phase und um π phasenverschoben zur Besetzungsozillation der initial besetzten Mulde zu erwarten.

In Abb. 5.8 sind die experimentellen Beobachtungen der Photonendynamik in einem geschlossenen Dreifachmuldenpotential mit einem Muldenabstand von $\sim 10 \mu\text{m}$ (s. Abb. 5.8a), bei der Abschneidewellenlänge $\lambda = 594 \text{ nm}$ und der longitudinalen Mode $q = 10$, zusammengefasst. Dabei wurde, wie zuvor theoretisch ausgeführt, der obere Topf gepumpt und das System durch Verkippung bestmöglich auf Resonanz gebracht. Dies wird im Spektrum der Emission nachgewiesen, s. Abb. 5.8b.

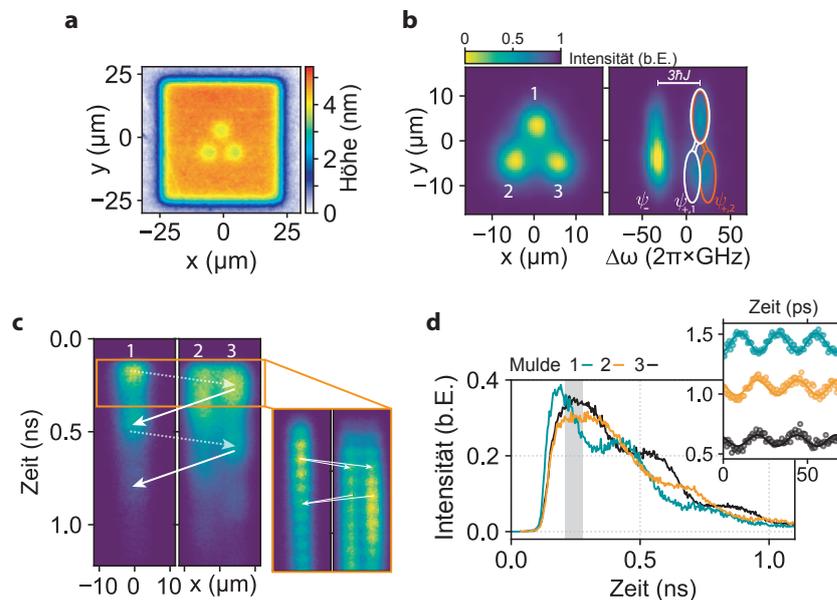


Abbildung 5.8 Messungen der Tunneldynamik im geschlossenen Dreifachmuldenpotential – **a**, Höhenprofil der untersuchten Dreifachmuldenstruktur in zweidimensionaler Anordnung auf der Oberfläche des Resonatorspiegels. **b**, Räumliche und spektrale Aufnahme der Resonatoremmission. Zur besseren Übersicht sind die identifizierten Moden der Dreifachmulde farblich markiert. **c**, Streak-Kamera-Aufnahmen des Systems bei zwei vertikal relativ zueinander verschobenen Abbildungen auf den Spalt, sodass die zeitliche Dynamik in der oberen Mulde (links) und in den unteren Mulden (rechts) bei gleichen experimentellen Parametern in zwei Messungen bestimmt werden kann. Der Bildeinschub zeigt den zeitlichen Verlauf bei höherer Streak-Kamera-Auflösung. Weiße Pfeile deuten jeweils die Trajektorie des Wellenpakets an. **d**, Zeitliche Intensitätsverläufe der Emission der Mulden. Der Bildeinschub zeigt die Dynamik bei erhöhter zeitlicher Auflösung im grau dargestellten Bereich. Die auf die Gesamtintensität normierten Spuren sind dabei zur Übersicht vertikal verschoben.

So lassen sich spektral zwei deutlich um $2\pi \times 45.6(3)$ GHz getrennte Emissionsmaxima beobachten. Die höherenergetische Emission kann wie in Gl. 5.14 beschrieben als Zusammensetzung der energetisch entarteten Moden anhand der verbleibenden örtlichen Information interpretiert werden. Für die Messung der Dynamik im zwei-dimensionalen System wird die Abbildung der Resonatoremmission bei unveränderten Parametern orthogonal über den Streak-Kamera-Spalt verschoben. Als zeitlicher Referenzpunkt zwischen den Messungen dient hier wie in zuvor beschriebenen Experimenten der Referenzpuls laserstrahl. Die Emission aus der oberen Mulde und den beiden unteren Mulden wird getrennt abgebildet. Es sei anzumerken, dass das im Aufbau befindliche Dove-Prisma auch die Rotation der Abbildung um 60° und somit die Darstellung von Muldenpaaren in Einzelmessungen ermöglichen würde. Des Weiteren wäre natürlich auch eine annähernd gleichzeitige Abbildung vertikaler Abschnitte der Emission durch vorherige Aufteilung des Strahls möglich. Diese würde allerdings eine zusätzliche Kalibrierung der Pfadlängenunterschiede voraussetzen um die zeitliche Zuordnung zu ermöglichen.

Die im Experiment beobachtete Dynamik ist in Abb. 5.8c in Streak-Kamera-Aufnahmen variierender

zeitlicher Auflösung dargestellt. Den daraus extrahierten Zeitspuren in Abb. 5.8d lässt sich die auf beiden zeitlichen Skalen stattfindende Dynamik entnehmen. So sind Oszillationen in zwei verschiedenen Größenordnungen auszumachen. Zum einen ist ein langsamer Photonenkreisstrom zu beobachten, welcher sich in Mulde 1 beginnend nach Mulde 3 und dann nach Mulde 2 bewegt, wie durch die eingezeichneten Pfeile angedeutet. Dabei oszilliert die Population der Mulden mit einer Frequenz von $\omega_{\text{Kreis}} = 2\pi \times 3.2(1)$ GHz. Auffällig ist, dass nur ein Teil der Gesamtpopulation diese Bewegung vollzieht. Bei verbesserter experimenteller Auflösung ist zum anderen eine weitere von diesem Kreisstrom eingehüllte deutlich schnellere Oszillation der Muldenbesetzungen zu beobachten. Die durch Anpassung bestimmten Frequenzen $\omega_1 = 2\pi \times 44.3(3)$ GHz, $\omega_2 = 2\pi \times 41.4(7)$ GHz und $\omega_3 = 2\pi \times 42.6(7)$ GHz unterscheiden sich minimal und liegen nahe der zuvor gemessenen spektralen Aufspaltung. Hier lässt sich erneut die Trajektorie des Wellenpakets charakterisieren. Ähnlich wie bei zentraler Pumpenanregung der linearen Dreifachmulde oszillieren Photonen von der oberen Mulde, wie in der theoretischen Einleitung vorausgesagt, annähernd simultan in die beiden anderen Mulden und zurück. Die leichten Abweichungen in den Oszillationsfrequenzen sind wahrscheinlich den potentialbedingten unterschiedlichen Tunnelraten zwischen den Mulden und leichten Verstimmungen dieser untereinander geschuldet. Aus den damit einhergehenden verschiedenen effektiven Tunnelraten resultiert vermutlich der zu beobachtende Kreisstrom. Das Experiment demonstriert die Machbarkeit von zeitlich aufgelösten Messungen der Photonendynamik in zwei-dimensionalen Gittersystemen. Die Messung von Kreisströmen ist ein wichtiger Baustein zur Beobachtung von spontan generierten Phasendefekten beim dynamischen Durchqueren von Phasenübergängen [103, 104]. Dies soll in zukünftigen Experimenten tiefergehend theoretisch und experimentell untersucht werden.

5.4 | Beobachtung der Tunneldynamik in Korrelationen zweiter Ordnung

Neben der direkten Beobachtung der zeitlichen Intensitätsentwicklung des Photonengases nach Pulsanregung ist die Analyse der zeitlichen Dynamik durch die Betrachtung der normierten Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung möglich [105]:

$$g_{\text{auto}}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t) E^*(t+\tau) E(t) E(t+\tau) \rangle}{\langle |E(t)|^2 \rangle \langle |E(t+\tau)|^2 \rangle} = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (5.18)$$

Dabei beschreiben E und I das elektrische Feld und die Intensität der zu untersuchenden (klassischen) Lichtquelle zu den Zeiten t und $t + \tau$. Mit dem Wert der Autokorrelationsfunktion bei verschwindender Verzögerung $\tau = 0$ ist eine Charakterisierung der Lichtquelle als kohärent ($g^2(0) \approx 1$), thermisch ($g^2(0) > 1$) oder als nicht-klassisch ($g^2(0) < 1$) möglich [106]. Beispielsweise konnte so in Experimenten mit Photonenkondensaten über die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung ein nicht-hermitescher Phasenübergang beobachtet werden, welcher durch den Übergang eines bi-exponentiell abfallenden zu einem oszillierenden Verlauf der Korrelationsfunktion gekennzeichnet ist [26, 107].

Für eine kohärente Lichtquelle deren Intensität mit einer einzelnen Frequenz ω oszilliert, so wie es im kohärent angeregten Doppelmuldensystem für die Emission aus den einzelnen örtlich getrennten

Mulden der Fall ist, lässt sich $g^{(2)}(\tau)$ mit der Intensität $I = (1 - 2b) \cos(\omega t)^2 + b$ nach Gl. 5.18 zu

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle [(1 - 2b) \cos(\omega t)^2 + b] [(1 - 2b) \cos(\omega(t + \tau))^2 + b] \rangle}{\langle (1 - 2b) \cos(\omega t)^2 + b \rangle^2} \quad (5.19)$$

$$= 1 + (1 - 2b)^2 \cos(2\omega\tau) \quad (5.20)$$

bestimmen. Hier wurde ein reduzierter Kontrast $1 - 2b \geq 0$ der Oszillation angenommen. Die Korrelationsfunktion oszilliert mit der gleichen Frequenz ω wie die Intensität. Bis hierhin wurde nur die Autokorrelation einer einzelnen Lichtquelle betrachtet. Allgemeiner lässt sich die Kreuzkorrelation zweier Lichtquellen mit Intensitäten $I_1(t)$ und $I_2(t)$ bestimmen. Im Falle der konstanten Phase von π zwischen den Emissionen beider Mulden zueinander und mit gleichen Oszillationsamplituden gilt dann vereinfacht ($b = 0$):

$$g_{\text{kreuz}}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_1(t) I_2(t + \tau) \rangle}{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t + \tau) \rangle} = 4 \langle \cos(\omega t)^2 \cos(\omega t + \pi + \tau)^2 \rangle \quad (5.21)$$

$$= 1 - \cos(2\omega\tau) = 1 + \cos(2\omega\tau + \pi) = g^{(2)}(\tau + \pi/(2\omega)) \quad (5.22)$$

Wie zu erwarten, oszillieren Kreuz- und Autokorrelation mit der selben Frequenz. Sie unterscheiden sich lediglich, wie die Zeitspuren der Muldenemissionen, um einen Phasenverzug von π .

Experimentell werden üblicherweise schnelle Photonenvervielfacher mit Auflösungen von bis zu 500 ps und hoher Quanteneffizienz genutzt um Intensitätsspuren zu vermessen [108]. Werden bessere Auflösungen benötigt, so werden meist nicht mehr zusammenhängende Intensitätsverläufe analysiert, sondern zeitliche Korrelationen zwischen Einzelphotonendetektionen in den experimentellen Aufbauten untersucht. Die Korrelationsfunktion lässt sich dann als

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t + \tau) \hat{a}(t) \hat{a}(t + \tau) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle \langle \hat{a}^\dagger(t + \tau) \hat{a}(t + \tau) \rangle} \quad (5.23)$$

mit den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren \hat{a}^\dagger und \hat{a} aufschreiben [109]. Anschaulich lässt sich stark vereinfacht sagen, dass Gl. 5.23 ein Maß für die Wahrscheinlichkeit der Detektion eines Photons nach der relativen Verzögerung τ zu einem zuvor beim Zeitpunkt t detektierten Ereignis angibt. Einen Aufbau zur Vermessung der Korrelationsfunktion stellt das Hanbury-Brown-Twiss (HBT) Interferometer dar [110], bei dem der Lichtstrahl einer zu untersuchenden Quelle einen Strahlteiler passiert, an dessen Ausgängen sich Detektoren befinden. Gängig ist dabei die Verwendung von *Avalanche*-Photodioden, mit denen der Aufbau Vermessungen der Korrelationsfunktion mit typischen Auflösungen von 50 ps ermöglicht [111, 112]. Streak-Kameras bieten ebenfalls die Möglichkeit der Photonendetektion mit Pikosekunden-Auflösung. Beispielsweise konnte damit in Experimenten mit Halbleiter-Mikroresonatoren die Korrelationsfunktion vermessen werden [113]. Hier zeigt sich neben der deutlich besseren Auflösung ein weiterer großer Vorteil gegenüber des HBT-Interferometers. Die Korrelationsfunktion $g^{(n)}(\tau)$ höherer Ordnungen n kann mit dem selben Aufbau und sogar in der selben Messung bestimmt werden, wobei in alternativen Experimenten bis zu n Detektoren benötigt werden [114, 115]. Auch eignen sich experimentelle Aufbauten, wie der in Abb. 5.2a dargestellte, hervorragend um die Korrelation einer (oder mehrerer) Lichtquellen nicht nur als Funktion der Zeit sondern auch ortsabhängig zu bestimmen.

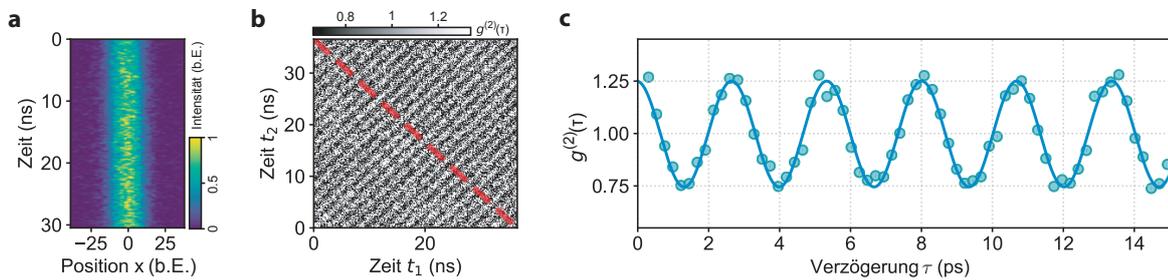


Abbildung 5.9 Korrelationsfunktion zweiter Ordnung der Emission eines He-Ne-Lasers – **a**, Aus über 10.000 Einzelmessungen integrierte Streak-Kamera-Aufnahme der Emission des He-Ne-Lasers. **b**, Aus dieser Aufnahme bestimmte Korrelationsmatrix $g^{(2)}(t_1, t_2)$ zweiter Ordnung als Funktion der Messzeiten t_1 und t_2 . **c**, Berechnete Korrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ als Funktion der Verzögerung $\tau = t_1 - t_2$ mit angepasster Cosinus-Funktion (durchgezogene Linie).

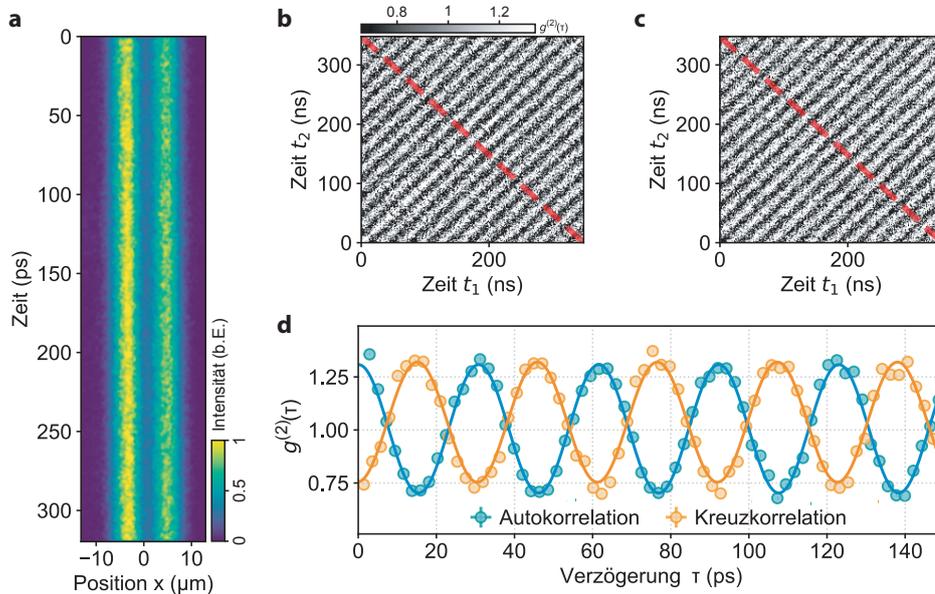


Abbildung 5.10 Korrelationsfunktion der quasi-kontinuierlich gepumpten Doppelmuldenemission – **a**, Über 10.000 Einzelmessungen integrierte Streak-Kamera-Aufnahme der Doppelmuldenemission bei quasi-kontinuierlichem Pumpstrahl ($\Delta t = 800$ ns). **b,c**, Autokorrelation der linken Mulde und Kreuzkorrelation zwischen rechter und linker Mulde $g^{(2)}(t_1, t_2)$ als Funktion der Photondetektionszeiten t_1 und t_2 . **d** Berechnete Auto- und Kreuzkorrelation als Funktion der Verzögerung τ mit angepassten Cosinus-Funktionen (durchgezogene Linien).

Zu Testzwecken wird zunächst die Autokorrelationsfunktion der Emission eines He-Ne-Lasers bei einer Wellenlänge von 594 nm vermessen. Dabei wird in jeder Einzelaufnahme der in Abb. 5.9a dargestellten integrierten Messung der zeitliche Abstand einer Photondetektion zum Zeitpunkt t_1 zu anderen Detektionen i bei $t_{2,i}$ bestimmt. In einem zwei-dimensionalen Histogramm werden diese Ereignisse an den Stellen $t_1, t_{2,i}$ eingetragen. Wird dieses Histogramm nach Gl. 5.23 mit dem Produkt

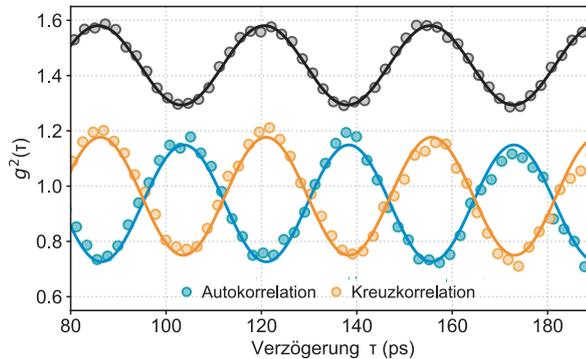


Abbildung 5.11 Kreuz- und Autokorrelationsfunktion der Doppelmuldenemission sowie Intensitätsverlauf der Emission (schwarz) der mit dem Puls laser gepumpten linken Mulde mit jeweiliger Anpassung einer Cosinus-Funktion (durchgezogene Linien). Dabei wurde der Intensitätsverlauf auf die Gesamtphotonenzahl normiert und vertikal skaliert und versetzt.

der gemittelten Anzahl von Detektionen bei t_1 und t_2 normiert, so erhält man die Korrelationsfunktion $g^{(2)}(t_1, t_2)$. Diese ist für die Emission des He-Ne-Lasers in einer Matrix in Abb. 5.9b dargestellt. Aus ihr lässt sich ferner die Korrelationsfunktion, wie üblich definiert, als Funktion der Verzögerung $\tau = t_2 - t_1$ berechnen. Der auf diese Weise bestimmte Verlauf $g^{(2)}(\tau)$ ist in Abb. 5.9c gezeigt. Er weist eine gleichmäßige Oszillation auf und weicht somit von dem für eine kohärente Lichtquelle zu erwartenden konstanten Wert $g^{(2)}(\tau) = 1$ ab. Diese Diskrepanz kann dadurch erklärt werden, dass der Laser in mehreren longitudinalen Moden läuft. Unter der Annahme, es handele sich um zwei Moden mit Frequenzen ν_1 und ν_2 , kommt es so zu einer Schwebung mit der Frequenz $\Delta\nu = |\nu_2 - \nu_1|$. Wie in Gl. 5.20 gezeigt, spiegelt sich die Oszillation der Intensität einer Lichtquelle in ihrer Korrelationsfunktion wider. Somit lässt sich durch Anpassung einer Cosinus-Funktion in Abb. 5.9c die Schwebungsfrequenz zu 374(1) MHz bestimmen. Für den spektralen Abstand benachbarter longitudinaler Moden gibt der Hersteller $\Delta\nu_{\text{Hersteller}} = 373$ MHz an. Der gemessene Messwert stimmt somit hervorragend überein und bestätigt die Annahme, dass die beobachtete Oszillation der Korrelationsfunktion aus der Schwebung zweier benachbarter Longitudinalmoden herrührt.

Auf die gleiche Weise kann nun die Doppelmuldenemission untersucht werden. Hier ist bei kleiner Verstimmung und einseitiger Anregung mit einem quasi-kontinuierlichen Pumpstrahl ($\Delta t = 800$ ns) die Besetzung beider Superpositionseigenmoden zu erwarten. Da sich diese Moden in beiden Töpfen überlagern, wird auch hier eine Schwebung proportional zur energetischen Aufspaltung der Moden mit der effektiven Tunnelrate J' erwartet. In Abb. 5.10a,b,c ist die Streak-Kamera-Aufnahme, sowie die Autokorrelation der linken Muldenemission und die Kreuzkorrelation zwischen den Mulden eines solchen Falles dargestellt ($q = 9$, $\lambda_c = 586$ nm). Hier und in den berechneten Korrelationsfunktionen in Abhängigkeit der zeitlichen Verzögerung in Abb. 5.10d lässt sich eine deutliche Oszillation ablesen und Cosinus-Funktionen an die Daten anpassen. Daraus ergibt sich für die Auto- und Kreuzkorrelation die (in ihren Fehlergrenzen) selbe Oszillationsfrequenz von $J' = 20.4(1)$ GHz mit einer Phasendifferenz der beiden Korrelationsfunktionen von $\Delta\phi = 3.19(21) = 1.02(7)\pi$, welche sehr gut mit der theoretischen Erwartung von $\Delta\phi = \pi$ übereinstimmt. Somit lässt sich allein über

die Korrelationsfunktion die effektive Tunnelrate bestimmen. Durch ein weiteres Experiment lässt sich diese Aussage bestätigen. Wie in Abs. 5.2.2 beschrieben, kann die effektive Tunnelrate in der Doppelmulde über die Anregung eines kohärenten Wellenpaketes in einem der Töpfe bestimmt werden. Dabei wird die Aufnahme stets um die Triggerschwankungen korrigiert. Ohne diese Korrektur sollte nun auch die Auto- und Kreuzkorrelationsfunktion der Muldenemission eine Möglichkeit zur Bestimmung der Tunneldynamik bieten. Über diese Methode lässt sich die effektive Tunnelrate zu $J'_{\text{Korr}} = 18.12(14)$ GHz bestimmen¹, wobei erneut eine Phasendifferenz $\Delta\phi = 3.21(31)$ zwischen Kreuz- und Autokorrelation mit geringer Abweichung von der theoretischen Erwartung messbar ist. Tatsächlich oszilliert die um die Triggerschwankungen korrigierte Intensitätsspur mit der innerhalb der Fehlergrenzen identischen Frequenz von $J_{\text{Trig}} = 18.05(3)$ GHz. Es lässt sich somit festhalten, dass selbst ohne die Abbildung des Referenz-Pumpstrahls auf der Streak-Kamera eine Bestimmung der Tunnelrate möglich ist. Allerdings sind Merkmale des zeitlichen Intensitätsverlaufs, wie der Anstieg und der exponentielle Abfall der Intensität, auf diese Weise nicht zugänglich.

Zusammenfassend lässt sich schließen, dass der gezeigte experimentelle Aufbau hervorragend zur Untersuchung der zeitlichen Dynamik der Resonatoremision geeignet ist. Bei variierender zeitlicher Auflösung einer Streak-Kamera ist so die Beobachtung der Tunneloszillationen in Doppel- und Dreifachmuldenpotentialen bei örtlich selektierbarer Pumpanregung möglich. Der experimentelle Verlauf der Mulden wird dabei sehr gut von der theoretisch hergeleiteten zeitlichen Entwicklung eines kohärenten Wellenpaketes beschrieben. So kann unter anderem die effektive Tunnelrate als Funktion der Spiegelverkipfung reproduziert werden. Durch die daraus extrahierbare Verstimmung lassen sich relative Verkipnungen in der Größenordnung von einigen microrad bestimmen. Des Weiteren ist die Untersuchung der zwei-dimensionalen Tunneldynamik in geschlossenen Dreifachmulden möglich. Darunter kann ein effektiver Kreisstrom beobachtet werden. In zukünftigen Experimenten soll in harmonisch umschlossenen kreisförmig angeordneten Gittern die Kondensatsschwelle schnell überschritten werden. Dabei wird die Entstehung von Phasendefekten erwartet [103]. Der Aufbau stellt eine Möglichkeit zur Beobachtung der potentiell aus diesen Defekten resultierenden Kreisströme dar. Eine weitere Möglichkeit zur Extraktion der zeitlichen Dynamik stellt die demonstrierte Analyse der Detektionsereignisse über die Berechnung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung dar. Dabei ist auch die Untersuchung der Tunnelraten eines Doppelmulden auch bei nicht-kohärenter Anregung möglich.

¹Es handelt sich dabei weiterhin um die selbe Doppelmulde. Allerdings hat sich die Verstimmung zwischen beiden Messungen leicht reduziert, was durch die geringere effektive Tunnelrate bemerkbar ist.

Ausblick

Im Rahmen dieser Dissertation konnte zum ersten Mal eine Bose-Einstein-Kondensation von Photonen in einen kohärenten Superpositionszustand beobachtet werden. Um die Messungen zu ermöglichen, wurde in einem ersten Schritt ein iteratives Verfahren zur laserinduzierten Mikrostrukturierung von Spiegeloberflächen weiterentwickelt, welche die Verformung der dielektrischen Schichten zu frei wählbaren Zielstrukturen mit einer geringen mittleren Abweichung von etwa 1 \AA erlaubt. So war die exakte Erstellung einer Doppelmuldenstruktur mit umgebender Krümmung von $\sim 15 \text{ cm}$ möglich. In einem farbstoffgefüllten Mikroresonatoraufbau wird diese Struktur einem planen Spiegel gegenübergestellt. Das effektiv massive Photonengas erfährt im Resonator ein Potential proportional zum transversal variierenden Resonatorspiegelabstand. Der Grundzustand im Zentrum dieser Falle wird als der symmetrische Superpositionszustand der Doppelmulde mit gleicher Aufenthaltswahrscheinlichkeit in beiden Mulden identifiziert. Im energetischen Abstand der zweifachen Tunnelkopplung folgt der anti-symmetrische Superpositionszustand der Doppelmulde. Hochaufgelöste Spektren der Resonatoremmissionen lassen die Charakterisierung weiterer, höherenergetischer Harmonischer-Oszillator-Moden zu und offenbaren eine Besetzung, welche der Bose-Einstein-Statistik folgt. Damit einhergehend ist die Kondensation in den Grundzustand über einer kritischen Photonenzahl von 8000 Photonen zu beobachten. Mit der demonstrierten makroskopischen Besetzung der auf die beiden Mulden kohärent aufgespaltenen Kondensatmode, kann der Prozess gewissermaßen als ein thermodynamischer Strahlteiler bezeichnet werden.

In weiteren Messungen konnte die Tunneldynamik in Doppelmuldenpotentialen durch die kohärente Anregung einer Überlagerung von symmetrischem und anti-symmetrischem Zustand untersucht werden. Die Vermessung der zeitlichen Entwicklung des so initialisierten Wellenpaketes konnte dabei mit einem Streak-Kamera-Aufbau erfolgen und mit der theoretischen Zeitentwicklung sehr gut beschrieben werden. Aus Kontrast und Frequenz der zu beobachtenden Oszillationen bei einseitiger Pumpanregung konnte neben der Tunnelkopplung die relative Verkippung des Resonatorspiegelpaares mit einer Auflösung von unter $10 \mu\text{rad}$ bestimmt werden. Ferner zeigten sich in ähnlichen Messungen in Dreifachmulden eine vom Ort der initialen Anregung abhängige Photonendynamik, welche in geschlossener Anordnung der Mulden die Beobachtung eines zweidimensionalen photonischen Kreisstroms ermöglichte. Des Weiteren konnte durch die Analyse der Muldenemission durch Berechnung der Auto- und Kreuzkorrelation zweiter Ordnung die Tunnelkopplung von Doppelmulden ebenfalls bestimmt werden.

Die laserinduzierte Mikrostrukturierung von Spiegeloberflächen wird aktuell in dem Spin-Off-Projekt *Midel Photonics* der Universität Bonn zur industriellen Anwendung vorbereitet. Dabei wird das Verfahren erweitert, um damit diffraktive optische Elemente zur Formung von Hochleistungslaserstrahlen herzustellen. Zukünftige technische Aufbauten zu dieser Methodik können ferner die Möglichkeit der Spiegelverformung ohne die zusätzliche Beschichtung einer absorptiven Schicht untersuchen. Dabei soll allein die Absorption eines UV-Lasers in den dielektrischen Schichten selbst zur Wölbung der Spiegelfläche führen [116]. Neben des reduzierten technischen und finanziellen Aufwands zur Beschichtung, würden ebenfalls Absorptionsverluste des durch die dielektrischen Schichten transmittierten Lichts reduziert.

In Zukunft sollen mit Hilfe der Mikrostrukturierungstechnik tiefere und vielfältigere Potentiale kreiert werden können. Dabei ist die konsistente Formung von Gitterbarrieren und Potentialtiefen von höchster Wichtigkeit. Neben resonanten zweidimensionalen Muldengeometrien könnten so auch variable Gitteranordnungen wie das SSH-Modell realisiert werden [117]. Sollte es nicht möglich sein den benötigten Grad an Höhengauflösung zu erreichen, so kann durch die ortsselektive Erwärmung eines der Farbstofflösung zugegebenen Polymers punktuell der lokale Brechungsindex verändert werden, um Fehlstellen der Mikrostruktur auszugleichen [28, 29, 57, 118, 119]. Die Ergebnisse dieser Arbeit implizieren die mögliche Kondensation in komplexere Grundzustände der bereitgestellten Potentialgeometrien, welche im Gegensatz zu atomaren Experimenten während der Thermalisierung und Kondensation unverändert bleiben. Auch die in atomaren Experimenten recht aufwändige Erzeugung von Kastenpotentialen [120, 121] ist so durch diese Strukturierungsmethode im farbstoffgefüllten Mikroresonator leichter zugänglich und erlaubte in aktuellen Untersuchungen die Beobachtung eines homogenen Photonengases [37, 95, 122].

Der gezeigte Aufbau zur Vermessung der zeitlichen Dynamik von Photonenkondensaten in gekoppelten Gittergeometrien und die Beobachtung von photonischen Kreisströmen birgt die Möglichkeit der Untersuchung von Kibble-Zurek-artigen Mechanismen [103, 104], wie sie bereits bei atomaren Bose-Einstein-Kondensaten beobachtet werden konnten [123]. Diese äußern sich durch die Entstehung von örtlich distinkten Bereichen unterschiedlicher Phase beim Übergang des thermischen Gases in ein Kondensat. Die Größe dieser Domänen, und somit die Anzahl der daraus resultierenden Vortizes, hängt dabei deutlich von der zeitlichen Dauer, in welcher das System durch den Phasenübergang getrieben wird, ab. Anders als bei atomaren Gasen, bei denen dieser Prozess vorwiegend über die Kühlrate gesteuert wird, könnte bei einem thermischen Photonengas durch schnelle Erhöhung der Pumprate die Kondensatschwelle rapide überstiegen werden. Dabei wird erwartet, dass die Phasenfluktuationen Kreisströme induzieren, welche durch eine hinreichend hohe zeitliche Auflösung der Messapparaturen sichtbar gemacht werden könnten. Dabei könnte der Streak-Kamera-Aufbau zur zwei-dimensionalen Aufnahme erweitert werden (vgl. [124]) oder die Resonatoremision aus Ring- oder im Kreis angeordneten tunnelgekoppelten Muldenpotentialen könnte mit einer ICCD-Kamera sehr kleiner Gatezeit zweidimensional interferometrisch untersucht werden.

Durch die Erzeugung vielseitiger Potentialgeometrien ergibt sich auch die Möglichkeit einen wandelbaren Quantensimulator mit Photonen-Kondensaten zu realisieren. Für die Umsetzung bedarf es in zukünftigen Experimenten allerdings einer variabel einstellbaren Photon-Photon-Wechselwirkung

[27]. Die Herausforderung hierbei ist, dass übliche nichtlineare Kerr-Medien lediglich eine begrenzte Kerr-Nichtlinearität aufweisen [125]. Eine vielversprechende Alternative stellt die mögliche Verwendung von kaskadierten Nichtlinearitäten zweiter Ordnung dar, womit in einem doppelresonanten Resonatoraufbau eine starke effektive Kerr-Wechselwirkung realisierbar erscheint.

Literaturverzeichnis

- [1] I. Bloch, J. Dalibard und W. Zwerger, *Many-body physics with ultracold gases*, Rev. Mod. Phys. **80**, 885 (2008).
- [2] 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).
- [3] K. B. Davis, M.-O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. Kurn und W. Ketterle, *Bose-Einstein condensation in a gas of sodium atoms*, Phys. Rev. Lett. **75**, 3969 (1995).
- [4] A. Einstein, *Quantentheorie des einatomigen idealen Gases - Zweite Abhandlung*, Sitzber. Kgl. Preuss. Akad. Wiss. 3–10 (1925).
- [5] S. N. Bose, *Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese*, Z. Phys. **26** (1924).
- [6] T. H. Maiman et al., *Stimulated optical radiation in ruby*, Nature **187**, 493 (1960).
- [7] P. D. Lett, R. N. Watts, C. I. Westbrook, W. D. Phillips, P. L. Gould und H. J. Metcalf, *Observation of atoms laser cooled below the Doppler limit*, Phys. Rev. Lett. **61**, 169 (1988).
- [8] J. Denschlag, J. E. Simsarian, D. L. Feder, C. W. Clark, L. A. Collins, J. Cubizolles, L. Deng, E. W. Hagley, K. Helmerson, W. P. Reinhardt et al., *Generating solitons by phase engineering of a Bose-Einstein condensate*, Science **287**, 97 (2000).
- [9] T. Weber, J. Herbig, M. Mark, H.-C. Nägerl und R. Grimm, *Bose-Einstein condensation of cesium*, Science **299**, 232 (2003).
- [10] C. C. Bradley, C. Sackett und R. Hulet, *Bose-Einstein condensation of lithium: Observation of limited condensate number*, Phys. Rev. Lett. **78**, 985 (1997).
- [11] D. G. Fried, T. C. Killian, L. Willmann, D. Landhuis, S. C. Moss, D. Kleppner und T. J. Greytak, *Bose-Einstein condensation of atomic hydrogen*, Phys. Rev. Lett. **81**, 3811 (1998).
- [12] J. Ulitzsch, D. Babik, R. Roell und M. Weitz, *Bose-Einstein condensation of erbium atoms in a quasioleostatic optical dipole trap*, Phys. Rev. A **95**, 043614 (2017).
- [13] T. Fukuhara, S. Sugawa und Y. Takahashi, *Bose-Einstein condensation of an ytterbium isotope*, Phys. Rev. A **76**, 051604 (2007).
- [14] E. Bolda, R. Chiao und W. Zurek, *Dissipative optical flow in a nonlinear Fabry-Pérot cavity*, Phys. Rev. Lett. **86**, 416 (2001).
- [15] R. Y. Chiao und J. Boyce, *Bogoliubov dispersion relation and the possibility of superfluidity for weakly interacting photons in a two-dimensional photon fluid*, Phys. Rev. A **60**, 4114 (1999).

- [16] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. Marchetti, M. Szymańska, R. André, J. Staehli et al., *Bose–Einstein condensation of exciton polaritons*, *Nature* **443**, 409 (2006).
- [17] J. Klaers, F. Vewinger und M. Weitz, *Thermalization of a two-dimensional photonic gas in a ‘white wall’ photon box*, *Nat. Phys.* **6**, 512 (2010).
- [18] Jan Klärs, *Bose-Einstein-Kondensation von paraxialem Licht*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2011).
- [19] J. Klaers, J. Schmitt, F. Vewinger und M. Weitz, *Bose–Einstein condensation of photons in an optical microcavity*, *Nature* **468**, 545 (2010).
- [20] J. Marelic und R. Nyman, *Experimental evidence for inhomogeneous pumping and energy-dependent effects in photon Bose-Einstein condensation*, *Phys. Rev. A* **91**, 033813 (2015).
- [21] S. Greveling, K. Perrier und D. van Oosten, *Density distribution of a Bose-Einstein condensate of photons in a dye-filled microcavity*, *Phys. Rev. A* **98**, 013810 (2018).
- [22] 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*, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 030401 (2014).
- [23] Julian Schmitt, *Dynamik und Korrelationen eines Bose-Einstein-Kondensats aus Licht*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [24] 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*, *Phys. Rev. A* **92**, 011602 (2015).
- [25] T. Damm, J. Schmitt, Q. Liang, D. Dung, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klaers, *Calorimetry of a Bose–Einstein-condensed photon gas*, *Nat. Commun.* **7**, 11340 (2016).
- [26] F. E. Öztürk, T. Lappe, G. Hellmann, J. Schmitt, J. Klaers, F. Vewinger, J. Kroha und M. Weitz, *Observation of a non-Hermitian phase transition in an optical quantum gas*, *Science* **372**, 88 (2021).
- [27] 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*, in *Laser Resonators, Microresonators, and Beam Control XV*, Bd. 8600, International Society for Optics and Photonics (2013).
- [28] D. Dung, C. Kurtscheid, T. Damm, J. Schmitt, F. Vewinger, M. Weitz und J. Klaers, *Variable potentials for thermalized light and coupled condensates*, *Nat. Photon.* **11**, 565 (2017).
- [29] D. Dung, *Variable Potentiale für thermisches Licht und gekoppelte Photonenkondensate*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2018).
- [30] B. T. Walker, L. C. Flatten, H. J. Hesten, F. Mintert, D. Hunger, A. A. P. Trichet, J. M. Smith und R. A. Nyman, *Driven-dissipative non-equilibrium Bose–Einstein condensation of less than ten photons*, *Nat. Phys.* **14**, 1173 (2018).
- [31] C. Kurtscheid, D. Dung, A. Redmann, E. Busley, J. Klaers, F. Vewinger, J. Schmitt und M. Weitz, *Realizing arbitrary trapping potentials for light via direct laser writing of mirror surface profiles*, *Europhys. Lett.* **130**, 54001 (2020).
- [32] E. Svensson und V. Sears, *Neutron Scattering by 4He and 3He* , in *Progress in low temperature physics*, Bd. 11, 189–214, Elsevier (1987).
- [33] W. Nolting, *Grundkurs Theoretische Physik. 6. Statistische Physik*, Springer (2014).
- [34] C. J. Pethick und H. Smith, *Bose–Einstein condensation in dilute gases*, Cambridge university press (2008).
- [35] E. T. Whittaker und G. N. Watson, *A course of modern analysis*, Courier Dover Publications (2020).

- [36] G. L. Miller, *Riemann's hypothesis and tests for primality*, J. Comput. Syst. Sci. **13**, 300 (1976).
- [37] E. Busley et al., *Compressibility and the Equation of State of an Optical Quantum Gas in a Box*, Science **375**, 1403 (2022).
- [38] A. Einstein, *Zur Quantentheorie der Strahlung*, Phys. Z. **18**, 124 (1917).
- [39] H. Du, R.-C. A. Fuh, J. Li, L. A. Corkan und J. S. Lindsey, *PhotochemCAD \ddagger : a computer-aided design and research tool in photochemistry*, Photochem. Photobiol. **68**, 141 (1998).
- [40] E. Kennard, *On the thermodynamics of fluorescence*, Phys. Rev. **11**, 29 (1918).
- [41] B. I. Stepanov, *Universal relation between the absorption spectra and luminescence spectra of complex molecules*, in *Doklady Akademii Nauk*, Bd. 112, 839–841, Russian Academy of Sciences (1957).
- [42] R. Kubin und A. Fletcher, *Fluorescence quantum yields of some rhodamine dyes*, J. Lumin. **27**, 455 (1982).
- [43] M. Kasha, *Characterization of electronic transitions in complex molecules*, Discuss. Faraday Soc. **9**, 14 (1950).
- [44] J. R. Albani, *Structure and dynamics of macromolecules: absorption and fluorescence studies*, Elsevier (2011).
- [45] Tobias Damm, *Kalorimetrie und Phasenkorrelationen eines zweidimensionalen Photonengases*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2017).
- [46] D. A. Sawicki und R. S. Knox, *Universal relationship between optical emission and absorption of complex systems: An alternative approach*, Phys. Rev. A **54**, 4837 (1996).
- [47] J. Klaers, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger und M. Weitz, *Bose–Einstein condensation of paraxial light*, Appl. Phys. B **105**, 17 (2011).
- [48] D. McCumber, *Einstein relations connecting broadband emission and absorption spectra*, Phys. Rev. **136**, A954 (1964).
- [49] D. E. McCumber, *Einstein Relations Connecting Broadband Emission and Absorption Spectra*, Phys. Rev. **136**, A954 (1964).
- [50] N. Borisevich und V. Gruzinskii, *Study of the Excited States of the Vapors of Complex Molecules on the Basis of the Universal Relation Between Fluorescence and Absorption Spectra. I*, Opt. Spectrosc. **14**, 20 (1963).
- [51] L. Szalay, G. Singhal, E. Tombacz und L. Kozma, *Light absorption and fluorescence of highly diluted chlorophyll solutions*, Acta Phys. Hung. **34**, 341 (1973).
- [52] T. vom Hövel, *Thermalization of a two-dimensional photon gas in a quantum dot optical microcavity*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2018).
- [53] J. Schmitt, *Thermodynamik eines zweidimensionalen Photonengases im Polymerfilm*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2011).
- [54] P. Moroshkin, L. Weller, A. Saß, J. Klaers und M. Weitz, *Kennard-Stepanov relation connecting absorption and emission spectra in an atomic gas*, Phys. Rev. Lett. **113**, 063002 (2014).
- [55] T. Li, M. Choi, K. Fu und L. Lin, *Music sequence prediction with mixture hidden markov models*, in *2019 IEEE International Conference on Big Data (Big Data)*, 6128–6132, IEEE (2019).
- [56] S. Flügge, *Practical Quantum Mechanics I*, Springer (1971).
- [57] M. Vretenar, B. Kassenberg, S. Bissesar, C. Toebes und J. Klaers, *Controllable Josephson junction for photon Bose-Einstein condensates*, Phys. Rev. Res. **3**, 023167 (2021).

- [58] 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*, Bull. Chem. Soc. Jpn. **69**, 59 (1996).
- [59] M. Heskins und J. E. Guillet, *Solution properties of poly (N-isopropylacrylamide)*, J. Macromol. Sci. **2**, 1441 (1968).
- [60] C. Wu und X. Wang, *Globule-to-coil transition of a single homopolymer chain in solution*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4092 (1998).
- [61] M. Reufer, P. Diaz-Leyva, I. Lynch und F. Scheffold, *Temperature-sensitive poly (N-Isopropyl-Acrylamide) microgel particles: A light scattering study*, Eur. Phys. J. E **28**, 165 (2009).
- [62] C. Kurtscheid, *Photon Bose-Einstein Condensation and Thermo-optical Effects in Micropotentials*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [63] H. J. Hesten, R. A. Nyman und F. Mintert, *Decondensation in Nonequilibrium Photonic Condensates: When Less Is More*, Phys. Rev. Lett. **120**, 040601 (2018).
- [64] J. Klaers, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger und M. Weitz, *Statistical physics of Bose-Einstein-condensed light in a dye microcavity*, Phys. Rev. Lett. **108**, 160403 (2012).
- [65] J. Hubbard, *Electron correlations in narrow energy bands*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences **276**, 238 (1963).
- [66] B. D. Josephson, *Possible new effects in superconductive tunnelling*, Physics letters **1**, 251 (1962).
- [67] E. Busley, *Coupled Photon Condensates in a Microstructured Double Well Potential*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [68] W. Demtröder und W. Demtröder, *Elektrizität und Optik*, Bd. 2, Springer (2009).
- [69] B. P. Abbott et al., *GW150914: The Advanced LIGO Detectors in the Era of First Discoveries*, Phys. Rev. Lett. **116**, 131103 (2016).
- [70] J. V. Knuuttila, P. T. Tikka und M. M. Salomaa, *Scanning Michelson interferometer for imaging surface acoustic wave fields*, Opt. Lett. **25**, 613 (2000).
- [71] 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*, Appl. Opt. **41**, 7437 (2002).
- [72] Edmund Optics, *20X Nikon CF IC Epi Plan DI Mirau-Interferometerobjektiv Datenblatt* (2021).
- [73] C. Schilz, *Microstructuring and surface characterization of mirror surfaces for optical quantum gas confinement*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2016).
- [74] E. N. Leith und G. J. Swanson, *Achromatic interferometers for white light optical processing and holography*, Appl. Opt. **19**, 638 (1980).
- [75] Y.-S. Cheng und E. N. Leith, *Successive Fourier transformation with an achromatic interferometer*, Appl. Opt. **23**, 4029 (1984).
- [76] A. R. Klemptner, *Development of a modular interferometric microscopy system for characterization of MEMS*, Masterarbeit, Worcester Polytechnic Institute (2006).
- [77] R. Komanduri, *On material removal mechanisms in finishing of advanced ceramics and glasses*, CIRP annals **45**, 509 (1996).

- [78] A. A. Trichet, P. R. Dolan, D. M. Coles, G. M. Hughes und J. M. Smith, *Topographic control of open-access microcavities at the nanometer scale*, Opt. Express **23**, 17205 (2015).
- [79] B. T. Walker, B. J. Ash, A. A. Trichet, J. M. Smith und R. A. Nyman, *Bespoke mirror fabrication for quantum simulation with light in open-access microcavities*, Opt. Express **29**, 10800 (2021).
- [80] G. Gioia und M. Ortiz, *Delamination of compressed thin films*, Adv. Appl. Mech. **33**, 119 (1997).
- [81] F. Spaepen, *Interfaces and stresses in thin films*, Acta Mater. **48**, 31 (2000).
- [82] F. Wolf, *Microstructured Multi-Site Potentials for Quantum Gases of Light*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2021).
- [83] 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).
- [84] D. Bashir, *Thermo-optically induced microstructured potentials for photonic condensates and all-optical gates*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2015).
- [85] E. H. Stelzer, *The intermediate optical system of laser-scanning confocal microscopes*, in *Handbook of biological confocal microscopy*, 139–154, Springer (1995).
- [86] A. Redmann, *Variable Mirror Structuring for Quantum Gases of Light*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2019).
- [87] C. Wahl, *Phase Dynamics of a Statistically Flickering Photon Bose-Einstein Condensate*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2014).
- [88] Hamamatsu Photonics K.K., *Gated ICCD Camera Series* (2014).
- [89] C. Fabry, *Theorie et applications d'une nouvelle methods de spectroscopie interferentielle*, Ann. Chim. Ser. 7 **16**, 115 (1899).
- [90] R. Johansson, *Wavefunction: Python package for calculating wavefunctions for 1d and 2d potentials.*, <https://github.com/jrjohansson/wavefunction>.
- [91] C. Kurtscheid, D. Dung, E. Busley, F. Vewinger, A. Rosch und M. Weitz, *Thermally condensing photons into a coherently split state of light*, Science **366**, 894 (2019).
- [92] N. Metropolis et al., *The beginning of the Monte Carlo method*, Los Alamos Science **15**, 125 (1987).
- [93] M. Agostini, K. Altenmüller, S. Appel, V. Atroshchenko, Z. Bagdasarian, D. Basilico, G. Bellini, J. Benziger, D. Bick, G. Bonfini et al., *The Monte Carlo simulation of the Borexino detector*, Astroparticle physics **97**, 136 (2018).
- [94] M. L. Mangano, *Standard Model backgrounds to supersymmetry searches*, Eur. Phys. J. C **59**, 373 (2009).
- [95] Erik Busley, *Manuskript in Vorbereitung*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2021).
- [96] R. A. Nyman, *Absorption and Fluorescence spectra of Rhodamine 6G* (2017).
- [97] E. Busley et al., *Phase-space compression of sunlight by cooling*, Manuskript in Vorbereitung (2021).
- [98] Hamamatsu Photonics K.K., *A Guide to Streak Cameras* (2008).
- [99] T. Lappe, *Non-Markovian Dynamics of Open Bose-Einstein Condensates*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2021).
- [100] B. T. Walker, H. J. Hesten, H. S. Dhar, R. A. Nyman und F. Mintert, *Noncritical slowing down of photonic condensation*, Phys. Rev. Lett. **123**, 203602 (2019).

- [101] C. Toebes, M. Vretnar und J. Klaers, *Dispersive and dissipative coupling of photon Bose-Einstein condensates*, preprint arXiv:2110.01898 (2021).
- [102] Thorlabs, Inc., *Polaris Mirror Mount Test Data* (2021).
- [103] T. W. Kibble, *Topology of cosmic domains and strings*, J. Phys. A Math. Theor. **9**, 1387 (1976).
- [104] W. H. Zurek, *Cosmological experiments in superfluid helium?*, Nature **317**, 505 (1985).
- [105] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Clarendon Press, Oxford (1973).
- [106] P. Grünwald, *Effective second-order correlation function and single-photon detection*, New J. Phys. **21**, 093003 (2019).
- [107] F. Öztürk, *Fluctuations and dissipation in a Bose-Einstein condensed photon gas*, Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2021).
- [108] F. E. Ozturk, T. Lappe, G. Hellmann, J. Schmitt, J. Klaers, F. Vewinger, J. Kroha und M. Weitz, *Fluctuation dynamics of an open photon Bose-Einstein condensate*, Phys. Rev. A **100**, 043803 (2019).
- [109] U. Titulaer und R. Glauber, *Correlation functions for coherent fields*, Phys. Rev. **140**, B676 (1965).
- [110] R. H. Brown und R. Q. Twiss, *Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light*, Nature **177**, 27 (1956).
- [111] G. Muñoz-Matutano, D. Barrera, C. R. Fernández-Pousa, R. Chulia-Jordan, L. Seravalli, G. Trevisi, P. Frigeri, S. Sales und J. Martínez-Pastor, *All-Optical Fiber Hanbury Brown & Twiss Interferometer to study 1300 nm single photon emission of a metamorphic InAs Quantum Dot*, Sci. Rep. **6**, 27214 (2016).
- [112] Y. Shih und A. Sergienko, *Two-photon anti-correlation in a Hanbury Brown-Twiss type experiment*, Phys. Lett. A **186**, 29 (1994).
- [113] M. Aßmann, F. Veit, J.-S. Tempel, T. Berstermann, H. Stolz, M. van der Poel, J. M. Hvam und M. Bayer, *Measuring the dynamics of second-order photon correlation functions inside a pulse with picosecond time resolution*, Opt. Express **18**, 20229 (2010).
- [114] B. Morgan und L. Mandel, *Measurement of photon bunching in a thermal light beam*, Phys. Rev. Lett. **16**, 1012 (1966).
- [115] M. Aßmann, F. Veit, M. Bayer, M. van der Poel und J. M. Hvam, *Higher-Order Photon Bunching in a Semiconductor Microcavity*, Science **325**, 297 (2009).
- [116] L. Sadowski, *Ultraviolet Second Harmonic Generation in a Bow Tie Cavity* (2021).
- [117] J. K. Asbóth, L. Oroszlány und A. Pályi, *The su-schrieffer-heeger (ssh) model*, in *A Short Course on Topological Insulators*, 1–22, Springer (2016).
- [118] C. Toebes, M. Vretnar und J. Klaers, *Dispersive and dissipative coupling of photon Bose-Einstein condensates*, preprint arXiv:2110.01898 (2021).
- [119] M. Vretnar, C. Toebes und J. Klaers, *Modified Bose-Einstein condensation in an optical quantum gas*, preprint arXiv:2105.10708 (2021).
- [120] P. Christodoulou, M. Gałka, N. Dogra, R. Lopes, J. Schmitt und Z. Hadzibabic, *Observation of first and second sound in a BKT superfluid*, Nature **594**, 191 (2021).
- [121] B. Mukherjee, Z. Yan, P. B. Patel, Z. Hadzibabic, T. Yefsah, J. Struck und M. W. Zwierlein, *Homogeneous Atomic Fermi Gases*, Phys. Rev. Lett. **118**, 123401 (2017).

- [122] L. E. Miranda, *A Microcavity Apparatus for Homogeneous Photon Gases in a Box*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2021).
- [123] C. N. Weiler, T. W. Neely, D. R. Scherer, A. S. Bradley, M. J. Davis und B. P. Anderson, *Spontaneous vortices in the formation of Bose–Einstein condensates*, *Nature* **455**, 948 (2008).
- [124] H. Shiraga, N. Miyanaga, M. Heya, M. Nakasuji, Y. Aoki, H. Azechi, T. Yamanaka und K. Mima, *Ultrafast two-dimensional x-ray imaging with x-ray streak cameras for laser fusion research*, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 745 (1997).
- [125] F. König, *Nonlinear Kerr Media as a Future Platform for Interacting Photon Condensates*, Masterarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (2018).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich in jeglicher Form dabei unterstützt haben diese Arbeit zu verfassen. Hier gilt mein Dank zuallererst meinem Doktorvater Prof. Dr. Martin Weitz, der mir die Promotion in seiner Arbeitsgruppe ermöglicht hat. Prof. Dr. Stefan Linden möchte ich für die Übernahme des Korreferats danken. Ein weiterer Dank geht an die gesamte Arbeitsgruppe, welche mit ihrem angenehmen Arbeitsklima und dem durchweg freundschaftlichen Verhältnis mir stets hilfsbereit und offen für Fragen jederart zur Seite stand. Insbesondere möchte ich hier Julian Schmitt und David Dung für die hervorragende Betreuung, auch schon während meiner Masterarbeit, danken. Mein Dank gilt auch Frank Vewinger, welcher mit seinem endlos erscheinenden Wissen im Bereich Quantenoptik, jede noch so trivial erscheinende Frage ausführlich beantwortet hat und immer zu helfen wusste. Andreas Redmann wird den experimentellen Aufbau weiter fortführen und hat in unserer bisherigen Zusammenarbeit, für die ich ihm herzlich danken will, gezeigt, dass er dieser Aufgabe mehr als gewachsen ist. Ferner gilt mein Dank Erik Busley, welcher mich schon seit dem Leistungskurs Physik, während des Studiums und jetzt als Arbeitskollege begleitet hat. Danke für die unzähligen, nicht nur physikalischen, Diskussionen und lustigen sowie aufmunternden Gespräche und Hilfe jederart. Mein Dank gilt auch den Werkstätten und der Verwaltung des Instituts, ohne die diese Arbeit ebenfalls nicht möglich gewesen wäre. Zuletzt will ich all denen danken, die mir außerhalb der Arbeitsgruppe stets zur Seite standen. Ich danke meinen Eltern für die finanzielle und seelische Unterstützung während meines ganzen Studiums und darüber hinaus. Mein größter Dank geht an meine wunderbare Frau Maike, welche während der finalen Phase dieser Arbeit häufig zurückstecken musste. Danke für die selbstlose Betreuung unserer Tochter Rosa rund um die Uhr und die nie enden wollende mentale Unterstützung während des ganzen Studiums. Ohne dich hätte ich es nicht geschafft. Danke.

