

REGENBOGENMESSTECHNIK FÜR KLEINE PARTIKEL DURCH FEMTOSEKUNDEN-LASERPULSE

S.BAKIĆ, N.DAMASCHKE, T.MICHEL, C.TROPEA

Technische Universität Darmstadt, Fachgebiet Strömungslehre und Aerodynamik

Petersenstr.30, D-64287 Darmstadt, s.bakic@sla.tu-darmstadt.de

Zusammenfassung

Im Rahmen des DFG-Forschungsvorhabens „Untersuchungen der Lichtstreuung von Femtosekunden-Laserpulsen für die Einzelpartikelcharakterisierung“ werden numerische und experimentelle Untersuchungen der Anwendung von Femtosekunden-Laserpulsen im Bereich der Regenbogenmesstechnik vorgestellt. Die zeitliche Separation der Streulichtordnungen, im vorgestellten Falle der Reflexion und der Brechung 2.Ordnung für sphärische Einzeltropfen, bewirkt eine Addition der Intensitäten und nicht der Feldstärken der Streuordnungen am Detektor. Dadurch reduzieren sich die, die Regenbogenmesstechnik beeinträchtigenden, Oszillationen in der angularen Intensitätsverteilung der sphärischen Einzeltropfen. Damit entfällt ein wesentliches Hindernis zur Bestimmung des Brechungsindex bzw. der Temperatur kleiner Partikel ($d_p < 20\mu\text{m}$). Zusätzlich zu den Berechnungen, welche den Zusammenhang von Tropfendurchmesser und der zur Separation notwendigen Laserpulslänge quantifizieren, wurde der Effekt messtechnisch verifiziert.

Regenbogenmesstechnik

Ein Regenbogen entsteht, wenn zwei auf unterschiedlichen Wegen durch ein Partikel verlaufende Lichtstrahlen ein und derselben Streuordnung miteinander im Fernfeld interferieren (Abb. 1). Von besonderem messtechnischen Interesse ist dabei der Regenbogen der Brechung zweiter Ordnung, da der Abstand der angularen Intensitätsmaxima ein Maß für die Partikelgröße und die absolute angularale Lage des Regenbogens ein Maß für den Brechungsindex sphärischer Partikel ist (van Beeck 1997). In der Praxis ist die resultierende winkelabhängige Intensitätsverteilung für große Tropfen durch deren nicht-

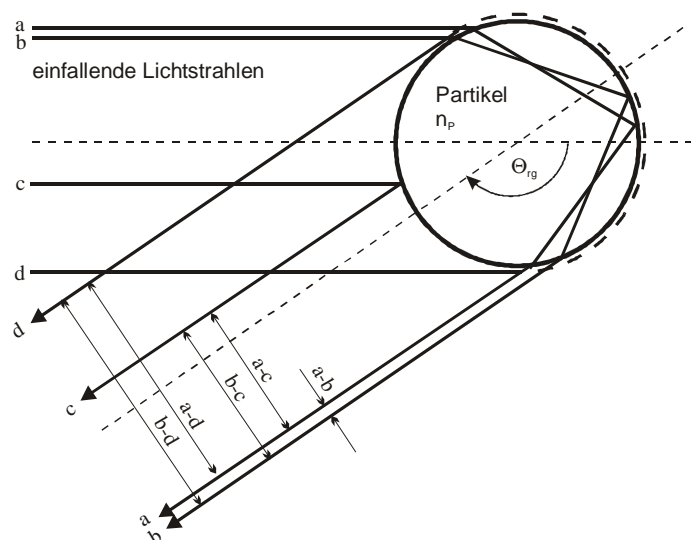


Abb. 1: Strahlengang der Reflexion und der Brechung 2. Ordnung innerhalb eines sphärischen homogenen Partikels im Bereich des Regenbogens.

sphärische Formen gestört. Kleine Tropfen sind zwar sphärisch, jedoch kann die angulare Lage der Intensitätsmaxima der reinen Brechung 2. Ordnung nach Damaschke et al. (1998) aufgrund der Störung durch Interferenzen mit der Reflexion und höheren Streuordnungen nicht exakt bestimmt werden (Abb. 2a). Diese Oszillationen (ripple structure) verhindern die hinreichend genaue messtechnische Bestimmung der angularen Oszillationsfrequenzen und des Regenbogenwinkels für Partikel kleiner als $20\mu\text{m}$, und damit die Bestimmung des Brechungsindex und der Tropfentemperatur. Ebenso wird die mögliche Partikelgrößenbestimmung durch diese Interferenzen unmöglich. Zur Lösung des Problems wurden Korrelationsverfahren zum Vergleich von berechneten Streulichtverteilungen idealer sphärischer homogener Tropfen oder idealer Zylinder mit messtechnisch erfassten Signalen vorgeschlagen (Onofri 2004). Diese Verfahren lassen sich jedoch aufgrund der Mehrdeutigkeit durch optische Resonanzen und der notwendigen Signalqualität nur unter Laborbedingungen realisieren.

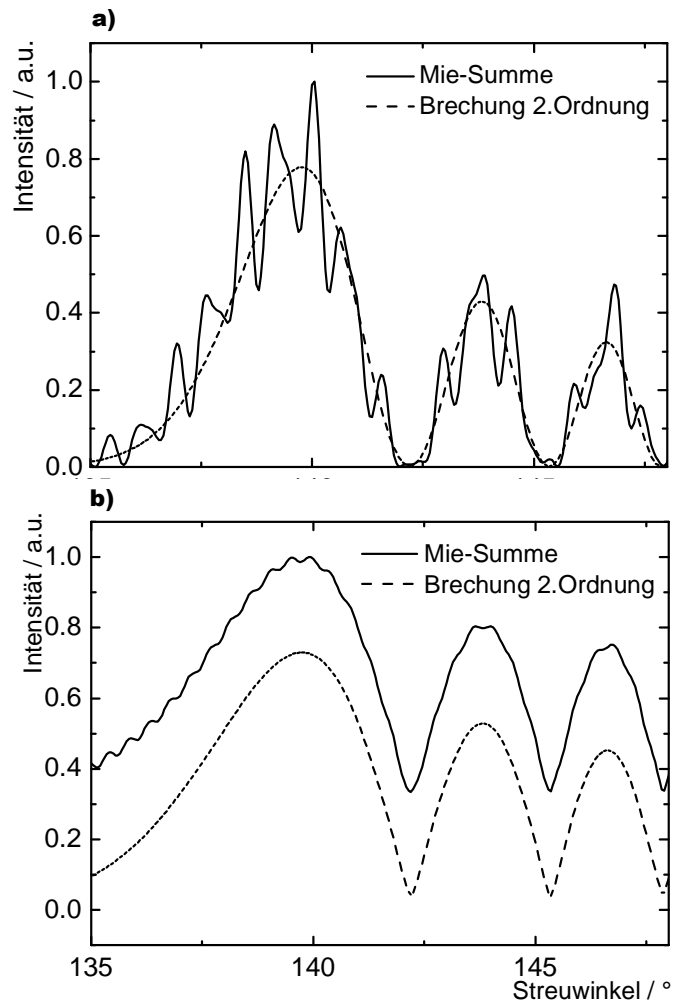


Abb. 2: a) Numerisch ermittelte, durch Oszillationen gestörte Intensitätsverteilung des Regenbogens an einem $d_p = 94\mu\text{m}$ Wassertropfen bei kontinuierlicher Beleuchtung, b) Berechnete oszillationsfreie Intensitätsverteilung durch Beleuchtung mit einem 200fs Laserpuls.

Femtosekunden-Laserpulse

Simulationen der Streuung von Femtosekundenpulsen an sphärischen Einzelpartikeln zeigen, dass diese Oszillationen durch den Einsatz von Femtosekunden-Laserpulsen unterdrückt werden können (Abb. 2b).

Bei der Streuung von Femtosekunden-Laserpulsen interferieren die elektromagnetischen Wellen der Streulichtordnungen nicht miteinander, sondern erreichen den Detektor zeitlich versetzt (Bech und Leder 2004, Damaschke et al. 2002, Mees et al. 2001). Abb. 3 zeigt den zeitlichen Verlauf der Streuung eines linksseitig einfallenden 50fs langen Laserpulses an einem sphärischen Partikel ($m = 1,33$; $d_p = 100\mu\text{m}$). Im zweiten bis dritten Teilbild der Abb. 3 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. 3), 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 Partikeldurch-

messer können so Oszillationen nur bei zeitlicher Überlappung der Pulse der Streulichtordnungen entstehen und sind daher unterschiedlich stark ausgeprägt. Somit entsteht die in Abb. 2b 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.

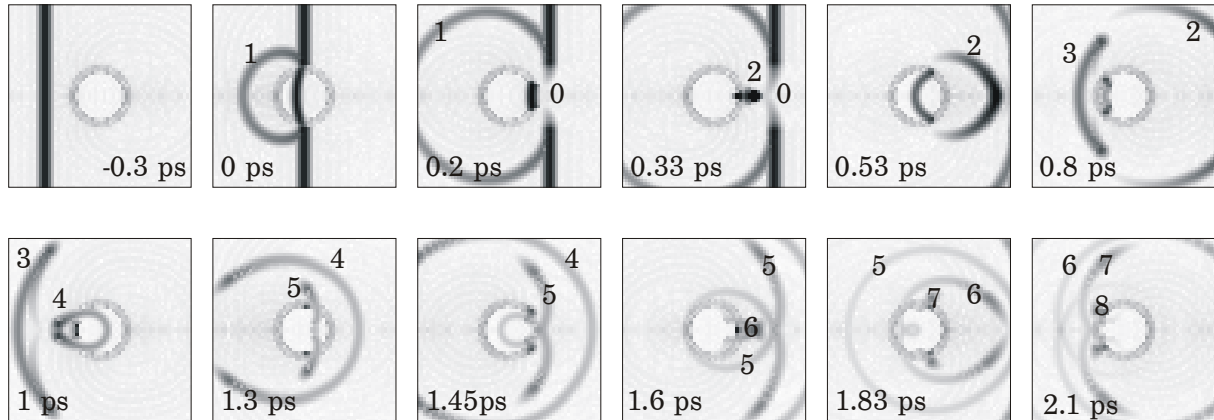


Abb. 3: Simulation der Streuung eines linksseitig einfallendem 50fsec-Laserpuls an einem sphärischen, homogenen Partikel mit $m = 1,33$ und $d_p = 100\mu\text{m}$ (aus Damaschke 2003).

Experimentelle Umsetzung

Zur experimentellen Verifikation wurden monodisperse Wassertropfen mit einem piezoelektrischen Tropfengenerator erzeugt (Brenn et al. 1996). Die Tropfengröße konnte über Durchfluss und Anregungsfrequenz des Piezos mit ca. $d_p = 94\mu\text{m}$ ermittelt werden.

Bei Beleuchtung der einzelnen monodispersen Tropfen der Tropfenkette mit einem Dauerstrichlaser können so die Intensitätsverteilung der Streuung und die Interferenzen der Streulichtordnungen beobachtet werden. Dabei entsteht kein signifikanter Unterschied zur Streuung an einem räumlich fixierten Einzeltropfen, da die winkelabhängigen Intensitäten der Einzeltropfen identisch sind und zeitlich nacheinander am Detektor aufaddieren werden. Die Winkelabweichung aufgrund der Lageänderung der Tropfen in der Lasertaille konnte, wegen der im Verhältnis kleinen Strahltaile des Lasers, vernachlässigt werden. Abb. 4 zeigt einen solchen Aufbau, wobei der Regenbogenwinkel ϑ_{rg} und die verschiedenen Intensitätsmaxima der Brechung 2. Ordnung deutlich zu erkennen sind.

Als Strahlungsquelle wurde ein Ti:Sa-Femtosekundenlaser benutzt, der sowohl gepulst als auch im Dauerstrichbetrieb emittieren konnte. Die mittlere Wellenlänge im Pulsbetrieb betrug $\lambda = 780\text{nm}$ und entsprach damit der Wellenlänge im Dauerstrichbetrieb. Als Detektor diente eine CCD-Kamera (PCO SensiCam QE) welche unter ca. 150° positioniert wurde. Abb. 5 zeigt den durch den CCD-Chip detek-

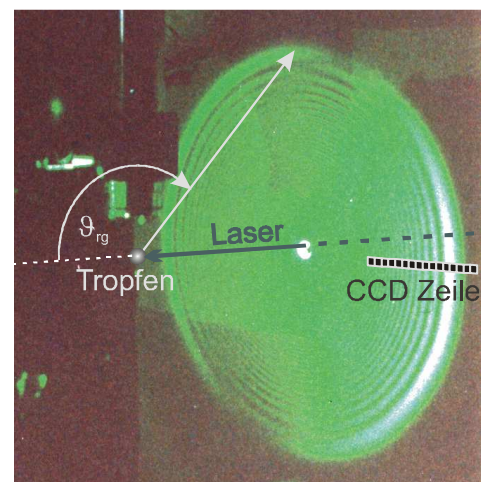


Abb. 4: Regenbogen einer monodispersen Tropfenkette (Damaschke et al. 1998).

tierten, an der monodispersen Tropfenkette entstandenen Regenbogen bei kontinuierlicher Beleuchtung (Abb. 5a) und bei Beleuchtung durch Laserpulse mit einer Länge von 200 fs (Abb. 5b). Die Wiederholfrequenz der Pulse betrug $f = 75\text{MHz}$. Es ergibt sich keine signifikante Abweichung von der Streuung eines Einzelpulses an einem Einzelpartikel, da sich die gestreuten Intensitäten der einzelnen Pulse bei der Detektion aufaddieren.

Die durch numerische Simulation vorhergesagte Unterdrückung der durch Interferenz der Brechung 2. Ordnung und der Reflexion entstehenden Oszillationen in der angularen Intensitätsverteilung des Regenbogens konnte so experimentell bestätigt werden. Abb. 6 zeigt die experimentell ermittelten Intensitätsverteilungen für ausgewählte CCD-Zeilen. Diese korrespondieren mit den in Abb. 2 berechneten Verteilungen im Bereich des Regenbogens.

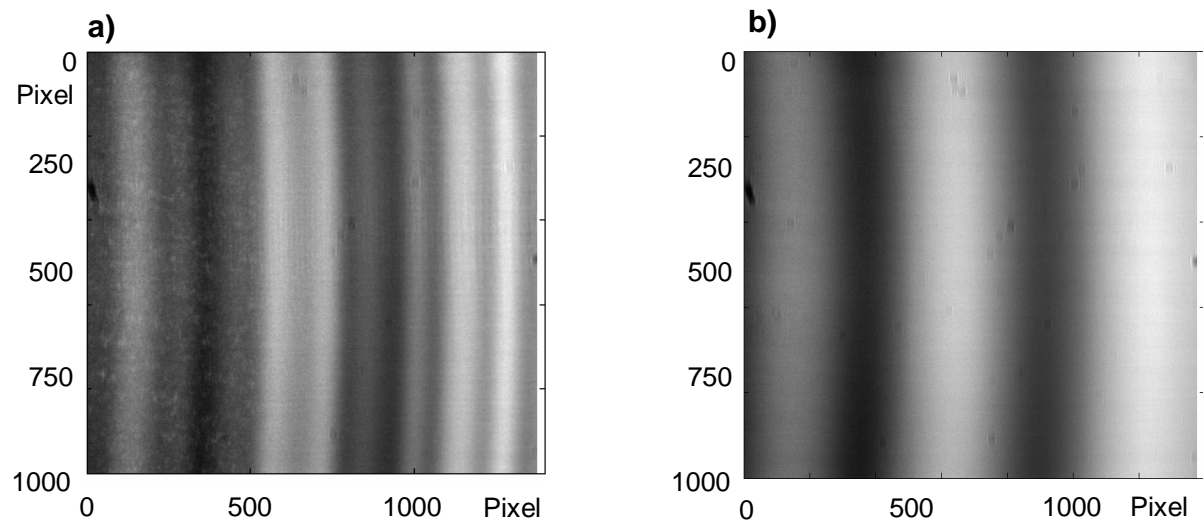


Abb. 5: Experimentell ermittelte, durch Oszillationen gestörte Intensitätsverteilung des Regenbogens einer monodispersen Tropfenkette ($m = 1,33$; $d_p = 94\mu\text{m}$). a) kontinuierlicher Beleuchtung, b) oszillationsfreie Intensitätsverteilung durch Beleuchtung mittels Femtosekundenlaserpulsen (Pulsbreite 200fs) Laserpulsen.

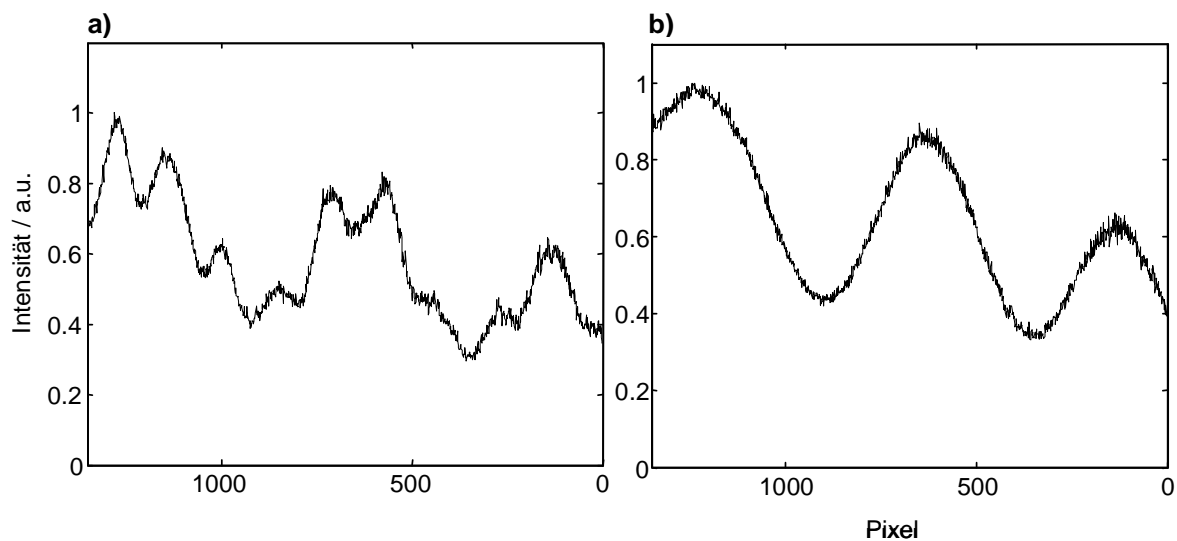


Abb. 6: Detektierter Regenbogen der monodispersen Tropfenkette aus Abb. 5 ($m = 1,33$; $d_p = 94\mu\text{m}$). a) kontinuierliche Beleuchtung, b) Beleuchtung mittels Femtosekundenlaserpulsen (200 fs).

Tropfendurchmesser und Pulslänge

Die angulare Intensitätsverteilung der Brechung 2. Ordnung entsteht, wenn zwei auf unterschiedlichen Wegen durch den Tropfen verlaufende Lichtstrahlen derselben Streuordnung miteinander im Fernfeld miteinander interferieren. Entscheidend für das Unterdrücken der störenden Oszillationen im Regenbogen ist das Verhältnis der Laserpulslänge zur Wegdifferenz zwischen den beiden Lichtstrahlen der Brechung 2. Ordnung und der Reflexion (Abb. 1). Für einen sphärischen Tropfen mit $d_p = 94\mu\text{m}$ ergeben sich bei einem Streuwinkel von $\vartheta = 140^\circ$ für die Brechung 2. Ordnung unter Annahme der Position des ersten Intensitätsmaxima (siehe Abb. 2) folgende Weg- und Laufzeitdifferenzen bzgl. der Reflexion (Bech und Leder 2004):

Streulichtordnung	Wegdifferenz zur Reflexion / μm	Laufzeitdifferenz zur Reflexion / fs
Brechung 2. Ordnung kurzer Weg	233,19	777,30
Brechung 2. Ordnung langer Weg	233,39	777,96

Da die Laserpulslänge von 200 fs deutlich geringer ist als die Laufzeitdifferenzen, ergibt sich bei der experimentellen Umsetzung keine Überlappung und damit Interferenz zwischen Brechung 2. Ordnung und Reflexion. Alle weiteren Streulichtordnungen sind ebenfalls genügend zeitlich von der Brechung 2. Ordnung getrennt.

Um den Zusammenhang von Tropfendurchmesser und der zur Separation der Streuordnungen notwendigen Laserpulslänge zu quantifizieren, müssen die am Detektor interferierenden und nicht interferierenden Signalanteile berechnet werden. Die separaten Signalanteile der Brechung 2. Ordnung und der Reflexion wurden mit Hilfe der Debye-Reihen ermittelt (Albrecht et al. 2003). Bei Überlappung von Reflexion und Brechung 2. Ordnung setzt sich die Intensität aus einem Gleichanteil und einem Wechselanteil zusammen.

$$I \sim (E_R + E_B)(E_R + E_B)^* = \underbrace{E_R^2 + E_B^2}_{\text{Gleichanteile}} + \underbrace{2E_R E_B \cos(\varphi_R - \varphi_B)}_{\text{Wechselanteil}}$$

Der Betrag dieses Wechselanteils steigt mit zunehmender Überlappung an und liefert somit, normiert mit dem entsprechenden Gleichanteil, eine Aussage über den Grad der Überlappung der Pulse.

Abb. 7 zeigt das Verhältnis zwischen Wechselanteil und Gleichanteil für verschiedene Partikeldurchmesser bei einer Laserpulslänge von 200 fs. Da sich ein einzelner Puls über eine räumliche Länge von $60\mu\text{m}$ erstreckt und der Puls, je nach Detektionswinkel, bezüglich der Brechung zweiter Ordnung im Verhältnis zur Reflexion etwa den doppelten Durchmesser eines sphärischen Partikels durchlaufen

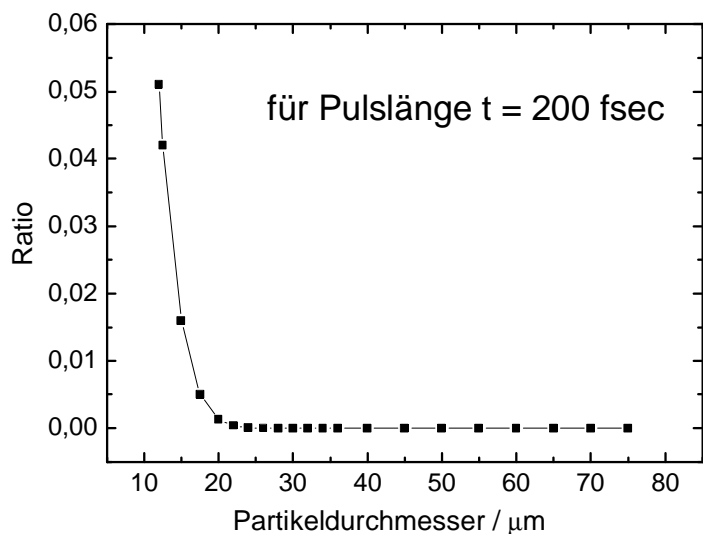


Abb. 7: Verhältnis zwischen Wechselanteil und Gleichanteil der Intensitäten der Reflexion und der Brechung 2. Ordnung für verschiedene Partikeldurchmesser bei 200 fs Pulslänge.

muss, steigt der Wechselamplitudenanteil und damit das Verhältnis für $d_p < 30\mu\text{m}$ an.

Um für einen bestimmten Partikeldurchmesser die notwendige Laserpulslänge zu ermitteln, für die die Oszillationen auf dem Regenbogen unterdrückt werden, wurde ein Verhältnis zwischen Wechsel- und Gleichanteil von 1/10000 gewählt. Abb. 8 zeigt den Zusammenhang zwischen Partikeldurchmesser und Laserpulslänge für dieses Amplitudenverhältnis. Demnach genügt eine Strahlungsquelle mit Pulsbreiten von 70 fs um die störenden Oszillationen im Intensitätsbild für sphärische Partikel mit $d_p > 10\mu\text{m}$

zu reduzieren. Die Abweichung vom linearen Verlauf in Abb. 8 bei Partikeldurchmessern unter $d_p < 10\mu\text{m}$ ist höchstwahrscheinlich auf den Einfluss von Oberflächenwellen zurückzuführen, deren Intensität bei diesen Größenordnungen relevant wird.

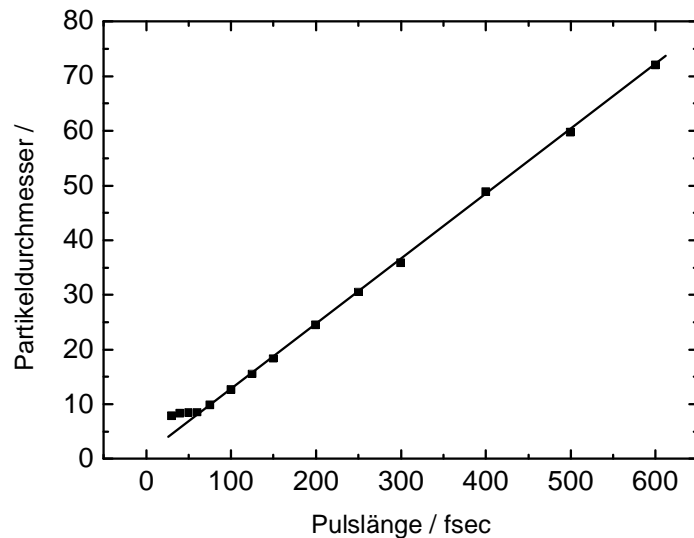


Abb. 8: Zusammenhang zwischen Partikeldurchmesser und Laserpulslänge für ein Verhältnis zwischen Wechsel- und Gleichleistung von 1/10000

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der Arbeit konnte numerisch als auch experimentell nachgewiesen werden, dass die störenden Oszillationen im Regenbogen aufgrund der Interferenz zwischen Reflexion und Brechung 2. Ordnung (ripple structure) durch Verwendung von Femtosekundenlasern unterdrückt werden können. Dies ermöglicht die Brechungsindex- und Temperaturbestimmung von Partikeln bis hinunter zu $10\mu\text{m}$ bei Verwendung von Pulslängen von 70fs. Zukünftig soll diese Erweiterung zur Temperaturmessungen an kleinen levitierten Einzeltropfen und in Sprays angewandt werden.

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 anhand des im Institut vorhandenen Ti:Sa-Femtosekundenlasers. Dr. J. Kaiser stand sachkundig mit Rat und Tat durch die Bedienung des Geräts zur Seite. Des weiteren möchten sich die Autoren an dieser Stelle bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Förderung des Vorhabens DA 600/2 bedanken.

Literatur

Albrecht, H.-E.; Borys, M.; Damaschke, N.; Tropea, C. (2003) Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York.

Bech, H.; Leder A. (2004) Particle sizing by ultrashort laser pulses – numerical simulation. *Optik* **115**.

Brenn, G.; Durst, F.; Tropea, C. (1996) Monodisperse sprays for various purpose – their production and characteristics. *Part. Part. Syst. Charact.* **13** 179-185.

- Damaschke, N. (2003) Light Scattering Theories and Their Use for Single Particle Characterization. Dissertation, Shaker Verlag Aachen.
- Damaschke, N.; Heukelbach, K.; Tropea C. (1998) Messung von Partikeldurchmesser, Brechungsindex und Temperatur mit dem Regenbogen. 6. Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmeßtechnik (GALA) Essen Germany.
- Damaschke, N.; Michel, T.; Tropea, C. (2002) Streuung von Femtosekundenpulsen an sphärischen Partikeln. 10. Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik (GALA) Rostock Germany.
- Mees, L.; Gouesbet, G.; Grehan G. (2001) Scattering of laser pulses (plane wave and focused Gaussian beam) by spheres. *Applied Optics* **40**.
- Onofri, F.; Guering, P.-H.; Radev S. (2004) Light Scattering properties and high-resolution diffractometry of homogeneous and non homogeneous fibers. Proceedings of the 7th International Congress on Optical Particle Characterization, Kyoto, Japan.
- 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.