

Numerische Untersuchungen zur Streuung von fs-Laserpulsen an sphärischen Teilchen unter dem Aspekt der Teilchengrößenmessung

H. Bech, A. Leder

Universität Rostock, FB Maschinenbau und Schiffstechnik
 Institut für Maritime Systeme und Strömungstechnik
 Albert- Einstein-Straße 2, 18051 Rostock

1. Einleitung

Moderne Verfahren der Kurzzeit-Messtechnik (Streakkamera, interferometrische Spektroskopie, Up-Conversion) erlauben die Messung der Zeitabhängigkeit des elastischen Streuprozesses, der von Femtosekunden-Laserpulsen an Mikroteilchen ausgelöst wird [1]. Da sich die zeitliche Abfolge der an einem Mikroteilchen generierten Streulichtordnungen als Funktion der Teilchengröße darstellt, eröffnet sich somit eine neue Möglichkeit der Größenmessung von Mikroteilchen. Dazu muss im einfachsten Fall die Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen von zwei in Richtung des Detektors dominierenden Streulichtordnungen gemessen werden. Bei Kenntnis des Brechungsindex und der Annahme einer Teilchensphärizität kann dann der Teilchendurchmesser ermittelt werden[2, 3].

Abb. 1 zeigt die Glanzpunkte der Reflexion und der Brechung 1. Ordnung an einem

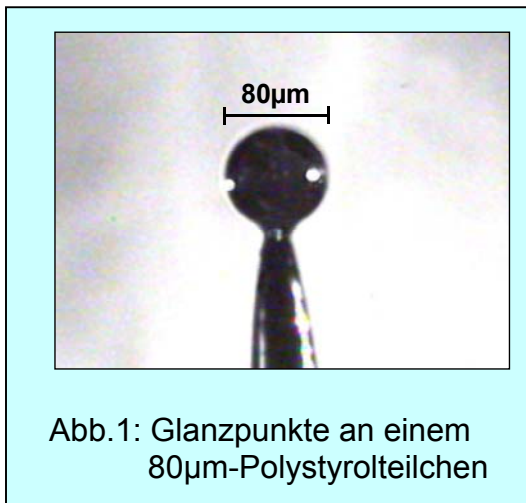


Abb.1: Glanzpunkte an einem 80 μm -Polystyrolteilchen

von links mit einem kontinuierlichen Laserstrahl beleuchteten 80 μm -Polystyrolteilchen. Bei Verwendung eines fs-Pulslasers als Strahlungsquelle können die den einzelnen Streulichtordnungen entsprechenden Glanzpunkte jedoch auch zeitlich voneinander getrennt werden. Dadurch werden auch alle Schwierigkeiten hinfällig, die sich bisher bei der Teilchencharakterisierung mittels Streulichtanalyse durch die Überlagerung mehrerer Streulichtordnungen am Ort des Detektors ergaben.

Die Zuordnung der gemessenen Zeitdifferenzen zu einer Teilchengrößenskala erfolgt mit

Hilfe der numerischen Simulation des Streulichtprozesses. Dabei kann auf vorhandene Programme der Streulichtberechnung, die sowohl für optisch isolierte Einzelteilchen als auch für Mehrteilchenanordnungen zur Verfügung stehen und den Streuprozess durch die Lorenz-Mie-Theorie oder mit Hilfe der geometrischen Optik beschreiben, zurückgegriffen werden. Der Separation einzelner Streulichtordnungen mit Hilfe der Debye-Zerlegung des Gesamtstreulichts kommt dabei eine große Bedeutung zu.

2. Mathematische Grundlagen

Der Laserpuls wird als gaußförmiger Ausschnitt einer sich in z-Richtung ausbreitenden elektromagnetischen Welle mit der konstanten Wellenlänge λ_0 angesehen, Gl. (1), und mittels Transformation in den Frequenzbereich in eine Summe ebener Wellen unterschiedlicher Intensität und Frequenz umgewandelt (Abb. 2). Auf jede einzelne Frequenzkomponente des Pulsspektrums wird die klassische Mie-Streulichtrechnung angewandt. Die Superposition der Einzelergebnisse und die anschließende Rücktransformation vom Frequenzbereich in den Zeitbereich liefern

37.2

die zeitliche Pulsantwort des Teilchens und damit die Abbildung der gemessenen Zeitdifferenz auf eine bestimmte Teilchengröße.

$$E(\tau) = E_0 \cdot H(\tau) \cdot \exp(-i \cdot \omega_0 \cdot \tau) \quad (1)$$

mit

$$H(\tau) = \exp\left(-\frac{\tau^2}{2\sigma_t^2}\right) \text{ als gaußförmige Hüllkurve der Breite } \sigma_t \text{ und} \quad (2)$$

$\tau = (t - z/c)$ als Verzögerungszeit, (z : Ausbreitungsrichtung, c : Lichtgeschwindigkeit im Vakuum).

Die Fourier-Transformation kann über das Integral nach Gl. (3) analytisch ausgeführt werden.

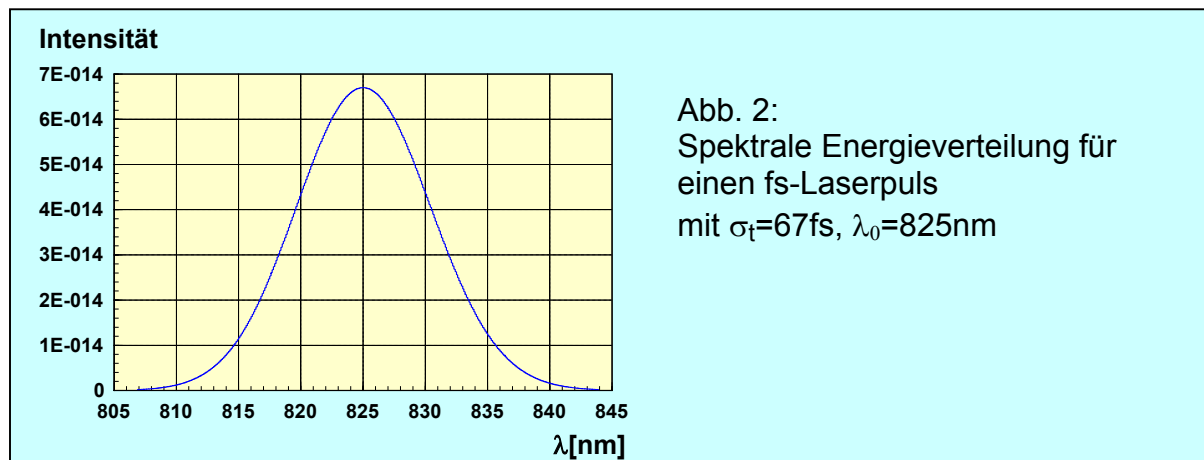
$$E(\omega) = \frac{E_0}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{\tau^2}{2\sigma_t^2}\right) \cdot \exp(-i\omega_0\tau) \cdot \exp(i\omega\tau) d\tau \quad (3)$$

Als Lösung ergibt sich das rein reelle Spektrum

$$E(\omega) = E_0 \cdot \frac{1}{\sigma_\omega} \cdot \exp\left(-\frac{(\omega_0 - \omega)^2}{2\sigma_\omega^2}\right) \quad (4)$$

mit $\sigma_\omega = 1/\sigma_t$, wobei über das Aufsuchen der quadratischen Ergänzung die

Beziehung $\int_{-\infty}^{\infty} \exp(-\beta^2) d\beta = \sqrt{\pi}$ ausgenutzt wurde.

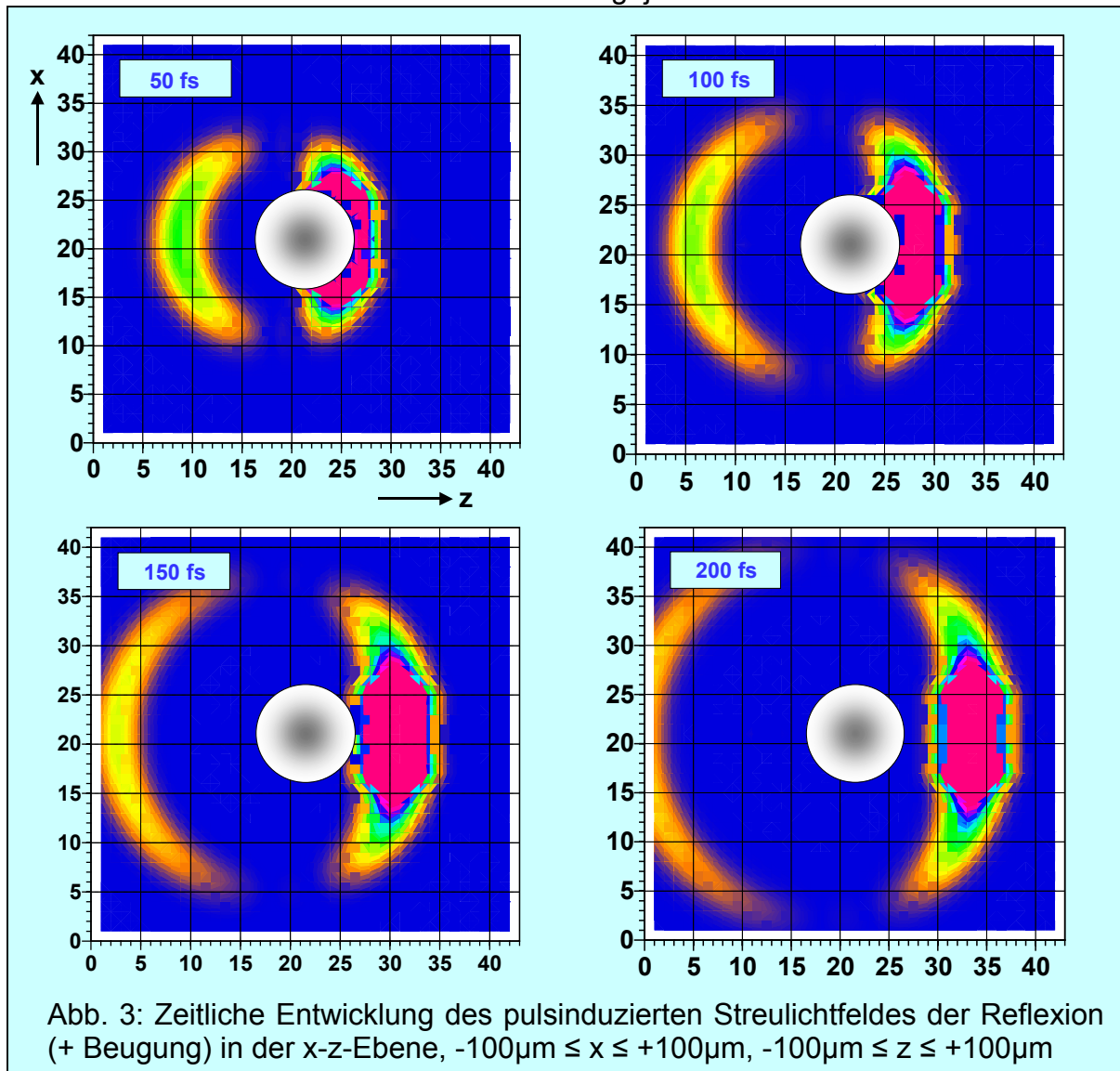


Zur Übernahme in die Streurechnungen wird Gl.(4) diskretisiert, indem die Frequenz ω als ganzzahliges Vielfaches eines vorgegebenen Zeitfensters angesetzt wird ($\omega = 2\pi/T_F$). Wegen der Periodizität der Fourier-Transformation muss das Zeitfenster T_F so groß gewählt werden, dass der interessierende physikalische Vorgang in seinem Zeitablauf nicht begrenzt wird. Dadurch ist die Wahl des Zeitfensters teilchengrößenabhängig. Die Nichtbeachtung dieser Eigenschaft führt zu physikalisch nicht plausiblen Ergebnissen. Weiterhin muss die spektrale Breite der Pulsenergie begrenzt werden. Bis zu welchen Amplitudenabfall noch Frequenzkomponenten in die Streurechnung übernommen werden, hängt von vorgebbaren Genauigkeitskriterien ab.

Die Rücktransformation aus dem Frequenzbereich in den Zeitbereich wird numerisch über die Aufsummierung der komplexen Streufeldstärken aller für die Streurechnung benutzten Frequenzkomponenten ausgeführt, Gl. (5), (n_{ew} : Anzahl der ebenen Wellen, n_x , n_z : diskretisierte Ortskoordinaten).

$$ERück_{it,nx,nz} = \sum_{new}^{new\ max-1} Streufeld_{nx,nz,new} \cdot \exp(i \cdot new \cdot \omega_F \cdot i_t) \quad (5)$$

Eine als Ergebnis der Rücktransformation gewonnene zeitliche Entwicklung der laserpulsinduzierten Lichtstreuung an einem 50 μm -Teilchen zeigt Abb. 3. Dargestellt ist die Ausbreitung der Streulichtordnung der Reflexion (+Beugung) in der x-z-Ebene. Der Laserpuls ($\lambda_0=600\text{nm}$, $t_{\text{Puls}}=100\text{fs}$) propagiert in z-Richtung und hat das Teilchen bereits passiert (nicht dargestellt), während sich das Streulicht in den Raum ausbreitet. Zwischen den einzelnen Bildern liegt jeweils eine Zeitdifferenz von 50 fs.

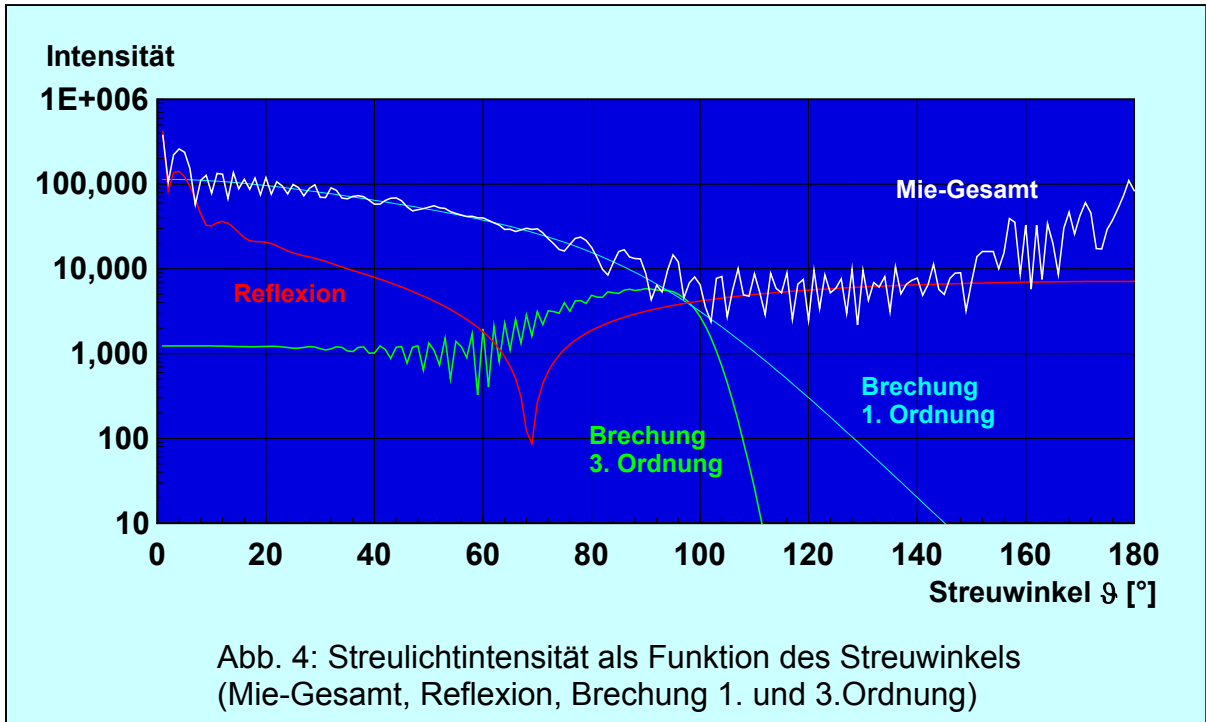


3. Bestimmung der Teilchengröße

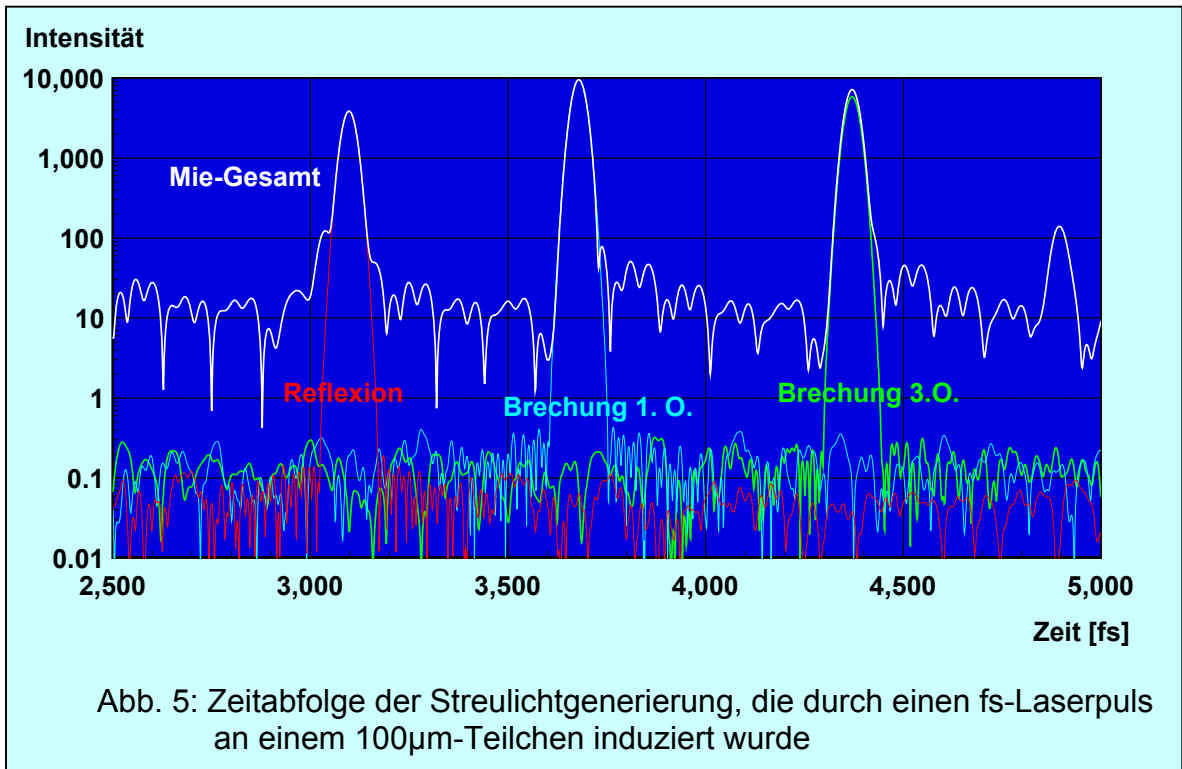
Zur Teilchengrößenbestimmung muss die Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen von zwei Streulichtordnungen ermittelt werden. Dabei ist von einer Detektion unter gleichem Streuwinkel auszugehen. Anders als bei der Phasen-Doppler-Technik ist daher ein Streuwinkel prädestiniert, unter dem zugleich zwei aufeinander folgende Streulichtordnungen mit vergleichbarer Intensität detektiert werden können. Für den Fall der Reflexion und der Brechung 1. und 3. Ordnung sind in Abb. 4 im Ergebnis einer Mie-Rechnung die Streulichtintensitäten als Funktion des Streuwinkels ϑ für ein 100 μm -Teilchen (Brechungsindex $m=1.466$, $\lambda=825\text{nm}$) aufgetragen. Offensichtlich erscheint ein Streuwinkel in der Nähe von 90° als besonders geeignet,

37.4

während im Vorwärtsstrebereich $20^\circ \leq \vartheta \leq 60^\circ$ die Brechung 1. Ordnung erheblich über der Reflexion dominiert.

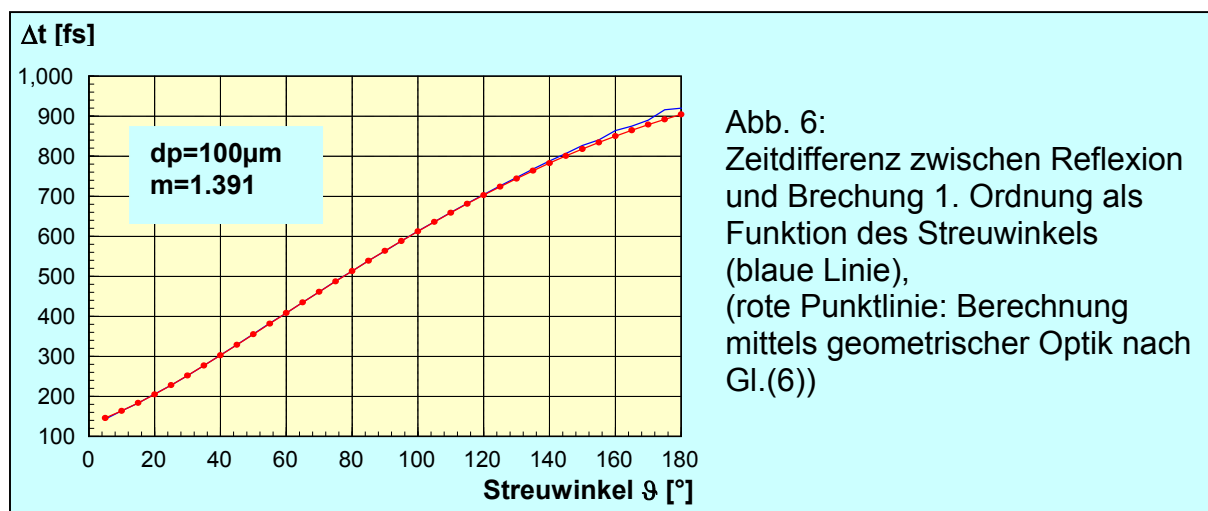


Als Beispiel wurde die zeitliche Entwicklung der pulsinduzierten Streulichtgenerierung entsprechend dem oben beschriebenen mathematischen Ablauf für einen Streuwinkel $\vartheta = 90^\circ$ berechnet. Dabei wurde als einfallendes Feld ein fs-Laserpuls mit der in Abb. 2 dargestellten spektralen Energieverteilung benutzt. Der zeitliche Ablauf der Streulichtentstehung im Zeitintervall $2500\text{fs} \leq t \leq 5000\text{fs}$ und unter einem Streuwinkel von $\vartheta = 90^\circ$ ist für das totale Streulicht in Abb. 5 dargestellt (weiße Linie).



Um die charakteristischen Peaks im totalen Streulicht den Streulichtordnungen zuordnen zu können, erfolgten analoge Rechnungen separat für die Reflexion und die Brechung 1. und 3. Ordnung.

Zwischen dem Erscheinen der Reflexion und den Brechungsordnungen stellen sich entsprechend der Teilchengröße und dem angenommenen Brechungsindex charakteristische Zeitdifferenzen ein. Im Beispiel der Abb. 5 beträgt die Zeitdifferenz zwischen der Reflexion und der Brechung 1. Ordnung 581fs ($d_p=100\mu\text{m}$, $m=1,466$). Die Streurechnung nach der Mie-Theorie liefert sehr exakte Resultate für das Zeitverhalten auch für den Fall, wenn die Intensitäten der Streulichtordnungen mehrere Größenordnungen voneinander abweichen, so dass die zeitliche Entwicklung über den gesamten Streuwinkelbereich verfolgt werden kann. Abb. 6 zeigt für ein $100\mu\text{m}$ -Teilchen mit $m=1.391$ die Entwicklung der Zeitdifferenz Δt zwischen der Reflexion und der Brechung 1. Ordnung als Funktion des Streuwinkels.



Für jeden Detektionswinkel stellen sich sowohl für die Reflexion als auch für die Brechung verschiedene Strahlengänge der ebenen Wellen durch das Teilchen ein.

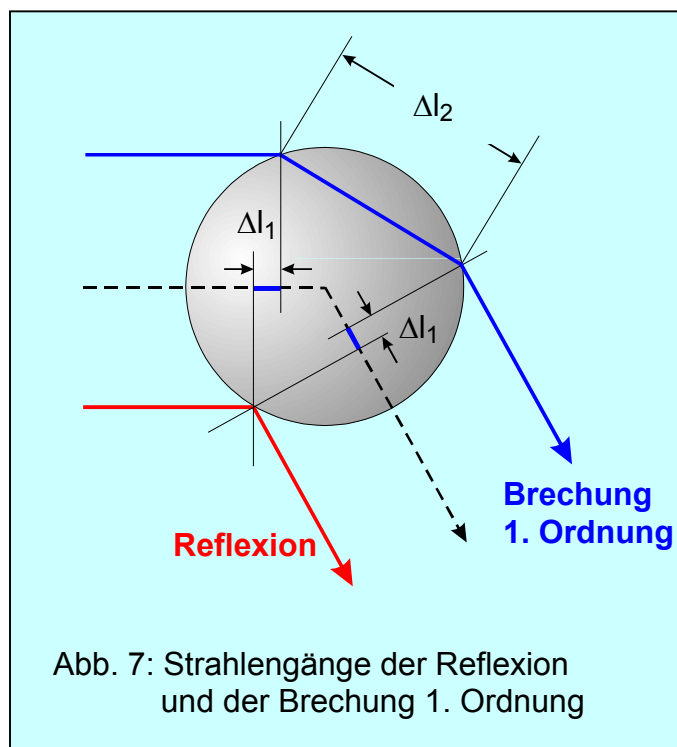


Abb. 7 veranschaulicht diese Situation. Der Strahlenweg der Brechung 1. Ordnung weist gegenüber dem Strahlenweg der Reflexion einen Gangunterschied von $\Delta l=2\Delta l_1+\Delta l_2$ auf, wobei sich Δl_2 auf einen Weg durch das Teilchen und Δl_1 auf einen Weg durch das umgebende Medium bezieht. Zumindest für diese beiden Streulichtordnungen gelingt es, den optischen Gangunterschied in der Weise auf geometrischem Wege zu ermitteln, dass nur noch eine Abhängigkeit vom Teilchendurchmesser d_p sowie vom Streuwinkel ϑ und vom Brechungsindex m besteht. Gleichung (6) beschreibt diesen Zusammen-

37.6

hang, womit sich die Möglichkeit ergibt, aus einer gemessenen Zeitdifferenz direkt auf die Teilchengröße zu schließen, (vgl. [4], Gl.(8.85).

$$\Delta l = d_p \cdot \left(\sin \frac{\vartheta}{2} + \sqrt{1 + m^2 - 2m \cdot \cos \frac{\vartheta}{2}} \right) \quad (6)$$

Dabei erfolgt die Analyse des detektierten Zeitsignals hinsichtlich der darin enthaltenen Streulichtordnungen mit Hilfe der Mie-Theorie, wobei zur Separation der einzelnen Streulichtordnungen aus dem totalen Streulicht die Debye-Reihenentwicklung angewendet wird.

Über die Vakuum-Lichtgeschwindigkeit c_0 kann mit Gleichung (6) für jede Teilchengröße und jeden Detektionswinkel die Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen der Reflexion und der Brechung 1. Ordnung ermittelt werden. In Abb. 6 zeigt die Punktlinie den Verlauf der nach Gl. (6) berechneten Zeitdifferenz für ein $100\mu\text{m}$ -Teilchen ($m=1.391$) als Funktion des Streuwinkels ϑ . Erst im Rückwärtsstrebereich in der Nähe von $\vartheta=180^\circ$, wo die Brechung 1. Ordnung physikalisch ohnehin bedeutungslos ist, zeigt der Vergleich in Abb. 6 sehr geringe Abweichungen.

Aus (6) folgt schließlich die Bestimmungsgleichung für die Teilchengröße zu

$$d_p = \Delta t \cdot \frac{c_0}{\sin \frac{\vartheta}{2} + \sqrt{1 + m^2 - 2m \cdot \cos \frac{\vartheta}{2}}} \quad (7)$$

Die Zeitdifferenz Δt ist dabei die gemessene Zeitdifferenz zwischen dem Signal der Reflexion und dem Signal der Brechung 1. Ordnung. Für die numerische Verifizierung kann dafür die aus der Mie-Streulichtanalyse gewonnene Zeitdifferenz $\Delta t = 581\text{fs}$ nach Abb. 5 genutzt werden. Somit ergibt sich für die Teilchengröße d_p nach Gl.(7) ein Wert von $d_p = 99.921\mu\text{m}$. (Für die Mie-Streurechnung wurde ein $100\mu\text{m}$ -Teilchen angesetzt.)

Besonderes Gewicht erhält das beschriebene Verfahren der Teilchengrößenbestimmung mittels fs-Laserpulsstreuung im Rückstrebereich unter Auswertung der Brechung 2. Ordnung. Der verfahrenstechnisch günstige Fall einer Detektion unter genau 180° scheint zugleich der numerisch einfachste Fall zu sein, weil dann die Zeitdifferenz zwischen der Reflexion und der Brechung 2. Ordnung ausschließlich durch den doppelten Lichtweg im Teilchen bestimmt wird.

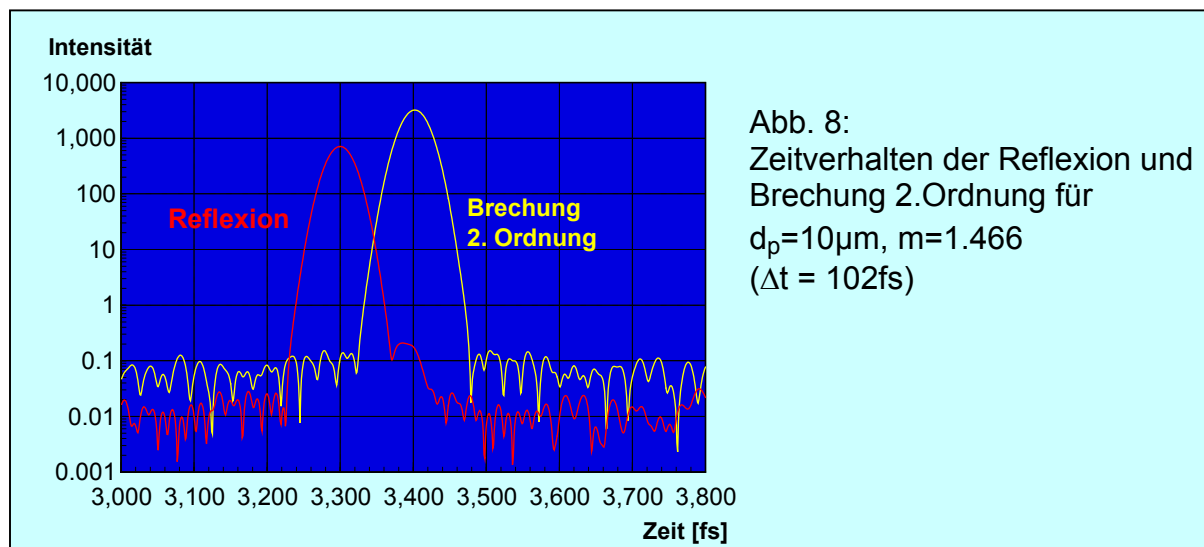


Abb. 8:
Zeitverhalten der Reflexion und
Brechung 2.Ordnung für
 $d_p=10\mu\text{m}$, $m=1.466$
($\Delta t = 102\text{fs}$)

Wenn für die Zeitdifferenz $\Delta t = 102\text{fs}$ nach Abb.8 für den optischen Weg der doppelte Teilchendurchmesser angenommen wird, ergibt sich ein berechneter

Teilchendurchmesser von $10.2\mu\text{m}$. Wie die Regenbogeneigenschaften der Brechung 2. Ordnung diesen Vorgang beeinflussen bzw. gezielt zur Teilchencharakterisierung mittels fs-Laserpulsstreuung ausgenutzt werden können, bedarf weiterer Untersuchungen.

4. Zusammenfassung und Ausblick

Es wurde gezeigt, dass sich aus der Abfolge der Streulichtordnungen, die bei Einfall eines fs-Laserpulses auf ein einzelnes Mikroteilchen zeitlich nacheinander generiert werden, die Teilchengröße ermitteln lässt. Dabei wurde ein ruhendes Teilchen betrachtet und der Laserpuls in ein Spektrum ebener Wellen transformiert. Auf jede Frequenzkomponente des Spektrums wurde die Mie-Streurechnung angewandt und das mittels Superposition berechnete totale Streufeld wieder in den Zeitbereich zurück transformiert. Durch eine Debye-Zerlegung des totalen Streufeldes lassen sich einzelne Streulichtordnungen separat entwickeln. Für die Teilchengrößenbestimmung wurde die Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen der Reflexion und der Brechung 1. Ordnung verwendet.

Es ist abzusehen, dass sich bei hoher Wiederholrate eines stark fokussierten fs-Laserpulses und räumlicher Verschiebung der Teilchen auch ausschließlich im Reflexionsmodus Aussagen über Teilchengröße und Teilchenform treffen lassen und bei zusätzlicher Auswertung der Brechung 2. Ordnung auch der Brechungsindex bestimmen lässt.

Im Fall der zeitlichen Analyse des Streulichtprozesses, der durch fs-Laserpulse an einer Mehrteilchenanordnung ausgelöst wird, ist zu erwarten, dass neben der mittleren Teilchengröße auch der mittlere Teilchenabstand bestimmt werden kann. Dadurch kann die Teilchenkonzentration bestimmt werden, ohne auf eine Teilchenzählung in einer Messkammer angewiesen zu sein.

Literatur

- [1] Bech H., Leder A., Mehrteilchenstreuung – ihre numerische Berechnung und ihr Einfluß auf die PDA-Teilchengrößenmessung sowie erste Ergebnisse zur optischen Teilchengrößenmessung mittels fs-Laserpuls, Proc. der 10. Fachtagung "Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik", LSM/ Universität Rostock, 2002
- [2] Damaschke N., Michel T., Tropea C., Streuung von Femtosekundenpuls an sphärischen Partikeln, Proc. der 10. Fachtagung "Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik", LSM/ Universität Rostock, 2002
- [3] Sbanksi, O., Roman, V.E., Kiefer, W., Popp, J., Elastic light scattering from single microparticles on a femtosecond time scale, J. Opt. Soc. Amer. A, 17(2): 312-219, 2000
- [4] Albrecht, H.-E., Borys, M., Damaschke, N., Tropea, C., Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2003