

RETRODIFFUSION COHERENTE DE LA LUMIERE PAR UN MILIEU DESORDONNE

Etudier la propagation de la lumière dans des milieux très diffusants comme les nuages, les suspensions denses de particules, ou même le lait, peut paraître à première vue une gageure. En fait, dès le début du siècle, ce problème a été abordé et partiellement résolu en faisant appel aux concepts de la théorie classique du transport dans laquelle la phase de l'onde est négligée à l'échelle macroscopique. Ce n'est que récemment qu'un effet d'interférence constructive a été observé dans une expérience fondamentale de rétrodiffusion cohérente de la lumière par un milieu désordonné. Cet effet, nouveau en optique, est connu depuis plusieurs années en physique du solide puisqu'il est la base du phénomène de localisation faible des électrons. Mais il était important de montrer qu'il est tout à fait général : toute onde, classique ou quantique, peut le révéler lors de sa propagation dans un milieu désordonné.

Les équations de Maxwell nous apprennent que, dans un milieu homogène, la lumière se propage sous forme d'ondes planes. En présence d'hétérogénéités, ces ondes planes sont diffusées élastiquement, c'est-à-dire sans changement de fréquence. On peut rencontrer alors deux situations extrêmes selon le nombre moyen de collisions subies par un photon dans le milieu. Si ce nombre est faible, c'est-à-dire si le libre parcours moyen l de la lumière est très supérieur à l'épaisseur L du milieu, on est dans la situation de diffusion simple (voir encadré 1). Le cas opposé ($L >> l$) est celui dit de la forte diffusion multiple qui intéresse par exemple les atmosphères stellaires, milieux peu denses mais très épais. Depuis le début du siècle, le transport de l'énergie lumineuse y est décrit par une équation de type Boltzmann, introduite par Schuster dès 1903. Plus précisément, l'intensité lumineuse locale obéit à une équation de diffusion. En termes imagés, le photon se comporte comme une particule « classique », dont le mouvement dans le milieu est analogue à celui d'une fourmi

marchant au hasard, le pas de cette marche au hasard étant le libre parcours moyen de transport $l^* = l/n\sigma^*$ (où la section efficace de transport σ^* est définie dans l'encadré 1). La disparition du caractère ondulatoire, à l'échelle macroscopique (c'est-à-dire supérieure à l^*) repose crucialement sur la nature désordonnée du milieu.

L'intensité en un point donné \vec{r} de l'espace est en effet :

$$I(\vec{r}) \propto \left| \sum_i \vec{E}_i(\vec{r}) \right|^2 = \sum_{ij} \vec{E}_i(\vec{r}) \vec{E}_j^*(\vec{r})$$

où \vec{E}_i est le champ électrique partiel associé à une séquence $\{i\}$ de diffusion donnée. Pour un milieu désordonné, la phase relative de \vec{E}_i et de \vec{E}_j ($j \neq i$) est quelconque et

$$\langle I(\vec{r}) \rangle = \sum_i \langle \left| \vec{E}_i(\vec{r}) \right|^2 \rangle$$

La moyenne sur l'ensemble des réalisations possibles du désordre, élimine le terme $\sum_i \vec{E}_i \vec{E}_i^*$, qui, sinon, donne naissance à des interférences analogues aux tavelures (speckle) décrites dans l'encadré 1. L'intensité en un point est donc la somme des intensités associées aux différents chemins qui y parviennent. De cette loi de conservation découle l'équation de transport classique.

Ce qu'on a réalisé récemment, c'est qu'il existe un type d'interférence particulier qui survit à la moyenne sur le désordre et se manifeste à l'échelle macroscopique par un écart à la théorie classique de transport. Cette interférence est liée à la seule invariance présente dans un système désordonné statique, la symétrie par renversement du temps (voir l'encadré 2). Dans le cas où l'on éclaire un milieu diffusant, cette interférence est constructive en rétrodiffusion, c'est-à-dire dans la direction opposée à celle du faisceau incident, et renforce l'intensité diffusée par le milieu (albedo) dans un cône étroit centré sur la direction exacte de rétrodiffusion et de largeur angulaire $\sim \lambda/2\pi l^*$ (λ longueur d'onde). Au sommet du pic, l'intensité est double de celle donnée par la théorie de transport classique (qui est indépendante de l'angle d'observation, à cette échelle angulaire).

Ce phénomène, dit de rétrodiffusion cohérente, doit exister pour toute onde. Il implique une modification de l'équation de transport, qui se manifeste par exemple par la localisation faible des électrons dans les métaux impurs. Mais c'est avec de la lumière qu'on a

Rétrodiffusion cohérente par un milieu désordonné

Le phénomène de rétrodiffusion cohérente se manifeste aussi bien dans le volume du milieu désordonné (voir Images de la Physique 1985) que dans la situation décrite par la figure 1. Dans cette géométrie (dite d'albedo), une onde plane (prise ici scalaire pour simplifier) de vecteur d'onde incident \vec{k}_0 , est diffusée dans toutes les directions par le milieu désordonné. L'intensité diffusée dans la direction \vec{k}_d est

$$I(\vec{k}_d) = |\sum A_i|^2$$

où A_i est l'amplitude de l'onde partielle correspondant à une séquence donnée $\{i\}$ de diffuseurs, spécifiée par les positions $\vec{r}_1^{(i)}, \vec{r}_2^{(i)}, \vec{r}_3^{(i)}, \dots, \vec{r}_n^{(i)}$ des diffuseurs (A_i est l'équivalent scalaire du champ vectoriel E_i du texte). On appellera $\vec{r}^{(i)}$ et $\vec{r}^{(i)}$ les positions du premier et du dernier diffuseurs ($\vec{r}_1^{(i)}$ et $\vec{r}_n^{(i)}$ respectivement). Comme pour l'intensité en volume, la théorie de transport classique suppose arbitrairement les phases relatives des diverses séquences, si bien que $I(\vec{k}_d) = \sum |A_i|^2$. Cette hypothèse, justifiée pour des séquences telles que (a) et (b) sur la figure ci-dessous, se révèle fautive lorsqu'on considère une séquence donnée et la séquence renversée dans le temps (qui a les mêmes vecteurs, incident \vec{k}_0 et diffusé \vec{k}_d , mais rencontre les diffuseurs dans l'ordre $\vec{r}_n^{(i)}, \dots, \vec{r}_1^{(i)}$, représentées respectivement en trait plein et pointillé ((a) et (a')). Par suite de l'invariance par renversement du temps, les ondes partielles correspondant aux deux séquences ont la même amplitude et subissent le même déphasage entre la première et la dernière collisions. Leur différence de phase totale ne dépend alors que des positions du premier et du dernier diffuseurs et de l'angle d'observation et vaut $(\vec{k}_0 + \vec{k}_d) \cdot (\vec{r}^{(i)} - \vec{r}^{(i)})$, comme on s'en assure facilement sur la figure ci-dessous. Introduisant le vecteur $\vec{Q} = \vec{k}_0 + \vec{k}_d$ ($Q \sim 2\pi\theta/\lambda$, θ étant l'angle d'observation par rapport à la direction de rétrodiffusion), la contribution des deux séquences à l'intensité est

$$2 |A_i|^2 (1 + \cos \vec{Q} \cdot (\vec{r}^{(i)} - \vec{r}^{(i)}))$$

et l'intensité totale moyennée sur le désordre (pour éliminer les interférences accidentelles décrites dans l'encadré 1) vaut

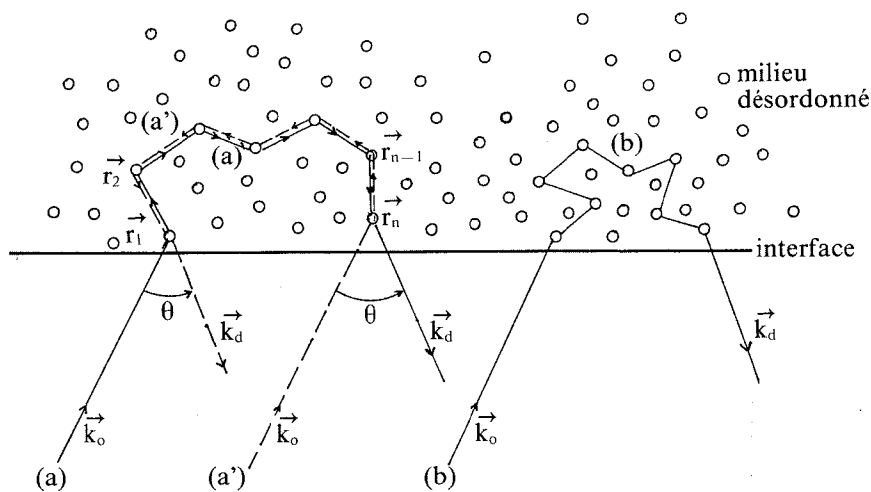
$$I(\vec{Q}) = \sum |A_i|^2 (1 + \cos \vec{Q} \cdot (\vec{r}^{(i)} - \vec{r}^{(i)})) \quad (1)$$

Dans la direction exacte de rétrodiffusion ($\vec{Q} = 0$), l'interférence est toujours constructive - d'où le nom de rétrodiffusion cohérente - et $I(\vec{Q}=0) = 2\sum |A_i|^2$, soit le double de la valeur prédite par la théorie de transport classique (indépendante de l'angle, à l'échelle qui nous intéresse). Par contre, on retrouve cette dernière valeur à des angles suffisamment élevés, tels que le terme d'interférences $\cos \vec{Q} \cdot (\vec{r}^{(i)} - \vec{r}^{(i)})$ une fois sommé sur les séquences $\{i\}$ se moyennent à zéro. L'intensité diffusée double donc dans un cône centré sur la direction de rétrodiffusion. Notons cependant que ceci suppose une contribution négligeable de la simple diffusion (pour laquelle il n'y a pas lieu de distinguer une séquence et son inverse), ce qui est le cas dans l'expérience décrite ici. L'ouverture totale du cône, d'après (1), est fixée par la distance minimale entre $\vec{r}^{(i)}$ et $\vec{r}^{(i)}$, telle que l'amplitude $|A_i|$ soit conséquente. Pour des diffuseurs ponctuels, cette distance est le libre parcours moyen l . Plus généralement, pour des diffuseurs de taille finie, qui diffusent surtout vers l'avant, il faut plusieurs collisions pour que la lumière ait une certaine probabilité d'être renvoyée dans la direction d'observation, c'est-à-dire vers l'arrière. l doit être alors remplacé par le libre parcours moyen de transport l^* , si bien que la largeur du cône est λ/l^* .

On peut retrouver ces caractéristiques du cône, mais aussi sa forme, en isolant dans la somme (1) la contribution des séquences de longueur L donnée, issues de \vec{r} et aboutissant à \vec{r} , soit

$$I(\vec{Q}) = \sum_{L, \vec{r}, \vec{r}'} I_0(\vec{r}-\vec{r}', L) (1 + \cos \vec{Q} \cdot (\vec{r}-\vec{r}')) \quad (2)$$

On peut considérer que les points d'entrée et de sorties sont situés sur l'interface. La théorie de transport montre alors que la contribution classique $I_0(\vec{r}-\vec{r}', L)$ est une distribution gaussienne en $|\vec{r}-\vec{r}'|$, de largeur $\sqrt{L l^*}$, comme on l'attend pour une marche au hasard de pas l^* . La contribution cohérente (terme en cosinus) des séquences de longueur L à (2) a donc une largeur angulaire $\lambda/(2\pi\sqrt{L l^*})$, d'autant plus faible que L est grand. Son amplitude est proportionnelle à la probabilité de couper, dans une marche au hasard, l'interface pour la première fois au bout d'une longueur L (puisque la lumière qui émerge ne revient pas dans le milieu). Pour L grand, elle décroît avec L comme $1/L^{3/2}$. Ce comportement asymptotique implique que la forme de raie totale qui résulte de l'addition des contributions de tout L est triangulaire aux petits angles ($I(\theta) \approx I(0) - c\theta^2$ pour $\theta \rightarrow 0$), révélant ainsi une non-analyticité assez remarquable pour être soulignée.



échantillon. Il faut cependant noter que ce mouvement des billes n'affecte pas la cohérence en rétrodiffusion, car le désordre reste figé à l'échelle du temps de parcours de la lumière dans le milieu ($< 10^{-8}$ s).

Même dans le cas optimal $2R \sim \lambda$

décrit ci-dessus, la largeur du pic, de l'ordre de $\lambda/2\pi l^*$, ne vaut que 4 milliradians environ. Pour le détecter, il faut d'abord une bonne résolution angulaire, obtenue en plaçant 2 diaphragmes de petit diamètre entre l'échantillon et le photomultiplicateur (fig. 1). La

direction d'incidence doit être également très bien définie (à mieux qu'un milliradian près), sous peine de masquer complètement le pic. L'utilisation d'une source laser résout immédiatement ce problème (c'est cette possibilité qui rend l'optique plus favorable à l'observation du

phénomène que l'acoustique ou les micro-ondes). Il suffit alors de mesurer l'intensité diffusée par la suspension en fonction de l'angle pour faire apparaître le pic avec la largeur et la hauteur attendues (courbe // de la figure 2). De plus, la largeur du pic diminue comme prévu lorsqu'on dilue la suspension. Ceci prouve bien que l'on a affaire à un phénomène lié à la diffusion multiple et non pas aux propriétés individuelles des billes.

Cette expérience est ainsi la première à démontrer indubitablement l'existence du phénomène de rétrodiffusion cohérente pour la lumière. Il existe bien d'autres observations d'un renforcement de l'intensité diffusée dans la direction de rétrodiffusion (ce que les opticiens appellent un effet d'opposition). Mais le phénomène est alors expliqué par d'autres mécanismes, parfois géométriques (effets d'ombre portée), parfois ondulatoires (c'est le cas pour le phénomène atmosphérique de « la gloire »). Contrairement à la rétrodiffusion cohérente, ces effets ne mettent pas en jeu la nature désordonnée du milieu diffusant. C'est d'ailleurs cette caractéristique de la rétrodiffusion cohérente qui confère toute sa généralité et qui rend exemplaire sa mise en évidence expérimentale.

L'expérience révèle également le rôle joué par la polarisation de la lumière. Pour une polarisation incidente linéaire donnée, le pic est plus haut et plus pointu lorsqu'on analyse la lumière parallèlement à la direction de polarisation incidente que perpendiculairement (courbe \perp de la figure 2). Cette propriété est d'autant plus frappante qu'en dehors du pic la lumière est presque complètement dépolarisée par la diffusion multiple. Elle s'interprète à partir des propriétés de la diffusion Rayleigh (ou de Mie). On peut en effet montrer que, du point de vue de l'invariance par renversement du temps, travailler en polarisation croisée revient à introduire une longueur de cohérence L_c de l'ordre de quelques libres parcours moyens. Seules les petites boucles contribuent alors au pic, ce qui, d'après les idées développées dans l'encadré 2, explique sa forme aplatie. Au contraire, en configuration parallèle, la cohérence est préservée jusqu'aux plus grandes boucles (limitées par la taille du faisceau à une longueur d'environ $10^4 \lambda$). On prédit alors que le pic est, comme dans le cas scalaire (encadré 2) triangulaire aux petits angles. Ceci est bien vérifié expérimentalement, même si la largeur instrumentale arrondit quelque peu le sommet du pic.

Pour conclure sur cette expérience, nous présentons quatre photographies qui illustrent directement le phénomène de rétrodiffusion cohérente (fig. 3). Elles ont été réalisées en plaçant un polariseur et un écran blanc dans la direction de rétrodiffusion, loin de l'échantillon (fig. 1). Pour les photos (a) et (b), cet échantillon est la suspension utilisée dans l'enregistrement de la figure 2. L'intersection de la direction de rétrodiffusion avec l'écran est figurée par le point noir sur la figure (a). Lorsque le polariseur est parallèle à la direction de polarisation incidente (figure 3a), une auréole brillante entoure ce point : lorsqu'il est perpendiculaire, l'auréole est à peine visible (fig. 3b), en accord avec la figure 2. Pour les photos (c) et (d), nous avons utilisé comme milieu diffusant du sulfate de Baryum solide (« blanc standard Kodak »). Le cône γ est environ quatre fois plus large que celui d'une suspension aqueuse de billes de polystyrène (fig. 2), ce qui facilite son observation. Lorsque l'échantillon est fixe (fig. 3c), on observe les tavelures décrites dans l'encadré 1. Leur largeur angulaire étant ici très inférieure à celle du cône, un renforcement moyen de l'intensité près de la direction de rétrodiffusion peut être cependant perçu. Lorsqu'une moyenne d'ensemble de l'intensité est réalisée en faisant tourner l'échantillon durant

la prise de vue, cette auréole brillante devient évidente (fig. 3d).

L'explication du pic de l'albedo comme ultime interférence dans la diffusion multiple est somme toute très simple et on peut s'étonner que ce phénomène n'ait été découvert que récemment. En fait, il est bien connu des physiciens du solide car il est à l'origine de la localisation faible des électrons observée dans les métaux impurs. Le concept-clef d'interférence en diffusion multiple a émergé récemment à partir notamment des travaux des théoriciens soviétiques sur les coefficients de transport électronique, s'appuyant sur les calculs de diffusion multiple de Langer et Neal de 1966 (voir l'article sur « Les effets d'interférence dans un métal désordonné » dans Images de la Physique 1985).

Dans un métal, les électrons de conduction subissent des collisions fréquentes sur les phonons ou encore sur les électrons eux-mêmes. Ces collisions inélastiques ont pour effet de brouiller la phase des fonctions d'ondes électroniques sur une distance l_p appelée longueur de cohérence de phase. A température ambiante, ces collisions sont fréquentes. Dans ce cas, le caractère ondulatoire ou quantique des électrons disparaît et les propriétés de

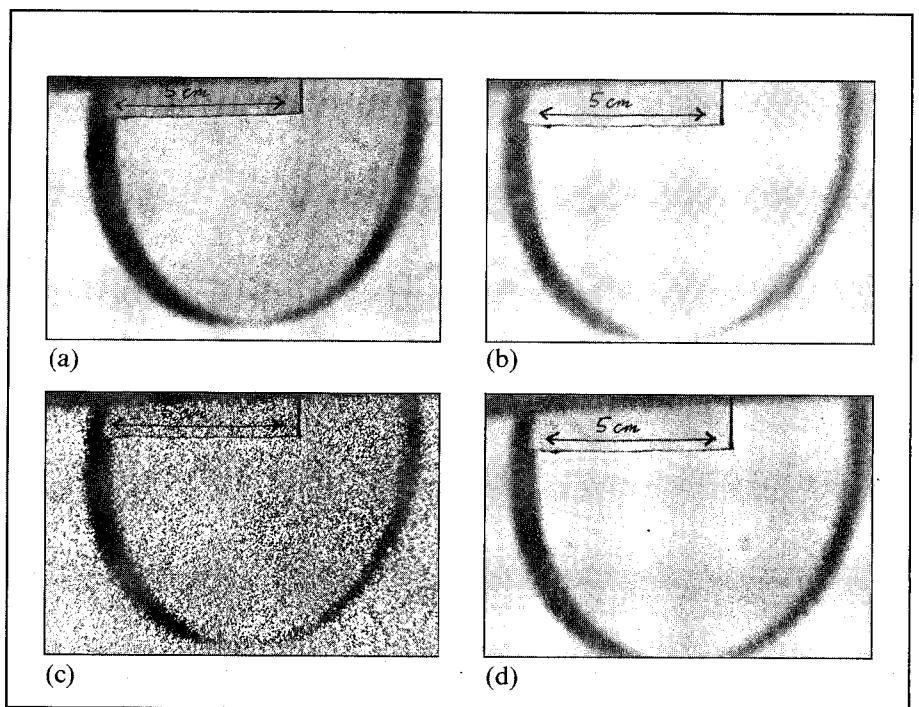


Fig. 3 : Quatre photographies de l'effet de rétrodiffusion cohérente, tel qu'il apparaît sur un écran placé comme indiqué sur la figure 1 (à un mètre de l'échantillon). L'ellipse noire est l'ombre portée des bords de la lame séparatrice. (a) et (b) : L'échantillon est une suspension aqueuse de billes de polystyrène (identique à celle de la figure 2). Lorsque l'analyseur est parallèle à la polarisation incidente (a), une auréole brillante entoure la direction de rétrodiffusion. Lorsque l'analyseur est perpendiculaire (b), l'auréole est à peine visible. (c) et (d) : L'échantillon est une poudre solide de microcristaux de sulfate de Baryum. L'analyseur est parallèle à la direction de polarisation incidente. Lorsque l'échantillon est fixe (c), on distingue une large auréole superposée au champ de tavelures. Cette auréole devient évidente lorsque l'échantillon est en rotation rapide à l'échelle du temps de pose (d).

transport comme la conductivité électrique sont fort bien décrites par une théorie classique où les phases sont ignorées. Par contre, à basse température (inférieure à 1 K), les collisions inélastiques sont très rares, leur fréquence diminuant comme une puissance de la température. Seule subsiste alors la diffusion multiple élastique sur les impuretés, si bien que les électrons deviennent, comme la lumière, sensibles au phénomène de rétrodiffusion cohérente. Ceci modifie leur constante de diffusion et donc la conductivité électrique. A trois dimensions, lorsque $l_p > \lambda^*$, cette correction quantique est de l'ordre de $(\lambda/\lambda^*)^2$. Ceci peut se comprendre à partir de notre analyse de l'albedo. Nous avons en effet montré que l'intensité est fortement corrigée dans un angle solide en $(\lambda/\lambda^*)^2$ autour de la direction de rétrodiffusion (elle est exactement doublée dans la direction de rétrodiffusion). Dans le volume du métal, le même processus conduit à une augmentation de la section efficace de transport et donc de la résistivité électrique en $(\lambda/\lambda^*)^2$.

L'analogie entre électrons et photons peut être poussée, au-delà du comportement moyen de la conductivité électrique et de l'albedo, jusqu'au niveau des fluctuations. Très récemment, on a observé que la conductance électrique d'échantillons de basse dimensionnalité comme les couches d'inversion du silicium fluctue considérablement lorsqu'on

modifie très peu le niveau de Fermi ou le champ magnétique. Ces fluctuations sont reproductibles sur un même échantillon, mais variables d'un échantillon à l'autre. Elles ont la même origine que les tavelures ou « speckle » évoquées dans l'encadré 1 : on a une analogie entre, d'une part, la longueur d'onde de Fermi et la longueur d'onde optique et, d'autre part, le champ magnétique - qui influe sur la phase des électrons - et l'angle d'observation - qui influe sur la phase du champ détecté. Il serait intéressant de pousser cette analogie et d'utiliser l'acquis important des opticiens sur les phénomènes de tavelures pour comprendre ces fluctuations de conductivité électrique.

Un autre thème actuel est la recherche de la transition de localisation d'Anderson pour la lumière, transition originellement proposée pour les électrons. Dans un tel régime, les ondes sont diffusées sur des intervalles de longueur comparables à la longueur d'onde. L'onde issue d'une source placée dans le milieu ne peut plus se propager mais devient localisée dans le milieu désordonné. Pour les électrons, ce changement de régime se traduit par une transition métal-isolant qui fait l'objet de nombreuses études, en particulier dans les semiconducteurs dopés. Toutefois, l'interaction coulombienne entre les charges électroniques complique considérablement l'analyse du phénomène et on ne peut

pas affirmer aujourd'hui que la transition d'Anderson ait été indiscutablement observée. A la différence des électrons, les photons n'interagissent pas entre eux et les expériences optiques de transition d'Anderson seraient certainement plus simples d'interprétation. Encore faudrait-il atteindre un régime où le libre parcours moyen devient comparable à la longueur d'onde, régime qui n'a pas encore été réalisé jusqu'à maintenant.

*Article proposé par E. Akkermans,
G. Maret, R. Maynard et P.E. Wolf
tél. 76.88.11.56*

Pour en savoir plus

Sur le pic de rétrodiffusion cohérente
Van Albada M.P. et Lagendijk A.,
Phys. Rev. Lett. 55, 2692 (1985)

Wolf P.E. et Maret G., Phys. Rev. Lett. 55, 2696 (1985).

Wolf P.E., Maret G., Akkermans E. et Maynard R. à paraître dans le Journal de physique (Paris).

Sur la localisation forte de la lumière
Anderson P.W. Philosophical Magazine 52, 505 (1985).