

Summary

This thesis is concerned with the experimental and theoretical aspects of multiple scattering of light in both strongly scattering and amplifying random media. In chapter 2, an introduction to multiple light scattering theory is given. The theoretical concepts relevant for this thesis are explained and the backscattered intensity from a disordered medium with absorption is calculated explicitly. The bistatic coefficients describing coherent backscattering are presented in a form which allows for a comparison between the absorption case and the case of an amplifying random medium (treated in chapter 6).

In chapter 3, a new technique called ‘off-centered rotation’ is described to perform coherent backscattering experiments. This technique allows for recording the shape of the backscattering cone in a reliable and accurate way. The scanning range is about 500 mrad which includes exact backscattering, and the angular resolution is 50-100 μ rad. This means the ratio between angular resolution and scanning range is of the order 1:10,000. We have used this technique to record backscattering cones from various samples in the weak scattering regime. It allowed us to record the theoretical enhancement factor of two in the helicity conserving polarization channel. The shape of the cone was compared with the theoretical expressions from diffusion theory and with the exact scalar solution. Very good agreement with diffusion theory was found for various measurements.

In chapter 4, light scattering from very strongly scattering samples is studied. By performing coherent backscattering experiments, experimental evidence is found for recurrent scattering of light waves. The availability of the technique of off-centered rotation allows for a determination of the enhancement factor versus the (scaled) scattering mean free path. We find an enhancement factor of 2.00 ± 0.01 in the weak scattering regime. At very strong scattering (i.e. for $k\ell_s < 10$), the enhancement factor is found to drop below 2.00. This deviation is interpreted as a manifestation of recurrent scattering. A calculation on the enhancement factor including recurrent scattering from two particles, confirms this interpretation.

In chapter 5, amplifying random media are discussed. We go into the experimental considerations on realizing such media. Different laser materials and excitation schemes are discussed and results on powdered ruby and Ti:sapphire crystals are given. We find that with powdered Ti:sapphire, amplifying random samples can be realized with transport mean free paths down to $20\text{ }\mu\text{m}$ and gain lengths of the order of 10 mm. We examine the theoretical aspects of amplifying random media by solving numerically the set of diffusion and rate equations describing light propagation in a powdered laser crystal. Under certain conditions, the spontaneously emitted light from such a medium is found to exhibit a pulsed behaviour. Finally, random laser action is discussed.

In chapter 6, experiments are described on amplifying random media. We have recorded laser speckle patterns from pumped Ti:sapphire powders. We find that upon increasing the gain the speckle pattern persists but changes. Furthermore, a study on coherent backscattering from an amplifying random medium is presented. We find that the central region of the backscattering cone narrows down upon increasing the gain, due to the increased importance of the longer light paths. The enhancement factor remains unchanged. Also a calculation is performed on coherent backscattering from an amplifying random medium in the diffusion approximation. Very good agreement between data and theory is found.

Samenvatting voor iedereen

Dit proefschrift gaat over licht in wanordelijke media. Een voorbeeld van een wanordelijk medium is dichte mist. Het licht van bijvoorbeeld de koplamp van een auto wordt in dichte mist diffuus: de lichtstralen die door de koplamp worden uitgezonden worden op een willekeurige manier van richting veranderd door de waterdruppels. Deze richtingsverandering noemen we verstrooiing. In dichte mist zal het licht vele malen verstrooid worden. Een ander voorbeeld van een wanordelijk medium is witte verf. Witte verf bestaat uit een willekeurige opeenstapeling van kleine korreltjes die, net als water druppels, het licht verstrooien.

Je kunt je afvragen hoe licht zich voortplant in een wanordelijk medium zoals mist. Als je op een kleine schaal kijkt, is dit een zeer ingewikkeld probleem: een afzonderlijke lichtstraal wordt vele malen van richting veranderd door de grote hoeveelheid waterdruppels. Op grote schaal lijkt het probleem echter heel simpel: het licht vormt gewoon een diffuse ‘gloed’. Er is echter meer aan de hand. Omdat licht zich gedraagt als een golf kan er namelijk interferentie optreden. Wat is interferentie ?

Interferentie is een effect dat kan optreden voor elk soort golf, zoals licht, geluid, radiogolven of golven in het water, en ontstaat als twee of meer golven bij elkaar komen. Als er in een concertzaal (met een te droge akoestiek) op twee fluiten precies dezelfde toon gespeeld wordt, dan hangt wat je hoort af van waar je zit in de zaal. Hoe de geluidsgolven van de twee fluiten optellen, hangt namelijk af van hun onderlinge ‘fase’. Als de beide golven net dezelfde beweging maken als ze elkaar tegen komen, werken ze samen en ontstaat er een sterkere beweging. De golven zijn dan ‘in fase’ en de interferentie is constructief. Het totale geluid dat je dan hoort is heel hard. Als ze daarentegen net een tegengestelde beweging maken heffen ze elkaar op. Ze zijn dan ‘uit fase’ met elkaar en de interferentie heet destructief. Je hoort in dat geval helemaal niets. Als je door de concertzaal loopt, kom je afwisselend op plaatsen waar de golven constructief optellen en waar ze elkaar uitdoven, en je hoort het geluid dus harder en zachter worden.

Interferentie kan ook optreden voor lichtgolven. Stel, we nemen een scherm met twee nauwe spleten erin, en belichten dat aan de achterkant met een zaklamp. De spleten zijn vergelijkbaar met de fluiten in het bovenstaande voorbeeld voor geluidsgolven. Beide spleten zullen aan de voorkant van het scherm lichtgolven uitzenden. Net als bij de fluiten zal op verschillende plaatsen het licht constructief of destructief interfereren. Als je het licht dat van de twee spleten afkomt op een wit stuk papier laat vallen, zie je lichte en donkere lijnen, corresponderend met de plaatsen waar de lichtgolven respectievelijk constructief optellen of elkaar opheffen. Bovendien, als je de spleten verder van elkaar brengt komen de lichte en donkere lijnen dichter bij elkaar en omgekeerd. Dit is een beroemd experiment dat voor het eerst uitgevoerd is door Thomas Young (1773–1829).

Interferentie van licht treedt ook op als het licht verstrooid wordt in bijvoorbeeld mist of witte verf. Een belangrijk voorbeeld daarvan is ‘coherente terugverstrooiing’. Als we met bijvoorbeeld een halogeen spotje van een afstand schijnen op een wit geverfde muur, dan zal de witte verf het licht in alle richtingen verstrooien: vanaf iedere plaats in de kamer zie je een lichte plek op de muur. Als je echter precies op de plaats van het spotje zou kunnen gaan staan, zou je iets bijzonders zien. Voor het licht dat van de muur terug naar het halogeen spotje wordt verstrooid, treedt er namelijk constructieve interferentie op. In de richting terug naar het spotje (genoemd de ‘terugstrooirichting’), wordt er meer licht verstrooid dan in alle andere richtingen. Waar komt dit effect vandaan?

Laten we eens twee punten beschouwen in het belichte oppervlak van de verf. Er is licht dat op het ene punt invalt, en na een wanordelijke wandeling door de verf vanaf het andere punt weer naar buiten komt. Er is echter ook licht dat precies het omgekeerde doet. Als het licht in beide gevallen hetzelfde pad afgelegd heeft, is het als het naar buiten komt nog steeds in fase. De twee punten op het oppervlak kan je dan vergelijken met de twee spleten in het experiment van Young. Het licht dat van deze twee punten afkomt zal ook lichte en donkere strepen geven. Ieder stel punten in het belichte oppervlak van de verf geeft een dergelijk streeppatroon. Het totale verstrooide licht is dus de som van een heleboel streeppatronen, die variëren van heel fijn tot heel grof. Net als in het experiment van Young, wordt de afstand tussen de strepen in een patroon bepaald door de afstand tussen de twee punten in het belichte oppervlak, en de afstand tussen die twee punten hangt natuurlijk weer samen met de weg die het licht door het medium heeft gevolgd. Alle streeppatronen hebben echter één ding gemeen: in de richting terug naar het halogeen spotje vind je altijd een *lichte* streep. Daarom is de hoeveelheid licht die in die richting wordt verstrooid groter dan de hoeveelheid licht in andere richtingen. Om

coherente terugverstrooiing waar te nemen is lastig, omdat je de verstrooide hoeveelheid licht wilt meten op de plaats van de lichtbron (het spotje) en dicht daaromheen. Hoe je dat toch nauwkeurig kunt doen is beschreven in hoofdstuk 3.

Laten we het eens zwart-wit zien. Als licht op een voorwerp valt, kan het behalve verstrooid ook geabsorbeerd worden. Als al het licht geabsorbeerd wordt, is een voorwerp zwart. Als het gedeeltelijk geabsorbeerd en gedeeltelijk verstrooid wordt, dan is een voorwerp grijs. Als er helemaal geen absorptie optreedt, dan is een voorwerp perfect wit. In het dagelijks leven echter absorberen alle voorwerpen tenminste een klein beetje.

In dit proefschrift worden twee soorten wanordelijke media onderzocht. Het eerste is een medium dat verstrooit en waarin het omgekeerde van absorptie plaatsvindt: versterking. Wat gebeurt er als de hoeveelheid licht *meer* in plaats van minder wordt bij verstrooiing aan een voorwerp? Het voorwerp is dan pas echt wat men altijd met wasmiddelen claimt te bereiken: witter dan wit! In het eerste deel van hoofdstuk 5 wordt uitvoerig ingegaan op het maken van een dergelijk medium. Ik gebruik daartoe een kristal van het materiaal titaan-saffier dat ook gebruikt wordt voor een laser. Dergelijke kristallen zijn in staat om licht te versterken, hetgeen ook het principe is waar een laser op berust. Om dit kristal licht te laten versterken moet het eerst ‘opgeladen’ worden met een sterke lichtpuls. Als er daarna een tweede (zwakkere) puls op het verpoederde kristal valt, zal deze tweede puls zowel verstrooid als versterkt worden. Nadat het mogelijk was om een versterkend wanordelijk medium te maken, ben ik experimenten met dergelijke media gaan doen, waaronder metingen aan coherente terugverstrooiing. Deze metingen met de bijbehorende theorie staan beschreven in hoofdstuk 6.

Om meer inzicht te krijgen in het gedrag van versterkende wanordelijke media, heb ik numerieke berekeningen aan een dergelijk medium gedaan. Het is bijvoorbeeld interessant om te kijken wat er gebeurt als er in het opgeladen medium zoveel versterking plaatsvindt dat er per seconde meer licht ontstaat dan dat er weg kan stromen. Dan wordt de hoeveelheid licht zeer snel erg groot. Deze situatie kan echter niet onbeperkt blijven bestaan, en als het medium ‘leeg’ is neemt de hoeveelheid licht weer snel af. Dit proces kan zich een aantal malen herhalen als het medium steeds weer opnieuw opgeladen wordt, en het resultaat is dat het medium gepulst licht uitzendt. Dit staat beschreven in hoofdstuk 5. Aan het einde van dat hoofdstuk wordt ook besproken in hoeverre dit systeem gezien kan worden als een ‘wanordelijke laser’.

Behalve versterkende media heb ik ook zeer sterk verstrooiende media bestudeerd. Een sterk verstrooiend medium is een medium waarin een licht-

straal zeer vaak achter elkaar verstrooid wordt. De lichtstraal kan zich dus steeds maar over zeer kleine afstanden vrij voortplanten voordat hij alweer van richting wordt veranderd. Die afstand waarover een lichtstraal zich gemiddeld vrij kan voortplanten in een medium, wordt de ‘verstrooiings-vrijeweglengte’ genoemd. De verstrooiings-vrijeweglengte geeft dus de mate aan waarin een medium verstrooit. Merk op dat een *kleine* verstrooiings-vrijeweglengte een *grote* mate van verstrooiing betekent.

Als nu een medium zo sterk verstrooit dat de verstrooiings-vrijeweglengte van dezelfde orde van grootte wordt als de golflengte van het licht, ontstaat er een vreemde situatie. Een lichtgolf kan zich dan niet eens meer vrij voortplanten over de afstand van één golflengte. In deze situatie zou er wat genoemd wordt ‘Anderson lokalisatie’ op kunnen treden. Dit is een interferentie-effect waarnaar al een tijd gezocht wordt. Door de zeer sterke verstrooiing zou al het licht langs gesloten paden (‘lussen’) gaan lopen en daarmee in het medium opgesloten (gelokaliseerd) zijn. Door coherente terugverstrooiing van een sterk verstrooiend medium te bestuderen, hebben we experimenteel bewijs gevonden dat er licht langs gesloten paden kan gaan lopen. Dit wordt beschreven in hoofdstuk 4.

Wat in de nabije toekomst interessant kan zijn, is de combinatie van zeer sterke verstrooiing met versterking. Ten gevolge van versterking worden lange paden in een medium belangrijker: hoe langer een pad, hoe groter de totale versterking langs het pad is. Door zeer sterke verstrooiing en versterking te combineren zou het effect van de gesloten paden misschien zo belangrijk kunnen worden dat Anderson lokalisatie van licht optreedt.