



Universiteit
Antwerpen

Universiteit Antwerpen
Faculteit Wetenschappen
Departement Fysica
Academiejaar 2018-2019

FLUCTUATIES IN EEN BOSE-EINSTEIN
CONDENSAAT VAN FOTONEN IN EEN
CAVITEIT GEVULD MET KLEURVLOEISTOF

Auteur:
Stijn Van Leuven

Promotor:
Prof. Dr. Michiel Wouters

PROEFSCHRIFT INGEDIEND MET HET OOG OP
HET BEHALEN VAN DE GRAAD VAN
MASTER IN DE FYSICA

Voorwoord

Deze thesis is gemaakt in de onderzoeksgroep Theorie van Kwantumsystemen & Complexe Systemen (TQC) aan de Universiteit Antwerpen. Dit gebeurde onder toezicht van mijn promotor Prof. Dr. Michiel Wouters, wie ik ten zeerste dankbaar ben voor altijd paraat te staan om hulp te bieden, voor onmisbaar fysisch inzicht te geven en om er voor te zorgen dat deze thesis tot een goed einde is gekomen. Verder wil ik speciaal Wouter Verstraelen bedanken, wie als doctoraatstudent van Prof. Dr. Wouters mij zeer hard geholpen heeft met de vooruitgang van deze thesis. Tevens waren de discussies met Martin Weitz, Julian Schmitt en Fahri Öztürk in de Universiteit van Bonn zeer stimulerend voor deze thesis, waarvoor dank.

Tot slot uit ik nog graag mijn dank aan mijn ouders, wie mijn universitaire opleiding gefinancierd hebben. Alsook aan mijn vrienden, wie instonden voor de nodige afleiding en ontspanning.

Samenvatting

Bose-Einstein condensatie (BEC) van fotonen kan verwezenlijkt worden door het vullen van een optische caviteit met een kleurvloeistof. Normaal gezien is het vormen van een fotonisch BEC niet evident, aangezien het fotonaangetal verdwijnt als de temperatuur verlaagt: een zwarte straler zendt minder licht uit als het een lagere temperatuur heeft. Het opsluiten van de fotonen in een caviteit, en deze vullen met een kleurvloeistof zorgt ervoor dat een BEC van fotonen toch kan vormen.

De spiegels van de caviteit zijn in experimentele omstandigheden niet perfect reflecterend, waardoor er op elk ogenblik een bepaalde fractie aan fotonen verloren gaat. Om deze verliezen tegen te gaan, moeten er extra excitaties gepompt worden in de caviteit zodat het fotoncondensaat niet verdwijnt. Hierin verschilt de dynamica van het fotoncondensaat in de caviteit met dat van een condensaat in thermisch evenwicht. De geldigheid van thermodynamische relaties, namelijk de fluctuatie-dissipatiethorema's, worden onderzocht door numeriek de tijdsevolutie van het condensaat te simuleren met een 'heuristisch fasormodel'. Er wordt gevonden dat het statische fluctuatie-dissipatiethorema weinig gevoelig is aan het niet-evenwichtskarakter. Het tijdsafhankelijke fluctuatie-dissipatiethorema is aan de andere kant zeer gevoelig aan de verliezen die het systeem weg van evenwicht willen drijven.

Inhoudsopgave

1	Inleiding	5
1.1	Relevante experimentele opstelling	6
1.2	Kennard-Stepanov theorie	7
2	Dynamica van het fotoncondensaat	10
2.1	Deterministische evolutie	10
2.2	Verliezen en pompen	11
3	Statistiek van het fotoncondensaat	13
3.1	Thermodynamisch evenwicht	13
3.2	Chemische potentiaal van het fotongas	15
3.3	Kansverdeling voor het aantal fotonen	15
3.4	Intermezzo: fluctuaties van een BEC	17
3.5	Kans op nul fotonen	18
4	Heuristisch fasormodel	21
5	Foton-foton interacties	25
6	Correlaties van het fotoncondensaat	27
6.1	Fasecorrelaties	27
6.2	Dichtheids correlaties	30
7	Lineaire respons	34
7.1	Stationair fluctuatie-dissipatietheorema	34
7.1.1	Chemische potentiaal als geconjugeerde variabele	34
7.1.2	Detuning als equivalent van de chemische potentiaal	35
7.2	Tijdsafhankelijk fluctuatie-dissipatietheorema	38
7.2.1	Theoretische achtergrond	38
7.2.2	Toevoeging van extra excitaties	42
8	Conclusies	49

1 Inleiding

Een gas van deeltjes beschrijven als een hoop rondvliegende pingpongballetjes is een gedateerd idee. Om hiervan het microscopische gedrag te beschrijven is een kwantummechanische formulering nodig. De hypothese van de Broglie, geformuleerd door de Franse fysicus Louis de Broglie in 1924, zegt dat alle deeltjes een golfkarakter vertonen. Albert Einstein postuleerde eerder al dat licht - dat normaal een golfkarakter vertoont - bestaat uit deeltjes, die nu fotonen genoemd worden. De Broglie formuleerde dat de golflengte van het deeltje omgekeerd evenredig is met de impuls. Op vlak van thermische fluctuaties betekent dit dat de golflengte van de deeltjes vergroot als de temperatuur verlaagt. Zodra de temperatuur van het gas voldoende verlaagd wordt zodat de de Broglie golflengten van de verschillende deeltjes sterk overlappen, worden kwantum statistische effecten belangrijk. Als het gas bestaat uit bosonen - deeltjes met heeltallige spin (zoals fotonen) - zullen ze allemaal in de grondtoestand willen gaan zitten. Bose-Einstein condensatie (BEC) doet zich voor wanneer deze grondtoestand macroscopisch bezet wordt.

Fotonen zijn de gekwantiseerde excitaties van het elektromagnetische veld. Hoewel fotonen bosonische deeltjes zijn, is het normaal niet mogelijk dat ze een Bose-Einstein condensaat vormen. Dit komt omdat het aantal fotonen van een zwarte straler niet behouden is, maar zich aanpast aan de temperatuur. Dit zit vervat in de Stefan-Boltzmann wet die zegt dat de stralingsenergie gaat als T^4 . Lagere temperatuur betekent een lager aantal fotonen. Het verlagen van de temperatuur zal dus resulteren in een verdwijnend fotonaanbod waardoor een macroscopische bezetting van de grondtoestand dus niet mogelijk is. Om toch Bose-Einstein condensatie met fotonen te verkrijgen moet het aantal fotonen dus onafhankelijk van de temperatuur geregeld kunnen worden. Een oplossing hiervoor is de fotonen in te vangen door middel van spiegels (zie figuur 1). Als de spiegels perfect reflecterend zijn, is hun aantal in de caviteit immers behouden. Door de Einstein formule $E = mc^2$ krijgen de normaal massalozes fotonen in de caviteit ook een effectieve massa, evenredig met hun nulpuntsenergie voor hun beweging loodrecht op de spiegels. Het fotonische systeem wordt dan een tweedimensionaal systeem van massieve bosonen die kunnen bewegen in het vlak evenwijdig aan de spiegels. Hun effectieve massa is ongeveer tien grote-orde kleiner dan die van atomaire gassen waardoor de Bose-Einstein condensatie haalbaar is bij kamertemperatuur.

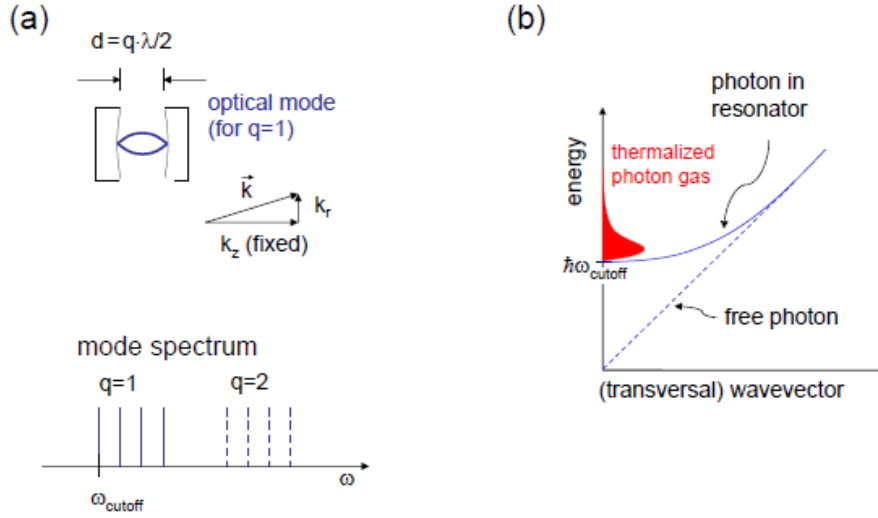
Om Bose-Einstein condensatie te kunnen verkrijgen in dit systeem moet nog één bijkomend probleem opgelost worden: in vacuüm interageren de fotonen niet met elkaar, zodat ze niet naar thermisch evenwicht evolueren, wat een voorwaarde voor Bose-Einstein condensatie is. Een oplossing hiervoor werd bedacht door Klaers en Weitz [1]; Door een optische caviteit te vullen met kleurvloeistof kan het fotongas gethermaliseerd worden. Dit gebeurt wegens herhaalde absorpties en emissies van fotonen door de kleurstofmoleculen. Verder gelijkaardig experimenteel werk wordt geleverd door [2], [3].

Aangezien de absorpties en emissies van fotonen in de kleurvloeistof kwantummechanische processen zijn [4], zal het fotonaanbod fluctueren doorheen de tijd. De fluctuaties

van het foton aantal zal in deze thesis numeriek en analytisch onderzocht worden. Verder is het in de experimentele opstelling onvermijdelijk dat er fotonen verloren gaan in de spiegels van de optische caviteit: geen enkele bestaande spiegel reflecteert 100% van het invallende licht. Om het fotoncondensaat toch in leven te houden worden er in de experimentele opstelling periodisch excitaties in het condensaat gepompt met een laser. Deze verliezen en het pompen worden analytisch en numeriek in rekening gebracht.

Verder is het theoretisch - en in de toekomst hopelijk ook experimenteel - mogelijk om (zwakke) interacties in het fotoncondensaat te introduceren door een niet-lineair optisch materiaal in de caviteit te brengen. Dit wordt geïmplementeerd als uitbreiding op de analyse van de huidige experimenten.

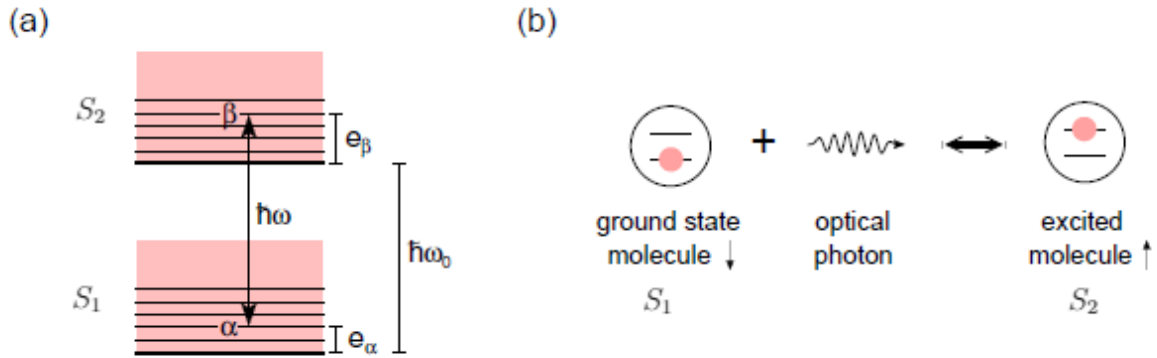
Door de gedreven-dissipatieve aard van de experimenteel gerealiseerde fotoncondensaten wordt er in principe verwacht dat de eigenschappen van het fotoncondensaat zullen afwijken van een condensaat bij thermisch evenwicht. In deze thesis zullen we bestuderen wat het effect van het niet-evenwichtskarakter is op de fluctuaties en de respons van het condensaat. Bij thermisch evenwicht zijn de fluctuaties en respons verbonden door het zogenaamde fluctuatie-dissipatietheorema [5]. Het aantal fotonen kan aangepast worden door de intensiteit van de excitatie-laser te veranderen. Wanneer de verandering traag gebeurt, kan hiermee het statische fluctuatie-dissipatietheorema geverifieerd worden. Wanneer er echter met een korte laserpuls extra excitaties geïnjecteerd worden, verkrijgt men informatie over de dynamische variant van het fluctuatie-dissipatietheorema. De numerieke simulaties hiervan die we zullen bespreken in deze thesis vormen een concreet voorstel voor verdere experimenten met fotoncondensaten die met de huidige technologie geïmplementeerd worden.



Figuur 1: (a) Optische caviteit met parabolische spiegels. De afstand tussen de spiegels is een halve golflengte van de grondtoestand. (b) Dispersierelatie van het fotongas in de caviteit (volle lijn) en van het vrije fotongas (stippellijn) [6].

2 Relevante experimentele opstelling

Het theoretische werk dat hier wordt uitgewerkt is gebaseerd op de experimentele opstelling van Klaers en Weitz [1]. Bose-Einstein condensatie wordt gerealiseerd door een optische caviteit te vullen met een kleurvloeistof. Het fotongas wordt gethermaliseerd door de herhaalde absorpties en emissies van fotonen door de kleurstofmoleculen. De afstand tussen de twee spiegels van de caviteit is van de micrometer (10^{-6}m) grootteorde, wat zorgt voor een grote frequentiespreiding tussen de verschillende longitudinale modes (figuur 1a). Omdat verder ook de spontane emissies verkiezen om enkel lage transversale modes te exciteren, wordt het fotongas effectief tweedimensionaal. De laagste transversale mode functioneert als een cut-off frequentie ω_c voor de energie van het fotongas (figuur 1b). Met deze cut-off energie komt een effectieve massa voor de fotonen overeen van $m = \hbar\omega_c/c^2$. Hier bovenop wordt een harmonische potentiaal opgelegd door de parabolische kromming van de spiegels. De spreiding van de bezette fotonfrequenties is van de orde $k_B T/\hbar$, wat bij kamertemperatuur ($\sim 1/30$ eV) veel kleiner is dan de cut-off frequentie (~ 2 eV). Hierdoor is zijn thermische excitaties vanuit de energietoestand $\hbar\omega_c$ verwaarloosbaar.



Figuur 2: (a) energiediagram van de kleurstofmoleculen met twee elektronische niveau's, opgesplits in rovibronische toestanden. (b) De overgang tussen de twee elektronische niveau's gebeurt door het opnemen van een foton.[6]

3 Kennard-Stepanov theorie

De absorpties en emissies van licht door moleculen of atomen wordt beschreven door gebruik te maken van de Einstein coëfficiënten. Deze coëfficiënten kwantificeren de overgangssnelheden geassocieerd met de verscheidene absorptie en emissie processen. De Kennard-Stepanov wet geeft een relatie tussen Einstein coëfficiënten bij thermisch evenwicht.

Hier volgt een beknopte beschrijving van Kennard-Stepanov theorie, gebaseerd op het overzicht van het fotonisch BEC door Klaers & Weitz [6]. Laat B_{12} staan voor de coëfficiënt van absorptie en B_{21} voor gestimuleerde emissie. Het relevante systeem van moleculen wordt gemodelleerd als twee elektronische niveaus S_1 en S_2 , met energiescheiding $\hbar\omega_0$ (figuur 2a). De absorptiecoëfficiënt B_{12} beschrijft de overgang $S_1 \rightarrow S_2$ en de emissiecoëfficiënt B_{21} beschrijft de overgang $S_2 \rightarrow S_1$. De twee elektronische niveaus zijn ieders opgesplitst in rovibronische subniveaus die afkomstig zijn van de rotationele en vibrationele vrijheidsgraden van de moleculen. De subniveaus worden aangeduid met ε_α en ε_β , waarbij $\alpha \in S_1$ en $\beta \in S_2$.

De rovibronische toestanden worden premanent ge(de)ëxciteerd door botsingen tussen de moleculen op een femtoseconde schaal. Herhaalde botsingen leiden vervolgens tot een thermalisatie van de rovibronische toestanden in een sub-picoseconde tijdschaal. Dit is veel sneller dan de levensduur van de elektronisch geëxciteerde toestand zelf, die eerder van de nanoseconde orde is. Als een foton geabsorbeerd wordt, zal de kleurstofmolecule het waarschijnlijkst geëxciteerd worden naar een hoog rovibronische toestand van S_2 . De herhaalde botsingen van de moleculen zorgen er vervolgens voor dat de rovibronische toestand relaxeert en de overeenkomstige energie dissipeert in het bad van moleculen. Een fluorescentie foton is dan afkomstig van een molecule dat in thermisch evenwicht is met het bad.

Doordat het bad in thermisch evenwicht is, kunnen de gekende thermodynamische relaties gebruikt worden. Dit is het opzet van de Kennard-Stepanov theorie. De kansen voor een bezetting van de rovibronische energieniveaus worden gegeven door de Boltzmann factor:

$$\begin{aligned} p_\alpha &= \frac{1}{\mathcal{Z}_\downarrow} e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{k_B T}}, \\ p_\beta &= \frac{1}{\mathcal{Z}_\uparrow} e^{-\frac{\varepsilon_\beta}{k_B T}}, \end{aligned} \tag{3.1}$$

waar \mathcal{Z}_\downarrow en \mathcal{Z}_\uparrow respectievelijk de toestandssommen zijn van de rovibronische toestanden in S_1 en S_2 :

$$\begin{aligned} \mathcal{Z}_\downarrow &= \sum_{\alpha \in S_1} e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{k_B T}}, \\ \mathcal{Z}_\uparrow &= \sum_{\beta \in S_2} e^{-\frac{\varepsilon_\beta}{k_B T}}, \end{aligned} \tag{3.2}$$

Een foton met energie $\hbar\omega$ wordt geabsorbeerd door een molecule. Wegens behoud van energie moet gelden dat (zie figuur 2a)

$$\varepsilon_\alpha + \hbar\omega = \hbar\omega_0 + \varepsilon_\beta. \tag{3.3}$$

Er wordt verondersteld dat de rovibronische toestanden gethermaliseerd zijn. Het behoud van energie levert een relatie tussen p_α en p_β :

$$p_\beta = \frac{\mathcal{Z}_\downarrow}{\mathcal{Z}_\uparrow} e^{-\frac{\Delta}{k_B T}} p_\alpha, \tag{3.4}$$

waarbij $\Delta := \hbar(\omega - \omega_0)$ de *detuning* genoemd wordt. De Einstein coëfficiënten B_{12} en B_{21} zijn gemiddelden van de overgangssnelheden tussen de rovibronische toestanden:

$$\begin{aligned} B_{12} &= \sum_{\alpha, \beta} p_\alpha B(\alpha \rightarrow \beta), \\ B_{21} &= \sum_{\alpha, \beta} p_\beta B(\beta \rightarrow \alpha), \end{aligned} \tag{3.5}$$

waarbij de Einstein coëfficiënten $B(\alpha \rightarrow \beta)$ en $B(\beta \rightarrow \alpha)$ staan voor de overgangssnelheden tussen de overeenkomstige rovibronische toestanden. De verhouding van de Einstein coëfficiënten B_{12} en B_{21} , gebruik makende van de relatie tussen de kansverdelingen, kan dan geschreven worden als

$$\begin{aligned}
\frac{B_{21}}{B_{12}} &= \frac{\sum p_\beta B(\beta \rightarrow \alpha)}{\sum p_\alpha B(\alpha \rightarrow \beta)} \\
&= \frac{Z_\downarrow e^{-\frac{\Delta}{k_B T}} \sum p_\alpha B(\alpha \rightarrow \beta)}{Z_\uparrow \sum p_\alpha B(\alpha \rightarrow \beta)} \\
&= \frac{Z_\downarrow}{Z_\uparrow} e^{-\frac{\Delta}{k_B T}},
\end{aligned} \tag{3.6}$$

waarbij in de tweede stap verondersteld werd dat de overgangssnelheden tussen de rovi-bronische toestanden symmetrisch zijn: $B(\beta \rightarrow \alpha) = B(\alpha \rightarrow \beta)$. Als verder de aanname wordt gemaakt dat $Z_\downarrow \approx Z_\uparrow$, dan wordt de Kennard-Stepanov wet

$$\boxed{\frac{B_{21}(\omega)}{B_{12}(\omega)} = e^{-\frac{\Delta}{k_B T}}} \tag{3.7}$$

De verhouding van de overgangssnelheden voldoet dus aan een Boltzmann verdeling met energie Δ . Herinner dat $\Delta = \hbar(\omega - \omega_0)$. De Boltzmann verdeling is dus deze van de fotonenergie ω , met als nulpuntsenergie ω_0 . De Einstein coëfficiënten zijn in principe afhankelijk van de fotonfrequentie ω , vanwege de frequentie-afhankelijkheid van Δ .

4 Dynamica van het fotoncondensaat

De evolutie van het fotoncondensaat wordt beschreven door drie voornaamste processen: gestimuleerde absorptie, gestimuleerde emissie en spontane emissie. De overgangssnelheden worden bepaald door de Einstein coëfficiënten. De toestandsdichtheden van het aantal ge(de)ëxciteerde moleculen en het aantal fotonen beïnvloeden de gestimuleerde processen, terwijl de spontane emissie onafhankelijk is van het aantal fotonen. De bewegingsvergelijking (ook wel kinetische vergelijking genoemd) voor de evolutie van $n(t)$ is dan [7]

$$\frac{\partial n}{\partial t} = B_{21}M_{\uparrow}(n+1) - B_{12}M_{\downarrow}n. \quad (4.1)$$

Dit is een niet-lineaire differentiaalvergelijking aangezien het aantal geëxciteerde moleculen ook evolueert doorheen de tijd. Er kan worden overgegaan naar nieuwe variabelen:

$$\begin{cases} M = M_{\uparrow} + M_{\downarrow} \\ X = M_{\uparrow} + n \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} M_{\downarrow} = M - X + n \\ M_{\uparrow} = X - n \end{cases}, \quad (4.2)$$

waarbij M het totaal aantal moleculen in het bad is en X het totaal aantal excitaties. Het totaal aantal excitaties is in principe een behouden grootte; de fotonen die erbij komen, moeten komen van geëxciteerde moleculen. De bewegingsvergelijking van de geëxciteerde moleculen is dan wegens behoud van excitaties $dM_{\uparrow} = -dn$. In functie van het aantal excitaties kan de bewegingsvergelijking van $n(t)$ geschreven worden als

$$\frac{\partial n}{\partial t} = B_{21}(X-n)(n+1) - B_{12}(M-X+n)n, \quad (4.3)$$

wat een niet-lineaire differentiaalvergelijking is in enkel $n(t)$ als het aantal excitaties behouden is. Indien de verliezen van de spiegels in rekening gebracht worden zal het aantal excitaties niet meer behouden zijn en geldt dus niet langer dat $dM_{\uparrow} = -dn$.

4.1 Deterministische evolutie

Om een idee te krijgen van de evolutie van het fotoncondensaat kan de bewegingsvergelijking opgelost worden in de limiet waarin de verandering van het aantal M_{\uparrow} moleculen verwaarloosd kan worden. Dit komt overeen met de eis dat het aantal fotonen veel kleiner is dan het aantal excitaties. In de limiet $n \ll X$ vereenvoudigt de kinetische vergelijking naar

$$\frac{\partial n}{\partial t} = B_{21}X(n+1) - B_{12}(M-X)n, \quad (4.4)$$

wat een lineaire differentiaalvergelijking is in $n(t)$. De oplossing kan dan eenvoudig gevonden worden door te integreren:

$$n(t) = \bar{n} \left[1 - \left(1 - \frac{n(0)}{\bar{n}} \right) e^{-\Gamma t} \right], \quad (4.5)$$

waarbij $n(0)$ de beginvoorwaarden bevatten, \bar{n} de oplossing is van de stationaire vergelijking $\partial n / \partial t = 0$:

$$\bar{n} = \frac{1}{\frac{B_{12}M_{\downarrow}}{B_{21}M_{\uparrow}} - 1}, \quad (4.6)$$

en Γ de relaxatieparameter is van het condensaat:

$$\Gamma = B_{12}M_{\downarrow} - B_{21}M_{\uparrow} = \frac{B_{21}M_{\uparrow}}{\bar{n}}. \quad (4.7)$$

Voor de deterministische evolutie (2.5) kunnen er zich twee gevallen voordoen met een verschillend gedrag:

- Indien $B_{21}M_{\uparrow} > B_{12}M_{\downarrow}$ dan is $\Gamma < 0$. Het aantal fotonen is dan onbegrensd en stijgt exponentieel.
- Als $B_{21}M_{\uparrow} < B_{12}M_{\downarrow}$ dan is $\Gamma > 0$. Dit betekent dat de stationaire toestand een eindig aantal fotonen bevat; het fotoncondensaat evolueert exponentieel naar de stationaire eindtoestand. Dit is het relevante regime waarin verder gewerkt zal worden.

In een praktische opstelling liggen de Einstein coëfficiënten vast, alsook het totaal aantal moleculen. In dat geval hangt het gemiddelde aantal fotonen enkel af van het aantal geëxciteerde moleculen. Dit maakt het mogelijk om \bar{n} vast te leggen door M_{\uparrow} (in benadering) vast te leggen:

$$M_{\uparrow} = \frac{B_{12}M\bar{n}}{B_{21}(\bar{n} + 1) + B_{12}\bar{n}}. \quad (4.8)$$

Dit is eigenlijk het gemiddelde aantal geëxciteerde moleculen aangezien de limiet $n \ll X$ genomen werd, wat overeenkomt met het verwaarlozen van de tijdsevolutie van M_{\uparrow} . Er kunnen hogere orde correcties worden toegevoegd door deze tijdsevolutie niet volledig te verwaarlozen.

4.2 Verliezen en pompen

In de experimentele opstelling (sec. 1.1) is het onvermijdelijk om fotonen te verliezen vanwege de imperfectie van de spiegels in de optische caviteit. Het doel is om het gemiddelde aantal excitaties toch constant te houden. Het eenvoudigste model om de verliezen

in rekening te brengen is het toevoegen van een term met een constante verliessnelheid $-\gamma n$ in de kinetische bewegingsvergelijkingen [7]. De verliessnelheid wordt gemodelleerd als evenredig zijnde met het aantal fotonen: $\gamma_n = \gamma n$. Om de verliezen tegen te gaan, moeten er evenveel excitaties gepompt worden in de kleurvloeistof als er verloren gaan, zodat het fotoncondensaat niet verdwijnt. In de praktijk is er echter enkel geweten wat het gemiddelde aantal fotonen is, niet het ogenblikkelijke aantal fotonen waarvan een fractie verloren gaat. De term die voor het pompen wordt ingevoerd is dan noodzakelijkerwijze $P = \gamma \bar{n}$ [7]. De kinetische vergelijkingen worden dan

$$\begin{aligned}\frac{\partial n}{\partial t} &= B_{21}M_{\uparrow}(n+1) - B_{12}(M - M_{\uparrow})n - \gamma n \\ \frac{\partial M_{\uparrow}}{\partial t} &= B_{12}(M - M_{\uparrow})n - B_{21}M_{\uparrow}(n+1) + \gamma \bar{n}.\end{aligned}\tag{4.9}$$

In het geval dat er niet gepompt wordt ($P = 0$), zal het fotoncondensaat na een eindige tijd verdwijnen doordat het aantal excitaties gemiddeld naar beneden gaat. Als er wel gepompt wordt, zal het gemiddelde aantal fotonen niet langer bepaald worden door (2.8), maar door de pompsnelheid P .

5 Statistiek van het fotoncondensaat

5.1 Thermodynamisch evenwicht

De evolutie van een systeem dat gekoppeld is aan een thermisch bad kan beschouwd worden als een 'random walk' doorheen de faseruimte [8]. Een random walk is een voorbeeld van een Markov proces, wat een stochastisch proces is 'zonder geheugen'. Dit betekent dat enkel de voorgaande toestand een invloed zal hebben op de volgende toestand, alle andere verleden toestanden hebben geen invloed. Bij een random walk heeft de toestand op elke positie in de faseruimte een bepaalde kans om naar een andere positie over te gaan. Deze overgang is dus enkel afhankelijk van de huidige positie en niet de voorgaande. Het fotoncondensaat kan dus beschreven worden a.d.h.v. een Markov proces.

Wat volgt is gebaseerd op de doctoraatsthesis van Schmitt [7] en het overzicht van Klaers & Weitz [6]. Laat $p_n(t)$ de kansverdeling zijn om de toestand n te vinden op tijdstip t . De toestand n van het fotongas staat voor de bezetting van de grondtoestand. Omdat fotonen bosonische deeltjes zijn, is er geen beperking op hoeveel fotonen er in elke mode kunnen zitten. De 'mastervergelijking' geeft de tijdsevolutie van de kansverdeling $p_n(t)$ voor het Markov proces:

$$\frac{dp_n(t)}{dt} = \sum_{n'} p_{n'}(t)R(n' \rightarrow n) - \sum_{n'} p_n(t)R(n \rightarrow n'). \quad (5.1)$$

waar $R(n \rightarrow n')$ staat voor de overgangssnelheid van toestand n naar n' . De mastervergelijking drukt de verandering van de kansverdeling in de faseruimte uit als een bijdrage van enerzijds een bron waaruit de toestand kan binnenvloeien en anderzijds een uitmonding waarnaar de toestand kan wegvloeien. In thermisch evenwicht moet het linkerlid van (3.1) verdwijnen, alsook is vereist dat de kansverdeling dan de Boltzmann verdeling wordt: $p_n(t \rightarrow \infty) = \exp(-E_n/k_B T)/\mathcal{Z}$. De mastervergelijking wordt dan

$$\sum_{n'} \exp(-E_{n'}/k_B T)R(n' \rightarrow n) - \sum_{n'} \exp(-E_n/k_B T)R(n \rightarrow n') = 0. \quad (5.2)$$

Dit is de stationaire vorm van de mastervergelijking. Deze vergelijking heeft een unieke oplossing, het zogenaamde 'detailed balance'.

$$\exp(-E_{n'}/k_B T)R(n' \rightarrow n) - \exp(-E_n/k_B T)R(n \rightarrow n') = 0 \quad \forall n, n' \quad (5.3)$$

waarbij elke term in de sommatie dus verdwijnt. Bij detailed balance is de stroom van toestand n naar n' even groot als die van n' naar n , voor elk paar n en n' . De detailed balance wat herschrijven levert:

$$\frac{R(n \rightarrow n')}{R(n' \rightarrow n)} = \exp(-\Delta E/k_B T) \quad \forall n, n', \quad (5.4)$$

waarbij $\Delta E = E_{n'} - E_n$ het energieverval is tussen de toestanden. Dit is eigenlijk een andere vorm van de Kennard-Stepanov wet. Vergelijking (3.4) is dus een voorwaarde waarop het Markov proces thermisch evenwicht bereikt.

Stel dat de toestand n' uit toestand n verschijnt door een absorptie van een foton, dan geldt dat $n' = n - 1$. Er verdwijnt een foton uit het condensaat, en er wordt een kleurstofmolecule geëxciteerd. De overgangssnelheid $R(n \rightarrow n')$ is dan geassocieerd met de Einstein coëfficiënt B_{12} (voor absorptie), en $R(n' \rightarrow n)$ met B_{21} (voor emissie). Noem R_n^{12} de overgangssnelheid geassocieerd met een absorptie van een foton, en R_n^{21} die van een emissie. Dan volgt uit eerste orde storingsrekening [7] dat

$$\begin{aligned} R_n^{12} &= B_{12} M_\downarrow n \\ R_n^{21} &= B_{21} M_\uparrow (n + 1), \end{aligned} \tag{5.5}$$

waar M_\uparrow en M_\downarrow respectievelijk het aantal geëxciteerde en niet-geëxciteerde moleculen zijn. De tweede term in R_n^{21} komt overeen met de overgang wegens spontane emissie; deze is onafhankelijk van het aantal fotonen. Voor de detailed balance is nodig:

$$\begin{aligned} R(n \rightarrow n') &= R_n^{12} \\ R(n' \rightarrow n) &= R_{n-1}^{21}. \end{aligned} \tag{5.6}$$

Voor de overgang $R(n \rightarrow n')$ gaat een molecule over van S_1 naar S_2 en voor de overgang $R(n' \rightarrow n)$ gaat een molecule over van S_2 naar S_1 . In het eerste geval is de grondtoestand bezet door n fotonen en in het tweede geval door $n - 1$ fotonen. Het verschil in energie tussen de twee toestanden is in het grootcanonisch ensemble $\Delta E = -(\hbar\omega - \mu)$, waarbij μ de chemische potentiaal van de fotonen is. De overgangssnelheden (3.5) en ΔE invullen in de uitdrukking (3.4) voor detailed balance levert

$$\frac{B_{12} M_\downarrow}{B_{21} M_\uparrow} = e^{\frac{\hbar\omega - \mu}{k_B T}}. \tag{5.7}$$

In thermodynamisch evenwicht moeten de overgangssnelheden voor absorptie en emissie aan elkaar gelijk zijn; er is netto geen verlies aan fotonen:

$$\begin{aligned} R_{\bar{n}}^{12} &= R_{\bar{n}}^{21} \\ \Rightarrow B_{12} M_\downarrow \bar{n} &= B_{21} M_\uparrow (\bar{n} + 1) \\ \Leftrightarrow \bar{n} &= \frac{1}{\frac{B_{12} M_\downarrow}{B_{21} M_\uparrow} - 1} \\ &= \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega - \mu}{k_B T}} - 1}. \end{aligned} \tag{5.8}$$

Het Markov proces voor thermodynamisch evenwicht geeft dus de gewenste Bose-Einstein statistiek voor het gemiddelde aantal fotonen. Dit resultaat komt tevens overeen met de stationaire oplossing van de kinetische bewegingsvergelijking (2.6).

5.2 Chemische potentiaal van het fotongas

Een gas van fotonen heeft normaal geen chemische potentiaal: fotonen kunnen ‘gratis’ gegenereerd en vernietigd worden. Voor het fotonisch condensaat in de kleurvloeistof is het verhaal echter anders. Fotonen die uit het condensaat verdwijnen doen dit omdat ze worden geabsorbeerd door de kleurstofmoleculen. Om een foton aan het condensaat toe te voegen moeten de moleculen dus energie afstaan, wat leidt tot een eindige chemische potentiaal. De Kennard-Stepanov relatie (1.7) identificeren met detailed balance (3.7), waar de chemische potentiaal werd ingevoerd levert:

$$\begin{aligned} \frac{M_{\downarrow}}{M_{\uparrow}} e^{\Delta/k_B T} &= e^{(\hbar\omega - \mu)/k_B T} \\ \Leftrightarrow \frac{M_{\downarrow}}{M_{\uparrow}} e^{\hbar(\omega - \omega_0)/k_B T} &= e^{(\hbar\omega - \mu)/k_B T} \quad (5.9) \\ \Leftrightarrow \mu &= \hbar\omega_0 + k_B T \ln \left(\frac{M_{\uparrow}}{M_{\downarrow}} \right). \end{aligned}$$

Als de nulpuntsenergie $\hbar\omega_0$ even ter zijde gezet wordt, is de chemische potentiaal van de fotonen dus het logaritme van het aantal geëxciteerde moleculen, met de temperatuur als evenredigheidsfactor.

5.3 Kansverdeling voor het aantal fotonen

De volgende behandeling wordt voorgelegd in de thesis van Schmitt [7]. Voor de studie van Bose-Einstein condensatie in deze thesis is enkel de grondtoestand van interesse. De mastervergelijking om n aantal fotonen in de grondtoestand te vinden is volgens (3.1)

$$\dot{p}_n = R_{n-1}^{21} p_{n-1} + R_{n+1}^{12} p_{n+1} - (R_n^{12} + R_n^{21}) p_n. \quad (5.10)$$

De eerste term komt overeen met een verandering van de grondtoestand naar n fotonen vanwege een emissie: $n - 1 \rightarrow n$. De tweede term staat voor een verandering van de grondtoestand naar n fotonen vanwege een absorptie: $n + 1 \rightarrow n$. De laatste twee termen zijn analoog aan de vorige termen, maar deze bevatten de bijdrage van fotonen die kunnen verdwijnen uit de toestand met n fotonen. In de stationaire toestand moet gelden dat $\dot{p}_n(\infty) = 0$. De oplossing worden genoteerd als $p_n(\infty) := P_n$:

$$0 = R_{n-1}^{21} P_{n-1} + R_{n+1}^{12} P_{n+1} - (R_n^{12} + R_n^{21}) P_n. \quad (5.11)$$



Figuur 3: Schematische voorstelling van overgangssnelheden tussen de toestanden met 0 en 1 fotonen.

Een oplossing van deze vergelijking kan bekomen worden door eerst eens te kijken naar de overgangen tussen een toestand met 0 en 1 fotonen (figuur 3). In het geval van een stationaire toestand moeten de twee overgangssnelheden gelijk zijn:

$$R_0^{21} P_0 = R_1^{12} P_1. \quad (5.12)$$

Voor de overgang tussen een toestand met 1 en 2 fotonen geldt hetzelfde:

$$R_1^{21} P_1 = R_2^{12} P_2. \quad (5.13)$$

Dit recursief invullen levert

$$\begin{aligned} P_2 &= P_1 \frac{R_1^{21}}{R_2^{12}} \\ &= P_0 \frac{R_0^{21} R_1^{21}}{R_1^{12} R_2^{12}}. \end{aligned} \quad (5.14)$$

Zo kan verder geredeneerd worden tot de algemene kans voor n fotonen bekomen wordt. Voor de algemene P_n kan dan besloten worden dat

$$P_n = P_0 \prod_{k=0}^{n-1} \frac{R_k^{21}}{R_{k+1}^{12}}. \quad (5.15)$$

Dit invullen in (3.11) geeft inderdaad een oplossing. De oplossing van de stationaire mastervergelijking wordt dan met het resultaat van storingsrekening (3.5)

$$\begin{aligned}
P_n &= P_0 \prod_{k=0}^{n-1} \frac{B_{21}}{B_{12}} \frac{(X-k)(k+1)}{(M-X+k+1)(k+1)} \\
&= P_0 \left(\frac{B_{21}}{B_{12}} \right)^n \frac{X(X-1)\dots(X-(n-1))}{(M-X+1)(M-X)\dots(M-X+n)} \\
&= P_0 \left(\frac{B_{21}}{B_{12}} \right)^n \frac{X!}{(X-n)!} \frac{(M-X)!}{(M-X+n)!}.
\end{aligned} \tag{5.16}$$

Om het fotoncondensaat de Bose-Einstein statistiek te laten volgen, moet het aantal excitaties veel groter dan het aantal gecondenseerde fotonen: $n \ll X \approx M_\uparrow$. Dit regime wordt het Bose-Einstein regime genoemd. De faculteiten kunnen dan benaderd worden als volgt:

$$\begin{aligned}
\frac{X!}{(X-n)!} &= \underbrace{X(X-1)(X-2)\dots(X-(n-1))}_{n \text{ termen, allen } \approx X} \approx X^n \approx (M_\uparrow)^n \\
\frac{(M-X+n)!}{(M-X)!} &= \underbrace{(M-X+1)(M-X)\dots(M-X+n)}_{n \text{ termen, allen } \approx M-X} \approx (M-X)^n = (M_\downarrow)^n.
\end{aligned} \tag{5.17}$$

De stationaire kansverdeling wordt dan

$$\boxed{P_n = P_0 \left(\frac{B_{21}M_\uparrow}{B_{12}M_\downarrow} \right)^n} \tag{5.18}$$

Dit is de kans om n fotonen te vinden in de grondtoestand, in het BEC regime. Met behulp van de Kennard-Stepanov wet (1.7) en de definitie van de chemische potentiaal (3.9) kan dit ook geschreven worden als

$$P_n = P_0 e^{-\beta(\Delta-\mu)n}. \tag{5.19}$$

Om de totale kans $\sum_n P_n$ te normeren op 1 moet de reeks convergeren. Dit betekent dat $B_{21}M_\uparrow < B_{12}M_\downarrow$ om een eindig aantal fotonen te verkrijgen, wat overeenkomt met het resultaat bekomen in sec. 2. De kans P_0 om nul fotonen te vinden kan bepaald worden uit de normeringseis.

5.4 Intermezzo: fluctuaties van een BEC

Het is een gekend resultaat dat de fluctuaties van een Bose-Einstein condensaat even groot zijn als de gemiddelde bezetting van de grondtoestand: $\sigma_N = \langle N \rangle$. Dit wordt hier even aangetoond. In het grootcanonisch ensemble is de kansverdeling van het aantal fotonen

$P(E\&N) = \exp\{-\beta(E - \mu N)\} / \Xi$, met Ξ de grootcanonische toestandsom:

$$\Xi = \sum_{E,N} \exp\{-\beta(E - \mu N)\}. \quad (5.20)$$

Voor het fotoncondensaat is $E = N\hbar\omega$, en reduceert de toestandsom zich tot

$$\mathcal{Z} = \sum_n p_n, \quad (5.21)$$

met $p_n = e^{-\beta(\hbar\omega - \mu)n}$. Definieer $x := \beta(\hbar\omega - \mu)$, dan kan de toestandsom geschreven worden als

$$\mathcal{Z} = \sum_n (e^{-x})^n = \frac{1}{1 - e^{-x}}. \quad (5.22)$$

Uit de toestandsom kan het gemiddelde gehaald worden:

$$\langle N \rangle = \frac{1}{\beta \mathcal{Z}} \frac{\partial \mathcal{Z}}{\partial \mu} = \frac{1}{e^x - 1}, \quad (5.23)$$

wat natuurlijk de Bose-Einstein verdeling is. Het tweede moment van de kansverdeling is

$$\langle N^2 \rangle = \frac{1}{\beta^2 \mathcal{Z}} \frac{\partial^2 \mathcal{Z}}{\partial \mu^2} = \frac{e^x + 1}{(e^x - 1)^2} = \langle N \rangle (2\langle N \rangle + 1). \quad (5.24)$$

De fluctuaties van het aantal fotonen is per definitie $\sigma_N^2 = \langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2$. Gebruik makend van (3.24) krijgen we dan voor de variantie van het aantal deeltjes

$$\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2 = \langle N \rangle (\langle N \rangle + 1) \approx \langle N \rangle^2, \quad (5.25)$$

waarbij in de laatste stap verondersteld werd dat de grondtoestand macroscopisch bezet is. De fluctuaties van de grondtoestand van het BEC zijn dus inderdaad even groot als de gemiddelde bezetting ervan.

5.5 Kans op nul fotonen

Het fotoncondensaat is onderhevig aan Bose-Einstein fluctuaties, waardoor uiteindelijk de foton dichtheid tijdelijk kan verdwijnen; alle excitaties zitten dan in de moleculen. Een fluorescentie foton dat vervolgens uitgezonden wordt, zal moeten komen van een spontane emissie aangezien de foton dichtheid nul is. Als een molecule een spontaan emissie-foton uitzendt, zal dit foton een willekeurige fase hebben die niet gecorreleerd is met de fase van het voorgaande condensaat. De fase van het fotoncondensaat is vernietigd (fase-decoherentie) en het condensaat begint met een nieuwe fase. Hierdoor is het interessant om te bepalen wat de kans is om een verdwijnende foton dichtheid te krijgen indien men

experimenteel geïnteresseerd is in langdurige fasecoherentie.

Er zal eerst uitgegaan worden van de afwezigheid van verliezen. De stationaire kansverdeling (3.18) wordt genormeerd op 1:

$$\lim_{X \rightarrow \infty} \sum_{n=0}^X P_n = 1. \quad (5.26)$$

De som over n gaat in principe tot het totaal aantal excitaties X aangezien er niet meer fotonen in het condensaat kunnen zitten dan dat er excitaties zijn. In de BEC-limiet (die reeds gebruikt werd om (3.18) te bekomen) wordt de limiet genomen die het aantal excitaties naar oneindig laat gaan. De stationaire kansverdeling (3.18) invullen levert:

$$P_0 \sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{B_{21}M_{\uparrow}}{B_{12}M_{\downarrow}} \right)^n = 1. \quad (5.27)$$

Op voorwaarde dat $B_{21}M_{\uparrow} < B_{12}M_{\downarrow}$ convergeert de reeks naar

$$\sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{B_{21}M_{\uparrow}}{B_{12}M_{\downarrow}} \right)^n = \frac{1}{1 - \frac{B_{21}M_{\uparrow}}{B_{12}M_{\downarrow}}}. \quad (5.28)$$

De kans op nul fotonen wordt dan

$$\boxed{P_0 = 1 - \frac{B_{21}M_{\uparrow}}{B_{12}M_{\downarrow}}} \quad (5.29)$$

Als de BEC-limiet niet genomen wordt, blijven de faculteiten in (3.16) staan. De sommatiereeks die dan tevoorschijn komt heeft een algemene oplossing in de vorm van een hypergeometrische functie:

$$(P_0)^{-1} = {}_2F_1 \left(1, -X; M + 1 - X; -\frac{B_{21}}{B_{12}} \right). \quad (5.30)$$

Verliezen in rekening brengen komt overeen met de substitutie $R_n^{12} \rightarrow R_n^{12} + \gamma n$: er komt een extra bijdrage die het aantal fotonen verlaagt. In de overgangssnelheden (3.5) komt dit overeen met de substitutie $M_{\downarrow} \rightarrow M_{\downarrow} + \gamma/B_{12}$. Deze substitutie doorvoeren in de eerder bekomen kans op nul fotonen zonder verliezen (3.29) levert dan in het geval van verliezen

$$P_0 = 1 - \frac{B_{21}M_{\uparrow}}{B_{12} \left(M_{\downarrow} + \frac{\gamma}{B_{12}} \right)}. \quad (5.31)$$

Alhoewel het op eerste zicht niet lijkt alsof het pompen in rekening gebracht is, is dit wel het geval. De kansverdeling (3.18) - waarop het voorgaande gebaseerd is - is enkel geldig

in de stationaire limiet. Dit betekent dat het aantal geëxciteerde moleculen M_{\uparrow} constant blijft doorheen de tijd. In het geval van verliezen is dit enkel mogelijk als er excitaties gepompt worden in het systeem om de verliezen tegen te gaan. In de afwezigheid van pompen is de kans op nul fotonen immers 1 in de stationaire limiet, aangezien alle excitatie uiteindelijk verloren gaan.

De statistiek van het aantal fotonen is inderdaad de Bose-Einstein statistiek:

$$\begin{aligned}
 \bar{n} &= \sum_{n=0}^{\infty} n P_n \\
 &= P_0 \sum_{n=0}^{\infty} n \left(\frac{B_{21} M_{\uparrow}}{B_{12} M_{\downarrow}} \right)^n \\
 &= P_0 \frac{\frac{B_{21} M_{\uparrow}}{B_{12} M_{\downarrow}}}{\left(1 - \frac{B_{21} M_{\uparrow}}{B_{12} M_{\downarrow}} \right)^2} \\
 &= \frac{1}{\frac{B_{12} M_{\downarrow}}{B_{21} M_{\uparrow}} - 1}
 \end{aligned} \tag{5.32}$$

Dit kan geïdentificeerd worden met de uitdrukking bekomen met detailed balance (3.7) om te zien dat het inderdaad de Bose-Einstein verdeling is.

6 Heuristisch fasormodel

Om het fotonaantal te simuleren doorheen de tijd wordt een heuristisch fasormodel (HFM) voorgesteld door Henry [9]. In het HFM worden de gestimuleerde emissies en absorpties deterministisch geëvolueerd, terwijl spontane emissies gebeuren via een Poisson proces en een willekeurige fase aan het fotoncondensaat geven. Een Poisson proces is toepasbaar wanneer er een constante kans is dat een gebeurtenis voorvalt binnen een bepaald tijdsinterval. In een tijdsinterval dt wordt de kans op een spontane emissie gegeven door $B_{21}M_{\uparrow}dt$, en is het Poisson proces dus van toepassing. Schrijf het fotonveld als

$$\psi(t) := \sqrt{n(t)}e^{i\theta(t)}, \quad (6.1)$$

wat gewoon de golffunctie van de foton dichtheid is: $\psi^*(t)\psi(t) = n(t)$. De foton dichtheid $n(t)$ wordt geëvolueerd met de kinetische vergelijking

$$dn = B_{21}M_{\uparrow}ndt + dR - B_{12}M_{\downarrow}ndt - \gamma ndt, \quad (6.2)$$

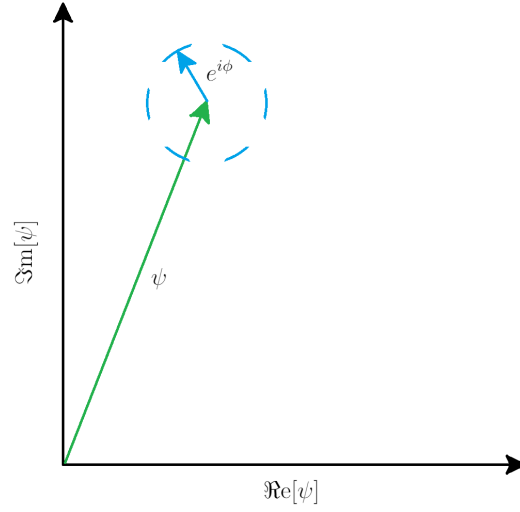
waar dR de spontane emissie is, gemodelleerd door een Poisson proces met verwachtingswaarde $B_{21}M_{\uparrow}dt$. De verliezen en gestimuleerde emissies /absorpties gebeuren op deterministische wijze. Een trekking van de Poisson verdeling geeft een natuurlijk getal met een gemiddelde $B_{21}M_{\uparrow}dt$, dat zegt hoeveel spontane emissies er gebeuren in een tijdsinterval dt . Elk van deze spontane emissies geven de fasor een willekeurige fase. Bij de fasor $\psi(t)$ wordt dan een vector $e^{i\phi}$ met magnitude 1 opgeteld, waar ϕ een willekeurige fase is:

$$\psi \rightarrow \psi + e^{i\phi}. \quad (6.3)$$

Het proces van spontane emissie wordt schematisch voorgesteld op figuur 4. Het aantal fotonen verandert dan met

$$n \rightarrow |\psi + e^{i\phi}|^2 = n + 1 + 2\sqrt{n} \cos(\theta - \phi). \quad (6.4)$$

In één instantie zorgt een spontane emissie dus niet noodzakelijk voor een stijging van de foton dichtheid, maar kan zelfs een daling tot gevolg hebben wegens de cosinus term. Doorheen de tijd zorgt elke spontane emissie er wel voor dat er gemiddeld één foton bijkomt aangezien $\langle \cos(\theta - \phi) \rangle = 0$ voor een stochastisch uniform verdeelde fase ϕ . De spontane emissie leidt tot een niet-deterministische evolutie van de foton dichtheid. De fluctuaties op de foton dichtheid zijn de BEC-fluctuaties van (3.25). De bijdrage van een spontane emissie aan de fluctuaties is



Figuur 4: Schematische voorstelling van het heuristisch fasormodel in het complexe vlak. De groene faser is die van het complexe fotonveld, de blauwe faser is een willekeurige eenheidsfaser die wordt opgeteld bij die van het fotonveld als er zich een spontane emissie voordoet.

$$\begin{aligned}
 d\sigma^2 &= d\langle(n - \langle n \rangle)^2\rangle \\
 &= \langle 4n \cos^2(\theta - \phi) \rangle \\
 &= 2n,
 \end{aligned} \tag{6.5}$$

waarbij in de derde gelijkheid gebruikt werd dat $\langle \cos^2(\theta - \phi) \rangle = 1/2$. De bijdrage aan de fluctuaties van de spontane emissies is dus $d\sigma = n$, wat overeenkomt met de BEC-fluctuaties van (3.25). De tijdsevolutie van de fluctuaties is

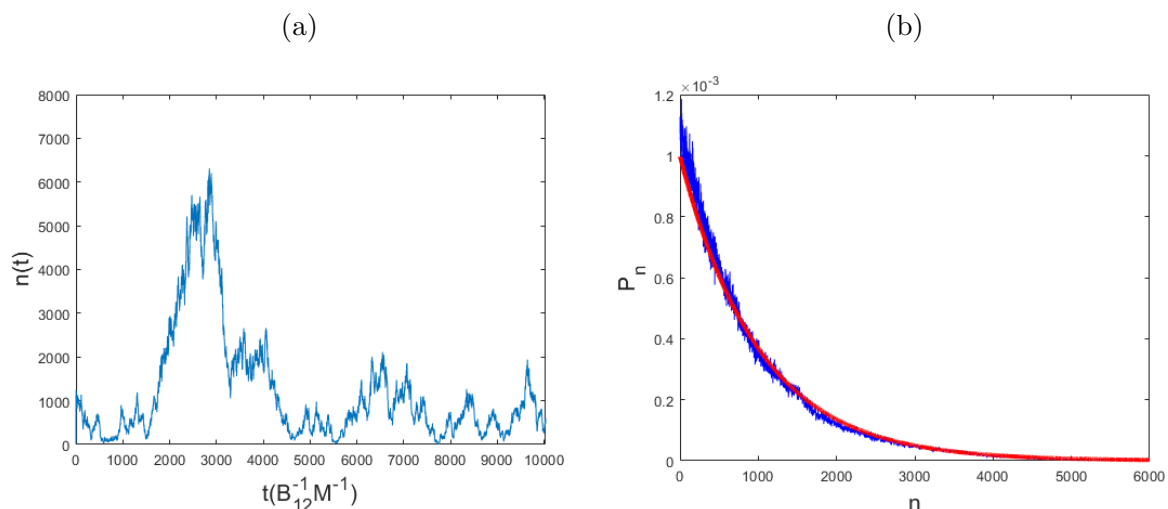
$$\frac{d\sigma^2}{dt} = B_{21}M_{\uparrow}2n. \tag{6.6}$$

Aangezien in evenwicht moet gelden dat $B_{21}M_{\uparrow}(n + 1) = B_{12}M_{\downarrow}n$, kan dit geschreven worden als

$$\frac{d\sigma^2}{dt} \approx (B_{21}M_{\uparrow} + B_{12}M_{\downarrow})n, \tag{6.7}$$

wat de bijdragen van zowel de emissies als de absorpties bevat. De wijze waarop de spontane emissies in het HFM gebeuren, omvatten dus effectief de fluctuaties die normaal afkomstig zijn van alle emissies en absorpties.

De relevante parameters die nodig zijn in de simulaties van het HFM staan in tabel 1.



Figuur 5: (a) Tijdsevolutie van de foton­dichtheid volgens het HFM. (b) Histogram van de foton­dichtheid volgens het HFM (blauw) en theoretisch (rood). Beide simulaties zijn gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 10^3 gemiddelde fotonen (2.8).

De waarden stemmen overeen met die van een experimenteel relevante kleurstof [10]. Op figuur 5a is een voorbeeld te zien van een tijdsevolutie van de foton­dichtheid volgens het HFM. Als eenheid voor tijd wordt $(B_{12}M)^{-1}$ gekozen omdat dit een natuurlijke tijdschaal vormt. De stochastische fluctuaties van de dichtheid zijn volledig ten gevolge van de spontane emissies. Op figuur 5b wordt de theoretische kansverdeling (3.18) van de foton­dichtheid vergeleken met die bekomen uit de simulatie met het HFM. Het fasormodel is in goede overeenkomst met het theoretisch voorspelde exponentieel dalende gedrag.

Parameter	Waarde
B_{12}	2,5 kHz
M	10^9
Δ	$-2,4 k_B T / \hbar$
T	300 K

Tabel 1: Experimentele parameters die overeenstemmen met Rhodamine 6G bij 560 nm. [10]

Het heuristische karakter van het HFM kan echter wel wat verantwoorde bedenkingen opwekken. Eén van de nadelen van het heuristisch fasormodel is namelijk dat de gestimuleerde emissies en absorpties geen discrete processen zijn, zoals in principe wel het geval is: er kan enkel minimaal één foton verloren gaan of bijkomen. De parameters n en M_{\uparrow} worden op dit vlak geëvolueerd als continue variabelen, wat een benadering is

van het fysisch realistische geval. Een ander opmerking is wegens het feit dat het HFM een klassiek model is, kwantummechanische effecten zoals 'squeezing' niet in rekening gebracht worden. Een kwantummechanische beschrijving m.b.v. zogenaamde 'quantum trajectories' kan deze effecten wel in rekening brengen [11]. Met deze kwantummechanische aanpak wordt gevonden dat het HFM echter toch een ontzettend goede benadering is van de onderliggende kwantummechanische fysica.

7 Foton-foton interacties

In experimentele omstandigheden komt er op natuurlijke wijze een effectieve foton-foton interactie tevoorschijn door Kerr en thermo-optisch effecten in de kleurstofmoleculen [13]. Het is ook voorgesteld om een foton-foton interactie te fabriceren door gebruik te maken van $\chi^{(2)}$ niet-lineaire materialen [14]. De foton-foton interactie volgens het Kerr-effect kan gemodelleerd worden als een bijdrage in de Hamiltoniaan van de vorm:

$$\mathcal{H} \rightarrow \mathcal{H} + \frac{U}{2}|\psi|^4, \quad (7.1)$$

waarbij U de interactiesterkte is. De bewegingsvergelijking die overeen komt met het fotonveld ψ is dan

$$i\frac{\partial\psi}{\partial t} = \omega\psi + \frac{U}{\hbar}|\psi|^2\psi, \quad (7.2)$$

waarbij ω de fase-evolutie t.g.v. de niet-interageerde Hamiltoniaan bevat. Er is ook een bijdrage die overeenstemt met de evolutie van de dichtheid. Deze wordt gehaald vanuit de kinetisch vergelijking voor de foton-dichtheid n (2.1):

$$\frac{\partial n}{\partial t} = B_{21}M_{\uparrow}n - B_{12}M_{\downarrow}n =: -\mathcal{B}n, \quad (7.3)$$

waarbij \mathcal{B} de bijdragen van de gestimuleerde processen bevat. De spontane emissie wordt even niet beschouwd aangezien deze niet-deterministisch in de bewegingsvergelijking voorkomt in het HFM. Volgens de definitie van het fotonveld $\psi(t) = \sqrt{n(t)}$ (4.1) (zonder spontane emissies is er geen fase-evolutie):

$$\frac{\partial\psi}{\partial t} = \frac{\partial\psi}{\partial n} \frac{\partial n}{\partial t} = \frac{1}{2\sqrt{n}} \frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{1}{2}\mathcal{B}\psi. \quad (7.4)$$

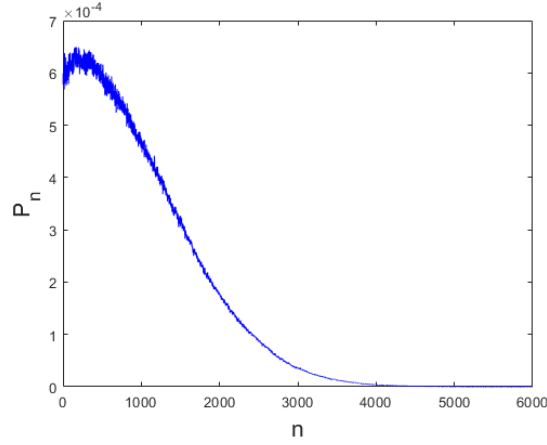
Dit is de evolutie van het fotonveld zonder interacties. De totale evolutie met interacties wordt dan

$$\frac{\partial\psi}{\partial t} = -i\left(\omega + \frac{U}{\hbar}|\psi|^2\right)\psi - \frac{1}{2}\mathcal{B}\psi. \quad (7.5)$$

Het toevoegen van interacties is equivalent met de substitutie $\omega \rightarrow \omega + \frac{U}{\hbar}|\psi|^2$. Dit heeft tot gevolg dat de Kennard-Stepanov wet (1.7) gemodificeerd wordt naar

$$\frac{B_{21}}{B_{12}} = e^{-\frac{\hbar(\omega-\omega_0)}{k_B T}} e^{-\frac{U|\psi|^2}{k_B T}}. \quad (7.6)$$

Zolang de interacties en foton-dichtheid niet te groot zijn, is enkel de verhouding van de



Figuur 6: Histogram van de foton dichtheid met interacties volgens het HFM. De simulatie is gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 10^3 gemiddelde fotonen [11].

twee Einstein coëfficiënten belangrijk en kan bv. B_{12} als constant beschouwd worden:

$$\frac{B_{21}(n)}{B_{12}} = e^{-\frac{\Delta + Un}{k_B T}}. \quad (7.7)$$

Met deze nieuwe B_{21} coëfficiënt en de bewegingsvergelijking van het fotonveld (5.4) kan dan opnieuw de foton dichtheid gesimuleerd worden met het HFM. Om het gemiddelde aantal fotonen vast te leggen kan niet langer (2.8) gebruikt worden, maar wordt een analytische uitdrukking uit [11] gebruikt, met aanvulling van niet gepubliceerd werk [12]. Op figuur 6 is de kansverdeling van het interagerende condensaat te zien met interactiesterkte $U = 10^5 \hbar (B_{12} M)^{-1}$. Met de toevoeging van interacties wordt het exponentiële gedrag van de kansverdeling omgezet in een Gaussisch gedrag. Dit kan rechtstreeks begrepen worden door naar de impact van de nieuwe Einstein coëfficiënten (5.7) te kijken. De kansverdeling (3.19) verandert dan naar een Gaussische functie:

$$P_n = P_0 \exp \left\{ -\frac{(\Delta - \mu)n + Un^2}{k_B T} \right\}. \quad (7.8)$$

8 Correlaties van het fotoncondensaat

De autocorrelatiefunctie $g(t)$ van een stochastisch proces zegt hoe hard een statistische grootheid A gecorreleerd is met zichzelf op twee tijdstippen. Het voorvoegsel ‘auto’ betekent dat het gaat om de correlatie van een grootheid met zichzelf. Dit voorvoegsel zal verder weggelaten worden: met ‘correlatiefunctie’ zal specifiek telkens ‘autocorrelatiefunctie’ bedoeld worden. De correlatiefunctie van A wordt gedefinieerd als

$$g(t) = \langle A(0)A(t) \rangle. \quad (8.1)$$

Er wordt verondersteld dat A stationair is; m.a.w. de verwachtingswaarde $\langle A \rangle$ varieert niet in de tijd. Hierdoor is de correlatiefunctie invariant onder een tijdstranslatie en is dus de keuze $t = 0$ arbitrair. Het verloop van de correlatiefunctie geeft een tijdschaal waarop de waarde van A ‘vergeten’ wordt. Een typisch verloop van een correlatiefunctie in de fysica is een dalende exponentiële functie $g(t) \propto e^{-|t|/\tau}$. Voor $t \gg \tau$ is de correlatie dan verwaarloosbaar. De fourier-getransformeerde van de correlatiefunctie is het vermogenspectrum van A , genoteerd als $S(\omega)$:

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} g(t)e^{i\omega t} dt. \quad (8.2)$$

Het feit dat de autocorrelatiefunctie en het vermogenspectrum een fourierpaar vormen staat bekend als het Wiener-Khintchine theorema [15].

8.1 Fasecorrelaties

Om de fasecoherentie van het fotonveld ψ te bestuderen is de eerste-orde correlatiefunctie relevant. De eerste-orde correlatiefunctie bevat informatie over de fase, net als alle oneven-orde correlatiefuncties. Even-orde correlatiefuncties, zoals de tweede-orde dichtheidscorrelatie, bevatten geen informatie over de fase. De eerste-orde correlatiefunctie wordt in de kwantum-optica gedefinieerd als

$$g^{(1)}(t) = \frac{\langle \psi^*(0)\psi(t) \rangle}{\langle \psi^*(0)\psi(0) \rangle}. \quad (8.3)$$

Volgens de definitie van het fotonveld (4.1) is de normeringsfactor in de noemer van (6.3) gewoonweg gelijk aan \bar{n} . De gecorreleerde verwachtingswaarde in de teller kan geschreven worden als

$$\langle \sqrt{n(0)n(t)} e^{-i\theta(0)} e^{i\theta(t)} \rangle \quad (8.4)$$

waarin dus de informatie van de fase duidelijk is. De modulus van de eerste-orde correlatiefunctie $|g^{(1)}(t)|$ is maximaal gelijk aan 1: het fotonveld is dan volledig coherent.

De tussenliggende waarden $0 < |g^{(1)}(t)| < 1$ karakteriseren dan verschillende graden van lagere coherentie [16].

Bij het berekenen van de correlatiefuncties met het HFM wordt gebruikt gemaakt van het Wiener-Khintchine theorema. Verschillende simulaties voor waarden van $\gamma = \{0, 10^{-3}, 10^{-1}, 1\} B_{12}M$ en $U = 0$ worden getoond in figuur 7, en worden vergeleken met de analytische uitdrukking van [17]. Een verliesnelheid van $\gamma = 1B_{12}M$ betekent dat een foton gemiddeld één absorptie door een molecule ondergaat vooraleer het verloren gaat door de spiegels. In het algemeen zegt de verhouding $\gamma/B_{12}M$ hoeveel absorpties een foton ondergaat vooraleer het verloren gaat. In evenwicht is $B_{12}M$ equivalent met de frequentie aan spontane emissies. Dan geldt namelijk dat $B_{12}M_{\downarrow}(\bar{n} + 1) = B_{21}M_{\uparrow}\bar{n}$, wat voor een macroscopische bezetting betekent dat $B_{12}M_{\downarrow} \approx B_{21}M_{\uparrow}$. De frequentie van het aantal spontane emissies is dan benaderend $B_{21}M_{\uparrow} \approx B_{12}M_{\downarrow} \approx B_{12}M$. De voorwaarde $M_{\downarrow} \approx M$ is geldig in het BEC regime.

Voor kleine verliezen t.o.v. $B_{12}M$ komen de analytische en numerieke resultaten goed overeen. Zonder interacties en met kleine verliezen heeft de eerste-orde correlatiefunctie de vorm van een exponentieel dalende functie. Deze vorm kan begrepen worden als volgt. De deterministische evolutie van het fotonveld $\psi(t)$ zonder interacties is vergelijking (5.4). Met stochastische fluctuaties kan dit geschreven worden als

$$d\psi = -\mathcal{B}\psi dt + dS, \quad (8.5)$$

waar dS de stochastische ruis bevat. In de BEC-limiet kan \mathcal{B} als een constante beschouwd worden. De evolutie van het gemiddelde van het fotonveld wordt dan

$$d\bar{\psi} = -\mathcal{B}\bar{\psi} dt, \quad (8.6)$$

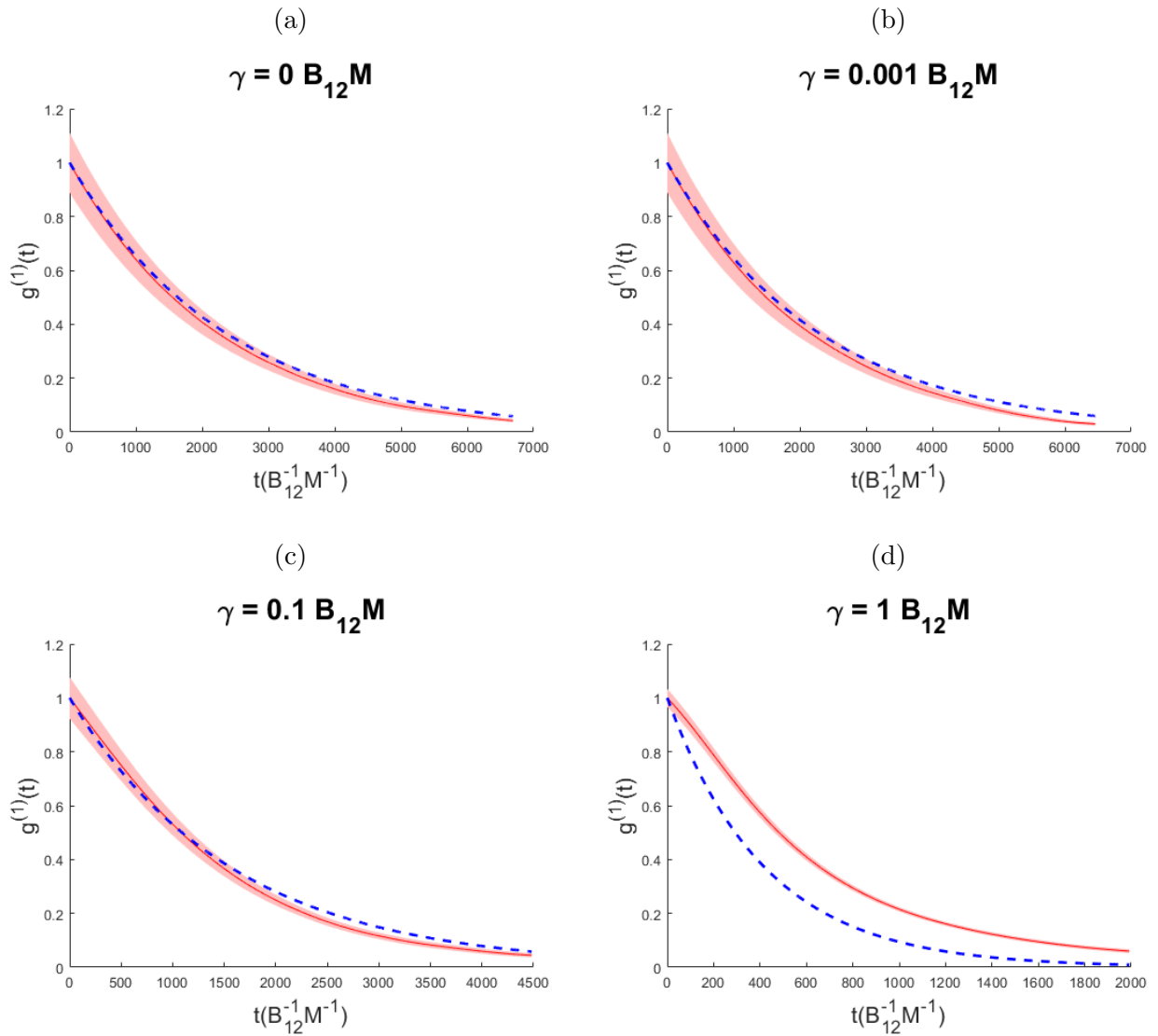
aangezien $\langle dS \rangle = 0$. De oplossing is een exponentieel verval:

$$\bar{\psi} = \bar{\psi}(0)e^{-t/\tau^{(1)}}, \quad (8.7)$$

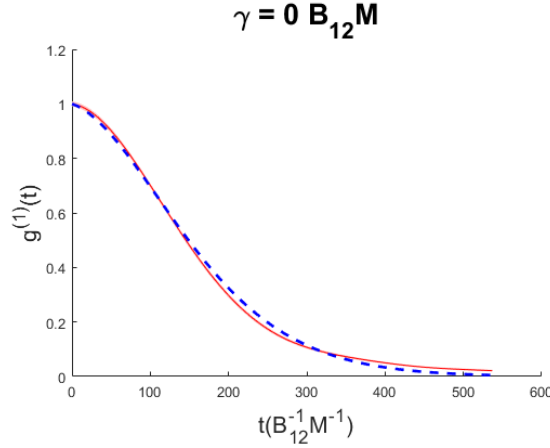
met $\tau^{(1)} = 1/\mathcal{B}$, waardoor de eerste-orde correlatiefunctie (6.3) ook een exponentieel verval krijgt:

$$g^{(1)}(t) = e^{-t/\tau^{(1)}}. \quad (8.8)$$

Als er interacties worden ingevoerd, gaat de fase-correlatiefunctie een Gaussisch gedrag vertonen in $t = 0$. Simulaties met het HFM voor $U = 10^{-5}\hbar B_{12}M$ worden getoond op figuur 8. Het Gaussische gedrag komt tevoorschijn wegens de fasefactor die wordt geïntroduceerd door het Kerr-effect (5.5): $\psi(t) = e^{-iU\bar{n}t/\hbar}\psi(0)$, waar op heuristische wijze



Figuur 7: Numerieke en analytische resultaten van de eerste-orde correlatiefunctie voor verschillende waarden van γ met $U = 0$. De rode curve zijn de simulaties met het HFM, de blauwe stippellijn zijn de analytische uitdrukkingen uit [17]. Alle simulaties zijn gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 10^3 gemiddelde fotonen (2.8).



Figuur 8: Numerieke en analytische resultaten van de eerste-orde correlatiefunctie voor $\gamma = 0$ met $U = 10^{-5}\hbar B_{12}M$. De rode curve is de simulaties met het HFM, de blauwe stippelijn is de analytische uitdrukking uit [17]. Alle simulaties zijn gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 10^3 gemiddelde fotonen [11], [12].

de tijdsafhankelijkheid van n genegeerd wordt. De fasecorrelatiefunctie wordt dan

$$\frac{\langle \psi^*(0)\psi(t) \rangle}{|\psi(0)|^2} = \int e^{-iUn t/\hbar} p(n) dn. \quad (8.9)$$

Dit is gewoonweg de fouriertransformatie van de kansverdeling, met als fourierpaar Un/\hbar en t . De fouriertransformatie van een Gaussische functie is terug een Gaussische functie. Als de kansverdeling Gaussisch is - zoals in (5.8) - dan wordt de fasecorrelatiefunctie dus

$$g^{(2)}(t) = \exp \left\{ -\frac{1}{2} (Un t/\hbar)^2 \right\}. \quad (8.10)$$

De heuristische aanname dat de dichtheid tijdsafhankelijk is komt overeen met het feit dat het Gaussische gedrag enkel rond $t = 0$ aanwezig is, en bij langere tijden terug een exponentiaal verval wordt. Een meer fysische verklaring voor het Gaussisch gedrag is dat de interactie-fasefactor ervoor zorgt dat de fase van het fotonveld oscilleert met een snelheid die evenredig is met de dichtheid aan fotonen. De fluctuaties op de dichtheid leiden dan tot een fluctuatie op de fasesnelheid, wat ervoor zorgt dat interferentie-effecten verslechteren. De correlatiefunctie drijft van een exponentieel verval naar een Gaussisch verval [16].

8.2 Dichtheids correlaties

De tweede-orde correlatiefunctie bevat informatie over de correlatie van de fotondichtheid in het condensaat, en zal daardoor naar verwezen worden als de dichtheids correlatiefunctie. De definitie van de tweede-orde correlatiefunctie is

$$g^{(2)}(t) = \frac{\langle \psi^*(0)\psi^*(t)\psi(0)\psi(t) \rangle}{|\langle \psi^*(0)\psi(0) \rangle|^2}. \quad (8.11)$$

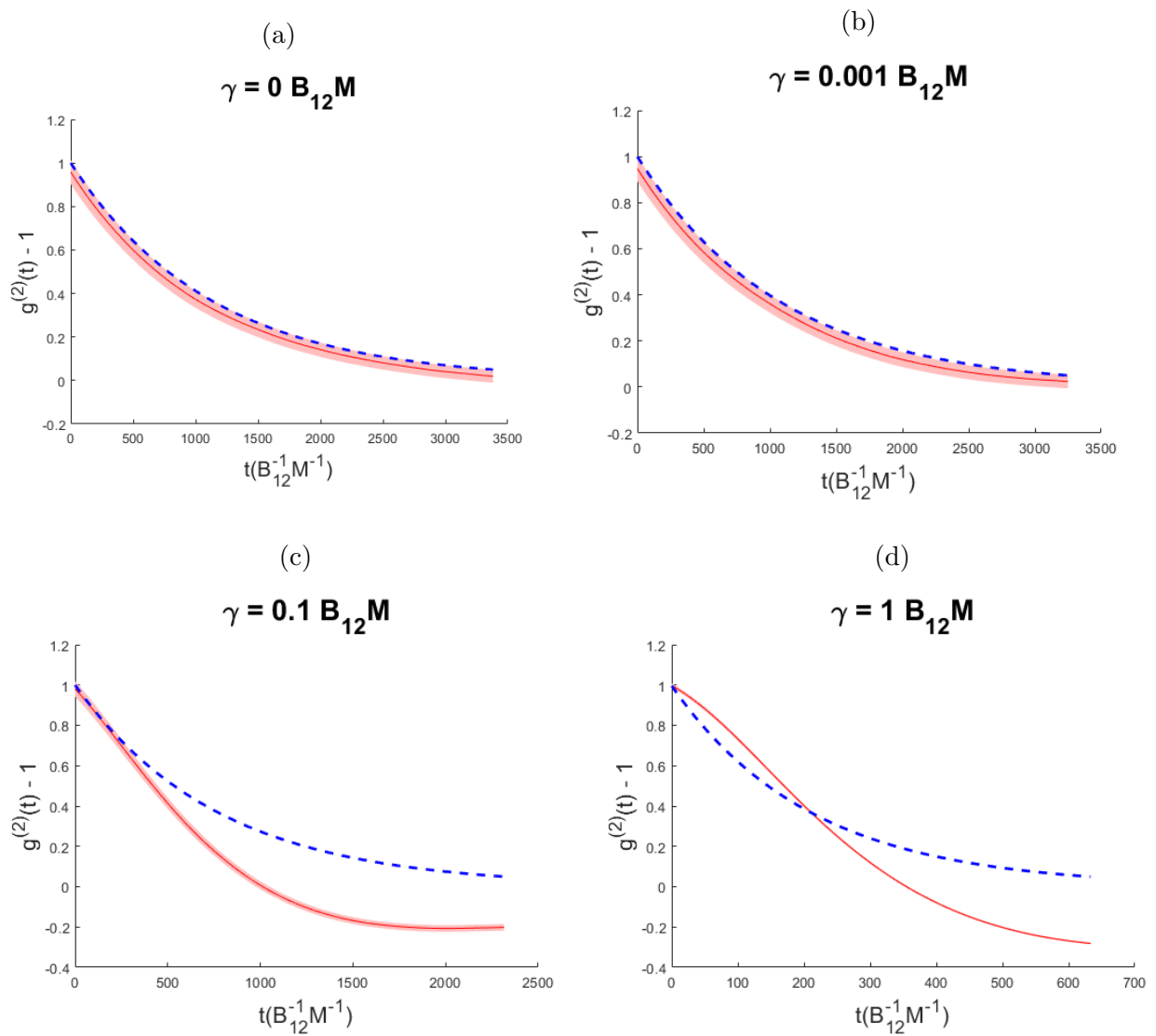
Volgens [7] geldt voor de dichtheidscorrelatiefunctie

$$g^{(2)}(t) - 1 = [g^{(2)}(0) - 1] \exp\left(-\frac{t}{\tau^{(2)}}\right), \quad (8.12)$$

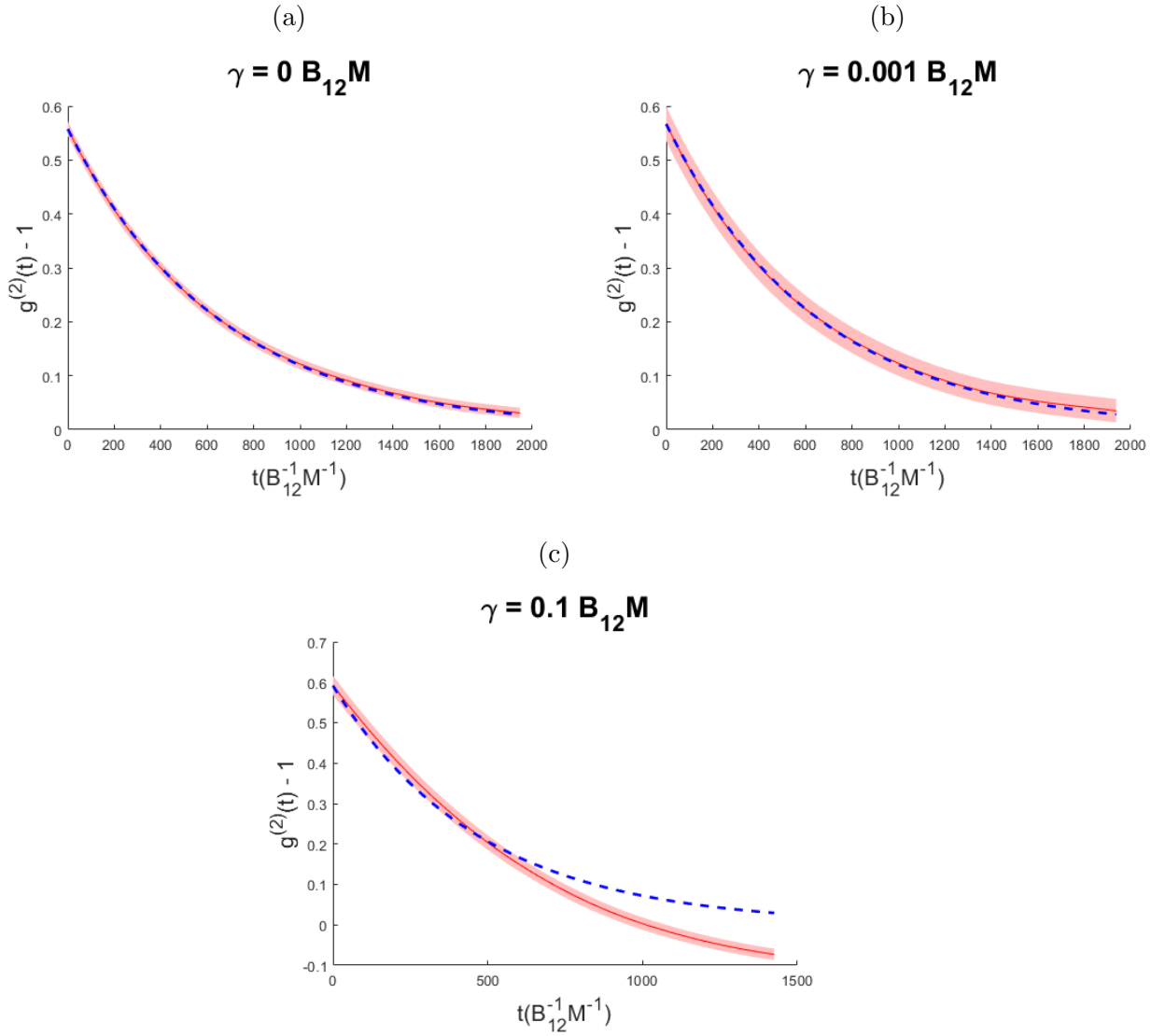
met

$$\frac{1}{\tau^{(2)}} = \frac{B_{12}B_{21}}{B_{12} + B_{21}} \frac{M}{\bar{n}} + (B_{12} + B_{21})\bar{n}. \quad (8.13)$$

Figuur 9 toont de dichtheidscorrelatie voor $\gamma = \{0, 10^{-3}, 10^{-1}, 1\}B_{12}M$ en $U = 0$. Voor de dichtheidscorrelatie in $t = 0$ geldt dat $g^{(2)}(0) = 2$. Dit is gewoonweg een herformulering van de gekende Bose-Einstein fluctuaties (3.25). Met interacties verlaagt de correlatie in $t = 0$ (figuur 10). De kansverdeling van het aantal fotonen verandert in dit regime van exponentieel dalend naar Gaussisch. De variantie op de exponentiële verdeling is 2 (Bose-Einstein fluctuaties), terwijl de Gaussische verdeling een kleinere variantie heeft.



Figuur 9: Numerieke en analytische resultaten van de tweede-orde correlatiefunctie voor verschillende waarden van γ met $U = 0$. De rode curve zijn de simulaties met het HFM, de blauwe stippelijijn zijn de analytische uitdrukkingen uit [17]. Alle simulaties zijn gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 10^3 gemiddelde fotonen (2.8).



Figuur 10: Numerieke en analytische resultaten van de tweede-orde correlatiefunctie voor verschillende waarden van γ met $U = 10^{-5} \hbar B_{12} M$. De rode curve is de simulaties met het HFM, de blauwe stippelijn is de analytische uitdrukking uit [17]. Alle simulaties zijn gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 10^3 gemiddelde fotonen [11], [12].

9 Lineaire respons

De theorie van lineaire respons beschrijft hoe een systeem reageert op een kleine storing. Voor statistische grootheden verschijnt er dan een relatie tussen de fluctuaties en de respons van het systeem. In de statische limiet - dit is een lange tijd na de storing - kan de respons beschreven worden a.d.h.v. thermodynamische grootheden, wat leidt tot het welbekende statische fluctuatie-dissipatietheorema. Het is ook mogelijk om een tijdsafhankelijke respons te beschrijven aan de hand van de fluctuaties.

9.1 Stationair fluctuatie-dissipatietheorema

Het stationaire fluctuatie-dissipatietheorema geeft een evenredigheid tussen de fluctuaties van een grootheid A en de respons van die grootheid op een verandering van haar geconjugeerde thermodynamische variabele B :

$$\langle A^2 \rangle - \langle A \rangle^2 = \frac{1}{\beta} \frac{\partial A}{\partial B}. \quad (9.1)$$

De afgeleide $\partial A / \partial B$ wordt geïdentificeerd met de lineaire responsfunctie χ .

9.1.1 Chemische potentiaal als geconjugeerde variabele

Voor het fotoncondensaat zegt het stationaire fluctuatie-dissipatietheorema dat de fluctuaties van het aantal fotonen evenredig is met de respons van het aantal fotonen op een verandering van de chemische potentiaal:

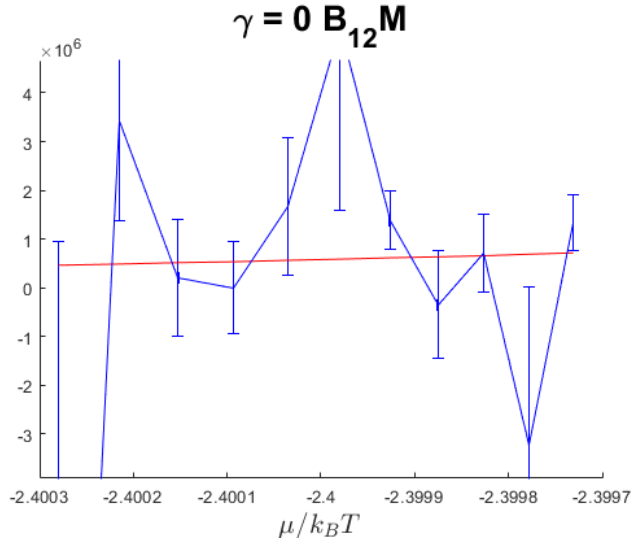
$$\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2 = \frac{1}{\beta} \frac{\partial N}{\partial \mu}. \quad (9.2)$$

Er kan met het HFM geverifieerd worden of deze relatie inderdaad geldig is voor het fotoncondensaat. Er worden verschillende simulaties gedaan met het HFM, elk met een verschillende chemische potentiaal. Een probleem is echter dat de afgeleide $\partial N / \partial \mu$ dan geen analytische vlakke curve is, maar een numerieke curve met statistische fluctuaties en bijgevolg grote foutenvlaggen (figuur 11). Het is dan een goed idee om het fluctuatie-dissipatietheorema om te schrijven naar een integraalvorm door ze te integreren:

$$\int_{\mu_0}^{\mu} \left(\langle N(\mu')^2 \rangle - \langle N(\mu') \rangle^2 \right) d\mu' = \frac{1}{\beta} \int_{\mu_0}^{\mu} \frac{\partial N}{\partial \mu'} d\mu', \quad (9.3)$$

waarbij μ_0 een arbitraire waarde van de chemische potentiaal is, die dient als ondergrens voor de integratie. Het integreren van de afgeleide in het rechterlid is gewoonweg de evaluatie in de grenzen:

$$\beta \int_{\mu_0}^{\mu} \text{Var}[N(\mu')] d\mu' = N(\mu) - N(\mu_0). \quad (9.4)$$



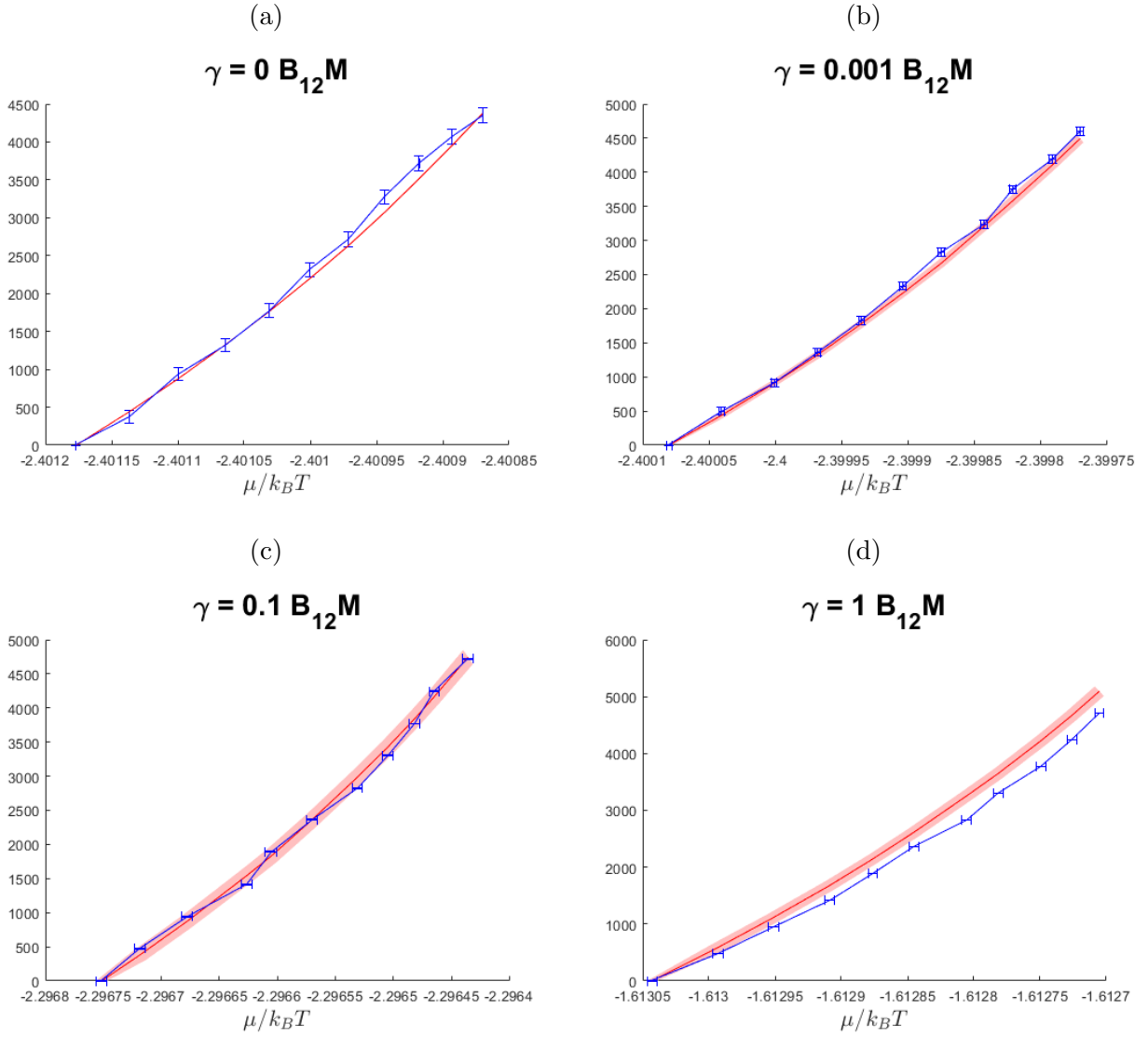
Figuur 11: Numerieke simulatie van het fluctuatie-dissipatietheorema als in (7.2). De rode curve is het linkerlid, de blauwe curve het rechterlid. De foutenvlaggen op de rode curve zijn zeer groot.

Dit is de integraalvorm van het statische fluctuatie-dissipatietheorema. De foutenvlaggen op numerieke integratie zijn kleiner dan die op de numerieke differentiatie.

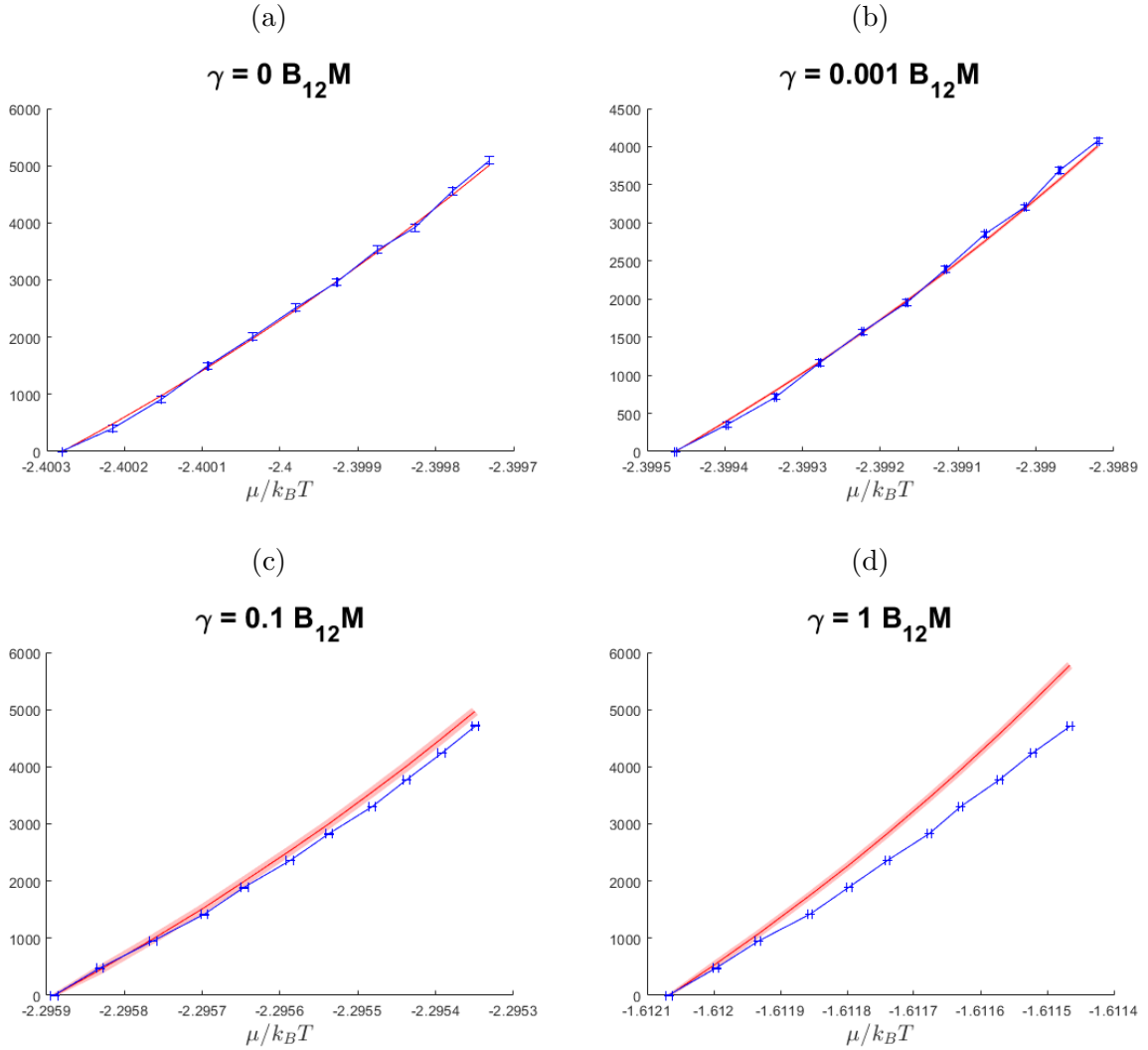
Een aantal simulaties met het HFM worden getoond op figuur 12. Het betreft verschillende waarden van $\gamma = \{0, 10^{-3}, 10^{-1}, 1\} B_{12} M$, met pompen om de verliezen tegen te gaan en voorlopig zonder interacties. Zonder verliezen ($\gamma = 0$, figuur 12a) is het fluctuatie-dissipatietheorema voldaan. Dit is naar behoren aangezien het gesimuleerde systeem in perfect thermodynamisch evenwicht is. Als er verliezen in rekening gebracht worden (figuren 12b - 12d), is het a priori niet duidelijk of het fluctuatie-dissipatietheorema nog geldig blijft. Volgens de simulaties van het HFM is te zien dat zolang de frequentie aan verliezen veel kleiner is dan die van de absorptiesnelheid, het stationaire fluctuatie-dissipatietheorema geldig is. De afwijkingen bij $\gamma = 1 B_{12} M$ zijn relatief gezien zelfs nog zeer klein. Het stationaire fluctuatie-dissipatietheorema blijkt dus een zeer robuuste stelling te zijn, zelfs in het geval van verliezen. Met interacties wordt het fluctuatie-dissipatietheorema al bij lagere verliessnelheden lichtjes ongeldig, maar de afwijkingen zijn nog steeds klein (figuur 13). De specifieke reden voor de vervroegde uiting van deze afwijkingen is niet onmiddellijk duidelijk vanuit een theoretisch standpunt.

9.1.2 Detuning als equivalent van de chemische potentiaal

In experimentele omstandigheden wordt er gekozen om het fluctuatie-dissipatietheorema te verifiëren, niet door de chemische potentiaal zelf te veranderen, maar door de detuning te veranderen [18]. Deze keuze wordt gemaakt wegens praktische overwegingen: de detuning kan veranderd worden door de afstand tussen de spiegels van de caviteit aan te passen.



Figuur 12: Numerieke resultaten van het stationaire fluctuatie-dissipatietheorema voor verschillende waarden van γ met $U = 0$. De rode curve is de plot van het linkerlid van (7.4) (de fluctuaties), de blauwe curve is de plot van het rechterlid (de respons). De verticale en horizontale assen zijn beide dimensieloos. De simulaties zijn gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 985 - 1015 gemiddelde fotonen (2.8).



Figuur 13: Numerieke resultaten van het stationaire fluctuatie-dissipatietheorema voor verschillende waarden van γ met $U = 10^{-5} \hbar B_{12} M$. De rode curve is de plot van het linkerlid van (7.4) (de fluctuaties), de blauwe curve is de plot van het rechterlid (de respons). De verticale en horizontale assen zijn beide dimensieloos. De simulaties zijn gedaan met het aantal M_{\uparrow} dat overeenkomt met 985 - 1015 gemiddelde fotonen [11], [12].

Het veranderen van de detuning heeft namelijk hetzelfde effect op het fotoncondensaat als het veranderen van de chemische potentiaal. Dit is het eenvoudigst zichtbaar in de kinetische vergelijkingen van het fotongas. Met het gebruik van de Kennard-Stepanov wet (1.7) en de definitie van de chemische potentiaal (3.9) van het fotongas kunnen de kinetische vergelijkingen herschreven worden als

$$\begin{aligned}
\frac{\partial n}{\partial t} &= B_{21}M_{\uparrow}(n+1) - B_{12}Mn \\
&= B_{12}M \left[\frac{B_{21}M_{\uparrow}}{B_{12}M}(n+1) - n \right] \\
&= B_{12}M \left[e^{-\beta(\Delta-\mu)}(n+1) - n \right].
\end{aligned} \tag{9.5}$$

Hier is het duidelijk te zien dat een verandering van de detuning Δ en de chemische potentiaal μ hetzelfde effect hebben op de evolutie van het fotongas, hoewel met een verschil in teken: $d\Delta \sim -d\mu$. Het fluctuatie-dissipatiethorema kan dan in functie van de detuning uitgedrukt worden als

$$\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2 = -\frac{1}{\beta} \frac{\partial N}{\partial \Delta}. \tag{9.6}$$

Op figuur 14 worden een aantal simulaties van het fluctuatie-dissipatiethorema getoond waarbij de detuning veranderd werd. Om de respons bij verschillende detuning te vergelijken moet de hoeveelheid excitaties X constant gehouden worden, zodat de chemische potentiaal hetzelfde blijft. Net zoals bij de analoge versie met de chemische potentiaal is het fluctuatie-dissipatiethorema geldig.

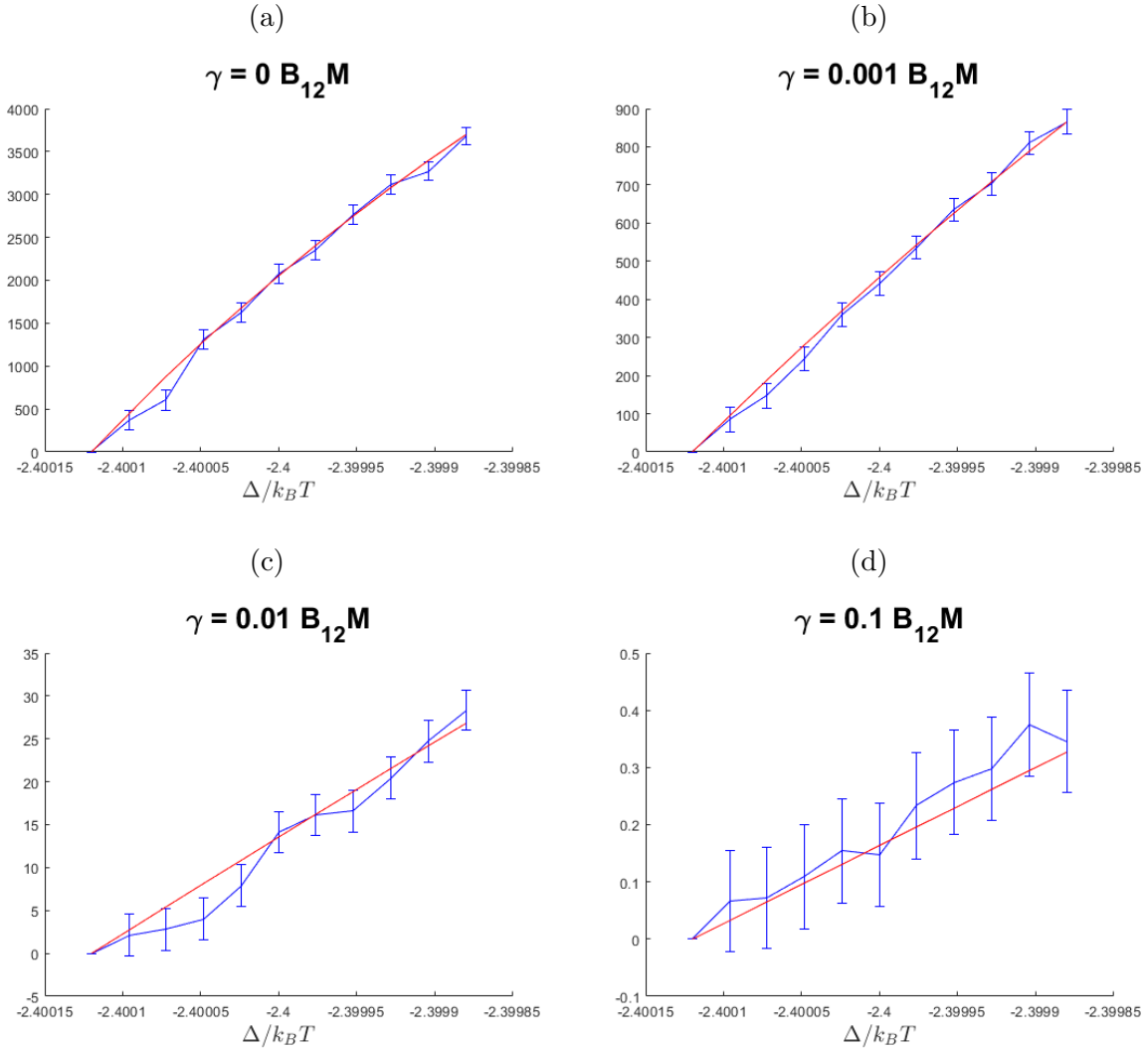
9.2 Tijdsafhankelijk fluctuatie-dissipatiethorema

9.2.1 Theoretische achtergrond

Wat volgt is een klassieke afleiding van het tijdsafhankelijke fluctuatie-dissipatiethorema, gebaseerd op Chandler [5]. Het tijdsafhankelijke fluctuatie-dissipatiethorema beschrijft het tijdsverloop van de lineaire responsfunctie χ ten gevolge van een storing. De lineaire responsfunctie van een fysische grootte B , die gestoord wordt door een veld $F(t)$, wordt gedefinieerd a.d.h.v.

$$\langle B(t) \rangle - \langle B \rangle_0 = \int_{-\infty}^t \chi(t, t') F(t') dt', \tag{9.7}$$

waarbij $\langle B(t) \rangle$ de verwachtingswaarde van B is t.g.v. de storing, en $\langle B \rangle_0$ de verwachtingswaarde van B zonder storing. De lineaire responsfunctie moet tijdstranslatie-invariant zijn, en wordt daarom geschreven als $\chi(t-t')$. De storing kan geschreven worden als een



Figuur 14: Numerieke resultaten van het stationaire fluctuatie-dissipatietheorema voor verschillende waarden van γ met $U = 0$. De rode curve is de plot van het linkerlid van (7.2) (de fluctuaties), de blauwe curve is de plot van het rechterlid (de respons). De verticale en horizontale assen zijn beide dimensieloos. De simulaties zijn gedaan met $\Delta/k_B T \in [-2,40012; -2,39988]$ en met een constant aantal excitaties.

bijdrage aan de Hamiltoniaan van de vorm

$$H_1(q, p) = -FA(q, p), \quad (9.8)$$

waar F een aangelegd veld is, gekoppeld aan de fysische grootheid $A(q, p)$. De totale Hamiltoniaan is dan $H = H_0 + H_1$, waarbij H_0 het tijdsafhankelijke gedeelte voorstelt. Van interesse is de respons op het aangelegde veld van een grootheid $B(q, p, t)$, met gemiddelde $\langle B(t) \rangle$:

$$\langle B(t) \rangle = \frac{\int B(q, p, t) f(q, p) dq dp}{\int f(q, p, t) dq dp}, \quad (9.9)$$

waarbij $f(q, p)$ de genormeerde verdelingsfunctie in de fase-ruimte is, gegeven door de Boltzmann verdeling:

$$f(q, p) = \frac{1}{\mathcal{Z}} \exp \left\{ -\frac{H(q, p)}{k_B T} \right\}. \quad (9.10)$$

Het is handig om te kiezen dat er begonnen wordt in de evenwichtstoestand waarbij de storing *aanstaat*. Dan is de Boltzmann verdeling

$$f(q, p) = \frac{1}{\mathcal{Z}} \exp \left\{ -\frac{H_0(q, p) + H_1(q, p)}{k_B T} \right\}. \quad (9.11)$$

In het geval van een kleine storing kan de exponent geëxpandeerd worden, zodat de verwachtingswaarde van $B(t)$ benaderd wordt als

$$\langle B(t) \rangle \approx \frac{\int B(q, p, t) (1 - \beta H_1) e^{-\beta H_0} dq dp}{\int (1 - \beta H_1) e^{-\beta H_0} dq dp}. \quad (9.12)$$

De verschillende integralen zijn verwachtingswaarden m.b.t. de stationaire Hamiltoniaan H_0 :

$$\begin{aligned}
\int B(q, p, t) e^{-\beta H_0} dq dp &= \langle B \rangle_0, \\
\int B(q, p, t) H_1(t) e^{-\beta H_0} dq dp &= \langle BH_1(t) \rangle_0, \\
\int e^{-\beta H_0} dq dp &= 1, \\
\int H_1(t) e^{-\beta H_0} dq dp &= \langle H_1 \rangle_0,
\end{aligned} \tag{9.13}$$

waarbij de normeringsfactoren \mathcal{Z} genegeerd werden aangezien deze toch wegvallen in de teller en noemer van $\langle B(t) \rangle$. De noemer kan verder geëxpandeerd worden:

$$\left(1 - \beta \langle H_1 \rangle_0\right)^{-1} \approx 1 + \beta \langle H_1 \rangle_0. \tag{9.14}$$

De verwachtingswaarde $\langle B(t) \rangle$ kan dan geschreven worden als

$$\begin{aligned}
\langle B(t) \rangle - \langle B \rangle_0 &= \beta \left(\langle B \rangle_0 \langle H_1 \rangle_0 - \langle BH_1 \rangle_0 \right) + \mathcal{O}(H_1^2) \\
&\approx -\beta F \left(\langle B(t) \rangle_0 \langle A \rangle_0 - \langle B(t)A \rangle_0 \right) \\
&=: -\beta FG_{AB}(t),
\end{aligned} \tag{9.15}$$

waarbij $G_{AB}(t)$ gedefinieerd wordt als de correlatiefunctie tussen A en $B(t)$ zonder aangelegde storing. Dit resultaat staat bekend als Onsager's regressietheorema [5]. Er wordt verder gegaan door de autocorrelatie van een grootheid $A(t)$ met zichzelf te beschouwen. Volgens de theorie van lineaire respons geldt:

$$\langle A(t) \rangle - \langle A \rangle_0 = \int_{-\infty}^t \chi(t-t') F(t') dt'. \tag{9.16}$$

Er werd al gekozen dat de storing in het begin aanstaat. De eenvoudigste ingreep is dan het plots weghalen van de storing: $F(t) = F_0 \Theta(t < 0)$. De lineaire respons wordt dan

$$\langle A(t) \rangle - \langle A \rangle_0 = F_0 \int_t^{\infty} \chi(t') dt'. \tag{9.17}$$

Deze vergelijking identificeren met het regressietheorema (7.15), en afleiden m.b.t. de tijd levert

$$\chi(t) = \begin{cases} -\beta \frac{dG(t)}{dt} & t > 0 \\ 0 & t < 0 \end{cases} \quad (9.18)$$

waarbij $G(t) := G_{AA}(t)$ de autocorrelatiefunctie van $A(t)$ is (met een lichtjes andere definitie dan in Sec. 6). Deze vergelijking fouriertransformeren levert

$$\chi(\omega) = i\beta\omega \int_0^\infty G(t)e^{i\omega t} dt. \quad (9.19)$$

Schrijf de lineaire responsfunctie in de fourier-ruimte als $\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega)$, waarbij $\chi'(\omega)$ het reële deel voorstelt en $\chi''(\omega)$ het imaginaire deel. De dissipatie wordt gelinkt aan het imaginaire deel van de responsfunctie [15]:

$$\chi''(\omega) = \beta\omega \Re \left[\int_0^\infty G(t)e^{i\omega t} dt \right]. \quad (9.20)$$

Als verondersteld wordt dat de autocorrelatiefunctie symmetrisch is in de tijd: $G(t) = G(-t)$, dan kan deze vergelijking geschreven worden als

$$\boxed{\chi''(\omega) = \frac{\beta\omega}{2} \int_{-\infty}^\infty G(t)e^{i\omega t} dt} \quad (9.21)$$

Deze vergelijking linkt de respons van het systeem buiten evenwicht aan de correlaties tussen statistische fluctuaties van het systeem in evenwicht. Het tijdsafhankelijke fluctuatiedissipatiethorema zegt dus dat de dissipatie evenredig is met de fouriertransformatie van de autocorrelatiefunctie.

9.2.2 Toevoeging van extra excitaties

De chemische potentiaal wordt veranderd door plots een hoeveelheid extra moleculen te exciteren, in analogie met het experiment [18]. In het experiment wordt er een met laserpuls zeer snel een extra hoeveelheid moleculen geëxciteerd om de tijdsafhankelijke dissipatie te bestuderen. De verandering in chemische potentiaal die hiermee overeenkomt is volgens (3.9)

$$\Delta\mu = k_B T \frac{\Delta M_\uparrow}{M_\uparrow}. \quad (9.22)$$

Het tijdsafhankelijke FD theorema is gegeven in het fourierdomein. Het is echter inzichtelijker om de fluctuatie-respons in het reële domein te bekijken. Volgens de theorie van

lineaire respons wordt de respons gedefinieerd als:

$$\Delta n(t) = \int_{-\infty}^t \chi(t-t') \Delta \mu(t') dt'. \quad (9.23)$$

In de fourier-ruimte wordt de convolutie eenvoudigweg een product:

$$\Delta n(\omega) = \chi(\omega) \Delta \mu(\omega). \quad (9.24)$$

In de fourier-ruimte is de responsfunctie dus de verhouding van respons over de perturbatie:

$$\chi(\omega) = \frac{\Delta n(\omega)}{\Delta \mu(\omega)}. \quad (9.25)$$

Voor de storing wordt een plotse stijging van de chemische potentiaal gekozen:

$$\Delta \mu(t) = \Delta \mu_0 \Theta(t > 0). \quad (9.26)$$

Dit komt overeen met de plotse injectie van extra excitaties. De fouriertransformatie van de stapfunctie is

$$\mathcal{F} [\Theta(t > 0)] = \int_{-\infty}^{\infty} \Theta(t > 0) e^{i\omega t} dt = \int_0^{\infty} e^{i\omega t} dt. \quad (9.27)$$

Om deze integraal op te lossen moet er een convergentiefactor ε ingevoerd worden, waarvan later de limiet naar nul wordt genomen:

$$\mathcal{F} [\Theta(t > 0)] = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \int_0^{\infty} e^{(i\omega - \varepsilon)t} dt = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \frac{-1}{i\omega - \varepsilon}. \quad (9.28)$$

De limiet wordt verder niet meer expliciet opgeschreven. De responsfunctie in het fourierdomein wordt dan $\chi(\omega) = -\Delta n(\omega)(i\omega - \varepsilon)$. Herschrijf het FD theorema als

$$\Im \left[\frac{\chi(\omega)}{\omega} \right] = \frac{\beta}{2} \int_{-\infty}^{\infty} G(t) e^{i\omega t} dt. \quad (9.29)$$

Het doel is om deze in het reële domein uit te drukken. De inverse-fouriertransformatie van het linkerlid is

$$\begin{aligned} \mathcal{F}^{-1} \left(\Im \left[\frac{\chi(\omega)}{\omega} \right] \right) &= -\frac{1}{\Delta \mu_0} \mathcal{F}^{-1} \left(\frac{\Im [(i\omega - \varepsilon) \Delta n(\omega)]}{\omega} \right) \\ &= -\frac{1}{\Delta \mu_0} \mathcal{F}^{-1} \left(\frac{\Re [\omega \Delta n(\omega)] - \varepsilon \Im [n(\omega)]}{\omega} \right). \end{aligned} \quad (9.30)$$

De fouriertransformatie van het reële deel haalt het even deel eruit:

$$\mathcal{F}^{-1}(\Re[\Delta n(\omega)]) = \mathcal{F}^{-1}\left[\mathcal{F}\left(\frac{\Delta n(t) + \Delta n(-t)}{2}\right)\right] = \frac{\Delta n(t) + \Delta n(-t)}{2} = \frac{1}{2}\Delta n(t), \quad (9.31)$$

waarbij $\Delta n(-t) = 0$ geldt: er is geen respons voordat de perturbatie is aangelegd. De inverse fouriertransformatie van het imaginaire deel is

$$\mathcal{F}^{-1}\left(\frac{\Im[n(\omega)]}{\omega}\right) = \mathcal{F}^{-1}\left[\frac{\Im[\mathcal{F}[\Delta n(t)]]}{\omega}\right]. \quad (9.32)$$

Schrijf de respons als een term die naar nul gaat en een verschuivingsterm met convergentiefactor.

$$\Delta n(t) = \Delta \tilde{n}(t) + \Delta n(\infty)e^{-\varepsilon t}, \quad (9.33)$$

waarbij $\Delta \tilde{n}(t)$ naar nul gaat voor $t \rightarrow \infty$, en $\Delta n(\infty)$ dus de respons op $t \rightarrow \infty$ is. $\mathcal{F}[\Delta \tilde{n}(t)](\omega)$ gaat naar een constante voor $\omega \rightarrow 0$. Het imaginaire deel van de fouriertransformatie van de convergentiefactor is

$$\Im(\mathcal{F}[\Delta n(\infty)e^{-\varepsilon t}]) = \Im\left[\frac{\Delta n(\infty)}{i\omega - \varepsilon}\right] = \frac{\omega\Delta n(\infty)}{\omega^2 + \varepsilon^2}. \quad (9.34)$$

M.b.v. de residustelling kan de inverse fouriertransformatie uitgewerkt worden:

$$\mathcal{F}^{-1}\left(\frac{\Im[n(\omega)]}{\omega}\right) = \varepsilon \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{\omega\Delta n(\infty)}{\omega^2 + \varepsilon^2} e^{-i\omega t} = \Delta n(\infty) \frac{2\pi i - \varepsilon}{2\pi} \frac{1}{2i\varepsilon} = -\frac{1}{2}\Delta n(\infty). \quad (9.35)$$

Het tijdsafhankelijke fluctuatie-dissipatiethorema - toegepast op een plotse stijging van de chemische potentiaal - wordt dan in het reële domein

$$\boxed{\Delta n(t) - \Delta n(\infty) = -\beta\Delta\mu_0 G(t)} \quad (9.36)$$

waarbij

$$G(t) = \langle n(t)n(0) \rangle - \langle n \rangle^2 = \langle n \rangle^2 (g^{(2)} - 1). \quad (9.37)$$

Als $t = 0$ ingevuld wordt, reduceert het tijdsafhankelijke fluctuatie-dissipatiethorema (7.36) naar behoren tot het statische geval (7.2):

$$\Delta n = \beta\Delta\mu (\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2). \quad (9.38)$$

Figuur 15 toont vier simulaties van het tijdsafhankelijke FD theorema bij verschillende verliessnelheden. De evenwichtstoestand is $\bar{n} = 10^3$ voor de plotse stijging van de chemische potentiaal bij $t = 0$. In de afwezigheid van verliezen (figuur 15a) geldt het FD theorema zeer goed. De karakteristieke tijdschaal waarop het fotoncondensaat reageert is dezelfde als deze van de autocorrelatiefunctie, dit is immers de diepe boodschap van het tijdsafhankelijke FD theorema. Als er verliezen ingevoerd worden zijn er afwijking te zien. Voor korte tijden volgt de respons nog wel de autocorrelatiefunctie, maar bij langere tijden zijn er substantiële afwijkingen die sterk toenemen met stijgende verliezen.

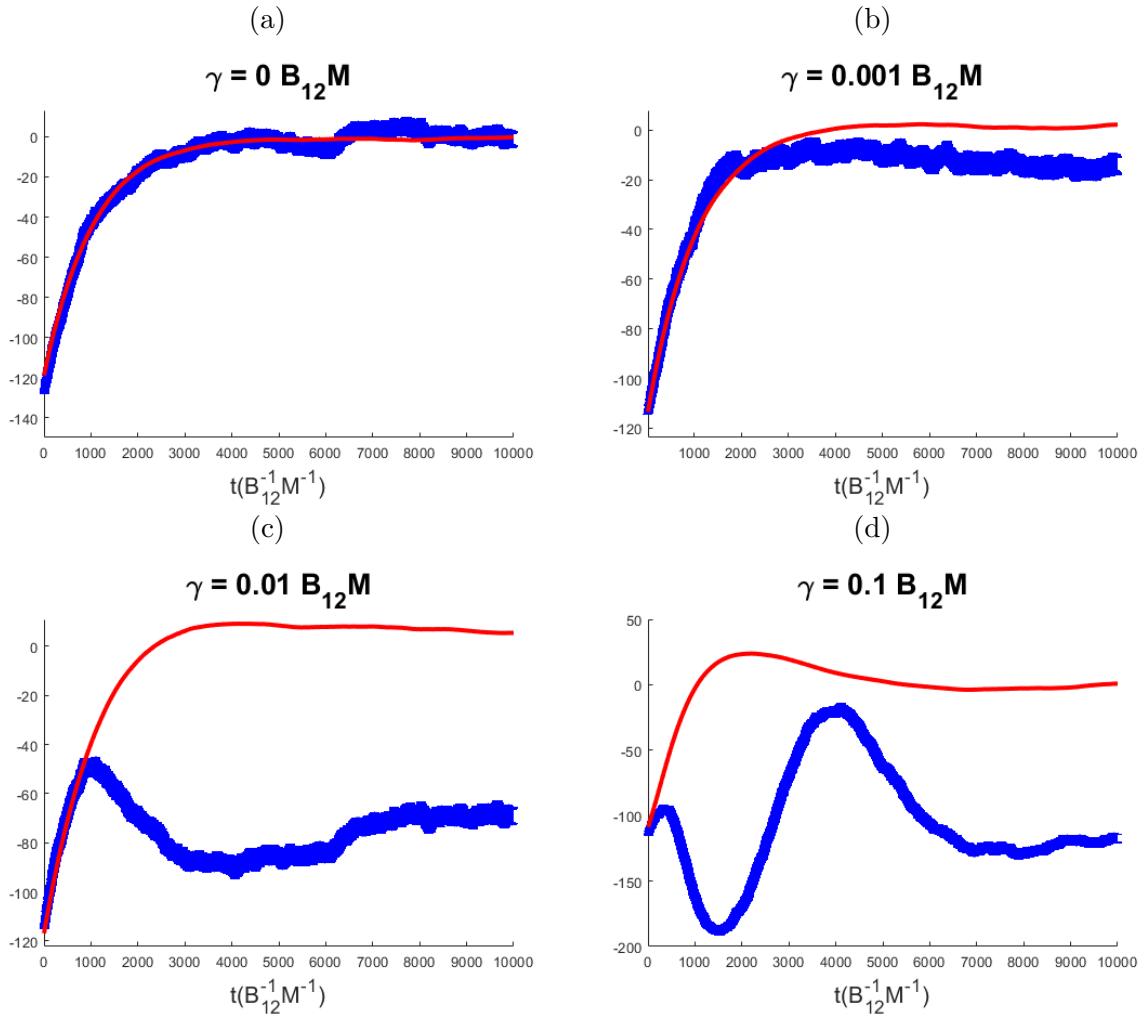
De oorsprong van deze afwijkingen kan als volgt begrepen worden. Wanneer nieuwe excitaties geïnjecteerd worden in een systeem zonder verliezen, dan zijn deze behouden en evolueert het systeem naar een toestand met een groter aantal fotonen (zie figuur 15a). In dit geval is het tijdsafhankelijke FD theorema geldig, aangezien we bij thermisch evenwicht werken. Wanneer de verliezen toenemen zijn de veranderingen in de autocorrelatiefunctie eerder beperkt (zie figuur 9 en de rode lijnen in figuren 15a-d). Indien er nieuwe excitaties geïnjecteerd worden in een systeem met verliezen, zal het aantal fotonen bij lange tijden echter niet veranderen. Dit aantal wordt dan immers door de pomp vastgelegd en niet door de beginvoorwaarde. Op figuur 15d is inderdaad te zien hoe het fotoncondensaat na enige tijd terug de evenwichtstoestand bereikt van voor $t = 0$. Vanwege de pompsnelheid zal het condensaat terug willen evolueren naar de toestand voor $t = 0$ en zal het aantal fotonen na de excitatiepuls dus minder stijgen dan in het geval zonder verliezen, waardoor het fotonaantal de autocorrelatiefunctie niet langer ‘kan volgen’. In het geval van kleine verliezen is deze afwijking beperkt (zie figuur 15b), maar het effect van verliezen wordt al snel groot (zie figuur 15c,d).

Het is hier interessant om de effecten van verliezen te vergelijken met de studie van het statische FD theorema (zie figuur 12), waar de effecten van de verliezen veel geringer zijn. De reden voor de betere overeenkomst in het statische geval is dat we daar de sterkte van de pomp die het condensaat in leven houdt hebben gevarieerd. Daardoor blijft het aantal deeltjes gelijk aan het ‘gewenste’ aantal, wat niet het geval is bij het dynamische FD theorema, waar de pompsnelheid niet aangepast wordt. In feite is de ‘stapfunctie’ die wordt opgelegd - in het geval van verliezen - niet effectief een stapfunctie, maar worden de geëxciteerde moleculen omgezet in fotonen wat een daling van de chemische potentiaal teweeg brengt. Deze fotonen gaan dan vervolgens verloren en komen er enkel bij met de pompsnelheid.

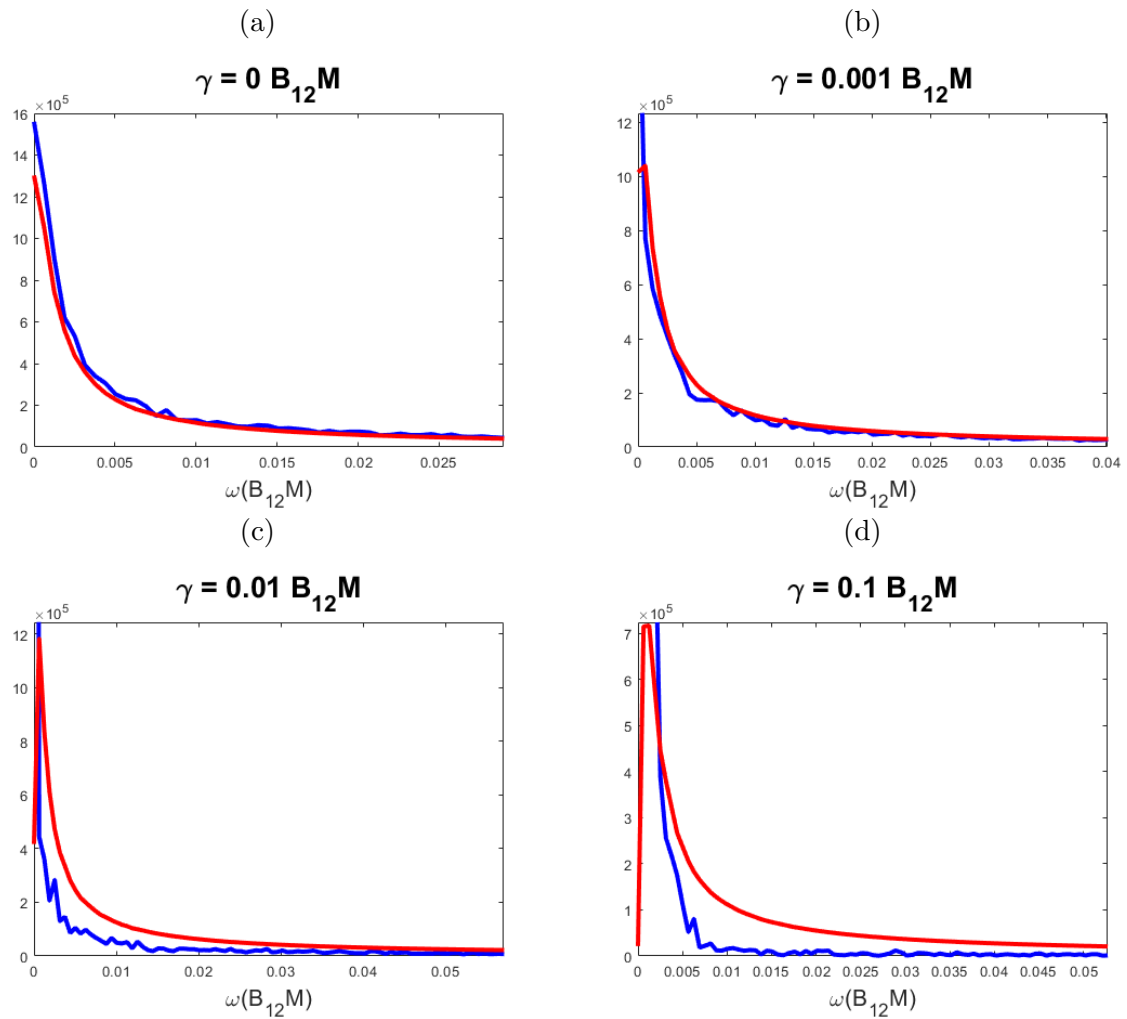
Verder zien we bij sterkere verliezen dat het fotonaantal oscillerend gedrag vertoont, gelijkend op relaxatie-oscillaties in laserfysica [19], maar deze zijn kwantitatief nog niet volledig begrepen.

Op figuur 16 worden de simulaties in de fourier-ruimte getoond (zonder foutenvlaggen). Net zoals in de reële ruimte geldt in de fourier-ruimte het tijdsafhankelijk FD theorema

in de afwezigheid van verliezen (figuur 16a). Bij een kleine verliessnelheid (figuur 16b) is er een duidelijkere afwijking te zien in $\omega = 0$, wat overeenkomt met $t \rightarrow \infty$. In het reële domein (figuur 15) was immers te zien dat bij langere tijden een afwijking op het FD tevoorschijn komt vanwege het pompen. Als de verliezen, en dusdanig ook het pompen, verhoogd worden (figuur 16c,d), worden de afwijkingen in $\omega = 0$ groter, analoog wat te zien is op langere tijden in de reële ruimte. Vanwege de oscillaties in het reële domein worden de afwijkingen bij eindige frequentie ook groter.



Figuur 15: Numerieke resultaten van het tijdsafhankelijke fluctuatie-dissipatietheorema in het reële domein voor verschillende waarden van γ met $U = 0$. Blauwe curve is linkerlid van (7.36), rode curve is rechterlid. Bij elke simulatie is de evenwichtstoestand voor $t = 0$ die van $n = 10^3$.



Figuur 16: Numerieke resultaten van het tijdsafhankelijke fluctuatie dissipatietheorema in het fourierdomein. De blauwe curve is de fouriertransformatie van het linkerlid van (7.36), rode curve is de fouriertransformatie van het rechterlid. Er zijn geen foutenvlaggen voor deze grafieken.

10 Conclusies

Bose-Einstein condensatie van fotonen wordt in de praktijk gerealiseerd door de fotonen op te sluiten in een caviteit gevuld met kleurstofmoleculen. Hierdoor is de dichtheid van het fotongas behouden en kan het thermaliseren, waardoor Bose-Einstein condensatie mogelijk wordt. De spiegels van de caviteit zullen echter nooit perfect reflecterend zijn, waardoor er fotonen verloren gaan. Om het fotoncondensaat in leven te houden moeten er extra excitaties in de caviteit gepompt worden. De theoretische statistiek en dynamica van het fotoncondensaat werden bestudeerd, en vergeleken met numerieke simulaties a.d.h.v. het zogenaamde heuristische fasormodel. Het heuristische fasormodel is een zeer nauwkeurige klassieke poging om kwantitatief de kwantummechanische aard van het condensaat te beschrijven.

Als uitbreiding op bestaande experimenten, werd ook een effectieve foton-foton interactie theoretisch ingevoerd, en bestudeerd met het heuristisch fasormodel. Het invoeren van interacties zorgt ervoor dat het systeem overgaat van Bose-Einstein statistiek naar een Gaussische statistiek.

De geldigheid van thermodynamische evenwichtseigenschappen van het fotoncondensaat buiten evenwicht werden onderzocht. Zo linkt het statische fluctuatie-dissipatietheorema de fluctuaties van het condensaat aan de invloed van de chemische potentiaal. Er werd gevonden dat het statische FD theorema zeer robuust is: zelfs bij relatief grote verliezen zijn er slechts kleine afwijkingen te zien. Het statische FD theorema kan equivalent uitgedrukt worden met de detuning i.p.v. de chemische potentiaal. Als er interacties worden ingevoerd is het statische FD theorema nog steeds zeer robuust, maar verschijnen er al afwijkingen bij lagere verliesnelheden. Dit fenomeen is nog niet begrepen.

Het tijdsafhankelijke fluctuatie-dissipatietheorema linkt de tijdsafhankelijke respons op een storing in de chemische potentiaal aan de autocorrelatiefunctie van het condensaat. Zonder verliezen is het tijdsafhankelijke FD theorema goed geldig, maar bij het introduceren van verliezen leidt het pompen tot afwijkingen bij de respons op langere tijden. Het pompen bepaalt namelijk het evenwicht, en niet de storing van de chemische potentiaal. Er werden voor het onderzoek van het tijdsafhankelijke FD theorema geen simulaties gedaan met foton-foton interacties, dit kan een onderwerp zijn van toekomstig onderzoek.

Referenties

- [1] J. Klaers, J. Schmitt, F. Vewinger, & M. Weitz, *Nature* **468**, 545 (2010).
- [2] A. Nyman, *Journal of Modern Optics* **65**, 754-766 (2018).
- [3] S. Greveling, K. L. Perrier, & D. van Oosten, *Phys. Rev. A* **98**, 013810 (2018).
- [4] P.A.M. Dirac, *Proc. Roy. Soc.* **A114** (767): 243-265 (1927).
- [5] D. Chandler, *Introduction to Modern Statistical Mechanics*, Oxford University Press, Oxford VK (1987).
- [6] J. Klaers & M. Weitz, arXiv:1210.7707 [cond-mat.quant-gas] (2012).
- [7] J. Schmitt, *Dynamik und Korrelationen eines Bose-Einstein-Kondensats aus Licht*, Ph.D. Thesis, Bonn (2015); *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **51**, 173001 (2018).
- [8] D. P. Landau and K. Binder, *A guide to Monte-Carlo simulations in statistical physics*, Cambridge University Press, Cambridge VK (2000).
- [9] C. Henry, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **18**, 259 (1982).
- [10] Privé communicaties met J. Schmitt (2018).
- [11] W. Verstraelen, M. Wouters, arXiv:1902.09306 [quant-ph] (2019).
- [12] Privé communicaties met W. Verstraelen (2018).
- [13] J. Klaers, J. Schmitt, T. Damm, F. Vewinger, & M. Weitz, *Applied Physics B*, **105**, 17–33 (2011).
- [14] A. Majumdar & D. Gerace *Physical Review B*, **87**, 235319 (2013).
- [15] N. Pottier, *Nonequilibrium Statistical Physics: Linear Irreversible Processes*, Oxford University press, Oxford VK (2010).
- [16] D.F. Walls, Gerard J. Milburn, *Quantum Optics*, Springer, Brisbane Australië (2008).
- [17] D. M. Whittaker & P. R. Eastham, *EPL*, **87**, 27002 (2009).
- [18] Privé communicaties met M. Weitz (2019).
- [19] A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, Mill Valley, California, VSA (1986).