

UNTERDRÜCKUNG VON STRUKTURRESONANZEN AN KLEINEN PARTIKELN DURCH FEMTOSEKUNDEN-LASERPULSE

SUPPRESSION OF MORPHOLOGY DEPENDENT RESONANCES ON SMALL PARTICLES BY FEMTOSECOND-LASERPULSES

S.Bakić¹, C.Heinisch², N.Damaschke³, T. Tschudi² and C.Tropea¹

¹Technische Universität Darmstadt, Fachgebiet Strömungslehre und Aerodynamik, Petersenstr.30, D-64287 Darmstadt, s.bakic@sla.tu-darmstadt.de ²Technische Universität Darmstadt, Institut für Angewandte Physik, Hochschulstrasse 6, 64289 Darmstadt ³Universität Rostock, Institut für Elektrotechnik, Albert-Einstein-Strasse 2, 18051 Rostock

Strukturresonanzen, Femtosekunden-Laserpulse, Paulfalle, Kohärenz
Morphology Dependent Resonances, Femtosecond-Laserpulses, Paul-Trap, Coherence

Zusammenfassung

Im Beitrag werden numerische und experimentelle Untersuchungen der Anwendung von Femtosekunden-Laserpulsen im Bereich der Partikelgrößenbestimmung mit kleinen Empfangsaperturen vorgestellt. Dazu wurde erstmalig eine axialsymmetrische Paulfalle mit einer neuen Geometrie eingesetzt, welche durch einen optischen Zugang von 360° horizontal und mehr als 40° vertikal die Positionierung von Laserquelle und Detektor erheblich erleichtert (siehe Heinisch 2006). Es wird numerisch und experimentell nachgewiesen, dass für die Streuung von Femtosekundenpulsen, auch für kleine Empfängeraperturen, eine fast monotone Abhängigkeit der Intensität von der Partikelgröße und damit eine Unterdrückung von Strukturresonanzen zu erwarten ist.

Einleitung

Die Charakterisierung kleiner Partikel und Tropfen ist unerlässlich für das Verständnis und die Optimierung industrieller Schlüsselprozesse wie z.B. die Zufuhr von Kraftstoff in einen Verbrennungsmotor (siehe Frohn 2000).

Beleuchtet man Einzelpartikel mit elektromagnetischer Strahlung, ergibt sich eine winkelhängige Intensitätsverteilung in Abhängigkeit von Partikeldurchmesser, Brechungsindex, Wellenlänge und Strahlgeometrie. Darüber hinaus ist die Kohärenzlänge von entscheidender Bedeutung. Optische Messtechniken wie Laser Doppler und Phasen Doppler wären ohne die makroskopische Kohärenzlänge monochromatischer Laserstrahlung nicht denkbar. Leider behindern an kleinen Partikeln Interferenzen zwischen den Streulichtordnungen eine Reihe von Partikelmessverfahren (siehe Schaller 2000). Darüber hinaus treten bei monochromatischer Beleuchtung, ähnlich wie in einem Laserresonator, für bestimmte Partikelgrößen (bzw. Mie-Parameter) im Abstand von ca. 100nm Strukturresonanzen auf (siehe Roll 1999). Da kleine Tropfen ($d_p < 20\mu\text{m}$) meist ideal sphärisch sind, treten diese Probleme gerade im unteren μm -Durchmesserbereich auf und verringern die relative Genauigkeit der Größenbestimmung erheblich.

Die Kohärenzlänge eines Femtosekunden-Laserpulses liegt in der Größenordnung einiger Mikrometer. Bakic et al. 2005 haben gezeigt, dass sich die durch Interferenz der

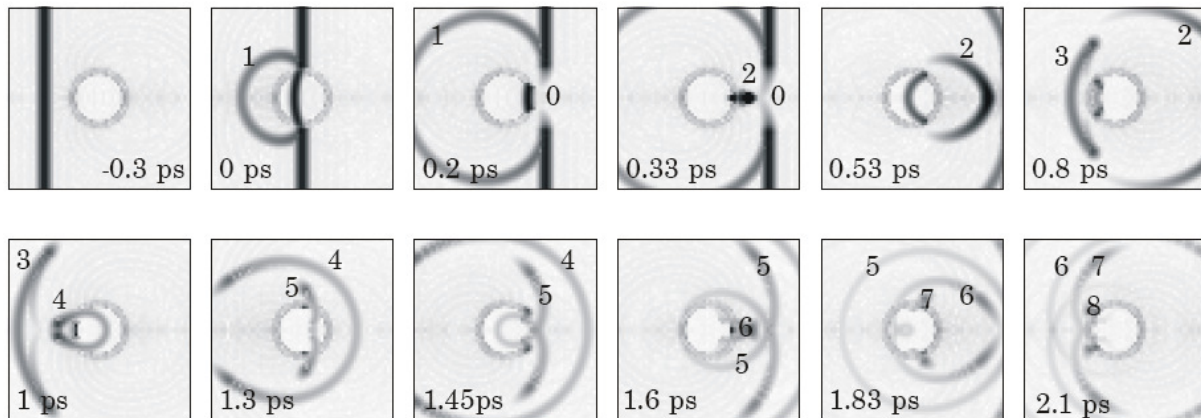


Abb.1: Simulation der Streuung eines linksseitig einfallendem 50fs-Laserpuls an einem sphärischen, homogenen Partikel mit $m = 1,33$ und $d_p = 100\text{nm}$ (siehe Damaschke 2003).

Streulichtordnungen ergebenden Oszillationen durch den Einsatz von Femtosekunden-Laserpuls in bestimmten Streuwinkelbereichen für kleine Partikel unterdrückt lassen. Da der Effekt auf der Kohärenzlänge basiert, lässt er sich auch durch Beleuchtung mit Feedback-Lasern erzielen (siehe Peil et al. 2006). Auch Strukturresonanzen können durch Femtosekunden-Laserpulse geglättet werden, da einer mikroskopischen Kohärenzlänge eine äußerst weite spektrale Intensitätsverteilung entspricht. Im Folgenden werden die Eigenschaften von Femtosekunden-Laserpuls weiter ausgeführt und numerische Simulationen sowie experimentelle Ergebnisse vorgestellt, welche das beschriebene Streulichtverhalten verdeutlichen und die Bedingungen und Anwendungsmöglichkeiten einer entsprechenden Partikelgrößenbestimmung aufzeigen.

Femtosekunden-Laserpulse

Bei der Streuung von Femtosekunden-Laserpuls interferieren die elektromagnetische Wellen der Streulichtordnungen nicht miteinander, sondern erreichen den Detektor zeitlich versetzt (siehe Mees et al. 2001 sowie Bech und Leder 2004). Abb. 1 zeigt den zeitlichen Verlauf der Streuung eines linksseitig einfallenden 50fs langen Laserpuls an einem sphärischen Partikel ($m = 1,33$; $d_p = 100\text{nm}$). Im zweiten bis dritten Teilbild der Abb. 1 ist die Reflexion an der Oberfläche des homogenen Partikels deutlich zu erkennen. Da die Brechung 2. Ordnung dieselbe räumliche Position erst zeitlich versetzt erreicht (Teilbilder 6 und 7 in Abb. 1), kann keine Interferenz mit dem reflektierten Anteil stattfinden. Nicht die Feldstärken, sondern die Intensitäten der Streulichtordnungen werden durch einen zeitlich integrierenden Empfänger addiert. In Abhängigkeit von Pulslänge und Partikeldurchmesser können so Oszillationen nur bei zeitlicher Überlap-

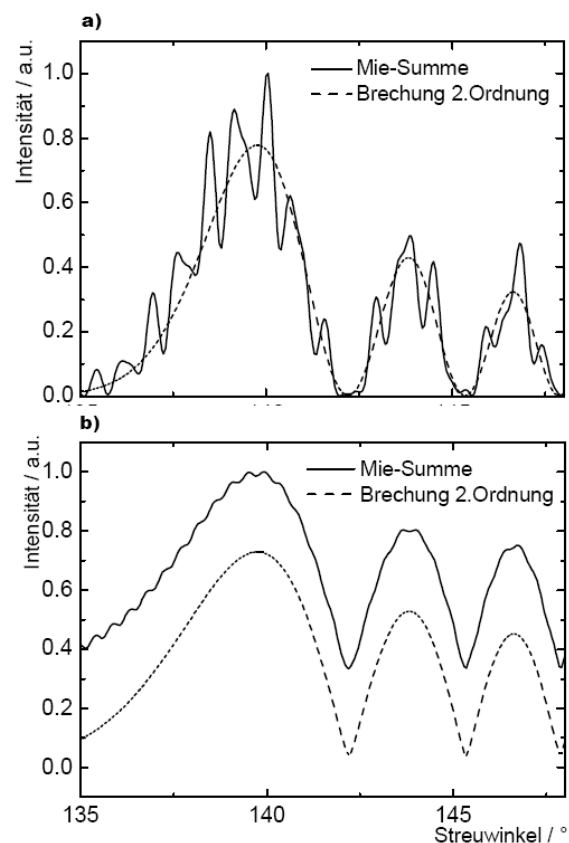


Abb. 2: a) Numerisch ermittelte, durch Oszillationen gestörte Intensitätsverteilung des Regenbogens an einem Wassertropfen bei kontinuierlicher Beleuchtung, b) Berechnete, oszillationsfreie Intensitätsverteilung durch Beleuchtung mit einem 200fs Laserpuls.

pung der Pulse der Streulichtordnungen entstehen und sind daher unterschiedlich stark ausgeprägt. Somit entsteht die in Abb. 2 b) dargestellte Intensitätsverteilung aus der Addition der Intensitäten der dominierenden Brechung 2. Ordnung (gestrichelte Linie) und den Intensitäten der weiteren Streulichtordnungen. Da die Reflexion im Bereich des Regenbogens einen wesentlichen Anteil zur Streulichtleistung beiträgt, aber einem flachen monotonen Verlauf folgt, ist die Kurve der Gesamtstreuung in Abb. 2b zu positiven Intensitätswerten hin verschoben. Die Möglichkeiten einer Erweiterung der Regenbogenmesstechnik für kleine Partikel durch Femtosekunden-Laserpunkte wird in Bakic et al. 2005 diskutiert.

Im Unterschied zu einer angularen Intensitätsverteilung wie in Abb.2 zeigt Abb.3 numerisch ermittelte Streuintensitäten für verschiedene Partikeldurchmesser bei a) kontinuierlicher (continuous wave, cw) und b) gepulster Beleuchtung. Der Separation einzelner Streuordnungen durch Femtosekunden-Laserpulse folgt eine Monotonisierung der Streufunktion bezüglich des Partikeldurchmessers. Dieses Ergebnis ist im Hinblick auf die Glättung des Regenbogens nicht selbstverständlich, da nicht nur Streukeulen am Empfänger Oszillationen hervorrufen. Abb. 3 a) zeigt Oszillationen die auf Interferenzeffekte zwischen einzelnen Streuordnungen zurückzuführen sind. Darüber hinaus ist deutlich der Beitrag von Strukturresonanzen zur Gesamtintensität zu erkennen. Strukturresonanzen (Morphology Dependent Resonances, MDR) entstehen bei genau definierten Größenparametern und zeichnen sich gegenüber den durch Interferenz zwischen den Streuordnungen entstandenen Oszillationen durch eine Halbwertsbreite auf der Skala von Nanometern aus (siehe Roll 1999). Abb.3 b) zeigt die monotonisierte Streufunktion im selben Durchmesserbereich als Folge der numerisch ermittelten Beleuchtung durch Femtosekunden-Laserpulse. Die Abwesenheit der Strukturresonanzen ist auf die erhebliche Breite der spektralen Intensitätsverteilung von ultrakurzen Laserpulsen zurückzuführen. Dadurch wird verhindert, dass die gesamte Intensität des Laserstrahls eine einzelne Resonanz anregt. Wegen der nicht trivialen Wechselwirkung zwischen den einzelnen Streuordnungen ist die Monotonisierung der Streufunktion für gleich bleibende Laserpulslängen und verschiedene Streuwinkel unterschiedlich stark ausgeprägt. Für mögliche Anwendungen ist also eine sorgfältige Auswahl des Detektionswinkels notwendig. Im Fall einer Beleuchtung durch Laserpulse mit 50 fsec Pulslänge und einem Detektionswinkel von $\vartheta_s = 70^\circ$ weisen die numerischen Ergebnisse auf einen monotonen Zusammen-

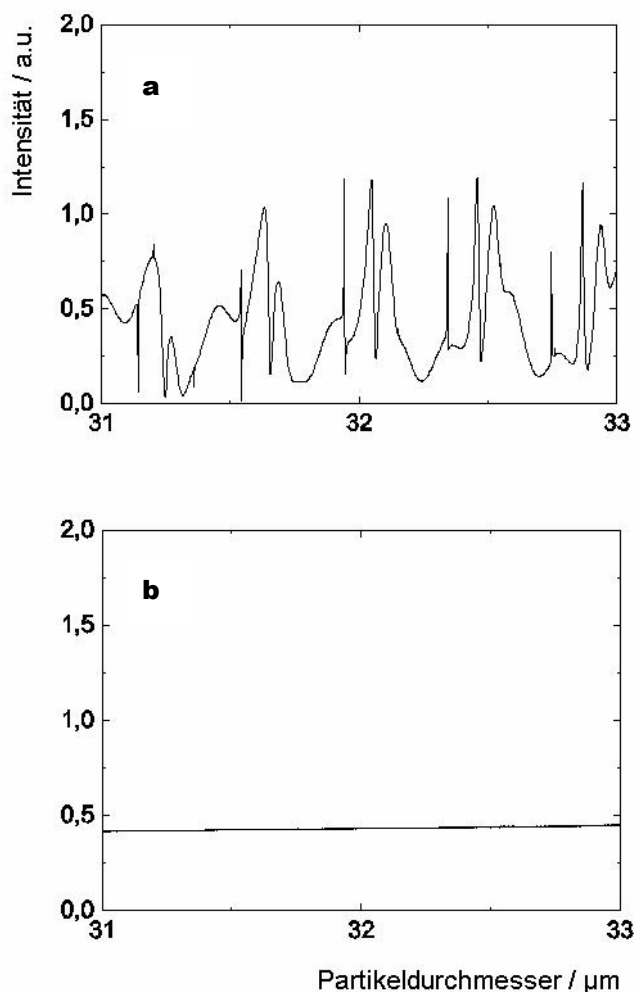


Abb. 3: Numerisch ermittelte Intensitätsverteilung für verschiedene Partikeldurchmesser eines sphärischen, homogenen Partikels ($n=1,333$). a) Kontinuierliche Beleuchtung ($\lambda = 780\text{nm}$), b) gepulste Beleuchtung ($t_p = 200\text{fsec}$, $\lambda = 780\text{nm}$)

24.4

menhang zwischen Durchmesser und Streuintensität des Partikels bis zu einem Durchmesser von ca. $d_p = 5 \mu\text{m}$ hin.

Während Strukturresonanzen unter Anderem zur Bestimmung von Verdampfungsraten von Flüssigkeitstropfen genutzt werden können, bietet deren Glättung die Aussicht auf Messung von Größenänderungen im Mikrometerbereich durch Bestimmung der Streuintensität. Aufgrund beherrschbarer Strahleigenschaften wie z.B. Polarisation, Wellenlänge und insbesondere Energiedichte ist der Laser natürlich einer Weißlichtquelle vorzuziehen, die offensichtlich ebenfalls eine breite spektrale Intensitätsverteilung und eine Kohärenzlänge im Bereich von Mikrometern aufweist.

Experimentelle Umsetzung

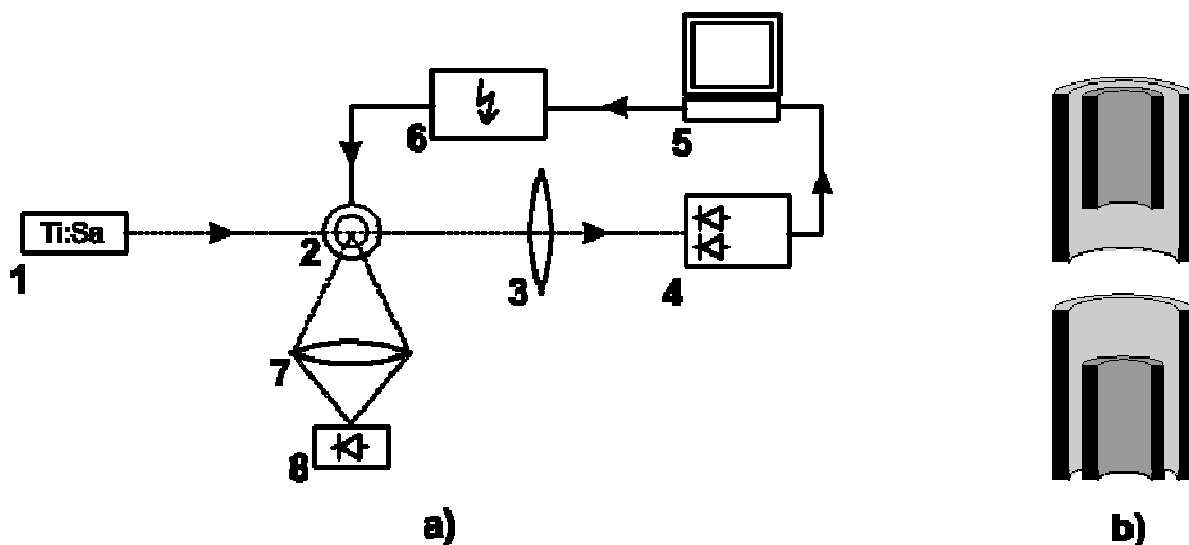


Abb.4 : a) Experimenteller Aufbau zur Detektion von Strukturresonanzen mit (1) Ti:Sa Laser, (2) Paulfalle, (3) Linse, (4) segmentierte Photodiode, (5) Rechner mit DA/AD Wandlerkarte, (6) Hochspannungsverstärkung, (7) Linse, (8) Photodiode. b) Geometrie der verwendeten elektrodynamischen Paulfalle

Abb.4 a) zeigt den experimentellen Aufbau mit dem Strukturresonanzen in kontinuierlicher und gepulster Beleuchtung untersucht wurden. Ein Wassertropfen, hergestellt durch eine HP 51604A inkjet Kartusche, levitiert in einer elektrodynamischen Paulfalle in gewöhnlicher Luft und ohne Wandkontakt. Die elektrodynamische Levitation wurde gegenüber der akustischen bevorzugt, da mit Ersterer kleine Tropfen mit Radien im gewünschten Bereich von $d_p = 3 \mu\text{m}$ bis zu $d_p = 300 \mu\text{m}$ möglich sind. Gerade Tropfen im unteren Durchmesserbereich sind als Folge der Oberflächenspannung nahezu ideal sphärisch und somit dazu geeignet numerische Resultate zu verifizieren. Die verwendete elektrodynamische Falle hat eine, in Abb.4 b) abgebildete, neu entwickelte Elektrodengeometrie mit 360° horizontalem und 43° vertikalem optischen Zugang (siehe Heinisch 2006). Die vertikale Position des verdunstenden Tropfens wird durch eine Steuerschleife kontrolliert. Dazu wird der Tropfen auf eine segmentierte Photodiode abgebildet, die über einen PC mit Steuerungssoftware und einen Hochspannungsverstärker mit den Elektroden verbunden ist. Der Tropfen wurde mit einem Ti:Sa Laser im cw-Betrieb bei einer Wellenlänge von 784nm und mit einer Leistung von bis zu 800mW und im gepulsten Betrieb mit 75MHz Wiederholrate und 11nJ Pulsenergie beleuchtet. Die durch den Tropfen gestreute Intensität wurde von einer weiteren Photodiode mit einer Aufnahme-

frequenz von 10 kHz detektiert. Dazu wurde der Tropfen auf die Photodiode abgebildet, wobei die Linse gestreutes Licht in einem horizontalen Winkel von 55° bis 97° sammeln konnte.

Abb.5 zeigt gemessene Intensitätsverteilungen für levitierte Tropfen in der elektrodynamischen Paulfalle im cw und gepulstem Laserbetrieb. Der Durchmesser der Tropfen wurde in Heinisch 2006 zu $d_p < 60\mu\text{m}$ abgeschätzt. Die zeitliche Entwicklung wird durch die Verdunstung der Tropfen bestimmt. Die ausgeprägten Intensitätsschwankungen entsprechen den numerisch ermittelten Oszillationen in Abb. 2 a). Diese werden durch gepulste Beleuchtung erheblich geglättet, siehe Abb.5 b). Darüber hinaus werden Strukturresonanzen maßgeblich reduziert. Untersuchungen der entsprechenden Fouriertransformation bestätigen die Vermutung, dass es sich bei den wenig ausgeprägten Oszillationen in Abb.5 b) um die Frequenzen des Stromnetzes und des elektrodynamischen Potentials der Paulfalle bei $\nu = 50\text{ Hz}$ und $\nu = 200\text{ Hz}$ handelt.

Zusammenfassung und Ausblick

Die numerisch vorhergesagten Auswirkungen einer verkürzten Kohärenzlänge und einer breiten spektralen Intensitätsverteilung von Femtosekunden-Laserpulsen auf kleine Partikel ($d_p < 60\mu\text{m}$) wurden experimentell überprüft.

Dadurch wurde die maßgebliche Reduzierung von Strukturresonanzen für kleine Partikel bei Beleuchtung durch Femtosekunden-Laserpulse erfolgreich nachgewiesen. Durch Gebrauch einer neu entwickelten Paulfallegeometrie (siehe Heinisch 2006) war es möglich den Verdampfungsprozess kleiner Wassertropfen Sekundenlang zu beobachten und die Monotonisierung der detektierten Streuintensität bezüglich des Partikeldurchmessers zu bestätigen. Eine vielversprechende Anwendung des Effekts ist die Messung des verbrennungstechnisch relevanten Sauter Mean Diameter für Einzelpartikel als Neuerung gegenüber der statistischen Bestimmung durch räumliche und zeitliche Mittelung über ein Volumen vieler Partikel. Darüber hinaus könnte mit Femtosekunden-Laserpulsen der Durchmesser von vielen Partikeln durch eine einzige Abbildung eines Sprays bestimmt werden, da die gestreute Intensität in direktem Zusammenhang zum Durchmesser steht.

Dankesworte

Besonderer Dank gilt Prof. W. Elsässer, Leiter der AG Halbleiteroptik am Institut für Angewandte Physik der TU Darmstadt, für das Ermöglichen der experimentellen Umsetzung an-

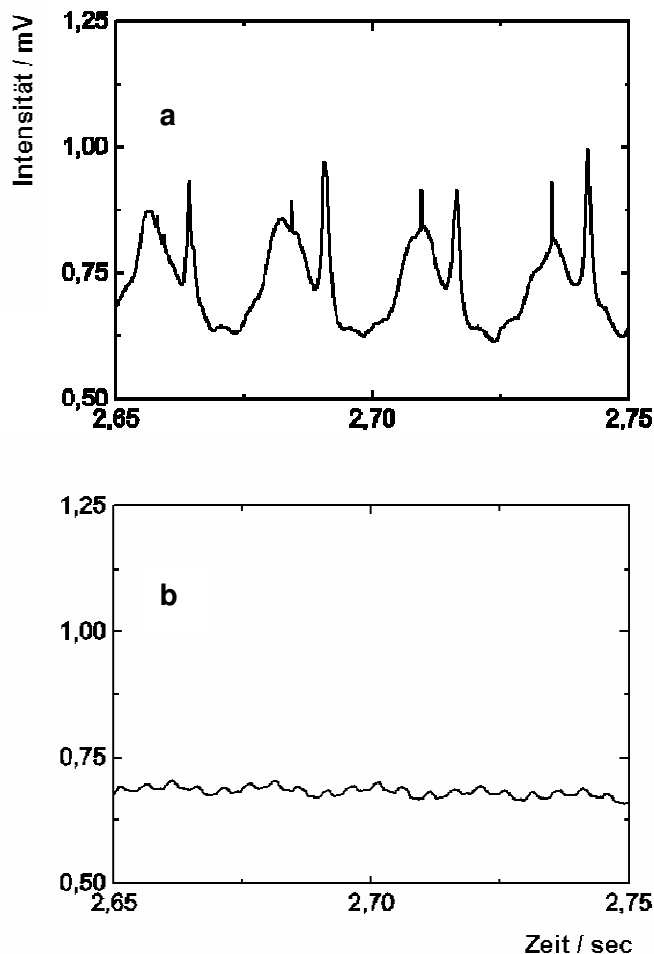


Abb.5 : Experimentell ermittelte Intensitätsverteilung für verdunstende Wassertropfen ($n=1,333$). a) Kontinuierliche Beleuchtung ($\lambda = 780\text{nm}$), b) gepulste Beleuchtung ($t_p = 200\text{fsec}$, $\lambda = 780\text{nm}$)

24.6

hand des im Institut vorhandenen Ti:Sa-Femtosekundenlasers. Des Weiteren möchten sich die Autoren an dieser Stelle bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Förderung des Vorhabens DA 600/2 bedanken.

Literatur

Bakić, S., Damaschke, N., Michel, T., Tropea, C., 2005, „Regenbogenmesstechnik für kleine Partikel durch Femtosekunden-Laserpulse“, 13. Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmeßtechnik, 2005

Damaschke, N., 2003, „Light Scattering Theories and Their Use for Single Particle Characterization“, Dissertation, Shaker Verlag Aachen

Frohn, A., Roth N., 2000, „Dynamics of Droplets“, Springer

Heinisch, C., Bakić, S., Petter, J., Damaschke, N., Tschudi, T., Tropea, C., 2006, „Neue Paulfallengeometrie zur Fixierung von Tropfen und Partikeln in Gasströmungen Mit 360°-Zugang für Laserdiagnostik“, 14. Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmeßtechnik, 2006

Mees, L., Gouesbet, G., Grehan G., 2001 “Scattering of laser pulses (plane wave and focused Gaussian beam) by spheres”, Applied Optics **40**.

Peil, M., Fischer, I., Elsäßer, W., Bakic, S., Damaschke, N., Tropea, C., Stry, S., Sacher, J., 2006, “Rainbow refractometry with a tailored incoherent semiconductor laser source,” Appl. Phys. Lett. 89, 091106

Roll, G., 1999, „Optische Mikroresonatoren: Beschreibung im Bild der geometrischen Optik“ Dissertation, Ruhr-Universität Bochum

Schaller, 2000, „Laseroptische Messtechnik: Erweiterung bestehender Verfahren und Entwicklung neuer Techniken“, Habilitationsschrift, RWTH Aachen

van Beeck, J.P.A.J., 1997 “Rainbow phenomena: development of a laser based, non-intrusive technique for measuring droplet size temperature and velocity”, PhD thesis, Techn Uni Eindhoven, Eindhoven, Netherlands.