

Zufallslaser – strahlende Unordnung

Eine neue Klasse von Lasern und ihre theoretische Beschreibung

Gregor Hackenbroich

Zufallslaser sind eine neue Klasse von Lasern, in denen Licht durch Vielfachstreuung in einem ungeordneten Medium rückgekoppelt wird. Zum theoretischen Verständnis dieser Laser müssen Methoden der Quantenoptik mit Konzepten des Wellenchaos kombiniert werden.

Mehr als vierzig Jahre nach der Entdeckung des Laserprinzips steht uns heute eine Vielzahl von Lasertypen und Lasermaterialien zur Verfügung. Der Laserprozess in all diesen Substanzen beruht auf der Kombination von Lichtverstärkung in einem optisch aktiven Medium mit der Rückkopplung durch einen Resonator. In Helium-Neon-Lasern beispielsweise befindet sich das aktive Gasgemisch zwischen den beiden Spiegeln eines Fabry-Perot-Resonators (Abb. 1a). Lichtwellen werden zwischen den Spiegeln hin und her reflektiert und treffen dabei auf Neonatome, die durch Stöße mit energiereichem Helium in angeregte Energieniveaus gebracht worden sind. Durch stimulierte Emission kann angeregtes Neon wieder in den Grundzustand übergehen. Dabei wird ein Photon mit der gleichen Wellenlänge und Bewegungsrichtung emittiert wie die Photonen der einfallenden Welle. Auf diese Weise werden Lichtwellen, die parallel zum Einfallslot der Spiegel verlaufen, immer wieder reflektiert und durch stimulierte Emission verstärkt. Durch Verstärkung und Rückkopplung bilden sich zwischen den Spiegeln stehende Wellen. Die zugehörigen Wellenlängen werden durch die Bedingung festgelegt, dass sich die reflektierten Wellenzüge konstruktiv überlagern. Ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge entspricht deshalb dem doppelten Spiegelabstand. Zur Auskopplung der Strahlung wird einer der Spiegel teildurchlässig gewählt. Durch ihn verlässt intensives und kohärentes Licht mit einheitlicher Wellenlänge, Richtung und Phase den Laser.

In herkömmlichen Lasern wird große Sorgfalt auf die korrekte Ausrichtung der Spiegel gelegt. Störungen der Lichtwellen durch Rauigkeiten der Spiegeloberflächen oder durch Streuung im aktiven Medium werden minimiert. Ein grundlegend anderer Weg zur Erzeugung von Licht wird mit einer neuen Klasse von Lasern beschritten. Diese Laser kommen ohne Spiegel aus; die Rückkopplung beruht hier auf der Vielfachstreuung von Licht in einem stark ungeordneten dielektrischen Medium. Weil sich die Ausbreitungsrichtung von Lichtwellen bei den einzelnen Streueignissen in unvor-

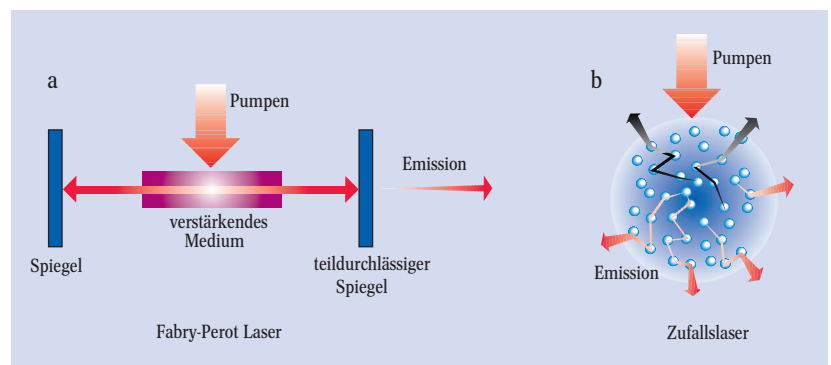


Abb. 1:

In Fabry-Perot-Lasern (a) sorgt die Reflexion an Spiegeln für die Rückkopplung. Langlebige Lasermoden verlaufen entlang der optischen Achse. Zufallslaser (b) haben keine Spiegel. Die Rückkopplung kommt durch Vielfachstreuung von Licht in einem ungeordneten Dielektrikum zustande. Zufallslaser emittieren in der Regel in den gesamten Raumwinkel. In

beiden Lasertypen beruht die Verstärkung auf einem aktiven Medium. Durch optisches oder elektrisches Pumpen wird eine Besetzungszahlinversion aufgebaut. Die Energiedifferenz $E_2 - E_1 = \hbar\omega$ zwischen dem angeregten Niveau E_2 und dem tiefer liegenden Niveau E_1 definiert die Übergangsfrequenz ω des aktiven Mediums. In

hersehbarer Weise zufällig ändert, bezeichnet man die neuartigen Laser als Zufallslaser (Abb. 1b).

Wie ist es möglich, Laserlicht mit scharfer Wellenlänge und wohldefinierter Phase in ungeordneten Medien zu erzeugen? Wie unterscheidet sich das Licht eines Zufallslasers von dem Licht herkömmlicher Laser und von dem inkohärenten Licht gewöhnlicher Glühbirnen? Wie weit reicht das theoretische Verständnis? Dieser Artikel fasst den Stand der Diskussion zusammen. Zu Beginn wird die experimentelle Signatur des Zufallslasers beschrieben. Es folgt ein Überblick über die Entwicklung der theoretischen Konzepte. Abschließend bespreche ich offene Probleme und mögliche praktische Anwendungen.

Experimentelle Ergebnisse

In herkömmlichen Lasern ist Lichtstreuung unerwünscht, da Photonen aus den lasenden Moden herausgestreut werden. Andererseits haben stark streuende, ungeordnete Medien einen positiven Effekt, da durch Vielfachstreuung die Weglänge der Photonen im aktiven Medium vergrößert wird. Dies erhöht die Wahrscheinlichkeit für stimulierte Emission und unterstützt damit die Verstärkung von Licht. Welchen Effekt auf die Lasertätigkeit hat also die Streuung von Licht? Zum ersten Mal wurde diese Frage bereits Ende der

Priv.-Doz. Dr. Gregor Hackenbroich,
Universität Duisburg-Essen, Campus
Essen, Fachbereich
Physik, 45117 Essen

sechziger Jahre des vergangenen Jahrhunderts von einer Gruppe sowjetischer Physiker um den Laserpionier und Nobelpreisträger N. G. Basov untersucht [1]. Sie ersetzten einen Spiegel eines Fabry-Perot-Resonators durch eine streuende raue Oberfläche. Dort auftreffendes Licht wird in verschiedene Richtungen reflektiert. Wellenpakete werden aufgeweitet und kehren schon nach wenigen Umläufen durch den Resonator nicht mehr zu ihrem Ausgangspunkt zurück. Dadurch wird die konstruktive Interferenz langlebiger Moden entlang der optischen Achse unterdrückt. Das Experiment zeigt, dass das Spektrum streuender Spiegelsysteme sich grundlegend von dem gewöhnlicher Laserresonatoren unterscheidet: Man beobachtet keine scharfen Resonanzen bei geometrieabhängigen Frequenzen. Stattdessen findet man ein kontinuierliches Spektrum, wie es zu erwarten ist, wenn viele kurzlebige Moden spektral überlappen.

In den Experimenten von Basov und Mitarbeitern diente ein Rubin-Kristall als aktives Medium. Durch Beleuchtung mit einer Blitzlampe wurde das Medium gepumpt und Licht mit Wellenlängen in der Nachbarschaft des Laserübergangs verstärkt. Die spektroskopische Breite des Übergangs entsprach bei schwachem Pumpen der natürlichen Linienbreite $\Delta\nu = 1/\tau$ durch die endliche Lebensdauer des angeregten Zustands. Mit anwachsender Pumpstärke nahm die Linienbreite ab. Der Prozess lief jedoch erheblich langsamer ab als in gewöhnlichen Lasern. Im Output konnte weder räumliche noch zeitliche Kohärenz nachgewiesen werden. Der Begriff der Kohärenz ist von zentraler Bedeutung für die Charakterisierung von Laserstrahlung; er wird im Infokasten auf Seite 28 erläutert. Laserstrahlung zeichnet sich durch eine extrem hohe Kohärenz aus.

Das Problem streuender und ungeordneter verstärkender Medien blieb zunächst eine Randnotiz in der Entwicklung der Laserphysik und geriet nach 1970 fast völlig in Vergessenheit. In der Festkörperphysik hingegen entwickelte sich die Untersuchung ungeordneter Elektronensysteme zu einem wichtigen Forschungsgebiet. Die Anderson-Lokalisierung von Elektronen in räumlich zufällig variierenden Potentialen wurde intensiv untersucht. Es stellte sich heraus, dass die gewöhnliche diffusive Bewegung von Elektronen zum Stillstand kommt, wenn die Unordnungsstärke einen kritischen Wert übersteigt. An diesem Wert kommt es zur Anderson-Lokalisierung: Das ungeordnete Material geht von einem elektrisch leitenden in einen elektrisch isolierenden Zustand über. Die fundamentale Ursache der Anderson-Lokalisierung ist ein Quanten-Interferenzphänomen. Vielfach rückgestreute elektronische Wellenpakete können konstruktiv überlagern. Oberhalb einer kritischen Unordnungsstärke werden dadurch alle Eigenfunktionen lokalisiert, d. h. die Eigenfunktionen fallen um ihren Maximalwert herum in alle Raumrich-

tungen exponentiell ab. Es stellte sich die Frage, ob sich nicht nur quantenmechanische Wellen, sondern auch klassische Wellen wie Mikrowellen und Licht durch Unordnung lokalisieren ließen.

Zur experimentellen Beantwortung dieser Frage wurden ungeordnete Dielektrika entwickelt, in denen die dielektrische Funktion $\epsilon(r)$ zufällig im Raum fluktuiert. Im Jahr 1994 experimentierte Lawandy mit einer Lösung aus einem Laserfarbstoff und streuenden Titandioxid-Mikroteilchen und realisierte auf diese Weise erstmals ein verstärkendes optisches Medium ganz ohne Spiegel [2]. Das Experiment lieferte klare Hinweise auf laserartiges Verhalten: Oberhalb einer wohldefinierten Pumpschwelle stieg die ausgestrahlte Lichtintensität viel stärker mit der Pumpstärke an als unterhalb der Schwelle. An der Schwelle kollabierte die Breite der Emissionslinie um mehr als eine Größenordnung. Eine Dichteerhöhung der streuenden Teilchen führte zu einer deutlichen Reduktion der Pumpschwelle. Andererseits blieb das Emissionsspektrum selbst oberhalb der Schwelle relativ breit und strukturlos. Anders als in gewöhnlichen Lasern fanden sich keine quasi-diskreten Laser-Peaks. Handelte es sich nun um Laseroszillationen durch Verstärkung und Rückkopplung oder nur um linear verstärkte spontane Emission?

Die endgültige Bestätigung für die Existenz von Zufallslasern brachte eine Serie von Messungen an Halbleiter-Pulvern und polykristallinen Filmen in der Gruppe von Hui Cao [3] sowie davon unabhängige Experimente mit ungeordneten Polymerfilmen von Vardeny und Mitarbeitern [4]. Beobachtet wurden nicht nur ein Schwellenverhalten für die Lichtintensität und die spektrale Linienbreite, sondern erstmals auch scharfe Laserlinien. Die Daten in Abb. 2 wurden an Filmen aus Zinkoxid-Pulvern gewonnen. Die elektronenmikroskopische Aufnahme (Abb. 3) zeigt die polykristalline Struktur der Probe. Zinkoxid diente sowohl als streuendes als auch als aktives Medium. Bei geringer Pumpstärke findet man im Emissionsspektrum eine breite Erhöhung durch ver-

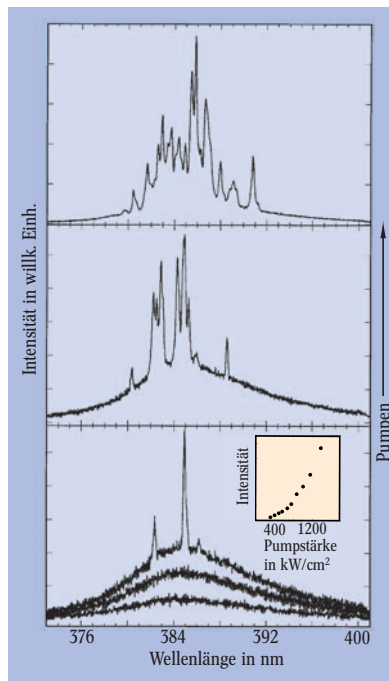


Abb. 2: Emissionsspektrum eines optisch gepumpten ZnO-Pulvers. Die Pumpstärke beträgt (von unten nach oben) 400, 562, 765, 875 und 1387 kW/cm². Oberhalb der Laserschwelle beobachtet man scharfe Laser-Peaks. Das Inset zeigt, dass die Lichtintensität oberhalb der Laserschwelle stärker mit der Pumpstärke anwächst als unterhalb.

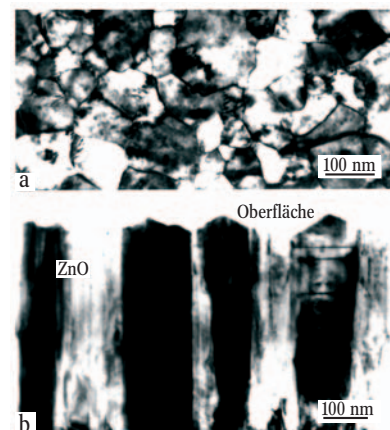


Abb. 3: Mikroskopische Aufnahme eines ZnO-ZufallsLasers, (a) Aufsicht, (b) Seitenansicht. Deutlich sichtbar ist die polykristalline Struktur der Probe. Im Experiment wird der Laser optisch gepumpt.

stärkte spontane Emission. Mit wachsender Pumpstärke wird das Spektrum schmäler. Beim Überschreiten der Pumpschwelle treten scharfe Laser-Peaks auf. Die Zahl der Peaks nimmt mit wachsender Pumpstärke stark zu. Die Photonenzahlstatistik innerhalb eines Peaks zeigt einen Übergang von thermischem Verhalten unterhalb der Laserschwelle zu einer Poisson-Verteilung oberhalb der Schwelle. Die Poisson-Statistik ist das erwartete Verhalten für einen Einmoden-Laser weit oberhalb der Laserschwelle (siehe Infokasten).

Anders als gewöhnliche Laser emittieren Zufalls-laser in alle Richtungen. Messungen in anderen Raumwinkeln liefern ähnliche Spektren wie in Abb. 2, jedoch sind die Frequenzen der Laser-Peaks verschoben. Ein ähnliches Bild ergibt sich, wenn man durch optisches Pumpen andere Regionen der Probe anregt: Die Position der Laser-Peaks ändert sich unter einer Verschiebung des Pumpstrahls. Verantwortlich für dieses Verhalten ist die Unordnung innerhalb des Lasermediums. Unterschiedliche Regionen der Probe „sehen“ verschiedene Ausprägungen der Unordnung. Mit der Unordnungs-konfiguration ändert sich auch die Ausstrahlungsrichtung der lasenden Moden. Das Emissions-spektrum variiert deshalb je nach Anregungspunkt und Abstrahlwinkel.

Seit seiner Entdeckung im Jahr 1998 ist Zufalls-laser in zahlreichen Materialien beobachtet worden, u. a. in Halbleiterpulvern und -filmen, in Halbleiter-Clustern, in nanostrukturierten Gittern, in Polymerfilmen und in Lösungen von Nanopartikeln mit Laserfarbstoffen. Vermessen wurden nicht nur Spektren, sondern auch räumlich und zeitlich aufgelöste Korrelationen von Amplitude und Intensität des elektrischen Feldes. Der Stand der Experimente wird in dem aktuellen Übersichtsartikel [5] dokumentiert.

Erste Ideen: Photonenbombe

Die Grundlagen für das Verständnis ungeordneter verstärkender Medien wurden parallel zu den ersten Experimenten zwischen 1965 und 1970 gelegt. Basovs Mitarbeiter Vladilen Letokhov formulierte als erster das Konzept eines Zufalls-lasers [6]. Seiner Idee zufolge sollte die Rückkopplung von Licht durch Diffusion zustande kommen: Das im ungeordneten Medium propagierende Licht wird vielfach gestreut. Durch Rückstreuung kann es für lange Zeit „eingefangen“ werden und verbleibt dadurch um Größenordnungen länger innerhalb des verstärkenden Mediums als bei direktem Austritt ohne Streuung. Ein Maß für die Stärke der Unordnung ist die freie Weglänge l_f . Das ist die Distanz, die ein Wellenpaket im Mittel propagiert, bevor seine Ausbreitungsrichtung durch Streuung verwischt wird. Auf Längenskalen größer als l_f breitet sich das Wellenpaket diffusiv mit der Diffusionskonstanten $D = v l_f/3$ aus, wobei v die Lichtgeschwindigkeit im Medium bezeichnet. In ungeordneten Medien mit einer Ausdehnung $L \gg l_f$ gilt die Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial n(\mathbf{r}, \omega, t)}{\partial t} = D \nabla^2 n(\mathbf{r}, \omega, t) + \frac{v}{l_g} n(\mathbf{r}, \omega, t) \quad (1)$$

für die spektrale Photonendichte $n(\mathbf{r}, \omega, t)$. Diese ist die fundamentale Größe der Diffusionstheorie. Sie bestimmt die Zahl der Photonen $n(\mathbf{r}, \omega, t) d\mathbf{r} d\omega$, die sich im Volumenelement $d\mathbf{r} = dx dy dz$ um den Punkt \mathbf{r} befinden und eine Frequenz im Intervall $[\omega, \omega + d\omega]$ haben. Der letzte Term auf der rechten Seite von Gleichung (1) trägt dem Gewinn durch stimulierte Emission bzw. den Verlusten durch Absorption Rechnung. Überwiegt der Gewinn, ist die Gewinnlänge l_g positiv, überwiegen die Verluste durch Absorption, ist l_g negativ. Die Gewinnlänge ist eine Funktion der Frequenz und erreicht ihren Maximalwert bei der Übergangsfrequenz des aktiven Mediums.

Zur Lösung der Diffusionsgleichung müssen Randbedingungen festgelegt werden. Weit außerhalb des Mediums ist die Photonendichte sehr klein. Am Rand des Mediums ist sie aber von null verschieden, da Photonen durch die Grenzfläche nach außen abgestrahlt werden. Die detaillierte Form der Randbedingungen hängt von der Geometrie des streuenden Mediums ab. Exakte Lösungen für einfache Geometrien zeigen aber übereinstimmend, dass der linear nach außen hin extrapolierte Photonfluss in einem Abstand von weniger

partikeln und einem Laserfarbstoff in Methanol. Die durchgezogenen Linien sind theoretische Ergebnisse basierend auf Ratengleichungen [7].

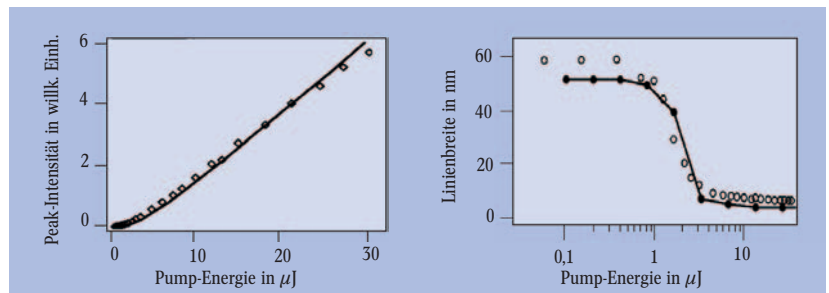


Abb. 4: Peak-Intensität und Linienbreite verstärkender ungeordneter Medien als Funktion der Pump-Energie. Die (offenen) Rauten und Punkte repräsentieren Messungen an einer Lösung von TiO_2 -Nanopartikeln und einem Laserfarbstoff in Methanol. Die durchgezogenen Linien sind theoretische Ergebnisse basierend auf Ratengleichungen [7].

als der freien Weglänge l_f auf null abfällt. Da die Ausdehnung L des Mediums viel größer ist als l_f , können wir in guter Näherung fordern, dass $n(\mathbf{r}, \omega, t)$ am Rand des Mediums verschwindet.

Die Lösungen der Diffusionsgleichung lassen sich nach der Separation in einen räumlichen und einen zeitlichen Anteil finden. Die spektrale Photonendichte ist die Superposition dieser Lösungen

$$n(\mathbf{r}, \omega, t) = \sum_k a_k \psi_k(\mathbf{r}) \exp\left[-(DB_k^2 - v/l_g)t\right] \quad (2)$$

mit Koeffizienten a_k , die durch die Anfangsverteilung $n(\omega, \mathbf{r}, 0)$ zum Zeitpunkt $t=0$ bestimmt sind. Die Funktionen ψ_k erfüllen die oben diskutierte Randbedingung und werden ebenso wie die reellen Eigenwerte B_k mit dem diskreten Index k durchnummeriert. Gemäß Gleichung (2) ist die spektrale Photonendichte eine Summe von Beiträgen, die mit der Zeit entweder exponentiell zerfallen oder anwachsen. Der Faktor $\exp(-DB_k^2 t)$ trägt der Diffusion von Photonen aus dem Medium heraus Rechnung und sorgt immer für einen Abfall der Dichte. Der zweite Faktor $\exp(vt/l_g)$ wirkt der Abnahme entgegen, wenn der Gewinn durch stimulierte Emission die Absorptionsverluste im Medium kompensiert. Oberhalb einer Laserschwelle geht der Zerfall der Photonendichte in ein exponentielles Wachstum über. Die Schwelle wird durch die Bedingung $DB_1^2 - v/l_g = 0$ festgelegt, wobei B_1 der kleinste Eigenwert ist.

Die Eigenwerte B_k hängen von der Geometrie des Streumediums ab. In einfachen Fällen lassen sie sich exakt berechnen. Für ein kugelförmiges Medium mit dem Durchmesser L findet man $B_1 = 2\pi/L$. Hat das Me-

dium die Form eines Würfels mit der Kantenlänge L , so ist $B_1 = \sqrt{3}\pi/L$. In beiden Fällen ist B_1 von der Ordnung $1/L$. Es zeigt sich, dass dieser Zusammenhang allgemeiner gilt: Für eine beliebige Gestalt des Streumediums hat der kleinste Eigenwert den Wert $B_1 = C/L$, wobei C eine geometrieabhängige Konstante ist. Das Einsetzen dieses Resultats in die Schwellenbedingung liefert das kritische Volumen $V_{kr} = L^3 = (l_g/3C^2)^{3/2}$. Ist das Volumen des Streumediums größer als das kritische Volumen, so wächst die Photonendichte exponentiell an.

Wie lässt sich dieses Resultat intuitiv verstehen? Verstärkende ungeordnete Medien werden durch zwei Längenskalen charakterisiert. Die erste ist die Verstärkungslänge $L_{ver} \approx l_g$. Sie misst die mittlere Strecke, die ein Photon im Medium zurücklegt, bevor es die Emission eines zweiten Photons anregt. Die zweite Skala ist die typische Weglänge L_{weg} , die ein Photon im Medium durchläuft, bevor es nach Außen entkommt. Sie ist das Produkt aus der Lichtgeschwindigkeit und der Aufenthaltszeit im Medium. Diese wächst aufgrund der zufälligen diffusiven Bewegung quadratisch mit dem Durchmesser L an und nicht linear, wie bei einer geradlinigen ballistischen Bewegung. Eine Analyse der Diffusionsgleichung liefert $L_{weg} \approx vL^2/D$. Die Bedingung $V \geq V_{kr}$ ist gleichbedeutend mit $L_{weg} \geq L_{ver}$. Ist diese Bedingung erfüllt, so erzeugt ein Photon im Mittel mindestens ein weiteres, bevor es in die Umgebung abgestrahlt wird. Das neue Photon erzeugt weitere Photonen, usw. Die resultierende Photonenzahl wächst exponentiell an. Die Proliferation von Photonen ist verwandt mit der Erzeugung von Neutronen in Kernreaktoren und Atombomben. Dies spiegelt sich in dem Begriff photonische Bomben wider, der in den ersten Diskussionen verstärkender ungeordneter Medien geprägt wurde.

Bilanzgleichungen

Reale Zufalls laser sind keine photonischen Bomben. Der von der Diffusionstheorie vorhergesagte exponentielle Zuwachs der Photonenzahl wird durch den Einfluss des aktiven Mediums begrenzt: Die wachsende Lichtintensität regt mehr aktive Atome zur Lichtemission an. Dadurch wächst der Anteil der Atome im Grundzustand, sodass die Photonen länger im Medium diffundieren müssen, bevor sie auf angeregte Atome treffen. Die Gewinnlänge l_g nimmt zu. Anders als im Diffusionsmodell angenommen, ist l_g also eine Funktion der Lichtintensität. Aus dem linearen Diffusionsproblem wird dadurch ein nichtlineares Problem der Lasertheorie.

In theoretischen Modellen wird der Zusammenhang zwischen der Lichtintensität und dem Anregungszustand des aktiven Mediums durch Bilanzgleichungen beschrieben. Die Lichtintensität ist proportional zur Zahl der Photonen $N(\omega, t)$ pro Frequenzintervall. Diese entspricht der über das Medium integrierten spektralen Dichte $N(\omega, t) = \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}, \omega, t)$. Das Medium wird durch die Inversion $D(t) \equiv N_2(t) - N_1(t)$ zwischen der Zahl $N_2(t)$ der Atome im angeregten Zustand und der Zahl $N_1(t)$ der Atome im Grundzustand charakterisiert. Inversion und Photonenzahl sind miteinander gekoppelt

$$\frac{\partial N(\omega, t)}{\partial t} = [W(\omega)D(t) - \kappa]N(\omega, t) \quad (3)$$

$$\frac{\partial D(t)}{\partial t} = \gamma[D_0 - D(t)] - 2D(t) \int d\omega W(\omega)N(\omega, t). \quad (4)$$

Hier bezeichnet W die Rate, mit der ein einzelnes Atom zu Emission bzw. Absorption angeregt wird, κ ist die Rate für Abstrahlungsverluste aus dem Medium, und γ ist die Rate mit der die Inversion auf den Wert D_0 relaxiert, falls keine Photonen vorhanden sind. Der Wert D_0 wird durch die Pumpstärke bestimmt.

Kohärenz und Photonenzahlstatistik

Ein Mittel zum Vergleich von Laserstrahlung mit der Strahlung thermischer Lichtquellen, wie z. B. Glühlampen, ist die Kohärenz. Beleuchtet man

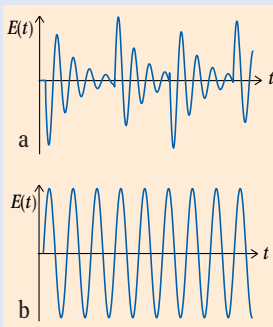


Abb. i: Typisches Verhalten der Amplitude des elektrischen Feldes $E(t)$ einer Glühlampe (a) und eines Einmoden-Lasers (b).

einen Gegenstand mit zwei Glühlampen, so addieren sich die Lichtintensitäten. Die Addition von Intensitäten ist charakteristisch für inkohärente Strahlung.

Die elektrische Feldstärke an einem beliebigen Punkt im Strahlungsfeld der Birne besteht aus unkorrelierten Wellenzügen, die typischerweise einige Meter lang sind (Abb. i). Im Gegensatz dazu besteht Laserlicht aus einem einzigen Wellenzug, der eine Länge von über 100000 km erreichen kann. Wird Laserlicht in ein Interferometer eingebracht, so addieren sich die Feldamplituden. Die resultierende Lichtintensität ist charakteristisch für kohärente Strahlung. In der Praxis unterscheidet man zwischen zeitlicher und räumlicher Kohärenz. Beide lassen sich am Beispiel des Doppelspaltexperiments veranschaulichen. Die Kohärenzzeit $\delta\tau$ definiert den maximalen Weglängenunterschied $s = c\delta\tau$, den die Teilstrahlen durch die beiden Spalte haben können, sodass noch ein Interferenzmuster auf dem Schirm beobachtet werden kann. Die Kohärenzzeit ist mit der Bandbreite

$\delta\omega = 1/\delta\tau$ verknüpft. Somit ist die zeitliche Kohärenz ein Maß für die spektrale Schärfe der elektromagnetischen Strahlung. Die räumliche Kohärenz beschreibt, inwieweit das Strahlungsfeld

thermischem Licht beträgt die Wahrscheinlichkeit dafür, dass eine Feld-Mode mit n Photonen besetzt ist, $P(n) = \langle n \rangle^n / [1 + \langle n \rangle]^{n+1}$, wobei $\langle n \rangle$ die mittlere Besetzungszahl der Mode ist. Die

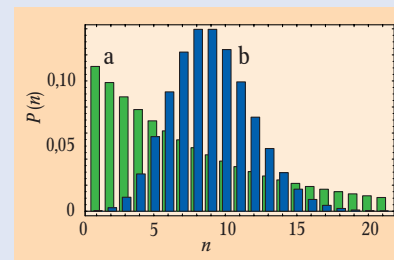


Abb. ii: Vergleich der Photonenzahlstatistik von thermischem Licht (a) und Laserlicht (b) jeweils für den Mittelwert $\langle n \rangle = 8$.

an verschiedenen Raumpunkten korreliert ist. So lässt sich im Doppelspalt nur dann Interferenz beobachten, wenn die einfallende Strahlung an den beiden Spalten die gleiche Frequenz und eine feste Phasendifferenz hat. Ein weiteres Kriterium zur Unterscheidung von thermischer Strahlung und Laserstrahlung ist die Photonenzahlstatistik. Bei

gleiche Statistik beschreibt verstärkende Medien unterhalb der Laserschwelle. Beim Überschreiten der Laserschwelle ändert sich das Verhalten der Photonen. Weit oberhalb der Schwelle folgt die Besetzungszahlstatistik der Poisson-Verteilung $P(n) = \langle n \rangle^n \exp(-\langle n \rangle) / n!$ (Abb. ii).

Die Lasergleichungen haben oberhalb der Pumpschwelle eine stationäre Lösung mit endlicher Photonenzahl. Die Diffusionsgleichung für die räumliche Ausbreitung der Lichtintensität sowie die Lasergleichungen für die spektrale Verteilung der Gesamtintensität reproduzieren wesentliche Ergebnisse der frühen Experimente an ungeordneten Dielektrika: Sie liefern Vorhersagen für das kritische Volumen und die Pumpstärke an der Laserschwelle, beschreiben den Kollaps der Linienbreite an der Laserschwelle und erklären, dass die Pumpstärke an der Schwelle mit wachsender Unordnung absinkt. Ungeklärt bleibt aber die Ursache für die diskreten Laser-Peaks in stark ungeordneten Dielektrika; die bisher diskutierten Modelle können solche Peaks nicht reproduzieren.

Zufallsmatrizen und Kohärenz

Das Diffusionsmodell und die Rategleichungen sind mit grundlegenden Einschränkungen behaftet: Beide arbeiten mit Intensitäten und nicht mit Amplituden. Interferenzeffekte lassen sich deshalb nicht beschreiben. Beide Modelle liefern keine Erklärung für die diskreten Laser-Peaks. Und schließlich werden zwar stimulierte Emission und Absorption berücksichtigt, nicht aber die spontane Emission von Photonen. Mit der spontanen Emission eines Photons startet der Laserprozess. Damit einher gehen Quantenfluktuationen des elektromagnetischen Feldes, die sich nur im Rahmen einer Quantentheorie des Lasers erfassen lassen. Verschiedene aktuelle Untersuchungen [10–12] heben diese Einschränkungen auf und erlauben eine quantisierte Beschreibung von Zufallslasern.

Der Startpunkt dieser Untersuchungen ist das so genannte System-und-Bad-Modell [11, 12]: Das elektromagnetische Feld des Mediums (das System) wird durch einen Hamilton-Operator H repräsentiert. Er besitzt einen diskreten Satz von Eigenmoden. Diese sind an ein Kontinuum von harmonischen Oszillatoren (das Bad) gekoppelt, die das Feld außerhalb des Mediums beschreiben. Das System koppelt an weitere Bäder, die die Energiezufuhr durch Pumpen sowie Relaxationsprozesse im aktiven Medium modellieren. Ohne Pumpen zerfallen alle Systemmoden exponentiell gemäß $\exp[-(i\omega_k - \kappa_k)t]$. Dabei entspricht ω_k der Oszillationsfrequenz und κ_k der Zerfallsrate der k -ten Mode. Pumpen wirkt dem Zerfall durch die Auskopplungsverluste entgegen. Die Moden relaxieren dann mit der Rate $\kappa_k - \mathcal{A}_k$, wobei \mathcal{A}_k die Gewinnrate durch das aktive Medium bezeichnet. Lasen setzt ein, wenn für eine der Moden der Gewinn den Verlust kompensiert. Trägt man für alle Moden die Frequenzen $\omega_k - i\kappa_k + i\mathcal{A}_k$ in der komplexen Ebene auf, so rücken die Frequenzen mit wachsendem Gewinn näher in Richtung der reellen Achse. Die Laserschwelle ist erreicht, wenn die oberste Frequenz die reelle Achse erreicht. Die Darstellung in der komplexen Ebene berücksichtigt noch nicht die Fluktuationen des elektromagnetischen Feldes durch spontane Emission. Aufgrund dieser Fluktuationen haben die Moden selbst oberhalb der Laserschwelle eine spektrale Breite $\delta\omega_k$.

Entscheidend für das Emissionsspektrum ist das Verhältnis des Frequenzabstands d benachbarter Moden zu deren Verbreiterung $\delta\omega$. Im Fall $\delta\omega \gg d$ spricht man von spektral überlappenden Moden. Zur Lichtemission tragen dann immer mehrere oder viele Moden bei. Das resultierende Emissionsspektrum ist eine glatte Funktion der Frequenz. Der umgekehrte Fall $\delta\omega \ll d$ entspricht spektral isolierten Moden. In diesem Fall findet man im

Emissionsspektrum scharfe Laser-Peaks. Genau dieser Fall ist in den Zufallslasern von Cao et al. oberhalb der Laserschwelle realisiert.

In der Anwendung auf spezifische Lasersysteme müssen die Moden und ihre Zerfallsraten explizit berechnet werden. Dies ist für ungeordnete Medien nur numerisch möglich. Auf so erzielte Resultate wird unten eingegangen. Zum Glück stellt sich heraus, dass für Zufallslaser numerische Lösungen oftmals nicht erforderlich sind, weil präzise quantitative Vorhersagen mit den Methoden der Zufallsmatrixtheorie möglich sind.

Zufallsmatrizen wurden von Wigner, Dyson u. a. zur statistischen Analyse von Kernspektren eingeführt [13]. Inzwischen hat die Methode eine breite Anwendung auch in anderen Bereichen der Physik gefunden [14], etwa in der Festkörpertheorie mesoskopischer Systeme und in Modellen der Quantenchromodynamik. Die Beschreibung von Zufallslasern gelingt auf folgende

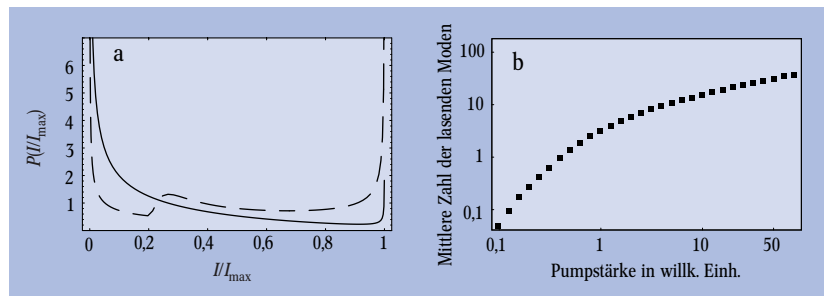


Abb. 5: Mit der Zufallsmatrixtheorie lassen sich präzise Vorhersagen über Kenngrößen von Zufallslasern machen:
 ► a) Die Emissionsintensität eines ZufallsLasers fluktuiert von einer lasenden Mode zur anderen. Die statistische Verteilungsfunktion der Intensität über ein Ensemble von Moden hat eine bimodale Form. Die beiden Kurven unterscheiden sich in der Stärke der Kopplung zwischen Laser und Außenraum. Das

Resultat gilt für Laserresonatoren mit spektral isolierten Moden [8].
 ► b) Mittlere Zahl der Laser-Peaks für ein Ensemble von ZufallsLasern als Funktion der Pumpstärke (doppelt logarithmische Darstellung). Asymptotisch wächst die Zahl der Peaks mit der dritten Wurzel der Pumpstärke an. Das Resultat beschreibt Laserresonatoren, deren Moden bei verschwindender oder kleiner Pumpstärke spektral überlappen [9].

Weise: Man konzentriert sich auf die Eigenschaften des Systems, die unabhängig von der speziellen Realisierung der Unordnung und deshalb universell sind. Diese universellen Eigenschaften werden durch ein Ensemble von Hamilton-Operatoren H modelliert. Die Operatoren werden durch Matrizen $H_{\mu\nu}$ mit zufälligen gaußverteilten Einträgen dargestellt. Die Eigenschaften der Matrizen sind nur durch allgemeine Symmetrien festgelegt. Im Fall optischer Medien gilt die Zeitumkehrinvarianz, deshalb wählt man die Matrizen reell und symmetrisch. Im Raum der so definierten Matrizen wird eine Wahrscheinlichkeitsdichte definiert (auf die Form dieser Dichte wird hier nicht eingegangen). Durch Mittelung über das Ensemble können der Mittelwert, die Varianz oder sogar die Verteilungsfunktion der relevanten Observablen berechnet werden. Das bisher Gesagte bezieht sich auf die Modellierung des ungeordneten Mediums. Zerfall und Verstärkung werden wie oben beschrieben durch Ankopplung an externe Bäder berücksichtigt. Formal wird man dadurch auf ein statistisches Ensemble von nicht-hermiteschen Zufallsmatrizen

$$H = H - i\kappa + i\mathcal{A} \quad (5)$$

geführt, wobei die Matrizen κ und \mathcal{A} die Auskopplungsverluste bzw. den Gewinn beschreiben.

Resultate der Zufallsmatrixtheorie werden durch Mittelung über Ensembles bestimmt. Im Experiment hinge-

gen arbeitet man in der Regel mit einer bestimmten Probe. Der Vergleich zwischen Theorie und Experiment ist dennoch möglich, denn es zeigt sich, dass für (fast) alle Mitglieder des Ensembles der spektrale Mittelwert einer Observablen dem Ensemblemittelwert gleicht. Die Methoden der Zufallmatrixtheorie erlauben es, den Mittelwert und die Autokorrelation des Emissionsspektrums unterhalb der Laserschwelle zu berechnen. Für Laser mit Ausdehnungen vergleichbar der freien Weglänge werden statistische Fluktuationen der Laserschwelle und der Lichtemission vorhergesagt. Die mittlere Zahl der Laserpeaks lässt sich als Funktion der Pumpstärke bestimmen. Die Zufallmatrixtheorie beschreibt sowohl schwach ungeordnete Medien (im diffusiven Regime) als auch stark ungeordnete Systeme (im lokalisierten Re-

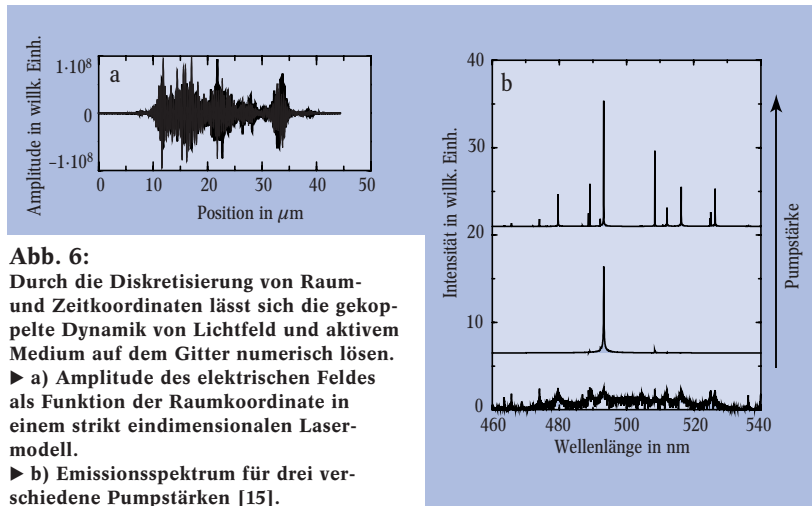


Abb. 6: Durch die Diskretisierung von Raum- und Zeitkoordinaten lässt sich die gekoppelte Dynamik von Lichtfeld und aktivem Medium auf dem Gitter numerisch lösen. ► a) Amplitude des elektrischen Feldes als Funktion der Raumkoordinate in einem strikt eindimensionalen Lasermodell. ► b) Emissionsspektrum für drei verschiedene Pumpstärken [15].

gime). Analytische Ergebnisse existierten bisher aber nur für das diffuse Regime. Zudem gelten die Rechnungen nur für quasi-eindimensionale Laser sowie für Laser mit Ausdehnungen vergleichbar der freien Weglänge l_f .

Wie kohärent ist nun das Licht eines Zufallsasers? Die Theorie sagt aus, dass die spektrale Breite $\delta\omega$ eines Peaks mit wachsender Pumpstärke abnimmt. Hinreichend weit oberhalb der Laserschwelle ist $\delta\omega$ umgekehrt proportional zur Pumpstärke. Genau das gleiche Verhalten wird in gewöhnlichen Fabry-Perot-Lasern beobachtet. Es zeigt sich aber, dass $\delta\omega$ bei gleicher Pumpstärke gegenüber der Linienbreite $\delta\omega_{\text{FP}}$ eines Fabry-Perot-Lasers um den so genannten Petermann-Faktor $K \geq 1$ vergrößert ist [11]. Drastische Erhöhungen der Linienbreite durch Werte $K \gg 1$ treten in Lasern mit starken Auskopplungsverlusten auf. In ZufallsLasern ist der Effekt deshalb umso stärker ausgeprägt, je schlechter das Licht ins Medium zurückgekoppelt wird. Eine Vergrößerung der Linienbreite um den Faktor K bedeutet wegen $\delta\tau \sim 1/\delta\omega$ eine Abnahme der Kohärenzzeit $\delta\tau$ um $1/K$. Deshalb gilt grundsätzlich: Das Licht eines ZufallsLasers ist weniger kohärent als das eines mit der gleichen Pumpstärke betriebenen gewöhnlichen Lasers; die Kohärenzzeit des ZufallsLasers ist um den Faktor $1/K$ erniedrigt. Aus theoretischer Sicht ist bemerkenswert, dass der Petermann-Faktor von den Eigenfunktionen der nicht-hermiteschen Matrix H bestimmt wird. Dadurch ist der Output ungeordneter Lasermedien eng verknüpft mit den spektralen Eigenschaften nicht-hermitescher Zufallmatrizen. Die Analyse von Ensembles nicht-hermitescher Matrizen hat sich in jüngster Zeit zu einem aktiven Gebiet der mathematischen Physik entwickelt. In ZufallsLasern finden die mathematischen Modelle eine erste Anwendung.

Lokalisierung von Licht

In numerischen Simulationen ungeordneter optischer Medien werden die Maxwell-Gleichungen mit Bilanzgleichungen für das aktive Medium kombiniert. Die Unordnung wird durch eine räumlich fluktuierende dielektrische Funktion $\epsilon(\mathbf{r})$ beschrieben. Raum und Zeit werden in ein engmaschiges Gitter diskretisiert. Nach Wahl geeigneter Randbedingungen lässt sich die Dynamik von Wellenpaketen unter dem Einfluss von Unordnung und Gewinn numerisch berechnen [15].

Der Vorteil numerischer Methoden besteht darin, dass sie es nach Vorgabe von Art und Stärke der Unordnung erlauben, spezifische Laserstrukturen zu simulieren. Emissionsspektren, die räumliche Verteilung der Lichtfeldamplitude und deren zeitliche Entwicklung können bestimmt und direkt mit experimentellen Daten verglichen werden. Abb. 6a zeigt die numerisch bestimmte Amplitude des elektrischen Feldes in einem strikt eindimensionalen Lasermodell. Das System besteht aus einer alternierenden Folge dielektrischer Schichten, in denen die Dielektrizitätszahl die Werte ϵ_0 bzw. $4\epsilon_0$ hat. Unordnung geht ein, indem die Dicke jeder zweiten Schicht zufällig aus einem vorgegebenen Intervall um dem Mittelwert 300 nm ausgewählt wird. Man erkennt, dass das elektrische Feld auf mehrere Bereiche hoher Feldstärke konzentriert ist. Jeder Bereich entspricht einer Mode. Das Amplitudenprofil offenbart einen wesentlichen Unterschied zu der Feldverteilung im Inneren eines Fabry-Perot-Resonators: Die stehenden Wellen des Fabry-Perot-Resonators sind über das ganze Resonatorvolumen ausgedehnt, während die Moden des Zufallsmediums in Teilvolumina lokalisiert sind. Ursächlich dafür ist die Interferenz von Lichtwellen im ungeordneten Medium, in Analogie zu der Anderson-Lokalisierung von Elektronen in ungeordneten Potentialen. Abbildung 6b zeigt das Emissionsspektrum der Schichtstruktur für verschiedene Pumpstärken. Man erkennt scharfe Laserpeaks, deren Zahl mit wachsender Pumpstärke zunimmt. Die Peaks sind erheblich schmäler als im Experiment beobachtet. Der Grund dafür ist die strikt eindimensionale (1D) Natur des Modells. Dadurch sind alle Moden weniger stark an den Außenraum gekoppelt als in realen 3D-Proben.

Die heute verfügbaren Rechnerleistungen schränken numerische Simulationen auf relativ kleine Systeme ein. Aus dem gleichen Grund sind bisher nur 1D- und 2D-Systeme untersucht worden. Der Aufwand numerischer Rechnungen wird zusätzlich dadurch erhöht, dass oft mehrere tausend Unordnungs-konfigurationen simuliert werden müssen, damit statistische Informationen gewonnen werden können.

Fazit

ZufallsLasers sind ungeordnete optisch aktive Dielektrika, die durch Pumpen zum Lasen angeregt werden. Experimentelle und theoretische Untersuchungen zeigen, dass die Strahlung von ZufallsLasern sich sowohl von der Strahlung thermischer Lichtquellen als auch von herkömmlicher Laserstrahlung unterscheidet. ZufallsLasers liegen in gewissem Sinne zwischen einem gewöhnlichen Fabry-Perot-Laser und einer Glühbirne: Ähnlich wie die Glühbirne emittieren ZufallsLasers in alle Raumrichtungen. Ihr Licht ist jedoch von höherer Kohärenz. So wie in gewöhnlichen Lasern folgen die Photonen einer Poissonschen Statistik. Allerdings ist die Kohärenzzeit von ZufallsLaserslicht immer kleiner

als die von gewöhnlichem Laserlicht, da Zufalls-laser stärkere Auskopplungsverluste haben.

Zufalls-laser lassen sich zu geringen Kosten, in flexibler Form, als Film, Cluster oder in Lösung herstellen. Anwendungsfelder eröffnen sich in der Optoelektronik und der Sensortechnik, wo beispielsweise die Strömung von Flüssigkeiten durch die Zugabe lasender Nanopartikel sichtbar gemacht werden könnte. Da Zufalls-laser ihr Licht in einen weiten Raumwinkel emittieren, könnten sie eine Anwendung in Bildschirmen finden. Dies erfordert Pumpen durch einen elektrischen Strom, während bislang fast alle Zufalls-laser optisch gepumpt werden. Ein Durchbruch gelang kürzlich mit elektrisch gepumpten dielektrischen Nanopulvern [5].

Für die Grundlagenforschung stellen sich reizvolle Fragen im Grenzgebiet zwischen nichtlinearer Quantenoptik und Wellenchaos. Die Untersuchung der Ausbreitung und Lokalisierung von Wellen gewinnt in Gegenwart von Lichtverstärkung neue Aktualität. Spektren und Feld-Korrelationsfunktionen von Zufalls-lasern zeigen statistische Fluktuationen, die mit der Realisierung der Unordnung zusammenhängen. Die Theorie sagt voraus, dass nach der Mittelung über geeignete Ensembles universelle Eigenschaften sichtbar werden. Die Analyse dieser Eigenschaften und ein systematischer Vergleich zwischen Theorie und Experiment müssen in Zukunft geleistet werden.

Literatur

- [1] R. V. Ambartsumyan et al., ZhETF Pis. Red. **3**, 261 (1966) [JETP Lett. **3**, 167 (1966)]
- [2] N. M. Lawandy et al., Nature **368**, 436 (1994)
- [3] H. Cao et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 2278 (1999)
- [4] S. V. Frolov, Z. V. Vardeny und K. Yoshino, Phys. Rev. B **57**, 9141 (1998)
- [5] Einen Überblick gibt: H. Cao, Waves Random Media **13**, R1 (2003)
- [6] V. S. Letokhov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **53**, 1442 (1967) [Sov. Phys. JETP **26**, 835 (1968)]
- [7] R. M. Balachandran et al., Opt. Lett. **22**, 319 (1997)
- [8] G. Hackenbroich et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 5262 (2001)
- [9] G. Hackenbroich, preprint (2004)
- [10] C. W. J. Beenakker, Phys. Rev. Lett. **81**, 1829 (1998).
- [11] G. Hackenbroich, C. Vivescas und F. Haake, Phys. Rev. Lett. **89**, 083902 (2002)
- [12] C. Vivescas und G. Hackenbroich, Phys. Rev. A **67**, 013805 (2003)
- [13] H. A. Weidenmüller, Physik Journal, März 2004, S. 41
- [14] F. Haake, Quantum Signatures of Chaos, 2. Aufl., Springer, Berlin (2000)
- [15] X. Jiang und C. M. Soukoulis, Phys. Rev. Lett. **85**, 70 (2000)

Der Autor

Gregor Hackenbroich hat an den Universitäten Bonn und München Physik studiert und in München im Jahr 1993 promoviert. Es folgten Postdoc-Aufenthalte am MPI für Kernphysik in Heidelberg und an der Yale University. Dort entstanden Arbeiten im Bereich Quantenchaos und mesoskopische Elektronensysteme. 1998 übernahm Gregor Hackenbroich eine Nachwuchsgruppe an der Universität Essen.

Seit 2001 ist er Heisenberg-Stipendiat und befasst sich mit mesoskopischen optischen Systemen und Zufalls-lasern.

