

SAMENVATTING VOOR IEDEREEN

In dit proefschrift onderzoeken we de eigenschappen van licht(voortplanting) in een aantal dielektrische materialen. De studie van licht in zijn talrijke verschijningsvormen heeft in de natuurkunde altijd een uiterst voornamelijk plaats ingenomen. Een aantal fundamentele eigenschappen, zoals de lichtsnelheid en de golf/deeltje dualiteit stonden aan het begin van een aantal belangrijke omwentelingen, respectievelijk Einsteins speciale relativiteitstheorie (1905) en de quantummechanica (Planck's stralingswet en het foto-electrisch effect). Licht is een belangrijk (bij)verschijnsel in tal van takken van de natuurkunde en vaak een "diagnostisch instrument" om materialen te onderzoeken, van atomen tot systemen op grotere schaal. Het is verbluffend te zien hoe divers de problemen kunnen zijn die met licht te maken hebben, die alle weer om een andere aanpak vragen, ook al zijn de fundamentele wetten nu ruimschoots bekend.

Voor dit proefschrift zijn relativiteit en quantummechanica niet van belang, hoewel de bestudering van de laatste tot veel kennis omtrent golfverschijnselen heeft geleid die van direct toepasbaar nut is gebleken voor een klassieke beschrijving. Voor deze klassieke beschrijving gebruiken we de vergelijkingen zoals opgesteld door James Clerk Maxwell in de vorige eeuw, die met zijn theorie licht identificeerde als een electromagnetisch golfverschijnsel. Deze mijlpaal in de theoretische beschrijving maakte duidelijk dat elektrische en magnetische verschijnselen nauw met elkaar samenhangen, en dat zichtbaar licht (als onderdeel van het *electromagnetisch spectrum*) een elektrische en een magnetische component heeft.

Vragen die we ons nu stellen in dit werk hebben betrekking op licht in een medium waar oneindig veel atomen of moleculen de voortplanting van het licht beïnvloeden. Belangrijke aspecten van zo'n situatie zijn :

1. Licht wordt *verstrooid* aan de atomen en moleculen, d.w.z. het verandert grofweg gezegd van richting na een ontmoeting met een verstrooier.
2. Verschillende lichtgolven in een medium kunnen interfereren. Dit is een verschijnsel dat iedereen kent van watergolven: golven kunnen elkaar versterken of uitdoven al naar gelang de "buiken" dezelfde kant op staan of juist tegengesteld aan elkaar zijn.
3. Een extra complicatie bij deze interferentie is het feit dat licht polarisatie kent. Dit betekent dat het elektrisch en magnetisch veld waaruit het licht is opgebouwd een richting hebben die (in het eenvoudigste geval) beide loodrecht staan op de richting waarin het voortbeweegt. Met een polaroid zonnebril kan daglicht van een zekere polarisatie geselecteerd worden. Dit is goed te zien door twee polaroid zonnebrillen achter elkaar te houden. Wanneer ze loodrecht op elkaar staan laat de combinatie van glazen geen licht meer door.

Een praktijkvoorbeeld van lichtvoortplanting in een veelvoudig verstrooiend medium is het koplamplicht van een auto dat we zien in dichte mist. Naast de doorgaande (of *coherente*) bundel zien we een diffuse gloed. Dit is dus licht dat verscheidene malen verstrooid is aan de watermoleculen in de mist. De theorie van diffusie van licht is aanvankelijk vooral onderzocht in de astronomie, waar kennis van lichtvoortplanting door

(interstellaire) gaswolken essentieel is voor een goed begrip van ster-opbouw en -evolutie. Diffusie in zo'n medium waarin de moleculen kriskras door elkaar staan is vergelijkbaar met andere diffusie verschijnselen (bijvoorbeeld van een inktdruppel in water). Dat wil zeggen, de wiskunde achter deze verschijnselen is zeer analoog, maar het fysisch mechanisme kan heel anders zijn! Zo moet inkt-diffusie in water beschreven worden in termen van de mengende inkt- en water-moleculen, terwijl licht een golfverschijnsel is. De daarbij optredende interferentie (zoals genoemd in punt 2) kan tot belangrijke verschillen leiden.

In een wanordelijk, veelvoudig verstrooiend medium is diffusie meestal de praktijk. Dit verschijnsel is wiskundig te beschrijven met behulp van een zgn. *transport vergelijking*, hetgeen we doen in hoofdstuk 3. Hierbij is essentieel dat we middelen over alle configuraties die de atomen in het verstrooiende medium (de mist bijvoorbeeld) kunnen hebben.⁴ Bovendien doen we de volgende benadering: we nemen aan dat een golf geen correlatie heeft met andere golven. Zodra een verstrooiing heeft plaats gevonden is alle informatie erover verloren voor een volgende verstrooiing. Dit heet de Boltzmann benadering, die beter is naarmate de dichtheid van verstrooiers lager is. Men kan zich indenken dat bij hogere dichtheden interferentie van de verschillende componenten van het licht dit diffusie-beeld in zekere mate bijstellen.

In de vijftiger jaren opperde P.W. Anderson [5] dat voor zekere materialen met een hoge mate van wanorde, de veelvoudige verstrooiing van golven kan leiden tot *Anderson localisatie*. Dit wil zeggen dat de golven in alle richtingen exponentieel in amplitude afvallen en de golfvoortplanting wordt verhinderd! Om localisatie binnen het kader van transport theorie te onderzoeken moet men zeker verder gaan dan de Boltzmann benadering. Anderson, die in 1977 samen met Mott en Van Vleck de Nobel-prijs in ontvangst nam, onderzocht hier het geval van electronen (volgens de quantummechanica ook met behulp van een golf-functie te beschrijven). Localisatie van electronen leidt tot een oneindige elektrische weerstand, d.w.z. een localiserend materiaal is een isolator. Daar er tussen de meeste golfverschijnselen in de natuurkunde grote analogieën aan te wijzen zijn kan men localisatie in principe ook verwachten voor licht, al is dit tot op de dag van vandaag niet experimenteel aangetoond. Het blijkt dat localisatie voor electronen in zekere zin makkelijker te bereiken is dan voor licht. In dit proefschrift wordt de analogie tussen licht en electronen regelmatig gebruikt. Deze "heilige graal" heeft echter een hoop onderzoek naar veelvoudige verstrooiing van golven tot gevolg gehad en is het noemen daarom zeker waard. Een aantal effecten die verder gaan dan de Boltzmann benadering (waaronder *zwakke localisatie* [16, 17, 10, 7]), zijn intussen wel experimenteel goed onderzocht. De resultaten in dit proefschrift hebben niet direct betrekking op localisatie van licht (zie hiervoor bij voorbeeld [7, 118, 8]). Aan de andere kant bewandelen we in hoofdstuk 5 een alternatieve route om lichtvoortplanting te verhinderen. Hier kom ik straks op terug.

Na een inleidend hoofdstuk 1, behandelen we in hoofdstuk 2 enkele wiskundige aspecten van de Maxwell vergelijkingen. We kijken onder meer naar de bovengenoemde analogie met electronen, en zetten overeenkomsten en verschillen op een rijtje. Een belangrijk verschil is de afwezigheid van polarisatie bij electronen. In benaderende theorieën wordt polarisatie vaak verwaarloosd; dit wordt in dit proefschrift vermeden. Dit heeft tot gevolg dat de boekhouding formidabel kan worden en een compact formalisme

⁴Voor één configuratie van het medium is diffusie (nog) niet aangetoond!

is op zijn minst wenselijk. Daartoe beschouwen we het electromagnetisch veld als element van een Hilbert ruimte. De ontwikkeling van diverse wiskundige begrippen zoals de Greense functie en de verstrooiings operator kan hierdoor relatief gemakkelijk gedaan worden in nauwe analogie met het geval voor electronen. Ten slotte gaan we in op het begrip transversaliteit. Voor licht in een homogeen medium is het bekend dat electrisch en magnetisch veld loodrecht staan op de voortplantingsrichting: het is dan een transversaal golfverschijnsel. In een interessanter geval, een niet-homogeen medium is dit niet meer zo. In § 2.4 proberen we de meestvoorkomende misverstanden uit de weg te ruimen.

In hoofdstuk 3 behandelen we lichtdiffusie door een oneindig, wanordelijk, dielectrisch (niet-geleidend) medium. Het voornaamste doel is het afleiden van een diffusie constante D , een grootheid die aangeeft hoe snel licht diffundeert. De diffusie constante is op zijn beurt het product van een *transportsnelheid* v_E en een *transport vrije weglengte* l_{tr} . v_E is de snelheid waarmee electromagnetische energie in een wanordelijk dielectrisch materiaal propageert. Deze blijkt sterk beïnvloed te kunnen worden door verstrooiings resonanties. Nemen we als elementaire verstrooier bij voorbeeld een Mie bol (een homogeen dielectrisch bolletje van zekere straal) dan heeft deze talrijke geometrische resonanties die te maken hebben met een verhouding van golflengte (van het licht) en straal (van de bol). Op deze resonanties kan electromagnetische energie tijdelijk vastgehouden worden met het gevolg dat er vertraging optreedt: v_E kan wel eens een factor 10 kleiner zijn dan de fase-snelheid. Dit effect werd in '91-'92 ontdekt in Amsterdam [37, 38] en er wordt soms in de literatuur verwezen naar het 'Amsterdam effect'. In dit hoofdstuk geven we nog eens een afleiding van v_E binnen de context van de *vector* transport vergelijking (d.w.z. inclusief polarisatie).

Voorts geven we een afleiding van de transport vrije weglengte l_{tr} . (Dit doen we door gebruik te maken van onze transport vergelijking waarbij polarisatie is meegenomen.) Deze grootheid geeft aan hoe ver licht in ons medium reist voordat het vergeten is uit welke richting het gekomen is. We kunnen ons het diffusie proces soms voorstellen als een *random walk*: bij iedere ontmoeting met een verstrooier verandert het van richting. De gemiddelde afstand tussen twee verstrooiingen is daarom een belangrijke grootheid; deze wordt de verstrooiings vrije weglengte l_{sc} genoemd. Wanneer de verstrooier de licht-intensiteit echter op anisotrope wijze van richting doet veranderen (niet in elke richting even veel) kan het langer of juist korter duren tot de oorspronkelijke richting van het veld volkomen verdwenen is. Deze anisotropie bepaalt het verschil tussen l_{tr} en l_{sc} .

Het is gebruikelijk in transport theorie om transport grootheden (zoals de diverse weglengtes, de transport snelheid etc.) te ontwikkelen in ordes van de dichtheid van verstrooiers. Voor lage dichtheid n is dan de eerste en belangrijkste term evenredig met n . Wij vinden inderdaad de laagste orde in n , maar ook nog iets meer. We weten dat licht tussen twee opeenvolgende botsingen oscilleert. Wanneer er nu gedurende dit traject slechts enkele oscillaties plaats vinden, kunnen we ons voorstellen dat er een correlatie bestaat van het veld op de eerste en tweede verstrooier. Wanneer dit traject heel lang wordt (lage n) zal deze correlatie afnemen. Dit is een effect dat volgens onze berekeningen in principe gemeten moet kunnen worden, en een belangrijke invloed op l_{tr} kan hebben. Het bestaat uitsluitend voor vector-golven, d.w.z. het zal in een scalaire benadering (geen polarisatie) van licht niet gevonden worden. Daarbij moet echter aangetekend worden dat we weliswaar de invloed van *dit* hogere-orde-dichtheid effect kunnen berekenen, maar daarmee hebben we zeker nog niet alle hogere dichtheidseffecten

geïdentificeerd. Het is voor toekomstig onderzoek dus wenselijk deze te vinden. Dit zal echter niet direct mee vallen; het is erg moeilijk hogere-orde dichtheids effecten te berekenen voor bij voorbeeld Mie-bollen. Hoewel conceptueel een simpel model, is de wiskundige praktijk erg ingewikkeld. Om het leven wat eenvoudiger te maken wordt in veelvoudige verstrooiing van golven daarom vaak gegrepen naar puntverstrooiers: deze hebben geen ruimtelijk uitgebreidheid en zijn daardoor makkelijker hanteerbaar. Dit is het onderwerp van hoofdstuk 4. Voor onze hogere-dichtheids termen in l_{tr} merken we nu slechts nog op dat puntverstrooiers niet goed genoeg zijn; deze zijn in dat geval identiek aan nul. Daarom hebben we aardig wat rekenwerk moeten getroosten in hoofdstuk 3 om althans onze correctie termen voor Mie bollen te kunnen berekenen.

In hoofdstuk 4 diepen we de bovengenoemde puntverstrooiers uit. Het is begrijpelijk dat het in veelvoudige verstrooiing van belang is dat de "bouwsteen" waarop de berekeningen gebaseerd zijn (een enkele verstrooier) goed hanteerbaar is en voldoende fysische relevantie bezit. Puntverstrooiers hebben deze beide eigenschappen. We verwachten dat ze vooral dienst doen in situaties dat de golflengte van licht veel groter is dan de verstrooier. Dit is bij voorbeeld het geval bij atomen, die typisch 1000 maal kleiner zijn dan de golflengte van licht. Toch blijken puntverstrooiers ook in veel gevallen waar dit schaalverschil minder uitgesproken is een goed kwalitatief resultaat te geven.

De puntverstrooier formulering vraagt om enige voorzichtigheid: de puntvormigheid brengt divergenties (oneindigheden) met zich mee die behandeld moeten worden, echte verstrooiers hebben nu eenmaal eindige afmetingen. We kunnen deze divergenties nu vervangen door eindige waarden die zorgen dat de puntverstrooier zich gedraagt in overeenstemming met een echte verstrooier. Dit noemen we regularisatie. Het blijkt dat we twee regularisatie parameters nodig hebben om de verstrooiing vast te leggen. Het resultaat is een model (t-matrix) voor een twee-niveau atoom met een zekere resonantie frequentie en lijnbreedte (of algemener van een lineaire dipool verstrooier).

We bekijken vervolgens de lokale toestandsdichtheid van het electromagnetisch veld rond een puntverstrooier. Deze grootte wordt beïnvloed door de aanwezigheid van het atoom en is een maat voor de verval tijd van een geëxciteerd atoom op die plek. Dat wil zeggen: op plaatsen waar de lokale toestandsdichtheid kleiner is, zal de levensduur van het geëxciteerd atoom groter zijn. Dit betekent dat we *spontane emissie* kunnen onderdrukken door geschikte positionering van strooicentra. Spontane emissie is een belangrijke verliespost in bij voorbeeld zonnecellen; manipulatie ervan is van industrieel belang.

In hoofdstuk 5 zien we hoe we inderdaad een materiaal kunnen creëren dat voor bepaalde kleuren licht niet transparant is; in deze *kloof* wordt spontane emissie dan ook volledig onderdrukt. Dit doen we door een rooster volledig te vullen met puntverstrooiers. Dit rooster is dus het geordende medium in de titel van dit proefschrift.

Hoe stellen we ons dit in werkelijkheid voor? Men is tegenwoordig in staat atomen te koelen tot ultra-lage temperaturen. Dit gebeurt onder andere met behulp van lasers. Een stel gekruiste lasers kan zorgen voor een rooster-patroon waarbij de rooster constante gelijk is aan de golflengte van het veld. De atomen met een temperatuur van typisch enkele miljoenensten van een graad boven het absolute nulpunt (ongeveer -273°C) schikken zich vervolgens in dit rooster. In de praktijk blijkt het nog niet haalbaar zo'n rooster volledig bezet te krijgen. Vullingsfracties komen nu niet verder dan zo'n 10 %. Er zijn echter meer systemen denkbaar waarbij de elementaire verstrooier klein is

ten opzichte van de golflengte: colloïdale suspensies, zoals goudbolletjes in silica vormen een goede kandidaat.

De drie parameters van belang in ons model zijn de resonantie-frequentie en -breedte van de elementaire verstrooier, en de dichtheid van verstrooiers (de roosterconstante). We vinden dat voor voldoende hoge dichtheid een kloof in het spectrum altijd bestaat (met een breedte van de orde van de breedte van de atomaire lijnbreedte). We berekenen voor dit systeem de bandenstructuur en de (lokale) toestandsdichtheid.