



Jamming in granularen Medien

In diesem Versuch haben Sie die Möglichkeit, im Unterschied zu den meisten anderen Praktikumsversuchen, direkt ein aktuelles Forschungsgebiet im Bereich der Physik kondensierter Materie kennen zu lernen, und mit einer modernen experimentellen Methode grundlegende Konzepte der *statistischen Mechanik* auszuprobieren und zu verstehen. Da der Themenbereich viele nach den ersten Studiensemestern noch unbekannte Aspekte enthält und da die Themen nur verteilt in der einschlägigen Fachliteratur zu finden sind, ist diese Anleitung sehr ausführlich gehalten, um Ihnen die Arbeit zu erleichtern. Um so wichtiger ist es, dass Sie die Anleitung vor Versuchsbeginn vollständig und sorgfältig durcharbeiten.

1 Vorbereitung

- granulare Medien, thermale und athermale Systeme
- Jamming-Übergang, Glasübergang
- Korrelation, Autokorrelationsfunktionen, Mean-Square Displacement
- Dynamische Lichtstreuung, Diffusing-Wave Spektroskopie

Literatur

- [1] J. Duran, *Sands, Powders and Grains: An Introduction to the Physics of Granular Materials*, Springer (1997) [Einführung: Physik der Granulate]
- [2] B. J. Berne und R. Pecora, *Dynamic Light Scattering*, Dover (2003), Kap. 1-4 [Grundlagen der Lichtstreuung]
- [3] W. Brown (Ed.), *Dynamic Light Scattering*, Clarendon Press (1993), Kap. 16 [Diffusing Wave Spektroskopie]
- [4] K. Kim, J. K. Moon, J. J. Park, H. K. Kim und H. K. Pak, *Phys. Rev. E* **72**, 011302 (2005) [Jamming in einem schwingungsfluidisierten Granulat; Grundlage für das Praktikumsexperiment]
- [5] M. van Hecke, *Nature* **435**, 1041 (2005) [experimenteller Nachweis von Force Chains]
- [6] W. Kob, *J. Phys.: Condensed Matter* **11**, R85-R115 (1999) [Molekulardynamik Simulationen an thermalen Systemen, MSD analysiert, vgl. Aufgabe 2]
- [7] A. J. Liu und S. R. Nagel, *Nature* **396**, 21 (1998) [Jamming in thermalen und athermalen Systemen]
- [8] V. Trappe, V. Prasad, L. Cipelletti, P. N. Segre und D. A. Weitz, *Nature* **411**, 772 (2001) [experimenteller Test des Konzeptes von Liu und Nagel]



Abbildung 1: Beispiele für granulare Systeme unterschiedlicher Partikelgröße und Homogenität: Reiskörner, Basaltsplitt, Sanddüne, Müllhaufen.

2 Grundlagen

Unter einem Granulat oder granularem Medium versteht man eine Ansammlungen von festen Teilchen mit einer Mindestgröße von etwa $10\ \mu\text{m}$. Brownsche Molekularbewegung ist dann vernachlässigbar, und die Dynamik der Teilchen wird, neben der Wechselwirkung der Teilchen untereinander, maßgeblich von der Schwerkraft beeinflusst. Die Stöße makroskopischer Körner sind im Allgemeinen inelastisch, und, um diese in Bewegung zu halten, muss einem granularen System laufend Energie, beispielsweise in Form von Schütteln, Schütten oder Einblasen eines Luftstromes zugeführt werden. Dabei ist wesentlich, dass stets so viele Teilchen betrachtet werden, dass die genaue Anzahl der Partikel keine Rolle mehr spielt. Deshalb müssen die Eigenschaften des Systems als statistische Größen erfasst werden und so spielen im Folgenden Konzepte und experimentelle Methoden der *statistischen Mechanik* eine wesentliche Rolle.

Größe und Homogenität der Ansammlung von Partikeln kann sehr unterschiedlich ausfallen. In verschiedenen Varianten begegnen uns Granulate häufig im Alltag. Abb. 1 zeigt einige Beispiele und so sind uns viele der auftretenden Phänomene durchaus vertraut, wie z.B. der “Paranusseneffekt”, bei dem sich unter dem Einfluss von Vibration Teilchen unterschiedlicher Größe separieren (Müsli im Glas), oder die Riffelbildung auf Sanddünen. Andererseits gibt es auch scheinbar einfache Fragen, die bisher noch niemand befriedigend beantworten kann: Warum z. B. erscheint Sand einerseits als eine Art Festkörper (immerhin kann man drauf gehen), in einer Sanduhr aber als eine Art Flüssigkeit? Oder warum fließt erst dann Salz aus dem Streuer, wenn wir ihn genügend weit kippen? Und was hat ein verstopfter Salzstreuer mit einem Verkehrsstau oder dem amorph erstarrten Zucker in einem Karamellbonbon zu tun? . . .

2.1 Granulare Medien und Jamming

Gegenstand des Praktikumsversuches soll die Untersuchung des Jamming Übergangs in einem granularen System sein. Jamming bezeichnet dabei den Umstand, dass ein granulares Medium zunächst deformiert werden und fließen kann, ähnlich zu einer herkömmlichen Flüssigkeit, jedoch bei nur geringfügig größerer Packungsdichte die Granulatteilchen sich gegenseitig blockieren und an weiterer Bewegung hindern können. Dies ist z. B. Grund dafür, dass ein trockener Sandhaufen nicht einfach auseinanderfließt, oder dass Erdnüsse das Loch in einer Tüte verstopfen können, auch wenn die Öffnung deutlich größer ist als der Durchmesser einer einzelnen Nuss.

In Analogie zum dynamischen Verhalten von Molekülen in verschiedenen Aggregatzuständen unterscheidet man auch in granularen Systemen zwischen verschiedenen “Phasen” aufgrund der Beweglichkeit der Partikel, vgl. Abb. 2, jedoch mit dem Unterschied, dass im Granulat die Beweglichkeit nicht durch die thermische Energie hervorgerufen wird, wie in molekularen Systemen, sondern durch den Einfluss äußerer Kräfte wie Vibration, einem Gasstrom oder Ähnlichem. Es wird z. B. von einem *schwingungsfluidisierten* Granulat gesprochen um auszudrücken, dass in einem durch Vibrationen angeregten Granulat

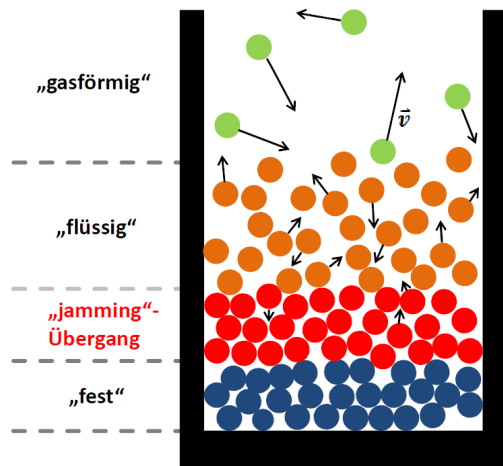


Abbildung 2: Unterschiedliche Bewegungszustände in einem granularen System hervorgerufen durch die Variation der Packungsdichte oder durch das Einwirken äußerer Kräfte wie einer Vibration. Die Dynamik wird häufig mit den Aggregatzuständen in molekularen Systemen verglichen: unten: glasig (amorph) erstarrt, fest; mitte: flüssig; oben: gasförmig. Zwischen "fest" und "flüssig": der Jamming-Übergang.

aufgrund der häufigen Kollisionen der Partikel untereinander die Bewegung der Granulatteilchen mit der Brownschen Bewegung von Teilchen in einer molekularen Flüssigkeit vergleichbar ist.

Charakteristisch für den "jammed state" ist dabei die im System enthaltene Unordnung. Diese besteht zunächst darin, dass das System *strukturell* ungeordnet ist, ähnlich wie die Moleküle in einer Flüssigkeit. Darüber hinaus gibt es noch eine andere Art von Unordnung: Das Jamming in Granulaten beruht auf der Übertragung von Kräften an den Kontaktstellen zwischen benachbarten Partikeln (Verklemmung). Weil die Teilchen jedoch niemals exakt identisch und kugelförmig sind, gibt es eine Unordnung der Kontaktkräfte, denn ein Teilchen hat typischer Weise viel mehr nächste Nachbarn als es Kontaktstellen braucht, um seine Position zu stabilisieren. Deshalb ist unabhängig von der strukturellen Anordnung die tatsächliche Kraftübertragung auf wenige Kontaktstellen beschränkt und so die Richtung der Kraftübertragung zufällig und ungeordnet. Kraftübertragende Kontaktstellen bilden auf diese Art Ketten und insgesamt ein Netzwerk sogenannter "force chains", welche auf völlig ungeordnete Weise das System durchziehen, vgl. Abb. 3.

Force Chains übertragen Kräfte auf diese Weise letztlich bis auf den Boden oder die Wände des Gefäßes, welches das Granulat enthält. Wenn das System dabei auch entlang der Richtung der Verspannungen erheblich stabilisiert ist, so reichen doch häufig geringe Kräfte senkrecht zur Verspannungsrichtung aus, um Kontaktstellen zu lockern und somit die Blockade aufzulösen. Anschaulich ist es daher eine gute Idee, eine Packung, in der Erdnüsse feststecken, zu schütteln, um doch noch an das begehrte Nahrungsmittel zu gelangen. Solche Systeme, bei denen eine kleine Kraft senkrecht zur Verspannungsrichtung die Blockade lösen kann, werden als "fragile matter" bezeichnet. Nicht alle Systeme jedoch, die einen Jamming Übergang aufweisen, sind in dieser Art "fragil". Insbesondere dann nicht, wenn mit der dynamischen Blockade erhebliche elastische Verformungen der einzelnen Teilchen einher gehen. Beispiele dafür sind Schäume und Kolloidlösungen, also z. B. Seifenschaum oder eine Suspension von Latexkügelchen in Wasser. Die Schaumblasen blockieren sich gegenseitig unter isotroper (richtungsunabhängiger) Spannung, so dass die Blockade nicht von leichten Scherspannungen aufgehoben wird. Eben solches gilt für Kolloidlösungen, wenn es zu elastischen Verformung der enthaltenen Teilchen kommt. Einer moderaten äußeren Spannung können Schaum und Kolloidlösung auf diese Art elastisch widerstehen, es handelt sich also

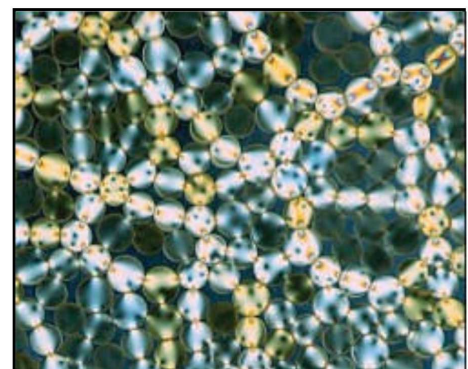


Abbildung 3: Force chains in einem Granulat sichtbar gemacht mittels Spannungsdoppelbrechung. Abb. aus [5].

nicht um “fragile matter”. Natürlich kann die Blockade aber auch in solchen Fällen durch eine stärkere Spannung, die dann die Verspannungskraft überwindet, aufgelöst werden.

Die obigen Beispiele zeichnen sich dadurch aus, dass in ihnen ein Zusammenspiel makroskopischer Gebilde stattfindet, die dabei nicht durch thermische Energie sondern durch äußere Kräfte umgeordnet werden. Dagegen wird die Dynamik in Systemen, die aus noch kleineren Teilchen, nämlich Molekülen bestehen, auch temperaturabhängig sein. Auch hier wird das Phänomen eines kontinuierlichen Übergangs von der Flüssigkeit zum amorphen Feststoff durch Dichte- oder Temperaturänderung beobachtet und ist als *Glasübergang* bekannt, der z. B. eintritt, wenn unter Vermeidung der Kristallisation eine Flüssigkeit unter ihren Schmelzpunkt abgekühlt wird und amorph erstarrt. Beispiele für Gläser sind dabei neben Fensterglas und diversen Polymeren auch karamellisierter Zucker oder Obsidian. Honig oder auch geschmolzenes Gestein (Lava) hingegen, sind Beispiele für unterkühlte Flüssigkeiten oberhalb der Glasübergangstemperatur T_g .

Gemeinsam ist thermalen und athermalen Systemen dabei nicht nur das Fehlen langreichweitiger struktureller Ordnung, sondern auch die Tatsache, dass es in der Nähe des Jammings zu einer dramatischen Verlangsamung der Dynamik kommt, bis schließlich das System festkörpertypische Eigenschaften zeigt. Beobachtet man zum Beispiel die Relaxation eines solchen Systems ins Gleichgewicht nach Einwirkung einer äußeren Störung, so folgen die dabei auftretenden charakteristischen Relaxationszeiten τ in temperaturgetriebenen Systemen meist nicht einem einfachen Arrheniusgesetz $\tau(T) = \tau_0 \exp(\Delta E/(k_B T))$ sondern divergieren bei einer endlichen Temperatur T_0 :

$$\tau(T) = \tau_0 \exp\left(\frac{B}{T - T_0}\right) \quad (1)$$

Dieser Zusammenhang ist als *Vogel-Fulcher-Tammann* Gleichung bekannt.

Die Verlangsamung der Dynamik unterliegt in den unterschiedlichen Systemen jedoch verschiedenen äußeren Kontrollparametern: Ein athermales granulares oder kolloidales System verfestigt sich dabei als Funktion ansteigender Packungsdichte oder abnehmender äußerer mechanischer Spannung. Ein thermale System hingegen wird bei sinkender Temperatur oder ebenfalls bei steigender Dichte (d. h. wachsendem Druck) in den Glasübergang getrieben. Abb. 4 zeigt in einer Art Phasendiagramm wie all diese Phänomene einheitlich als Ausprägung eines allgemeinen Jamming-Übergangs aufgefasst werden können. Dieses Phasendiagramm, was zunächst nur spekulativ aufgrund der Ähnlichkeit der Phänomene postuliert wurde [7], erfährt dabei zunehmend experimentelle Bestätigung, u. a. weil in jüngster Zeit auch der Übergangsbereich von thermalen zu athermalen Systemen (grüne Fläche in Abb. 4) experimentell zugänglich wird [8]. Eine allgemein akzeptierte, einheitliche Theorie des Jamming, ob für thermale (Glasübergang) oder athermale Systeme oder gar beide zusammen gibt es bisher jedoch nicht.

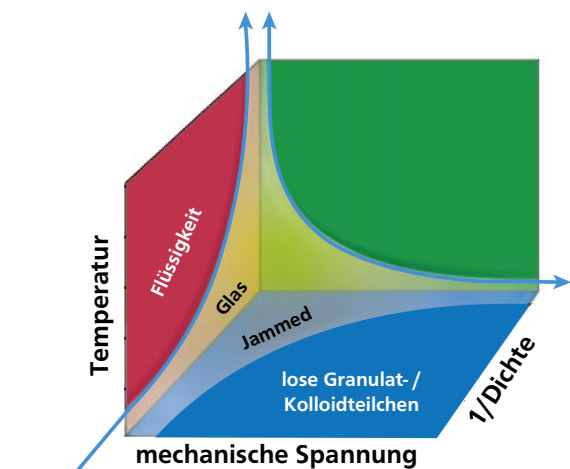


Abbildung 4: Ein Phasendiagramm des Jamming-Übergangs, das sowohl athermale (Granulate, Kolloide) wie auch thermale Systeme (molekulare Gläser) umfasst. Abbildung nach [7] und [8].

2.2 Photonenkorrelationspektroskopie

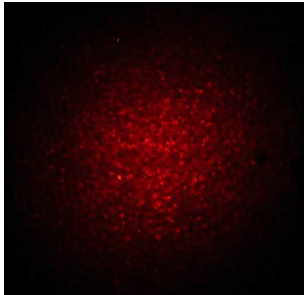


Abbildung 5: Typisches Specklemuster eines kohärent beleuchteten ungeordneten Systems.

Um die Dynamik von Granulatteilchen in der Nähe des Jamming Überganges zu studieren, wird in diesem Praktikumsversuch die Photonenkorrelationspektroskopie (PCS) eingesetzt. Diese Methode wird in vielen Bereichen der Physik kondensierter Materie verwendet, um beispielsweise die Dynamik von Kolloidteilchen, Polymerlösungen und -schmelzen, Mizellaren Systemen und auch von kleinen Molekülen zu untersuchen. Für ein Granulat, das im Gegensatz zu diesen Beispielen optisch nicht transparent ist, kommt dabei eine spezielle Variante der Methode, die *Diffusing Wave Spektroskopie* zum Einsatz.

In allen Versionen der PCS wird die zeitlich veränderliche Intensität von durch die Probe gestreutem Licht untersucht. Das Messverfahren basiert dabei auf der Auswertung des Speckle-Musters des gestreuten Lichtes. Ein Speckle-Muster ist das räumliche Muster zufällig verteilter Interferenzminima und -maxima, das entsteht, wenn eine kohärente Lichtquelle eine raue Oberfläche oder ein Volumen mit streuenden Objekten beleuchtet, vgl.

Abb. 5. Von den Streuzentren im zu untersuchenden Medium gehen dabei Kugelwellen unterschiedlicher Phasen aus, die im Fernfeld konstruktiv oder destruktiv interferieren. Die räumliche Intensitätsverteilung aufgrund dieser Phasenunterschiede ist dabei empfindlich von der Anordnung der Streuzentren abhängig, so dass die zeitabhängige Fluktuation der lokalen Lichtintensität die Fluktuationen der optischen Dichte im untersuchten Medium und damit die Dynamik des untersuchten Systems, z. B. die Bewegung von Kolloidteilchen in einer Suspension, abbildet. Experimentell ist es dabei entscheidend, dass die detektierte Lichtintensität nicht über einen zu großen räumlichen Bereich gemittelt wird, da ansonsten die zeitliche Fluktuation verloren geht. Idealerweise wird deshalb versucht z. B. mittels einer optischen Faser das Licht auf einer Fläche zu detektieren, die in etwa der Größe eines einzelnen Speckles entspricht.

Korrelationsfunktionen

In allen Versionen der PCS wird die zeitlich veränderliche Intensität von durch die Probe gestreutem Licht mit Hilfe von Korrelationsfunktionen untersucht. Darüber hinaus sind, viel allgemeiner, Korrelationsfunktionen auch ein wichtiges Werkzeug in der statistischen Physik, um strukturelle und dynamische Eigenschaften von Vielteilchensystemen zu beschreiben.

Allgemein ist Korrelation ein Maß für den *statistischen Zusammenhang* zweier Zufallsvariablen. Bekannt ist sicherlich der Korrelationskoeffizient $r(X, Y)$ zweier Variablen X, Y mit empirischen Mittelwerten $\langle x \rangle = 1/n \sum_i x_i$ und $\langle y \rangle$ sowie Standardabweichungen $\sigma_x = \sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \langle x \rangle)^2 / (n-1)}$ und σ_y , der gegeben ist durch:

$$r(X, Y) = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \langle x \rangle)(y_i - \langle y \rangle)}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \langle x \rangle)^2} \sqrt{\sum_{i=1}^n (y_i - \langle y \rangle)^2}} \quad (2)$$

und Werte zwischen $-1 \leq r \leq 1$ annehmen kann. Dabei bedeuten Werte von r nahe +1, dass die Variablen X und Y gemeinsam variieren ("wenn x groß dann auch y "), während negative r eine gegenläufige Variation ("wenn x groß dann y klein") anzeigen. Beachten Sie, dass in Glg. (2) die spitze Klammer $\langle \dots \rangle$ den Erwartungswert einer statistischen Größe bezeichnet, der über den empirischen Mittelwert dieser Größe abgeschätzt werden kann.

Wenn nun x_i und y_i Messwerte sind, die zeit- oder ortsabhängig aufgenommen werden, entstehen zeit- oder ortsabhängige Korrelationskoeffizienten. Diese nennt man Korrelationsfunktionen. Wird dabei eine Größe an verschiedenen Orten oder zu unterschiedlichen Zeiten *mit sich selbst* korreliert, spricht man von einer *Autokorrelationsfunktion*.

Speziell in einem PCS Experiment wird die zeitlich fluktuierende Intensität von Streulicht aus der Probe $I(t)$ (Anzahl von Photonendetektionen in einem gegebenen Zeitintervall) am gleichen Ort zu verschiedenen Zeiten mit sich selbst korreliert. In Glg. (2) betrachtet man also die Intensität zu zwei um Δt verschiedenen Zeiten $I(t_0)$ und $I(t_0 + \Delta t)$ und setzt deshalb $x_i = I(t_i)$ und $y_i = I(t_i + \Delta t)$. Nun nehmen wir an, dass der (zeitliche) Mittelwert der interessierenden Messgröße unabhängig vom Startzeitpunkt der Messung ist, vorausgesetzt die Anzahl n der Werte über die empirisch gemittelt wird, ist ausreichend groß. Dann ist:

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{n} \sum_i^n I(t_i) = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{n} \sum_i^n I(t_i + \Delta t) = \langle I \rangle \quad (3)$$

und Glg. (2) ergibt:

$$r_{\Delta t}(I) = \frac{1/n \sum_i^n I(t_i) \cdot I(t_i + \Delta t) - \langle I \rangle^2}{\langle I^2 \rangle - \langle I \rangle^2} = \frac{\langle I(t_0) \cdot I(t_0 + \Delta t) \rangle - \langle I \rangle^2}{\langle I^2 \rangle - \langle I \rangle^2} \quad (4)$$

Gewöhnlich wird aus praktischen Gründen die Normierung etwas anders gewählt und man definiert eine Intensitätsautokorrelationsfunktion g_2 als:

$$g_2(\Delta t) = g_2(k\delta t) = \frac{\langle I(t_0) \cdot I(t_0 + \Delta t) \rangle}{\langle I \rangle^2} = \frac{1/n \sum_i^n I(t_i) \cdot I(t_{i+k})}{\langle I \rangle^2} \quad (5)$$

wobei man meist der Einfachheit halber $t_0 = 0$ und $t = t_0 + \Delta t = \Delta t$ setzt, da der Startzeitpunkt, wie gesagt, keine Rolle spielt. Also:

$$g_2(t) = \frac{\langle I(0) \cdot I(t) \rangle}{\langle I \rangle^2} \quad (6)$$

Die Funktion $g_2(t)$ fällt dann vom Wert $\langle I^2 \rangle / \langle I \rangle^2$ bei $t = 0$ auf den Wert 1 ab, wenn bei langen Zeiten aufgrund der ungeordneten Bewegung der Streuzentren die Intensitäten $I(0)$ und $I(t)$ voneinander statistisch unabhängig geworden sind, so dass $\langle I(0) \cdot I(t) \rangle = \langle I(0) \rangle \langle I(t) \rangle = \langle I \rangle^2$. Deshalb wird häufig anstelle der Funktion $g_2(t)$ die Größe $g_2(t) - 1$ aufgetragen.

Es zeigt sich nun, da die zeitabhängige Position der Streuzentren sich auf die Phase der gestreuten Welle auswirkt, dass die Dynamik der Streuzentren zunächst einmal mit der Autokorrelationsfunktion des elektrischen Feldes verknüpft ist (vgl. auch Rechnung im Anhang):

$$g_1(t) = \frac{\langle E^*(0)E(t) \rangle}{\langle E^2 \rangle} = \frac{\langle E^*(0)E(t) \rangle}{\langle I \rangle} \quad (7)$$

Diese Funktion fällt vom Wert $\langle E^*(0)E(t \rightarrow 0) \rangle / \langle E^2 \rangle = 1$ bei sehr kurzen Zeiten auf den Wert $\langle E^*(0) \rangle \langle E(t) \rangle / \langle E^2 \rangle = 0$ bei sehr langen Zeiten ab. Im einfachsten Fall vollzieht sich diese Relaxation exponentiell mit einer charakteristischen Zeit τ , also:

$$g_1(t) = e^{-t/\tau} \quad (8)$$

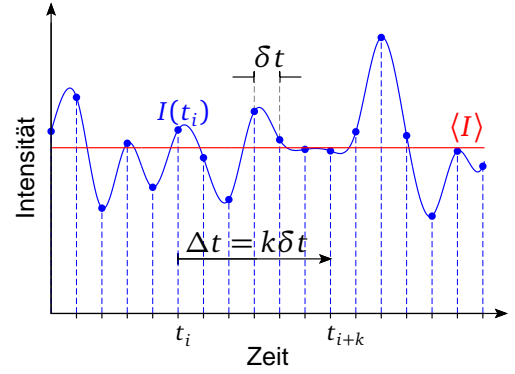


Abbildung 6: Die um den Mittelwert $\langle I \rangle$ fluktuierende Lichtintensität als Funktion der Zeit. Die Zeitachse ist in diskrete Intervalle δt unterteilt; zu jeder Zeit t_i findet eine Intensitätsmessung statt.

In der Nähe des Jamming Übergangs werden jedoch sowohl bei thermalen als auch in athermalen Systemen häufig Abweichungen von diesem einfachen Verhalten beobachtet, und die Korrelationszerfall wird mit einer *Kohlrausch-Williams-Watts* Funktion beschrieben:

$$g_1(t) = e^{-(t/\tau)^\beta} \quad \text{mit } 0 < \beta \leq 1 \quad (9)$$

Für Werte von $\beta < 1$ ist solch eine Korrelationsfunktion gestreckt, wie nebenstehende Abbildung verdeutlicht. Wie wir weiter unten noch sehen werden, ist in unserem speziellen Experiment die Funktion $g_1(t)$ mit dem sog. mittleren Verschiebungsquadrat der Sandkörner verknüpft. In diesem Fall gibt der Verbreiterungsparameter β dann sogar Hinweise auf den speziellen Bewegungsmechanismus der Partikel.

Die Autokorrelationsfunktion des elektrischen Feldes muss zunächst aber noch mit der Intensitätskorrelationsfunktion (Messgröße!) verknüpft werden. Dies geschieht mit Hilfe der Siegert-Relation, die sich herleiten lässt, wenn die Fluktuationen des elektrischen Feldes näherungsweise gaußverteilt sind. Dann gilt [2]:

$$g_2(t) = 1 + \Lambda |g_1(t)|^2, \quad (10)$$

wobei Λ , der sogenannte *Kohärenzflächenfaktor*, im Wesentlichen umgekehrt proportional zur Anzahl der Speckles ist, über die die Intensität im Experiment gemittelt wird, im Idealfall also $\Lambda = 1$.

Diffusing Wave Spektroskopie

Diffusing Wave Spektroskopie (DWS) ist eine Variante der PCS, bei der die Vielfachstreuung von Laserlicht analysiert wird, im Gegensatz zu herkömmlichen PCS Experimenten, bei denen in guter Näherung Einfachstreuung untersucht wird. Die Methode eignet sich daher prinzipiell für trübe, eher "undurchsichtige" Materialien wie zum Beispiel Gele, Suspensionen, Schäume, Tensidlösungen oder eben Granulate. Das besondere an DWS ist dabei, dass Aufschluss über die Partikeldynamik in konzentrierten Proben auf sehr kurzen Längenskalen und in einem breiten Zeitfenster gewonnen werden kann.

In der Theorie der DWS betrachtet man das elektrische Feld am Ort des Detektors, das sich zusammensetzt aus Beiträgen von Lichtwellen, die unterschiedliche Pfade p durch die Probe durchlaufen haben:

$$E(t) = \sum_p E_p e^{i\Phi_p(t)} \quad (11)$$

Dabei ist E_p die elektrische Feldamplitude und $\Phi_p(t)$ die zugehörige Phasenverschiebung, die durch die Laufzeit des Lichtes auf Pfaden p von unterschiedlicher Länge s verursacht wird. Die Feldautokorrelationsfunktion ergibt sich damit zu:

$$g_1(t) = \frac{\langle E(0)E^*(t) \rangle}{\langle I \rangle} = \sum_p \frac{\langle I_p \rangle}{\langle I \rangle} \langle e^{-i(\Phi_p(t) - \Phi_p(0))} \rangle = \int \langle e^{-i\Delta\Phi_s(t)} \rangle P(s) ds \quad (12)$$

Im ersten Schritt wurde dabei angenommen, dass die Beiträge einzelner Lichtpfade p zur Gesamtintensität statistisch unabhängig voneinander sind. Der Beitrag eines bestimmten Pfades zur gesamten Streuintensität ist dabei gegeben durch $\langle I_p \rangle / \langle I \rangle$ und es gilt $\sum_p \langle I_p \rangle / \langle I \rangle = 1$. Da aber für die Phase des

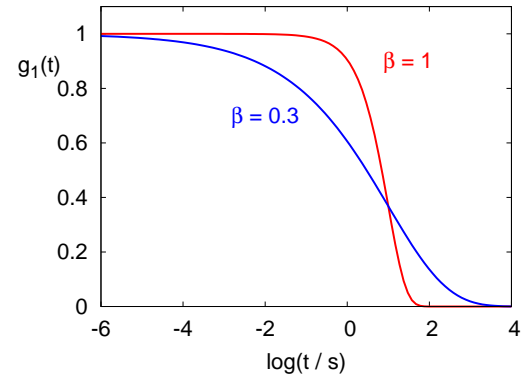


Abbildung 7: Beispiel für einfach und gestreckt exponentielle Relaxation gemäß Glg. (9) mit einer charakteristischen Zeit von $\tau = 10$ s.

elektrischen Feldes nur die Weglänge eine Rolle spielt wurde vereinfachend im zweiten Schritt in Glg. (12) auf eine äquivalente Verteilung von Weglängen $P(s)$ übergegangen.

Nun wird auch klar, warum mit DWS besonders kleine Partikelbewegungen analysiert werden können: Eine Änderung der Gesamtweglänge um etwa eine Wellenlänge λ wird durch eine kumulative Bewegung vieler Partikel als Streuzentren verursacht. Darum ist es ausreichend wenn sich jeweils ein einzelnes Partikel nur um einen Bruchteil von λ bewegt, um eine ausreichende Phasenverschiebung des Laserlichtes zu bewirken. Dementsprechend kann mittels DWS die Bewegung von μm -großen Partikeln auf Längenskalen in der Größenordnung von wenigen nm gemessen werden.

Die weitere Rechnung basiert nun auf einer wichtigen Näherung, die sich auf die Beschreibung der Ausbreitung des Lichtes durch das streuende Medium bezieht. Jedes Photon wird sehr oft gestreut, so dass sein Weg durch das Medium als ein sog. "random walk" dargestellt werden kann: als Abfolge von Zufallsschritten der Länge l^* , die in alle Richtungen gleich wahrscheinlich sind. Für ein einzelnes Partikel ist die Streuung von Licht jedoch nur dann in guter Näherung isotrop, wenn der Teilchendurchmesser d viel kleiner ist als die Lichtwellenlänge λ , also $d/\lambda \ll 1$. Nur in diesem Fall führt das Durchqueren der mittleren freien Weglänge l zwischen zwei Streuzentren zu einer Randomisierung der Streurichtung. Größere Partikel hingegen haben meist eine ausgeprägte Vorwärtstreucharakteristik, so dass es im Mittel mehrere Streueignisse braucht bis die Ausbreitungsrichtung der gestreuten Welle von der Richtung der einfallenden Welle unabhängig ist. Diese Länge wird als mittlere Transportweglänge l^* bezeichnet und wird wie folgt definiert:

$$l^* = \frac{l}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \quad (13)$$

mit θ als Streuwinkel und $\langle \dots \rangle$ einer Mittlung über viele Streueignisse. Ist der Winkel θ dabei gleichverteilt, so ist $\langle \cos \theta \rangle = 0$ und $l^* = l$. Ist die Streuung hingegen stark in Vorwärtsrichtung konzentriert, der Streuwinkel im Mittel klein und $\langle \cos \theta \rangle \approx 1$, dann bräuhete es im Grenzfall beliebig viele Streueignisse um die Streurichtung zu randomisieren und $l^* \rightarrow \infty$.

Im einfachsten Fall ergibt sich dann für die Feldautokorrelationsfunktion mit $k_0 = 2\pi/\lambda$ (vgl. Anhang):

$$g_1(t) = \int_0^\infty P(s) \exp\left(-\frac{k_0^2 s}{3l^*} \langle \Delta r^2(t) \rangle\right) ds, \quad (14)$$

wobei die zeitabhängigen Orte der Streuzentren $\vec{r}_i(t)$ eingehen als das *mittlere Verschiebungskadrat* (MSD, mean square displacement): $\langle \Delta r^2(t) \rangle = 1/N \sum_i \langle (\vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(0))^2 \rangle$. Dies ist die zentrale Messgröße der DWS und eine Größe, die z.B. auch häufig in Molekulardynamik-Simulationen analysiert wird. Sie gibt nicht nur Auskunft darüber, *wie weit* ein Teilchen sich in einem bestimmten Zeitintervall im Mittel bewegt, sondern auch *auf welche Weise*: Erfährt das Teilchen auf seiner Trajektorie keine Stöße mit anderen Partikeln, bewegt sich also ballistisch, im "freien Flug", dann ist $\langle \Delta r^2(t) \rangle = \langle \delta v^2 \rangle t^2$. Dabei ist $\langle \delta v^2 \rangle$ die mittlere quadratische Fluktuation der Geschwindigkeit und ist somit ein Maß für die im System enthaltene kinetische Energie. Mit ihrer Hilfe kann z. B. in einem granularen Medium eine sog. *granulare Temperatur* definiert werden. Erfährt ein Teilchen dagegen viele Stöße und vollführt darum im Mittel einen *Random Walk*, so lässt sich dieser nach einer ausreichenden Anzahl von Schritten als diffusiver Prozess

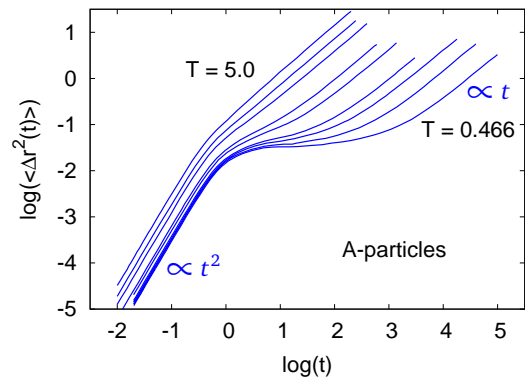


Abbildung 8: Beispiel für den zeitlichen Verlauf von $\langle \Delta r^2(t) \rangle$, wie man ihn im Rahmen von Molekulardynamik-Simulationen erhält. Hier für eine Teilchensorte eines binären Lennard-Jones Systems, ein Modell System für unterkühlte Flüssigkeiten. Daten aus [6].

mit einer Diffusionskonstante D darstellen und es gilt: $\langle \Delta r^2(t) \rangle = 6Dt$ (s. a. Aufgabe 2). In beiden Fällen wächst $\langle \Delta r^2 \rangle$ als Funktion der Zeit also unbeschränkt an. Unterliegt hingegen die Dynamik eines Teilchens einer geometrischen Einschränkung, entweder von außen aufgeprägt (z. B. bewegliches Teilchen in einer porösen, festen Matrix) oder durch den kollektiven Effekt vieler anderer Teilchen ("Käfigeffekt" bei unterkühlten Flüssigkeiten), dann sättigt $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ zu langen Zeiten auf einen konstanten Wert und zeigt so im Mittel eine Lokalisierung der Teilchen an. Ein typisches Beispiel für ein $\langle \Delta r^2(t) \rangle$, wie man es in Simulationen und Experimenten nicht nur in molekularen sondern auch in kolloidalen und in granularen Systemen beobachtet, finden Sie in Abb. 8.

Um das MSD aus der Feldautokorrelationsfunktion zu erhalten, muss strenggenommen die Verteilung von Weglängen $P(s)$, die das Licht durch die Probe zurücklegt, bekannt sein. Glg. (14) zeigt dabei, dass lange Photonenwege zu einem schnelleren Abfall der Korrelationsfunktion beitragen. Um $P(s)$ zu berechnen, wird die Ausbreitung des Lichtes in der Diffusions-Approximation beschrieben, d. h. es muss eine Diffusionsgleichung für die Energiedichte der Lichtwelle gelöst werden. Man nutzt dabei aus, dass Glg. (14) die Form einer Laplace-Transformation hat. Die Lösung hängt dann von der exakten Geometrie der Probe und der verwendeten Optik ab [3]. Im Normalfall muss der resultierende Ausdruck dann numerisch invertiert werden, um das MSD zu erhalten. Es zeigt sich jedoch, dass besonders in Transmissionsgeometrie die Korrelationsfunktion von einer mittleren Weglänge s_0 dominiert wird: Nimmt man an, dass der Weg des Lichtes durch die Probe als Random Walk mit im Mittel N_R Schritten der Länge l^* beschrieben werden kann, dann ist die mittlere Weglänge gegeben durch $s_0 = N_R \cdot l^*$ und der mittlere End-zu-End Abstand des Random Walk ist $L^2 = N_R \cdot l^{*2}$. Nimmt man nun an, dass in Transmissionsgeometrie der Küvettendurchmesser gerade dem mittleren End-zu-End Abstand des Random Walk entspricht, so ergibt sich als Abschätzung für eine mittlere vom Licht zurück gelegte Weglänge $s_0 = L^2/l^*$. Die einfachste Annahme für $P(s)$ ist somit die einer δ -Verteilung um s_0 , also:

$$P(s) \simeq \delta(s - s_0) \quad (15)$$

und aus Glg. (14) wird:

$$g_1(t) = \exp\left(-\frac{k_0^2}{3} \left(\frac{L}{l^*}\right)^2 \langle \Delta r^2(t) \rangle\right) \quad (16)$$

3 Versuchsbeschreibung

Abb. 9 zeigt schematisch den Aufbau des Experimentes. Ein HeNe Laser bei einer Wellenlänge von $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ bestrahlt eine Küvette ($L = 1 \text{ cm}$, $B = 5 \text{ cm}$, $H = 12 \text{ cm}$) die bis zu einer Höhe von ca. 8 cm mit kleinen Glaskügelchen ($d = (615 \pm 15) \mu\text{m}$) gefüllt ist. Die Küvette befindet sich auf einer Vibrationseinheit, die nach dem Lautsprecherprinzip funktioniert (elastische Membran, Magnet, Spule) und von einem Funktionsgenerator angesteuert wird. Führungsstangen am oberen Ende der Küvette sorgen dabei für Stabilität des Systems gegen seitliche Bewegungen, so dass die Küvette stabil in \hat{e}_z -Richtung schwingt mit einer Amplitude A_0 und einer Kreisfrequenz ω : $\vec{r}(t) = A_0 \hat{e}_z \sin(\omega t)$. Auf einer kleinen Platine direkt an der Küvette ist ein kapazitiver Beschleunigungssensor angebracht. Von diesem Sensor wird die momentane Beschleunigung, die das System erfährt, in eine Spannung umgesetzt, die an einem Oszilloskop direkt in Einheiten der Erdbeschleunigung g abgelesen werden kann. Dabei lassen sich am Sensor zwei Messbereiche einstellen: Im Bereich " $\pm 2g$ " beträgt die Auflösung des Sensors 600 mV/g , im Bereich " $\pm 4g$ " sind es 300 mV/g . Damit lässt sich am Oszilloskop auch direkt die dimensionslose Beschleunigungsamplitude $G^* = \omega^2 A_0/g$ der Sinusschwingung ablesen.

Das Streulicht wird nun in eine optische Single-Mode-Faser eingekoppelt. Diese Art optische Fasern zeichnen sich dadurch aus, dass ihr Kerndurchmesser so klein ist (nur einige Wellenlängen), dass das Licht sich in der Faser nur parallel zur Zentralachse ausbreiten kann und nicht auch per Totalreflexion an

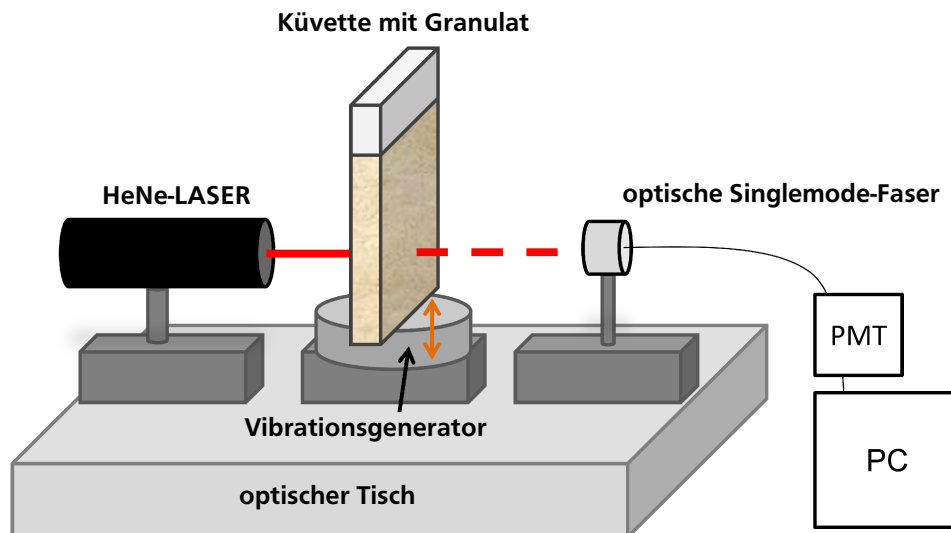


Abbildung 9: Der für das DWS Experiment verwendete Aufbau.

der Faserwand. Man sagt auch, dass die Faser nur eine transversale Mode überträgt. In unserem Experiment nutzen wir diese Eigenschaft der Faser, um in etwa einen einzelnen Speckle aus dem Streulicht zu selektieren, da Licht nur aus einem kleinen Raumwinkelbereich durch die Faser transportiert wird. Die Faser koppelt das Licht dann in einen Photomultiplier (PMT, photo multiplier tube), der pro detektiertem Photon einen elektrischen Puls an eine schnelle Counter/Timer Karte im PC sendet.

Zur Durchführung – bitte beachten Sie: Photomultiplerröhren sind empfindliche und teure Messinstrumente. Wenn unter Spannung, dürfen sie niemals ungeschützt dem Tageslicht ausgesetzt werden. Auch darf niemals bei angeschlossener PMT der Laser direkt in die Faser gekoppelt werden. Bitte achten Sie während der Messung darauf, dass die Zählraten stets unter 1 MHz bleiben und schließen Sie nach jeder erfolgten Messung und bevor das Experiment umgebaut oder verändert wird unbedingt den Shutter vor der optischen Faser.

Im PC wird dann mit einem *LabView*-Programm gemäß Glg. (5) die Korrelationsfunktion der fluktuierenden Lichtintensität ausgerechnet. Nach ca. einer Minute Wartezeit wird dann in Echtzeit der Aufbau der Korrelationsfunktion $g_2(t) - 1$ auf unterschiedlichen Zeitskalen in den verschiedenen Fenstern des Messprogrammes angezeigt. Diese Korrelationsfunktion ist zunächst komplizierter als man naiv nach Glg. (16) erwarten würde, da sie natürlich auch durch die Schwingung der Küvette modifiziert wird. Wie im Anhang gezeigt wird, erhält die Intensitätskorrelationsfunktion dadurch einen zusätzlichen periodischen Anteil, sog. "Echos", die immer im Abstand von einer Schwingungsdauer auftreten, und die z. B. mit einem statischen diffusen Streuer, wie einem Stück Schaumstoff, das ebenso vibriert wird wie die Sandküvette, auch direkt vermessen werden können (Aufg. 4). Da nach Glg. (33) (s. Anhang) der periodische Anteil einen "Vorfaktor" zu $g_1(t)^2$ aus Glg. (16) bildet, kann der Anteil der Korrelationsfunktion, den Glg. (16) beschreibt, extrahiert werden, in dem man die Korrelationsfunktion stets bei Vielfachen der Periodendauer T auswertet, also z. B. in dem man nur die Amplitude der Echomaxima betrachtet. Aus diesem Grunde werden die Echomaxima und -minima vom Messprogramm auch stets zusätzlich zur gesamten Korrelationsfunktion in einer separaten Datei abgespeichert.

4 Aufgaben

1. **Hausaufgabe:** Warum werden Granulate als *athermale Systeme* bezeichnet? Vergleichen Sie zur Beantwortung dieser Frage jeweils die thermische kinetische Energie eines Sandkorns und eines Moleküls bei Raumtemperatur (300 K) mit der Differenz in potentieller Energie im Schwerfeld

der Erde bei einem Höhenunterschied, der etwa dem Partikeldurchmesser entspricht.

Zur Abschätzung: $m_{\text{Sandkorn}} = 0.1 \text{ mg}$, $d_{\text{Sandkorn}} = 100 \mu\text{m}$, $m_{\text{Molekül}} = 10^{-23} \text{ g}$, $d_{\text{Molekül}} = 1 \text{ nm}$.

2. **Hausaufgabe:** Die diffusive Bewegung von Teilchen aufgrund Brownscher Dynamik kann mittels der Diffusionsgleichung mit einem Diffusionskoeffizienten D beschrieben werden:

$$\frac{\partial}{\partial t} p(\vec{r}, t) = D \cdot \nabla^2 p(\vec{r}, t) \quad (17)$$

Dabei ist $p(\vec{r}, t) dV$ die Wahrscheinlichkeit, ein Teilchen zum Zeitpunkt t im Volumenelement dV am Ort \vec{r} vorzufinden, vorausgesetzt es befand sich am Ursprung zur Zeit $t = 0$. Die Lösung dieser Gleichung ist eine "auseinanderlaufende" Gaußverteilung:

$$p(\vec{r}, t) = \frac{1}{(4\pi Dt)^{3/2}} e^{-r^2/(4Dt)} \quad (18)$$

Zeigen Sie mit Hilfe dieser Verteilung, dass für das mittlere Verschiebungsquadrat gilt:

$$\langle \Delta r^2 \rangle = 6Dt.$$

Hinweis: Rechnen Sie in kartesischen Koordinaten und betrachten Sie Δr^2 zunächst nur in einer Dimension.

Diskutieren Sie nun $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ wie es typischerweise in Molekulardynamik Simulationen von thermalen Systemen gefunden wird anhand der Abb. 8 und identifizieren Sie dabei die im Text erwähnten Bewegungsmechanismen. Welches Verhalten erwarten Sie im Vergleich dazu in einem schwingungsfluidisierten granularen System?

3. **Hausaufgabe:** a) Studieren Sie die Herleitung für den Ausdruck der Intensitätsautokorrelationsfunktion $g_2(t) - 1$ im Anhang. Welche wichtigen Voraussetzungen und Näherungen gehen ein?
b) Welches Verhalten der Korrelationsfunktion erwarten Sie nach Glg. (33) in Ihrem Experiment ober- bzw. unterhalb des Jamming Übergangs?
4. Vermessen Sie die Echos in der Intensitätskorrelationsfunktion für einen vibrierenden statischen Streuer bei einer Schwingungsfrequenz von $f = 50 \text{ Hz}$ und einer dimensionslosen Beschleunigung von $G^* = 1$. Weshalb ist eine solche Messung notwendig? Entspricht das Resultat Ihren Erwartungen?
5. Nehmen Sie nun Korrelationsfunktionen für ein schwingungsfluidisiertes Granulat für ca. 5 verschiedene Beschleunigungen im Bereich $G^* = 0.8 \dots 1.0$ auf für einen Abstand von ca. $h = 3 \text{ cm}$ unterhalb der Füllhöhe des Granulates (Messzeit jeweils etwa 10^3 s , $f = 50 \text{ Hz}$). Hinweis: Es empfiehlt sich das Granulat vor jedem Messdurchlauf kurz aufzuschütteln (warum?). Extrahieren Sie die Korrelationsfunktion der Sandkörner aus den Echomaxima und stellen Sie diese auf einer logarithmischen Zeitachse dar. Passen Sie nun eine KWW-Funktion nach Glg. (9) an Ihre Daten an (*fit* mit dem Programm *gnuplot*) und tragen Sie die Relaxationszeit $\log(\tau)$ gegen die dimensionslose Beschleunigung G^* auf.
6. Berechnen Sie aus *einer* geeigneten Korrelationsfunktion das mittlere Verschiebungsquadrat als Funktion der Zeit und stellen Sie das Ergebnis grafisch dar. Nehmen Sie dazu näherungsweise an, dass die mittlere freie Transportweglänge ca. dem eineinhalbfachen Teilchendurchmesser entspricht: $l^* = 1.5 d$. Wie groß ist unter dieser Annahme die mittlere Anzahl der Streueignisse und wie lang der mittlere Weg s_0 des Lichtes durch die Probe? Diskutieren Sie das mittlere Verschiebungsquadrat $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ und erörtern Sie den zugrunde liegenden Bewegungsmechanismus.

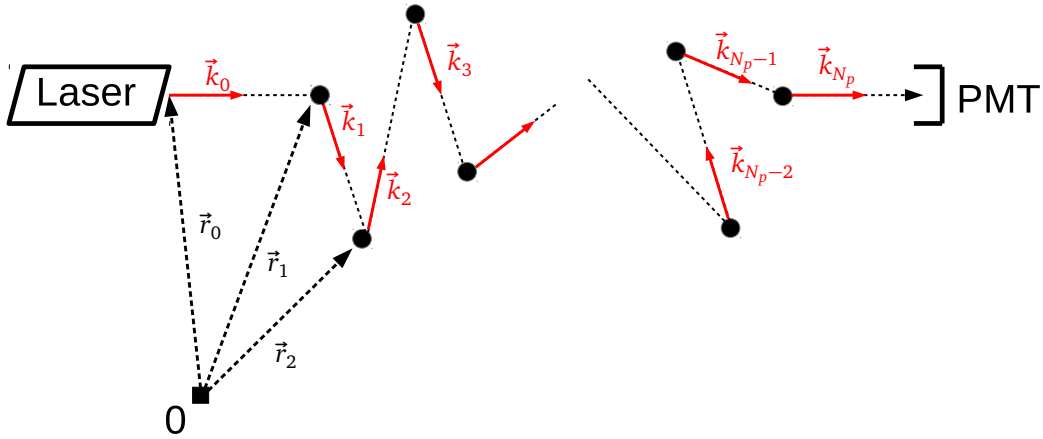


Abbildung 10: Schematische Darstellung eines möglichen Lichtpfades p vom Laser ($i = 0: \vec{r}_0$) zum Detektor ($i = N_p + 1: \vec{r}_{N_p+1}$) durch die Probe, mit den Ortsvektoren der einzelnen Streuzentren $\vec{r}_i, i = 1 \dots N_p$ und den von den Streuzentren ausgehenden Wellenvektoren \vec{k}_i .

A Die Intensitätsautokorrelationsfunktion im DWS Experiment

Um zunächst die Feldautokorrelationsfunktion zu berechnen, starten wir mit Glg. (12). Wie bereits festgestellt, wird das Signal am Ort des Detektors durch eine Überlagerung von Lichtwellen erzeugt, die unterschiedliche Pfade p durchlaufen haben:

$$g_1(t) = \sum_p \frac{\langle E_p(0) E_p^*(t) \rangle}{\langle I \rangle} = \sum_p \frac{\langle I_p \rangle}{\langle I \rangle} \langle e^{-i \Delta \Phi_p(t)} \rangle \quad (19)$$

Ziel ist es nun, die auf dem Pfad p entstehende Phasenverschiebung $\Delta \Phi_p(t)$ genauer auszuwerten. In Abb. 10 ist ein zugehöriger möglicher Lichtweg durch die Probe schematisch dargestellt. Da die Lichtwelle in guter Näherung elastisch gestreut wird, haben alle Wellenvektoren dabei den gleichen Betrag $k_i = 2\pi/\lambda$, aber unterschiedliche Richtungen.

$$\Phi_p(t) = \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(t) [\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)] \quad (20)$$

Dabei sind die Positionen von Laser und Detektor \vec{r}_0 und \vec{r}_{N_p+1} fest, alle anderen $i = 1, \dots, N_p$ sind zeitabhängig, wobei sich für das Schüttelexperiment die Position zur Zeit t aus der periodisch in z -Richtung sich ändernden Position der Küvette und der relativen Position eines Sandkorns in der Küvette $\vec{x}_i(t)$ zusammensetzt:

$$\vec{r}_i(t) = A_0 \hat{e}_z \sin(\omega(t + t_0)) + \vec{x}_i(t) \quad (21)$$

Dabei definiert t_0 die Anfangsposition der Küvette zur Zeit $t = 0$. Mit Glg. (20) ergibt sich die Phasenverschiebung auf dem Pfad p zu:

$$\begin{aligned} \Delta \Phi_p(t) &= \Phi_p(t) - \Phi_p(0) \\ &= \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(t) [\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)] - \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(0) [\vec{r}_{i+1}(0) - \vec{r}_i(0)] \\ &= \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(0) [\Delta \vec{r}_{i+1}(t) - \Delta \vec{r}_i(t)] + \sum_{i=0}^{N_p} \Delta \vec{k}_i(t) [\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)] \end{aligned} \quad (22)$$

Dabei ist $\Delta\vec{r}_i(t) = \vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(0)$ und $\Delta\vec{k}_i(t) = \vec{k}_i(t) - \vec{k}_i(0)$.

Nun nimmt man an, dass in erster Näherung gilt $\Delta\vec{k}_i(t) \perp (\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t))$ (machen Sie sich diese Näherung anhand von Abb. 10 klar; bedenken Sie, dass der Betrag des Wellenvektors konstant bleibt und $\Delta r_i(t) \ll |\vec{r}_{i+1}(t) - \vec{r}_i(t)|$ eine kleine Verschiebung ist!) und so der zweite Term in Glg. (22) vernachlässigbar ist. Also bleibt:

$$\Delta\Phi_p(t) = \sum_{i=0}^{N_p} \vec{k}_i(0) [\Delta\vec{r}_{i+1}(t) - \Delta\vec{r}_i(t)] \quad (23)$$

Jetzt setzen wir Glg. (21) in Glg. (23) ein und stellen fest (nachrechnen!), dass alle Schwingungsanteile innerhalb der Küvette sich gegenseitig aufheben und nur die Anteile am Rand übrig bleiben, also:

$$\begin{aligned} \Delta\Phi_p(t) &= \vec{k}_0 A_0 \hat{e}_z [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] - \vec{k}_{N_p} A_0 \hat{e}_z [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] + \\ &+ \sum_{i=0}^{N_p-1} \vec{k}_i \Delta\vec{x}_{i+1}(t) - \sum_{i=1}^{N_p} \vec{k}_i \Delta\vec{x}_i(t) \\ &= (\vec{k}_0 - \vec{k}_{N_p}) A_0 \hat{e}_z [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] + \\ &+ \sum_{i=1}^{N_p} \vec{k}_{i-1} \Delta\vec{x}_i(t) - \sum_{i=1}^{N_p} \vec{k}_i \Delta\vec{x}_i(t) \end{aligned} \quad (24)$$

Mit den Definitionen $\vec{q}_i = \vec{k}_i - \vec{k}_{i-1}$ und $\kappa_p = (\vec{k}_{N_p} - \vec{k}_0) \cdot \hat{e}_z = \vec{k}_{N_p} \cdot \hat{e}_z$ (denn $\vec{k}_0 \perp \hat{e}_z$, während $\vec{k}_{N_p} \cdot \hat{e}_z$ vom Pfad p abhängt) ergibt sich so:

$$\Delta\Phi_p(t) = -A_0 \kappa_p [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)] - \sum_{i=1}^{N_p} \vec{q}_i \Delta\vec{x}_i(t) \quad (25)$$

Nun sind nach dem Zentralen Grenzwertsatz die Phasenverschiebungen $\Delta\Phi_p$ entlang verschiedener Pfade näherungsweise gaußverteilt und es gilt $\langle \Delta\Phi_p(t) \rangle = 0$. Deshalb liefern die ungeraden Momente von $\Delta\Phi_p$ in Glg. (19) keinen Beitrag und es ergibt sich im Mittel für den Phasenfaktor in Glg. (19):

$$\langle e^{-i\Delta\Phi_p(t)} \rangle = \sum_{m=0}^{\infty} \left\langle \frac{(-i\Delta\Phi_p(t))^m}{m!} \right\rangle = e^{-\langle \Delta\Phi_p^2(t) \rangle / 2} \quad (26)$$

Im letzten Schritt wurde dabei ausgenutzt, dass für normalverteilte Zufallsgrößen alle höheren zentralen Momente aus dem zweiten Moment berechnet werden können gemäß: $\langle \Delta\Phi^{2m} \rangle = (2m)! / (2^m m!) \langle \Delta\Phi^2 \rangle^m$. Der Schwingungsanteil $A_0 \sin \dots$ sowie die Verschiebung der Sandkörner $\Delta\vec{x}_i(t)$ seien dabei statistisch unabhängig, sowie auch einzelne $\vec{q}_i \Delta\vec{x}_i$ untereinander und ebenso die jeweiligen q_i und x_i . Außerdem ist $\langle \Delta x_i \rangle = 0$ und $\langle \kappa_p \rangle = 0$. Dann ergibt sich:

$$\begin{aligned} \langle \Delta\Phi_p^2(t) \rangle &= \langle \kappa_p^2 \rangle A_0^2 [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 + \sum_i \langle (\vec{q}_i \Delta\vec{x}_i(t))^2 \rangle \\ &= \kappa^2 A_0^2 [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 + \\ &+ N_p \langle q_x^2 \rangle \langle \Delta x_x^2(t) \rangle + N_p \langle q_y^2 \rangle \langle \Delta x_y^2(t) \rangle + N_p \langle q_z^2 \rangle \langle \Delta x_z^2(t) \rangle \\ &= \kappa^2 A_0^2 [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 + 3N_p \frac{\langle q^2 \rangle}{3} \frac{\langle \Delta x^2(t) \rangle}{3} \end{aligned} \quad (27)$$

Nun ist der mittlere quadratische Streuvektor für ein jeweiliges Streueignis gegeben durch:

$$\langle q^2 \rangle = \langle (2k_0 \sin(\theta/2))^2 \rangle = 2k_0^2 (1 - \cos \theta) = 2k_0^2 \frac{l}{l_*} \quad (28)$$

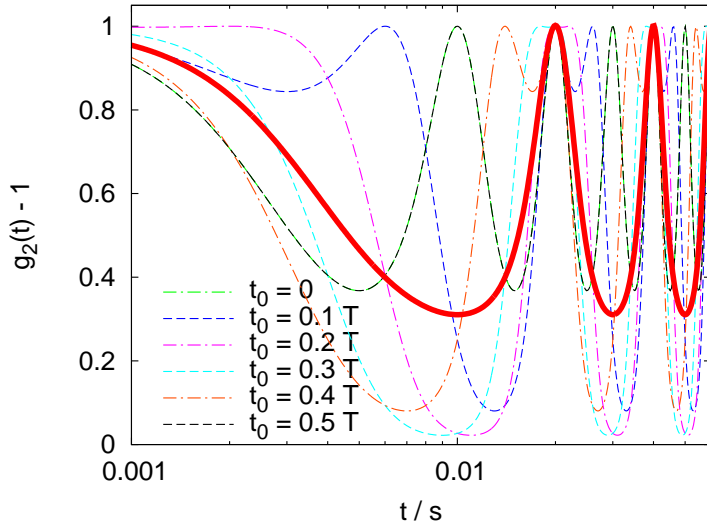


Abbildung 11: Der oszillatorische Anteil der Intensitätskorrelationsfunktion $g_2(t)-1$ gemäß Glg. (33) (durchgezogene Linie) für $\omega/2\pi = 50$ Hz, sowie einzelne Beiträge zum Integral, die aus verschiedenen Anfangszeiten t_0 resultieren (gestrichelt).

und ist damit nach der Definition von Glg. (13) bestimmt durch das Verhältnis aus mittlerer freier Streuweglänge l zur mittleren freien Transportweglänge l^* . Mit der Gesamtlänge des Pfades $s_p = N_p \cdot l$ ergibt sich also:

$$\langle \Delta\Phi_p^2(t) \rangle = \kappa^2 A_0^2 [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2 + \frac{2}{3} k_0^2 \frac{s_p}{l^*} \langle \Delta x^2(t) \rangle \quad (29)$$

Somit hängt die Phasenverschiebung nur von der Weglänge und nicht noch von weiteren Eigenschaften des Lichtpfades ab und so kann in Glg. (19) vom Anteil eines einzelnen Pfades zur gesamten Streuintensität $\langle I_p \rangle / \langle I \rangle$ zu einer Verteilung von Pfadlängen $P(s)$ übergegangen werden, wie bereits in Glg. (12) vorweggenommen wurde:

$$g_1(t) = \int_0^\infty P(s) \exp\left[-\frac{1}{2} \langle \Delta\Phi_s^2(t) \rangle\right] ds \quad (30)$$

Nun wählen wir die Vereinfachung $P(s) \simeq \delta(s-s_0)$ gemäß Glg. (15) mit $s_0 = L^2/l^*$. Damit ergibt sich für die Feldautokorrelationsfunktion im einfachsten Fall:

$$g_1(t, t_0) = e^{-\frac{1}{2} \kappa^2 A_0^2 [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2} e^{-k_0^2/3 (L/l^*)^2 \langle \Delta x^2(t) \rangle} \quad (31)$$

Dieser Ausdruck enthält noch den Anfangswert des oszillatorischen Anteils der Phasenverschiebung. Da im realen Experiment die Intensität des Lichtes über die Zeit gemittelt wird, muss der Ausdruck Glg. (31) über alle Anfangszustände der Küvettenschwingung t_0 gemittelt werden, also:

$$g_2(t) - 1 = 1/T \int_0^T |g_1(t, t_0)|^2 dt_0 \quad (32)$$

und so ergibt sich:

$$g_2(t) - 1 = \exp(-2/3 k_0^2 (L/l^*)^2 \langle \Delta x^2(t) \rangle) \cdot 1/T \int_0^T \exp(-\kappa^2 A_0^2 [\sin(\omega(t+t_0)) - \sin(\omega t_0)]^2) dt_0 \quad (33)$$

In Abb. 11 wurde das Integral aus Glg. (33) numerisch ausgeführt und ist zusammen mit einigen aus verschiedenen Anfangszeiten t_0 resultierenden Beiträgen dargestellt.