

Lokalisierung von Licht durch Vielfachstreuung?

Einleitung

Wellenausbreitung in ungeordneten, stark streuenden Medien ist ein wichtiger Prozeß in vielen Gebieten der Physik. Man denke beispielsweise an die Streuung von Elektronen an Störstellen in Metallen, die Wärmeleitung in Festkörpern, die Moderation von Neutronen eines Reaktors oder die Fortpflanzung des Sonnenlichts durch eine Wolke. Die visuelle Wahrnehmung unserer natürlichen Umgebung geschieht fast ausschließlich über mehrfach gestreutes Licht.

Seit Beginn dieses Jahrhunderts werden solche Phänomene mit dem einfachen Modell der *diffusiven* Ausbreitung der *Wellenintensität* beschrieben. In diesem Modell, das jedem Physikstudenten in der Vorlesung über den Tieftemperatur-Restwiderstand von Metallen begegnet ist, werden von vornherein alle Interferenzeffekte – und damit die Wellennatur des Lichtes selbst – vernachlässigt. Man reduziert das Problem auf den Irrflug elastisch gestreuter Billardkugeln, die sich auf unabhängigen Streupfaden fortbewegen. Gerechtfertigt wird dies durch die regellose räumliche Verteilung der Streuer, so daß sich – im Gegensatz zur Bragg-Streuung an Kristallen – im Mittel über die vielen möglichen Konfigurationen der Streuer alle Interferenzen wegheben sollten. Seit der 1958 von P. W. Anderson [1] vorgeschlagenen Idee der starken Lokalisierung von Elektronen durch konstruktive Interferenz zwischen jedem Streupfad und seinem in umgekehrter Richtung durchlaufenen Partner wissen wir aber,

Läßt sich Licht durch Vielfachstreuung in stark streuenden, völlig ungeordneten – weißen – Materialien lokalisieren? Seit der Entdeckung eines schwachen Vorläufers der Lokalisierung, der kohärenten Rückstreuung (vgl. Titelbild), wird nach dem optischen Analogon zum Andersonschen Metall/Isolator-Übergang experimentell gesucht – bislang ohne Erfolg. Die optischen Experimente vermitteln jedoch ein besseres Verständnis der Interferenzeffekte in der diffusen Ausbreitung von Wellen und geben darüber hinaus unerwartet direkte Aufschlüsse über das Streumedium selbst. Dies hat zu einer Reihe neuer Anwendungen geführt, die auch für viele andere (klassische) Wellen, beispielsweise Ultraschall oder Mikrowellen, von Bedeutung sein dürften.

daß Interferenzen durchaus das makroskopische Transportverhalten prägen können: Im Fall der Elektronen bewirken sie eine drastische Leitfähigkeitsänderung, eventuell sogar einen Metall-Isolator-Übergang. Im folgenden Beitrag geht es nicht um die elektronischen Quanteninterferenzen (siehe dazu z. B. [2]), sondern es soll ein Überblick über ganz analoge optische Interferenzeffekte gegeben werden, die seit einigen Jahren zunehmend auf Interesse sowohl in der Festkörperphysik wie auch in der Optik stoßen [3].

Klassische Behandlung der Vielfachstreuung von Wellen

Wegen der unregelmäßigen räumlichen Verteilung der Streuer ist eine exakte Beschreibung der orts- und richtungsabhängigen Amplitude und Phase der Welle a priori ein komplexes Problem der statistischen Physik. Betrachten wir eine in das Medium einfallende ebene, monochromatische Welle, etwa Laserlicht. Jeder Streuprozess erzeugt eine primäre Partialwelle, die nach einer charakteristischen mittleren freien Weglänge l durch erneute Streuung in sekundäre Partialwellen zerfällt, usw. Nach der Distanz l ist also die einfallende Intensität auf $1/e$ abgeschwächt. Der einzige für die diffuse Ausbreitung relevante Parameter, die Diffusionskonstante D der Welle, ergibt sich aus der Ausbreitungsgeschwindigkeit c und der Distanz, auf der die Welle die Erinnerung an die Ausbreitungsrichtung verliert, der freien Transport-Weglänge

l^* , zu $D = cl^*/3$. Für isotrope, punktförmige Streuer sind l und l^* identisch, für größere, vornehmlich in kleine Winkel streuende Teilchen wird $l^* > l$. In der Regel – dies definiert das Regime der *schwachen* Vielfachstreuung – sind l und l^* wesentlich größer als die Wellenlänge λ . Falls das Medium sehr viel größer als l^* ist, werden Partialwellen bis zu hoher Ordnung erzeugt, und die nach außen in eine bestimmte Richtung abgestrahlte Welle besteht aus vielen auf verschiedenen Pfaden gestreuten interferierenden Partialwellen mit breit verteilten Amplituden und Phasen. Kleine Änderungen der Wellenlänge, der Position der Streuer oder des Beobachtungswinkels führen zu starken Fluktuationen der Intensität.

Abb. 1 zeigt die Winkelabhängigkeit der vielfach gestreuten Intensität eines Laserstrahls. Man kann ein solches „Speckle“-muster als kompliziert kodierte interferometrischen Fingerabdruck der Positionen aller Streuer interpretieren. Weiter unten werden wir sehen, daß es sich in subtiler Weise vom Specklemuster einer rauhen Metalloberfläche unterscheidet. Dies mag verwundern, da die Winkelbreite eines Specklespots durch das Verhältnis von λ zum Durchmesser der leuchtenden Fläche gegeben ist, das Speckle damit auf den ersten Blick keine Information über das Medium selbst enthält, bis auf die Tatsache, daß letzteres stochastische, über 2π verteilte Phasenverschiebungen erzeugt. Abb. 1 demonstriert klar die Wichtigkeit der Interferenzeffekte in vielfach streuenden Medien, in denen die Kohärenz der einfallenden Strahlung nicht

Priv.-Doz. Dr. Georg Maret, Hochfeld-Magnetlabor des Max-Planck-Instituts für Festkörperforschung, 25, Ave. des Martyrs, 166x, F-38042 Grenoble-Cedex, Frankreich.

zerstört wird. Erst Mittelung über die Phasen der verschiedenen Partialwellen, z. B. durch Änderung des Streuwinkels, der Konfigurationen der Streuer oder der Wellenlänge, oder die Benutzung inkohärenter Strahlung führt zu der aus dem Beer-Lambertschen Gesetz bekannten, schwach winkelabhängigen diffusen Richtcharakteristik. Interferenzen zwischen Wellen, die ihr Ziel auf verschiedenen Streupfaden erreicht haben, geben *im Mittel* keinen Beitrag zur gestreuten Intensität, daher der Erfolg des obigen Modells der diffundierenden Intensität.

Kohärente Rückstreuung und schwache Lokalisierung

Eine spezielle Interferenz überlebt allerdings diese Mittelung: Für rein elastische Streuung tritt zwischen jedem Streupfad und seinem in umgekehrter Richtung durchlaufenen Partner *kein* Phasenunterschied auf, diese Interferenz ist immer konstruktiv. Da dies für alle Pfade paarweise gilt, sollte die von einem Punkt im Medium auf den gleichen Punkt zurückgestreute Intensität das Zweifache der inkohärenten mittleren Intensität betragen. Im Falle der Elektronen erhöht dies die Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Ausgangspunkt, was die Leitfähigkeit oder die Transmission verringert. Dieser als kohärente Rückstreuung bekannte Effekt führt zu einer erhöhten Lokalisierung des Elektrons. Man erwartet, daß seine Stärke vom Streuvermögen des Mediums abhängt. Um dies quantitativ zu fassen, betrachten wir eine ebene Welle, die auf ein Streumedium in Form einer Scheibe der Dicke $L \gg l^*$ einfällt (Abb. 2a). Die Start- und Endpunkte der meisten Streuwege liegen in der Nähe der Eintrittsoberfläche, da die Chance, ein dickes Medium diffusiv zu durchqueren, sehr viel kleiner ist als an die Eintrittsfläche zurückzukehren. Der Reflexionskoeffizient R beträgt beinahe 1, und die Transmission ist sehr klein, nämlich wie bei der elektrischen Leitfähigkeit $T \approx l^*/L$. Als gängiges Beispiel denke man an ein Glas Milch, eine Gewitterwolke oder einen Stapel Papier. Der laterale Abstand r zwischen Start- und Endpunkt ist eine breit verteilte Größe, deren quadratisches Mittel $\langle r^2 \rangle$ nach dem Irrflugmodell mit l^* und der Konturlänge s des durchlaufenen Weges wie $\langle r^2 \rangle \approx sl^*$ skaliert. Genau in Rückstreuung interferieren alle Paare von Pfaden konstruktiv, die Reflektivität (in Abb. 2c Streuintensität genannt) liegt daher zweifach über dem diffusen Untergrund. Mit zunehmendem Streuwinkel θ , von der Rückstreurichtung ($\theta = 0$) aus gezählt, entsteht ein Phasenunterschied $2\pi r/\lambda \sin \theta$ zwischen den zeitumkehr-

ten Pfaden. Daher tragen bei endlichem θ viele Streupfade (für kleines θ zunächst die längeren Pfade mit dem größeren r) nicht mehr zur kohärenten Rückstreuung bei. Der maximale charakteristische Winkel für konstruktive Beiträge beträgt etwa λ/l^* , da die kürzesten relevanten Wege, nämlich die der Zweifachstreuung, ungefähr die Länge l^* haben.

Zur Messung der kohärenten Rückstreuung (Abb. 2b) wird ein aufgeweiteter paralleler Laserstrahl durch Reflexion an einem halbdurchlässigen Spiegel auf die Probe gebracht und das rückgestreute Licht durch den Spiegel mit einer auf ∞ scharfgestellten Videokamera registriert. Abb. 2c zeigt den gemessenen Rückstreukonus eines gepreßten Pulvers mikroskopischer Bariumsulfat-Kristalle. Proben solcher Art werden vielfach als weiße Reflexionsstandards und diffuse Reflektoren verwendet. Über die stationären Specklefluktuationen eines solchen festen Preßlings wird gemittelt, indem man die Probe um eine Achse außerhalb der beleuchteten Zone rotiert.

Dieser seit 1971 diskutierte [4] Effekt, der erstmals 1984/85 an wäßrigen Suspensionen submikroskopischer Polystyrolkugeln nachgewiesen wurde [5], demonstriert besonders klar und direkt die Wichtigkeit

der Interferenzeffekte aufgrund der Zeitumkehrinvarianz der Wellenausbreitung in ungeordneten Medien. In den darauffolgenden Jahren wurde die kohärente Rückstreuung sehr detailliert experimentell und theoretisch analysiert, insbesondere was ihre Abhängigkeit vom Streumedium (Teilchengröße und -konzentration, Absorption, Probengeometrie) und von der Charakteristik der Laserstrahlung (λ , Polarisation, Strahldurchmesser, Kohärenzlänge) angeht. Für große Proben ($L \gg l^*$) geben einfache, auf der Diffusionsapproximation basierende Theorien [6] gute quantitative Übereinstimmung mit den Experimenten, wie in Abb. 2c illustriert. Die beobachtete Rückstreuintensität liegt sehr nahe beim Zweifachen der inkohärenten Weitwinkelintensität, und die theoretische Analyse der Winkelabhängigkeit ergibt in diesem Beispiel einen realistischen l^* -Wert von knapp $2 \mu\text{m}$.

Elektronen versus Licht

Die Entdeckung der optischen kohärenten Rückstreuung machte ebenfalls deutlich, daß mit *klassischen* Wellen wie Licht, Mikrowellen oder Ultraschall eine Reihe von Phänomenen besser, eleganter und klarer nachweisbar sind als mit Elek-

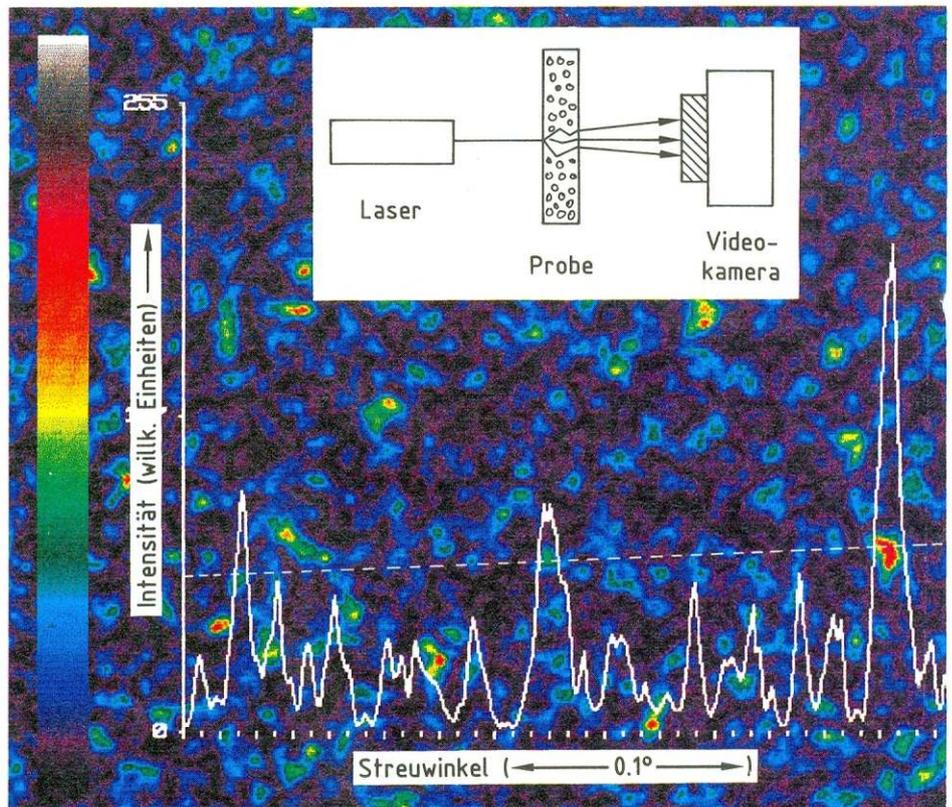


Abb. 1: Ein regelloses Interferenzmuster, in der Optik „Speckle“ genannt, entsteht beim Durchleuchten eines Diffusors, hier einer mm-dicken weißen Scheibe aus mikroskopischen Glasparkeln, mit Laserlicht. Zur Verdeutlichung der Falschfarbenkodierung der Intensität ist das Intensitätsprofil einer Bildzeile (weiß gestrichelt) überlagert gezeigt.

tronen – oder überhaupt erst nachweisbar werden. Wir beschränken uns hier auf die optischen Frequenzen, trotz wichtiger Beiträge auch im Mikrowellengebiet (siehe z. B. [3]). Laserlicht erlaubt eine fast beliebige gute Kontrolle der Richtung des einfallenden und detektierten Wellenvektors und der Photonenenergie, und die Kohärenzlänge ist meist sehr viel größer als der in der Probe zurückgelegte typische Weg ($\approx L^2/l^*$), selbst für stark vielfachstreuende Proben ($L \gg l^*$). Da λ und l^* in optischen Experimenten sehr viel länger sind als in analogen elektronischen Experimenten, können kleine „mesoskopische“ Proben ($L \approx l^*$ oder gar $L \approx \lambda$) in einfacher Weise hergestellt werden. Optisch weiße Substanzen zeichnen sich darüber hinaus durch sehr schwache Absorption aus, d. h. die Absorptionslängen sind in der Regel sehr viel größer als L^2/l^* ; die gesamte Probe wird von der Lichtwelle kohärent abgetastet, was in elektronischen Systemen nur im Fall verschwindender Temperatur zu erreichen ist. Die Photon-Photon-Wechselwirkung ist außerdem sehr viel schwächer als die e^-e^- -Wechselwirkung und kann generell vernachlässigt werden. Der elementare Streuprozess ist im Optischen sehr einfach zu beschreiben, nämlich nach den wohl bekannten Gesetzen der Rayleigh-, Mie-Streuung oder geometrischen Optik, je nach Teilchengröße im Vergleich zu λ . Hinzu kommt die kommerzielle Verfügbarkeit gut kalibrierter Streuer, z. B. prozentgenau monodisperser Polystyrolkugeln mit einer großen Auswahl von Durchmessern von einigen 10 nm bis zu mm. All dies macht die optische Vielfachstreuung nicht nur als Modell für elektronische Systeme interessant, sondern zu einem faszinierenden neuen und reichen Forschungsgebiet an sich.

Allerdings sei vermerkt, daß die Analogie zwischen Elektronen und Photonen nicht vollständig sein kann, letztlich sind die klassische Wellengleichung und die Schrödinger-Gleichung verschieden. Elektromagnetische Wellen sind transversale Vektorwellen, was zu einer spezifischen Polarisationsabhängigkeit der Streuung führt, im Gegensatz zur skalaren Natur der quantenmechanischen Wellenfunktion ohne Spin. Der Querschnitt für Störstellenstreuung von Elektronen nimmt mit zunehmender de Broglie-Wellenlänge stetig zu (da Elektronen eine endliche Ruhemasse haben), wohingegen der optische Streuquerschnitt bei Wellenlängen oberhalb des Mie-Regimes ($2a \approx \lambda$) schnell, nämlich nach dem Rayleighschen λ^{-4} -Gesetz abnimmt. Deshalb erscheint bekanntlich der Himmel blau. Die Phasen von auf verschiedenen Wegen gestreuten Elektronen können sehr effizient durch Anlegen

eines äußeren Magnetfeldes gegeneinander verschoben werden, nämlich um je 2π beim Durchgang eines magnetischen Flußquants durch die von den Pfaden eingeschlossene Fläche. Dies führt zu charakteristischen Fluktuationen der elektrischen Leitfähigkeit mesoskopischer Proben [2]. Magnetfelder sind daher zweifellos das wichtigste Hilfsmittel zum Nachweis elektronischer Quanteninterferenzeffekte. Der schwächeren Kopplung von Licht an Magnetfelder über die Faraday-Rotation der Polarisation könnte, wie weiter unten diskutiert, eine ähnlich entscheidende Rolle bei der Suche nach der starken Lokalisierung von Licht zukommen.

Starke Lokalisierung

Da wie gezeigt der kohärente Rückstreukonus eine Winkelbreite von etwa λ/l^* hat, beträgt die zusätzlich in den rückwärtigen Halbraum gestreute relative Intensität ungefähr $(\lambda/l^*)^2$. Dies bedeutet – wegen der Erhaltung des Photonenflusses – eine Verringerung der Transmission T um $(\lambda/l^*)^2$. Da T mit der Diffusionskonstanten D über $T = 3D/cL$ verknüpft ist, wird auch D um den gleichen Faktor kleiner als der klassische Wert. Der Parameter λ/l^* ist also ein Maß für die Größe der Lokalisierungseffekte durch Interferenzen. Im Bereich $\lambda/l^* \ll 1$ sind T und D nur wenig beeinflusst, man spricht von *schwacher* Lokalisierung. Wir wollen nun die Streustärke des Mediums erhöhen, so daß λ/l^* nicht mehr als kleiner Störparameter angesehen werden kann. Das obige Modell der von Streuung zu Streuung propagierenden ebenen Wellen sollte zusammenbrechen, wenn die Unschärfe des Wellenvektors (l^{*-1}) vergleichbar mit dem Wellenvektor ($2\pi/\lambda$) selbst wird. Das Konzept der Wellenausbreitung verliert dann seinen Sinn. Kohärente Rückstreuung sollte zunehmend die diffuse Wellenausbreitung behindern und die Transmission einer makroskopischen Probe verringern, bis sie nach einem Vorschlag von Joffe und Regel [7] bei $\lambda/l^* \approx 2\pi$ sogar verschwinden sollte. Die dadurch erzeugte *starke* Lokalisierung von Licht [8] wäre das klassische Analogon der Anderson-Lokalisierung von Elektronen. Der Nachweis starker Lichtlokalisierung ist nicht nur von fundamentalem und eventuell technischem Interesse, sondern würde auch das bisher nur auf Modelle (vgl. Abb. 3) gestützte Verständnis des Übergangs vom schwach lokalisierenden Regime her vertiefen helfen.

Allerdings erweist sich der experimentelle Nachweis der starken Lokalisierung im sichtbaren Bereich als schwieriges Unter-

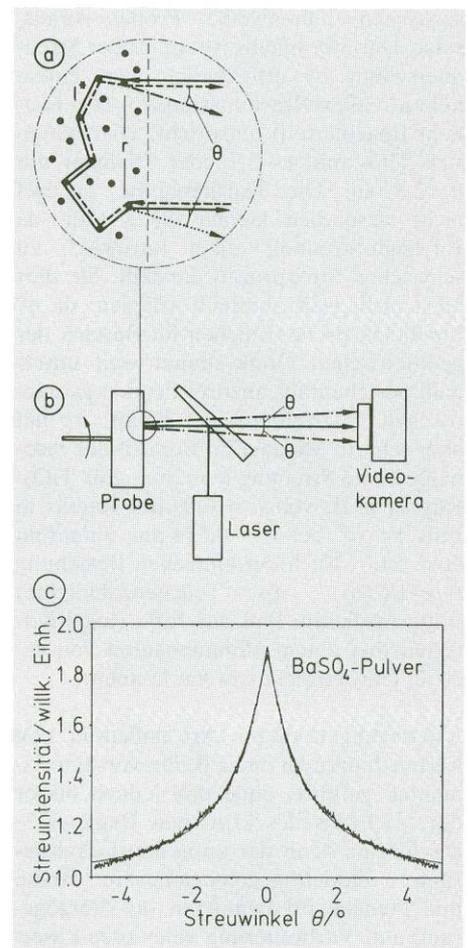


Abb. 2: (a) Zwei im entgegengesetzten Sinn durchlaufene Streuwege einer Welle führen immer zu konstruktiver Interferenz in Rückstreuung (l^* = Transport-Weglänge, vgl. Text; r = lateraler Abstand zwischen Start- und Endpunkt; θ = Streuwinkel). (b) Schematischer Aufbau zur Messung der kohärenten Rückstreuung. (c) Winkelabhängigkeit des Streulichts eines Argon-Laserstrahls ($\lambda = 0,514 \mu\text{m}$) an einem weißen Diffusor in der Nähe der Rückstreuung ($\theta = 0$). Die Streuintensität ist auf den diffusen Weitwinkeluntergrund normiert, die glatte Linie entspricht der Theorie [6].

fangen. Die Gründe dafür werden verständlich, wenn man die optischen Eigenschaften sehr stark streuender Proben näher betrachtet: Die Transmission spiegelt das Verhalten von D sehr viel empfindlicher wider als die Reflektivität (die in jedem Fall sehr nahe an 1 liegt.) $D(L)$ kann aus der L -Abhängigkeit der stationären Transmission bestimmt werden, die – statt klassisch mit $1/L$ – im kritisierenden Regime mit $1/L^2$ und im lokalisierenden Regime mit $e^{-\epsilon/L}$ abfallen sollte (Abb. 3). Andererseits führt auch Absorption, verursacht durch Verunreinigungen oder intrinsische Absorption der Streuer, zu einer exponentiellen Längenabhängigkeit der Transmission, weshalb ein eindeutiger Nachweis von starker Lichtlokalisierung zunächst extrem schwach absorbierende,

sozusagen „blütenweiße“ Proben voraussetzt. Darüber hinaus ist ein großer Streuquerschnitt σ^* erforderlich, was einem hohen reellen Brechungsindex n (bei kleinem Imaginärteil) entspricht. Hier bieten sich TiO_2 mit $n \approx 2,7$ oder Diamant mit $n \approx 2,4$ an. Die Teilchengröße $2a$ darf nicht wesentlich kleiner als λ sein, da Rayleigh-Streuung einen intrinsisch zu schwachen Streuprozess darstellt. Sie darf auch nicht weit oberhalb λ liegen, da σ^* für dielektrische Teilchen im Bereich der geometrischen Optik immer weit unterhalb des ebenfalls unzureichenden geometrischen Querschnitts πa^2 bleibt. σ^* hat aber scharfe Maxima im Bereich der resonanten Mie-Streuung ($\lambda \approx 2\pi a$). Für TiO_2 -Kugeln z. B. von $a = 0,09 \mu\text{m}$ Radius in Luft ist σ^* bei $\lambda = 0,514 \mu\text{m}$ immerhin etwa $5\pi a^2$. Nach der einfachen Beziehung $l^* = 1/(\sigma^* \rho)$ (ρ = Teilchenzahldichte) sollte in diesem Fall das Joffe-Regel-Kriterium bei einem Volumenanteil von ca. 30% TiO_2 erreicht werden können.

Überlegungen dieser Art haben in den letzten Jahren zu einer Reihe von Experimenten geführt, ohne daß jedoch bisher der Nachweis des kritischen Regimes – geschweige denn der optischen Lokalisierung – eindeutig gelungen wäre. Drake und Genack [9] benutzten die Verzögerung und Verbreiterung eines psec-Laserpulses durch eine dünne Scheibe aus TiO_2 -Pulver, um die Diffusionskonstante und die Absorptionszeit der Photonen direkt als Funktion von λ zu bestimmen. Der kleinste, im grünen Licht beobachtete D -Wert entspricht $l^* = 25 \text{ nm}$, also $2\pi l^*/\lambda \approx 0,3$, wenn die Ausbreitungsgeschwindigkeit im Medium $c = c_0/n_c$ mit Hilfe des effektiven mittleren Brechungsindex n_c abgeschätzt wird. Ein solch kleiner Wert von l^* klingt aufregend! Andererseits fanden van Albada et. al. [10] an sehr ähnlichen Proben mit 600 nm wesentlich größere l^* -Werte, wenn statische Meßgrößen wie die diffuse Transmission oder der kohärente Rückstreuungskonus analysiert wurden; Messungen von Photonenlaufzeiten aus der dynamischen Intensitätskorrelationsfunktion $\langle I(0)I(\delta\nu) \rangle$ als Funktion der Frequenzverschiebung $\delta\nu$ der Laserlinie in Transmission und Reflexion an denselben Proben ergaben konsistent große l^* -Werte, aber kleine Diffusionskonstanten, was auf eine wesentlich kleinere effektive Ausbreitungsgeschwindigkeit c hinweist. Nach der Amsterdamer Gruppe [10] rührt dies von der extrem langen Verweilzeit des Lichtes innerhalb der in Resonanz streuenden Partikel her, deren Berechnung – ohne Berücksichtigung von Lokalisierungseffekten – auch gut mit den experimentellen Befunden übereinstimmt. Es scheint also, als seien wir noch ein gutes Stück weiter von

der Lichtlokalisierung entfernt, als die obige Abschätzung oder Genacks Experiment [9] nahelegte. Dies mag mehrere Gründe haben: Bei den unvermeidbar hohen Teilchenkonzentrationen verursachen die räumlichen Korrelationen der Teilchenpositionen nicht unerhebliche Korrekturen von l^* . Zumindest bei Streuern, die wie harte monodisperse Kugeln wechselwirken (vermutlich aber auch bei anders geformten, polydispersen Teilchen), führen die lokalen Interferenzen zwischen den Teilchen generell zu einer Schwächung der Streustärke [11] (beispielsweise bei obigen TiO_2 -Kugeln um einen Faktor 5). Darüber hinaus ist unsicher, ob der Übergang tatsächlich bei einem λ/l^* -Wert von 2π erfolgt. Die Schwierigkeit ist letztlich, daß wegen des Fehlens einer zuverlässigen Theorie für den klassischen l^* -Wert bei hohen Konzentrationen eine Referenzgröße fehlt, mit der verglichen der Beitrag der Interferenzen zwischen zeitumgekehrten Wegen aus den Experimenten abgeleitet werden könnte.

Ist es möglich, durch Reduzierung der physikalischen Dimension Lichtlokalisierung

zu erzielen, da in Systemen mit Dimension ≤ 2 immer Lokalisierung auftritt sollte? Hier stellt sich dem Experimentator die Schwierigkeit, das Licht nach einer Vielzahl von Streuungen am Verlassen der niederdimensionalen Probe zu hindern, weil dies einem Absorptionsprozeß gleichkäme. Versuche mit hochgradig orientierten Bündeln sehr anisotroper Fasern oder mit Streuern, die zwischen Spiegeln in einer Ebene gehalten waren, haben denn auch bisher noch keine nennenswerten Resultate gebracht.

Fluktuationen

Im folgenden wollen wir die durch Vielfachstreuung erzeugten Specklemuster genauer betrachten, denn die Annäherung an den Lokalisierungsübergang sollte sich auch in den Intensitätsfluktuationen widerspiegeln. Ein Speckle (Abb. 1) kann am besten durch die Verteilungsfunktion der Intensität I und die Korrelationsfunktion $C(x) = \langle I(0)I(x) \rangle$ als Funktion einer experimentell variablen Größe x , z. B. dem Streuwinkel oder der Wellenlänge,

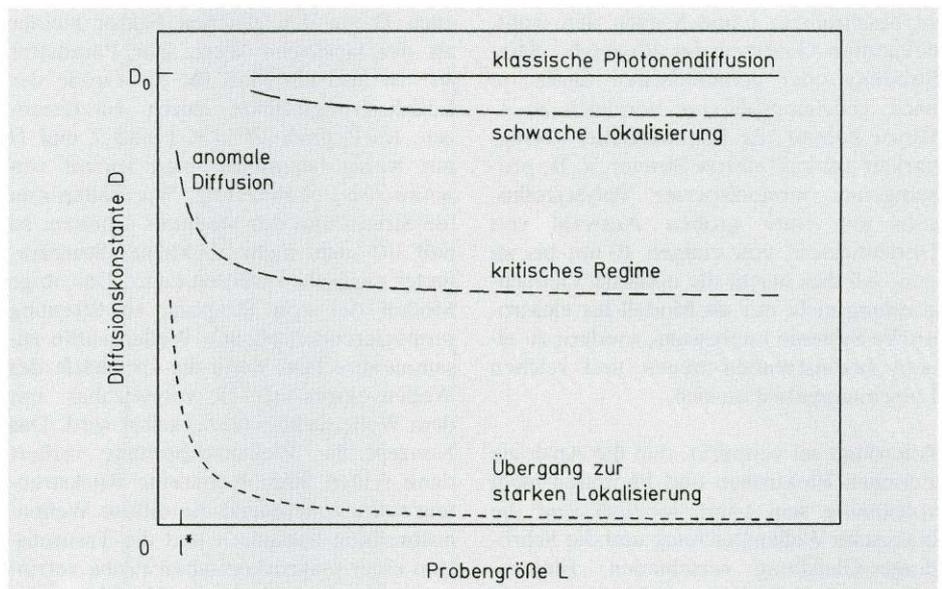


Abb. 3: Übergang von schwacher zu starker Lichtlokalisierung. Solange die Lichtwellenlänge sehr viel kleiner als die mittlere freie Weglänge l^* ist, haben wir mit klassischer Photonendiffusion zu tun: Die Diffusionskonstante $D_0 = c^2/3$ ist unabhängig von der Größe L der Probe. Schwache kohärente Rückstreuung führt zu einer leichten Erniedrigung der Diffusionskonstanten auf allen Längenskalen größer als l^* . Mit zunehmendem λ/l^* werden die Rückstreuereffekte größer. Nach der Skalentheorie [8] des Metall-Isolator-Übergangs sollte D nun längenskalen-abhängig werden. Jeder Streuer in einer Schleife kann nämlich wieder als Ausgangspunkt neuer Schleifen angesehen werden, die wegen kohärenter Rückstreuung das Photon mehr als im klassischen Fall bei ihm lokalisieren. Daher sollten lange Schleifen (die ja bei größerem L häufiger sind) eine kleinere effektive Diffusionskonstante haben als kleine Schleifen. Die Theorie [8] sagt für dieses Gebiet der anomalen Diffusion $D = D_0 l^*/L$ voraus. Der obige Korrekturfaktor $(1 - \lambda/2\pi l^*)$ definiert eine neue Länge, die Korrelationslänge $\xi = l^*/|1 - \lambda/2\pi l^*|$, die die räumliche Ausdehnung des anomalen Regimes charakterisiert. Oberhalb ξ wird die Diffusion wieder klassisch, d. h. L -unabhängig, und nimmt den Wert $D = D_0 l^*/\xi$ an. Am Übergang zur starken Lokalisierung ($\lambda/l^* \approx 2\pi$) divergiert die Reichweite ξ , und die makroskopisch beobachtbare Diffusionskonstante verschwindet. Jenseits des Übergangs wird die Wellenausbreitung über große Distanzen unmöglich, sowohl die Wellenintensität als auch die Diffusionskonstante und die Transmission fallen exponentiell mit ξ/L ab. Daher wird ξ auch „Lokalisierungslänge“ genannt.

charakterisiert werden. Die Mittelung geht dabei über viele verschiedene Specklepunkte oder -muster. Für willkürlich über 2π verteilte unkorrelierte Phasen der zu jedem Specklepunkt beitragenden Partialwellen ergibt sich eine Gauß-Verteilung der Gesamtamplitude, was einer exponentiellen Verteilung der Intensitäten entspricht. Dies kann sehr schön in Abb. 1 beobachtet werden, wo dunkle Zonen sehr viel häufiger auftreten als helle. Ein hell leuchtender Fleck ist das Resultat einer recht unwahrscheinlichen konstruktiven Interferenz fast aller Partialwellen. Phasenkorrelationen zwischen den verschiedenen Streuwegen führen zu Abweichungen von der exponentiellen Intensitätsverteilung.

Wir beschränken uns im weiteren auf die Korrelationsfunktion. $C(x)$ ist das ensemblegemittelte Produkt von zwei Streuintensitäten, also von vier optischen Feldern, wobei sich jedes Feld aus den Beiträgen ε aller Pfade zusammensetzt. Falls keine Korrelationen zwischen den Streupfaden existieren, besteht $C(x)$ nur aus Beiträgen der entlang der *einzelnen* Pfade gestreuten Felder $\varepsilon(0)\varepsilon^*(x)$, da alle Produkte zwischen Feldern verschiedener Pfade im Mittel verschwinden. Diese Situation ist in Abb. 4a skizziert. Korrelationen zwischen den Feldern verschiedener Pfade kommen dadurch zustande, daß zwei Streupfade einen oder mehrere gemeinsame Streuer besitzen, daß sich also Pfade kreuzen (Abb. 4b, c). Diese Korrelationen im Specklemuster werden bei Annäherung an den Lokalisierungsübergang und bei sehr kleinen Proben zunehmend wichtiger.

Betrachten wir zunächst C_1 : Bei makroskopisch *großen* Proben im Bereich der *schwachen* Lokalisierung wie dem in Abb. vorgestellten BaSO₄-Pulver ist C_1 dominant ($1/g \approx 10^{-6}$ in diesem Fall). Die mittlere quadratische Phasenverschiebung zwischen den in Abb. 4 schwarz und gestrichelt gekennzeichneten Feldern, die z. B. beim Verschieben der Teilchenposition gegeneinander entsteht, nimmt linear entlang der Kontur s eines Streupfadens zu (und erreicht nach einer gewissen Länge s_0 den Wert π^2). Die Korrelationsfunktion fällt daher mit $\exp(-s/s_0)$ entlang der Kontur ab. Da in Transmission durch eine Scheibe die Wege eine charakteristische Länge $s \approx L^2/l^*$ besitzen, wird C_1 näherungsweise $C_1 \approx \exp(-L^2/l^*s_0)$. In Reflexion sind die Weglängen sehr viel breiter verteilt, daher variiert C_1 wesentlich langsamer (nämlich wie $\exp(-(l^*/s_0)^{1/2})$). Der Fall der Transmission soll nun an einem neuen Experiment [13] aus unserem Labor illustriert werden, ein Beispiel zur Reflexion folgt im nächsten Abschnitt.

Licht ist eine Vektorwelle und wird durch Vielfachstreuung depolarisiert, das kann man an der Depolarisation der diffusen Strahlung der Wolken im Vergleich zur Polarisation des blauen Himmels leicht beobachten. Magnetfelder erzeugen bekanntlich eine Faraday-Rotation der Polarisation, deren Wert proportional zum Feld H , zur Faraday-Konstante V des Materials und zu der geradlinig im Feld durchlaufenen Strecke ist. Der Rotationsinn hängt von der Ausbreitungsrichtung bezüglich H ab. Kann man dann erwarten, daß der Faraday-Effekt im Bereich der Vielfachstreuung zu nach außen sichtbaren Effekten führt? Abb. 5 zeigt den Ausschnitt eines Transmissionsspeckles einer 1,2 mm dicken Scheibe eines eingefrorenen Faraday-Glaspulvers, aufgenommen durch einen linearen Polarisator, links ohne, rechts mit Magnetfeld. Im starken Feld hat sich das Muster fast vollständig verändert, die Korrelationsfunktion $C_1(H)$ ist auf sehr kleine Werte abgefallen (Abb. 6). Der Abfall folgt in etwa einer Gauß-Kurve. Um diese Beobachtung zu verstehen, müssen wir uns vergegenwärtigen, daß – trotz der Depolarisation des gemittelten transmittierten Lichts – jeder Specklepunkt wegen der vollständig kohärenten Ausbreitung durch die ganze Probe einen eigenen wohldefinierten Polarisationszustand hat. Der Faraday-Effekt führt *nicht* zu einer gleichförmigen Rotation der Polarisation aller Specklepunkte, da die verschiedenen Pfadgeometrien und -längen Beiträge verschiedener Amplitude und verschiedenen Vorzeichens geben: Die mittlere Rotation ist null, nicht aber ihre Varianz. Der mittlere quadratische Rotationswinkel auf der elementaren Längenskala für gradlinige Ausbreitung, l^* , ist von der Größenordnung $V^2H^2l^{*2}$, d. h. $s_0 \approx 1/V^2H^2l^*$, und $C_1(H)$ sollte etwa wie $\exp(-V^2H^2L^2)$ abfallen. Die durchgezogene Linie in Abb. 6 stellt das Resultat der Theorie dar, die gut mit den Messungen übereinstimmt. Das Verständnis des Faraday-Effekts in Vielfachstreuung eröffnet zu einem die Möglichkeit der Messung von Faraday-Konstanten in diffusen Medien, zum anderen könnte der Faraday-Effekt auch zu einem wichtigen Hilfsmittel bei der Suche nach dem kritischen Regime und dem optischen Lokalisierungsübergang werden, da Faraday-Rotation die Zeitumkehrinvarianz der Wellenausbreitung zerstört. In starken Magnetfeldern sollten kohärente Rückstreuung und Lokalisierung unterdrückt werden, eine stark streuende Probe mit großem Faraday-Effekt im hohen Feld dürfte der idealen, bisher vergeblich gesuchten Referenzprobe recht nahe kommen.

Einige Worte zu C_2 und C_3 : Die C_2 -Kor-

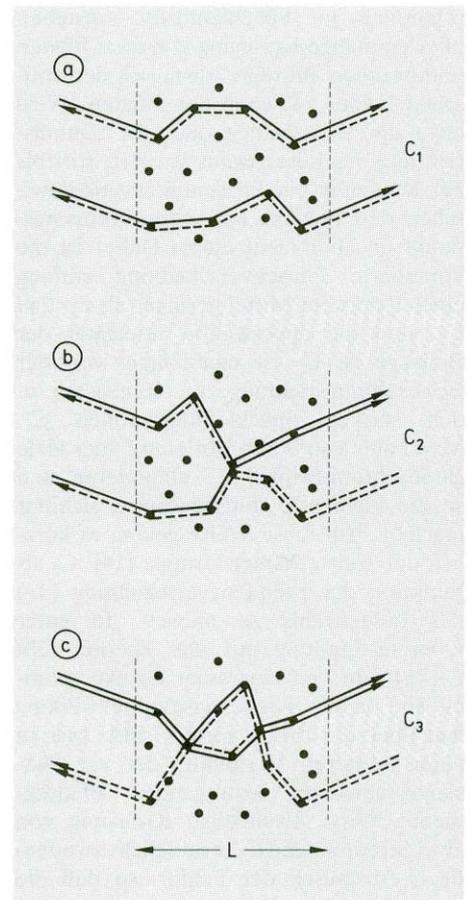


Abb. 4: Neue Korrelationen in optischen Specklen. Ein durch Vielfachstreuung erzeugtes Specklemuster unterscheidet sich vom Specklemuster einer rauhen Metalloberfläche durch größere Korrelationen, die durch Variation (δx) der Wellenlänge oder des Beobachtungswinkels sichtbar gemacht werden können: Die Korrelationsfunktion $C(\delta x)$ der gestreuten Intensität setzt sich aus drei verschiedenen Beiträgen C_1 , C_2 und C_3 zusammen [12]: (a) Der größte Teil des Lichtes wird auf unabhängigen Pfaden gestreut. Zu $C_1(\delta x)$ tragen nur die Produkte von entlang einzelner Pfade gestreuten Feldern $\varepsilon(0)$ (—) und $\varepsilon^*(\delta x)$ (---) bei. — (b) Bei einmaliger Kreuzung von zwei Streupfaden ergibt sich die Möglichkeit des Austauschs der beiden Felder $\varepsilon(0)$ und $\varepsilon^*(x)$ am Kreuzungspunkt. Nach dem Kreuzungspunkt tritt dann keine Phasendifferenz mehr auf, was die Intensitätsfluktuationen im Specklemuster reduziert und diesen Anteil $C_2(\delta x)$ der Korrelationsfunktion unabhängig vom Beobachtungswinkel macht. — (c) Zweimalige Kreuzung und zweimaliger Austausch der Felder verringert die Intensitätsfluktuationen noch mehr und führt zu einem besonders interessanten langreichweitigen Beitrag, $C_3(\delta x)$, der weder vom Einfallswinkel noch vom Beobachtungswinkel abhängt. Bei Transmission durch eine scheibenförmige Probe der Dicke L und Breite W kann die Wahrscheinlichkeit (üblicherweise mit $1/g$ bezeichnet) einer solchen Kreuzung leicht aus der Anzahl der möglichen Streupfade, ihrer charakteristischen Länge L^2/l^* und ihrem Durchmesser λ geometrisch abgeschätzt werden. Für einmalige Kreuzung irgendwo entlang des Pfades erhält man $1/g = \lambda/l^* \lambda L/W^2$, für zweimalige Kreuzung $1/g^2$ etc. Im Bereich schwacher Lokalisierung und großer Proben ist $1/g \ll 1$, also $C_1 \gg C_2 \gg C_3$.

relationen im Specklemuster entstehen über einmalige Kreuzung von zwei Pfaden und beruhen auf dem Austausch der optischen Felder zwischen den Pfaden. Wird etwa die Wellenlänge oder die Einfallrichtung des Laserstrahls variiert, tritt bis zur Kreuzung ein Phasenunterschied zwischen den Feldern auf, vom Kreuzungspunkt ab aber nicht mehr. Daher ist die kumulierte Phasenverschiebung entlang eines Pfades im Mittel geringer als im Fall C_1 , und die abgestrahlte Intensität der Beiträge zu C_2 ist unabhängig von der Beobachtungsrichtung, im Gegensatz zu den starken Specklefluktuationen C_1 . Man kann also durch Mittelung über viele Beobachtungswinkel C_1 eliminieren und so die kleinen C_2 -Fluktuationen sichtbar machen. Auf diese Weise gelang es kürzlich der Amsterdamer Gruppe [14], C_2 als Funktion der Frequenzverschiebung ($\delta\nu$) des Laserstrahls zu messen. In guter Übereinstimmung mit der Theorie fällt $C_2(\delta\nu)$ sehr viel langsamer als exponentiell ab, da die Kreuzungspunkte willkürlich über die Probe verteilt sind, was zu einer breiteren Verteilung der zur Phasenverschiebung beitragenden Pfadsegmente führt. Zweimalige Kreuzung von zwei Streupfaden (C_3) ermöglicht zweimaligen Austausch der Felder, so daß die entsprechenden Beiträge zur Intensität unempfindlich gegen Änderung des Einfallswinkels und Beobachtungswinkels sind. Die Fluktuationen hängen also nur von inneren Phasenverschiebungen auf der Strecke zwischen beiden Kreuzungspunkten ab und sollten sich in der integrierten diffusen Transmission bei diffuser Beleuchtung bemerkbar machen. Diese Fluktuationen, die abtastbar wären durch Veränderung der Laserfrequenz, der Positionen der Streuer oder ein (allerdings sehr starkes) Magnetfeld, ließen sich bisher noch nicht beobachten. Ihr Nachweis wäre von besonderem Interesse, da sie den sogenannten „universellen Leitfähigkeitsfluktuationen“ bei Metallen entsprechen.

Anwendungen

Das bessere Verständnis der optischen Vielfachstreuung hat auch zu einigen grundsätzlichen Untersuchungen mit potentiellen Anwendungen geführt, über den schon oben erwähnten Faraday-Effekt hinaus. Als bisher wichtigstes Beispiel sollte man die stark streuenden Suspensionen kolloidaler Teilchen in Brownscher Bewegung anführen. „Quasielastische“ Lichtstreuung ist seit langem eine wichtige Methode zur Teilchengrößenbestimmung, blieb aber bisher im wesentlichen auf Einfachstreuung beschränkt. Bei dieser Methode werden die zeitlichen Schwankungen des in eine feste Richtung

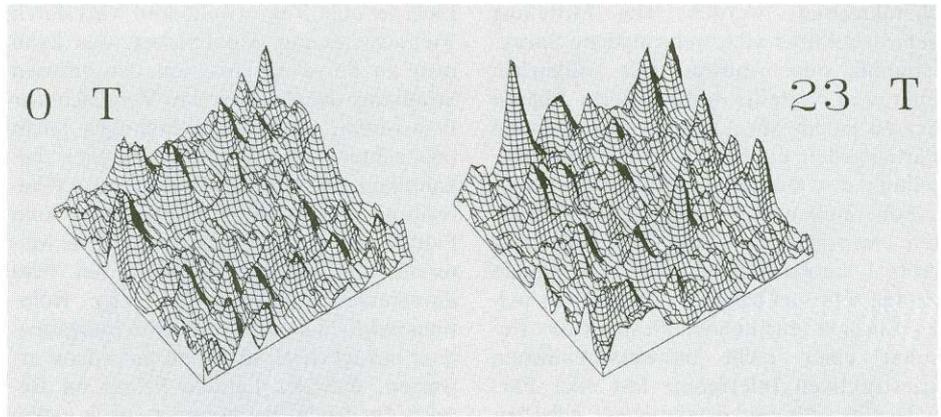


Abb. 5: Ausschnitt eines Transmissions-Specklemusters, das sich durch Faraday-Rotation im hohen Magnetfeld stark verändert.

gestreuten Lichts (mit Streuvektor q) gemessen, und aus der typischen Fluktuationszeit, die mit q^2 und der Diffusionskonstanten D_T der Teilchen abnimmt, ergibt sich die Teilchengröße $2a$ und ihre Verteilung nach der Stokes-Einstein-Beziehung zwischen D_T und a . Bei Vielfachstreuung verliert man die experimentelle Kontrolle über q , da entlang der Streupfade viele verschiedene Streuwinkel vorkommen. Durch die stochastische Bewegung der Streuer treten bei jeder Streuung willkürliche Phasenänderungen des Lichts auf, deren Mittelwert über viele Streupfade verschwindet, nicht aber ihre mittlere Schwankung. Die typische Fluktuationsrate pro Streuung ist jetzt $D_T \langle q^2 \rangle$, also von gleicher Größenordnung wie bei der Einfachstreuung $1/\tau_0$ ($\approx D_T/\lambda^2$), aber da sukzessive Streuungen entlang eines Pfades unabhängig sind, ergibt sich nach N Streuungen eine Ver- N -fachung der Schwankungsrate. Da in Transmission $N \approx L^2/l^*2$ ist, nimmt die

charakteristische Abklingrate mit L^2 zu und wird bei genügend dicken Proben wesentlich größer als $1/\tau_0$. Daraus ergibt sich erstmals die Möglichkeit, mit Lichtstreuung Bewegungen auf Längenskalen weitaus kleiner als λ , bis hin zu einigen nm (!) zu untersuchen. Erste Messungen der Kurzzeit-Diffusion kolloidaler Teilchen und deren Beeinflussung durch hydrodynamische und sterische Wechselwirkung liegen bereits vor [11, 15]. In Rückstreuung variiert $C_1(t)$ nicht mit einer charakteristischen Abklingrate, da N eine breit verteilte Größe ist. Die Theorie [15] sagt ein Potenzgesetz voraus $(1 - (t/\tau_0)^{1/2})$ bei kleinen Korrelationszeiten t). Abb. 7 zeigt als Beispiel die gemessene Korrelationsfunktion des gestreuten Feldes für einige wäßrige Suspensionen von Polystyrolkugeln mit verschiedenen Durchmessern. Man erkennt deutlich das für Rückstreuung typische $t^{1/2}$ -Verhalten bei kleinen t . Alle Kurven skalieren nach $(t/2\tau_0)^{1/2}$ mit der Rückstreuzeit τ_0 , die proportional zum

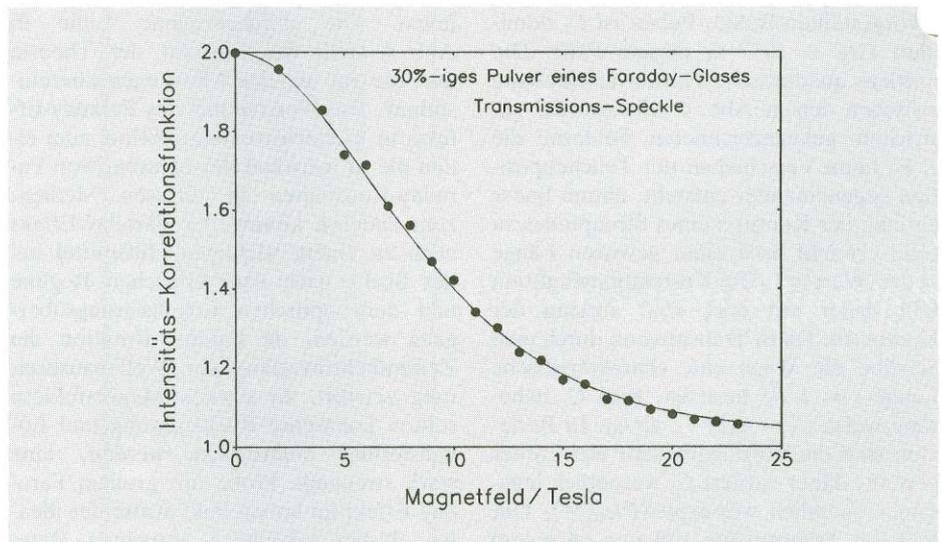


Abb. 6: Der Faraday-Effekt im Vielfachstreueregime manifestiert sich durch den Zerfall der Korrelationsfunktion des Specklemusters im Magnetfeld. Die Messungen (●) folgen der Theorie für $C_1(H)$ (durchgezogene Kurve).

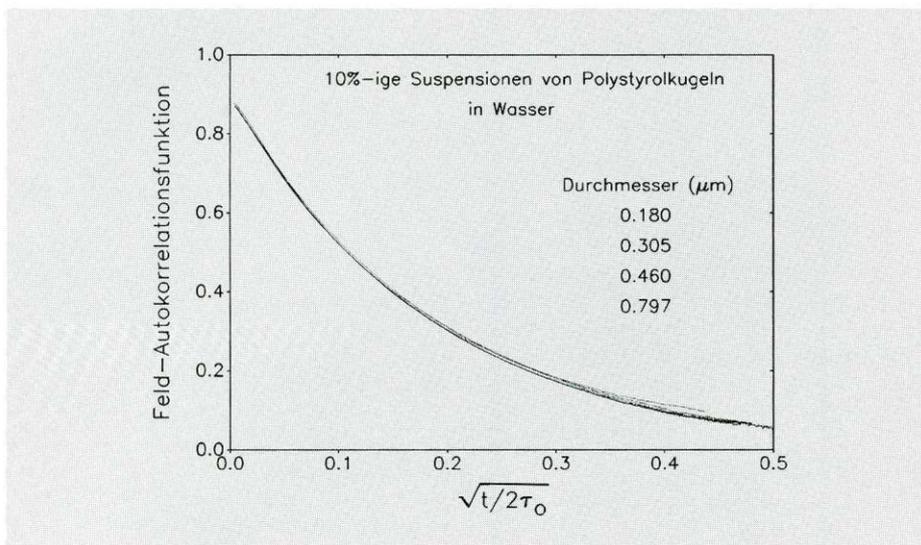


Abb. 7: Die quasielastische Vielfachstreuung von Licht erlaubt eine genaue Bestimmung der Teilchengröße in Suspensionen Brownscher Streuer. Die gemessenen dynamischen Korrelationsfunktionen des fluktuierenden Streulichts skalieren entsprechend der Theorie für Vielfach-Rückstreuung nach $(t/2a)^{1/2}$ mit dem Teilchendurchmesser $2a$.

Teilchendurchmesser ist. Die Daten stimmen ohne anpaßbaren Parameter innerhalb weniger Prozent quantitativ mit der Theorie überein. Solche Messungen können also zur Bestimmung der Teilchengröße benutzt werden, was den Anwendungsbereich der quasielastischen Lichtstreuung wesentlich erweitert. Besonders wichtig könnte dies für konzentrationsstabilisierte Dispersionen werden, bei denen die Teilchengröße von der Verdünnung abhängt.

Andere Formen der Relativbewegung der Streuer, wie sie z. B. durch Scherströmung [16] oder durch Ultraschall erzeugt werden, ergeben andere, sehr charakteristische dynamische Fluktuationen der Speckelmuster, die in ähnlicher Weise wie die Brownsche Bewegung zu analysieren sind. Im Scherfeld ist die Abklingrate der Fluktuationen proportional zur Differenz der Strömungsgeschwindigkeit auf der Skala l^* , im Ultraschallfeld oszilliert die dynamische Korrelationsfunktion $C(t)$ bei der Schallfrequenz mit einer zur Schallintensität proportionalen Amplitude. Dabei ist hinsichtlich potentieller Anwendungen besonders interessant, daß sich alle Bewegungsarten wie diese, bei denen die mittlere quadratische Phasenänderung zwischen sukzessiven Streuprozessen proportional zu l^{*2} ist, in Transmission durch eine von l^* unabhängige Korrelationsfunktion auszeichnen. Es ergibt sich daraus in der Praxis die Möglichkeit, Schergradienten in diffus streuenden Medien, z. B. in schlammigen Flüssen oder in Wolken, ohne Kenntnis der optischen Eigenschaften des Mediums zu bestimmen.

Ausblick

Wir haben gesehen, daß sich das so komplex erscheinende Problem der kohärenten Ausbreitung von Lichtwellen in ungeordneten, stark streuenden Medien mit einfachen Prinzipien der statistischen Physik beschreiben läßt, jedenfalls im Gebiet der schwachen Lokalisierung. Nicht zuletzt durch gegenseitige Stimulierung von Festkörperphysikern und Optikern konnten eine Reihe überraschender Interferenzeffekte klassischer Wellen entdeckt und verstanden werden. Dies führt zu einer neuen, vielseitig verwendbaren Spektroskopie. Interessante Anwendungen sind denkbar zur Untersuchung von zahlreichen heterogenen natürlichen und synthetischen Materialien, von Milchprodukten bis zu Wolken, von Sonnencremes bis zu Anstrichfarben, beim Vermessen der Hautdurchblutung oder bei der Lokalisierung von Blutgerinnseln im Hirn, um nur einige bereits aufgegriffene Fälle zu nennen. Das Regime starker Lichtstreuung ($\lambda/l^* \approx 2\pi$) ist ein attraktives Forschungsgebiet mit vielen offenen theoretischen und experimentellen Fragen, dessen Faszination auf der großen Präzision und Selektivität optischer Methoden beruht. Hier könnte hohen Magnetfeldern eine wichtige Rolle zukommen, z. B. bei der Suche des optischen Analogons der universellen Leitfähigkeitsfluktuationen oder der starken Lokalisierung.

*

Ich danke der Deutschen Forschungsgemeinschaft für finanzielle Unterstützung, und meinen involvierten Mitarbeitern.

Literatur

- [1] P. W. Anderson, Phys. Rev. **109**, 1490 (1958).
- [2] G. Bergmann, Phys. Rep. **107**, 1 (1984); P. A. Lee, T. V. Ramakrishnan, Rev. Mod. Phys. **57**, 287 (1985); Physics Today, Dez. 1988, Special Issue: „Disordered Solids“.
- [3] S. John, Physics Today, Mai 1991, S. 32–40; P. Sheng (Hrsg.): Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media. World Scientific, Singapur 1990.
- [4] D. A. de Wolf, IEEE Trans. Ant. Prop. **19**, 254 (1971); A. Golubentsev, Sov. Phys. JETP **59**, 26 (1984); E. Akkermans, R. Maynards, J. Phys. (France) **46**, L-1045 (1985).
- [5] Y. Kuga, A. Ishimaru, J. Opt. Soc. Am., **A 1**, 831 (1984); M. P. van Albada, A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. **55**, 2692 (1985); P. E. Wolf, G. Maret, Phys. Rev. Lett. **55**, 2696 (1985).
- [6] E. Akkermans, P. E. Wolf, R. Maynard, G. Maret, J. Phys. France, **49**, 77 (1988).
- [7] A. F. Joffe, A. R. Regel, Prog. Semicond. **4**, 237 (1960).
- [8] P. W. Anderson, Phil. Mag. **52**, 505 (1985).
- [9] J. M. Drake, A. Z. Genack, Phys. Rev. Lett. **63**, 259 (1989).
- [10] M. P. van Albada, B. A. van Tiggelen, A. Lagendijk, A. Tip, Phys. Rev. Lett. **66**, 3131 (1991).
- [11] S. Fraden, G. Maret, Phys. Rev. Lett. **65**, 512 (1990).
- [12] S. Feng, C. Kane, P. A. Lee, A. D. Stone, Phys. Rev. Lett. **61**, 834 (1988).
- [13] H. Erbacher, Diss. Uni. Konstanz, 1992.
- [14] M. P. van Albada, J. F. de Boer, A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. **64**, 2787 (1990).
- [15] G. Maret, P. E. Wolf, Z. Phys. **B 65**, 409 (1987); D. Pine, D. A. Weitz, P. M. Chaikin, E. Herbolzheimer, Phys. Rev. Lett. **60**, 1134 (1988); X. Qiu, X. L. Wu, J. Z. Xue, D. J. Pine, D. A. Weitz, P. M. Chaikin, Phys. Rev. Lett. **65**, 516 (1990).
- [16] X. L. Wu, D. J. Pine, P. M. Chaikin, J. S. Huang, D. A. Weitz, J. Opt. Soc. Am. **B 7**, 15 (1990); D. Bicoût, E. Akkermans, R. Maynard, J. Phys. (France) I, **1**, 471 (1991).