

## 5 Resultate

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse zur Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotröpfchen vorgestellt. Vorab seien für ein besseres Verständnis der Ergebnisse noch kurz einige experimentelle Gegebenheiten zusammengefaßt: Mit dem entwickelten Aufbau ist es möglich, die winkelabhängige Intensität bei einer bestimmten Wellenlänge oder aber das Spektrum des emittierten Lichtes bei einem bestimmten Winkel zu messen. Der Streuwinkel  $\vartheta = 0^\circ$  ist definiert als die direkte Vorwärtsstreuung, wobei aufgrund des zum Schutz der Faser eingebauten Strahlblockers von etwa  $-3^\circ$  bis  $+3^\circ$  kein Signal meßbar ist. Wenn er nicht explizit anders angegeben ist, beträgt der Strahldurchmesser in allen durchgeführten Experimenten mindestens das Zweifache des Tropfendurchmessers. Sowohl die spektralen als auch die winkelabhängigen Messungen nehmen etwa 10 bis 20 Minuten in Anspruch, so daß sie jeweils aus einer Mittelung über viele Tropfen bestehen.

Der erste Abschnitt wird sich der Frequenzvervielfachung in Wassertropfen widmen. Anschließend wird im zweiten Abschnitt die explosionsartige Verdampfung von für die Laserwellenlänge transparenten Tropfen anhand von photographischen Abbildungen diskutiert. Der letzte Teil präsentiert dann erste Resultate zur Plasmabildung in mit NaCl angereicherten Wassertropfen. Es wird spektral und winkelabhängig sowohl das Plasmakontinuum als auch die Plasmafluoreszenz der Natriumatome vorgestellt und ein Ansatz zu einer Interpretation gegeben.

Zunächst wurde der Meßaufbau getestet. Da eine gesicherte Theorie bislang nur für die lineare Mie-Streuung zur Verfügung steht, wurde der Femtosekundenpuls mit einer Zentralwellenlänge von 810 nm in einem BBO-Kristall verdoppelt, um so die lineare Streuung an einem Wassertropfen für die Detektion sichtbar zu machen. Die resultierende Strahlung bei einer Wellenlänge von 405 nm mit einer Intensität von  $3.4 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> wurde dann in Richtung des Tropfens fokussiert und das gestreute Licht winkelaufgelöst gemessen. Vorwärts- und Rückwärtsstreuung sind in diesem Fall nicht direkt korrelierbar, da die Spannung des Photomultipliers von 400 auf 1000 V erhöht wurde, um ein eindeutiges Signal zu erhalten. In der Abbildung 5.1 sind die Meßdaten in Grau dargestellt.

Der theoretischen Berechnung wurde ein Gaußprofil zugrunde gelegt mit einer FWHM von 15 nm bei einer Zentralwellenlänge von 402 nm. Der Brechungsindex in Wasser beträgt für diese Wellenlänge 1.34 [Hale, Querry 1973]. Der Tropfendurchmesser in Experiment und Theorie ist 35  $\mu\text{m}$ .

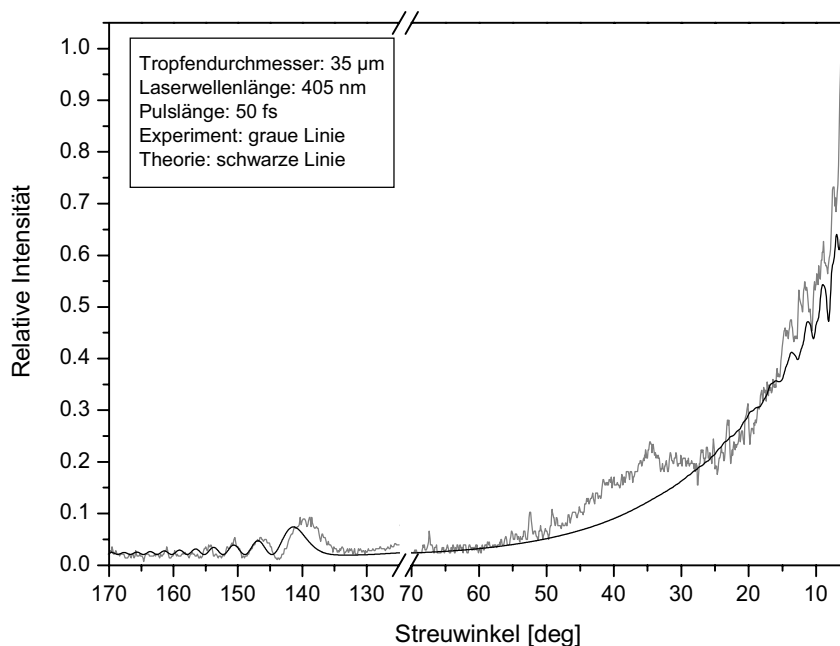


Abbildung 5.1: Gemessene und berechnete lineare Streuung eines Femtosekundenlaserpulses mit einer Intensität von  $3.4 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  an einem Wassertropfen mit einem Durchmesser von 35  $\mu\text{m}$ . Die Zentralwellenlänge beträgt 405 nm.

Die beiden Kurven zeigen eine sehr gute Übereinstimmung und der Regenbogenwinkel ( $140^\circ$ ) ist eindeutig zuzuordnen. Die Schulter in dem Signal der Vorwärtsstreuung um  $45^\circ$  läßt sich auf eine Reflexion an dem Tropfengenerator zurückführen. Für die folgenden Messungen hat dies jedoch keine Relevanz, da jeweils das im Tropfen erzeugte Licht detektiert wird.

## 5.1 Frequenzvervielfachung

Bevor wir uns den neuen Ergebnissen zuwenden, wird noch ein kurzer Rückblick auf die bisherigen Untersuchungen der Erzeugung der Dritten Harmonischen in Mikrotropfen gegeben: Kasparian und Kollegen haben unter der Verwendung von Femtosekundenlaserpulsen winkelabhängig die Intensität der Frequenzverdreifachten gemessen [Kasparian et al. 1997]. Die Winkelverteilung weist keinerlei Ähnlichkeit mit der linearen Mie-Streuung auf. Es wurden zwei Maxima bei  $26^\circ$  und  $140^\circ$  beobachtet,

wobei die Messung in einen Vorwärts- und einen Rückwärtsbereich aufgeteilt war, deren Intensitäten nicht direkt miteinander verglichen werden können.

Die theoretischen Berechnungen zur Erzeugung der Dritten Harmonischen in Mikrotropfen über die Green-Funktion von Carroll und Zheng ergaben für eine nicht resonante Anregung hauptsächlich Vorwärtsstreuung mit einem zusätzlichen kleinen Maximum bei  $30^\circ$  [Carroll, Zheng 1997]. Da sie die Berechnungen für einen Größenparameter um 80 durchgeführt haben, soll dieser Abschnitt mit der Frequenzverdreifachung in Wassertropfen beginnen, die einen kleinen Durchmesser haben. Anschließend werden Messungen vorgestellt, bei denen der Größenparameter in einem Bereich um 210 liegt. Da bis jetzt noch keine Theoriedaten für andere Größenparameter als etwa 80 von Carroll und Zheng vorliegen, wird eine alternative Methode beschrieben, um die Messungen zu interpretieren.

### 5.1.1 FREQUENZVERDREIFACHUNG BEI EINEM GRÖßENPARAMETER UM 80

Wenn man das von einem Wassertropfen mit einem Durchmesser von  $40\ \mu\text{m}$  emittierte Licht in einem Spektralbereich von  $230\ \text{nm}$  bis  $420\ \text{nm}$  betrachtet, dann zeigt sich, wie in der Abbildung 5.2 für eine Laserintensität von  $3.5 \cdot 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$  dargestellt ist, als einziges Signal die Frequenzverdreifachte um  $270\ \text{nm}$ .

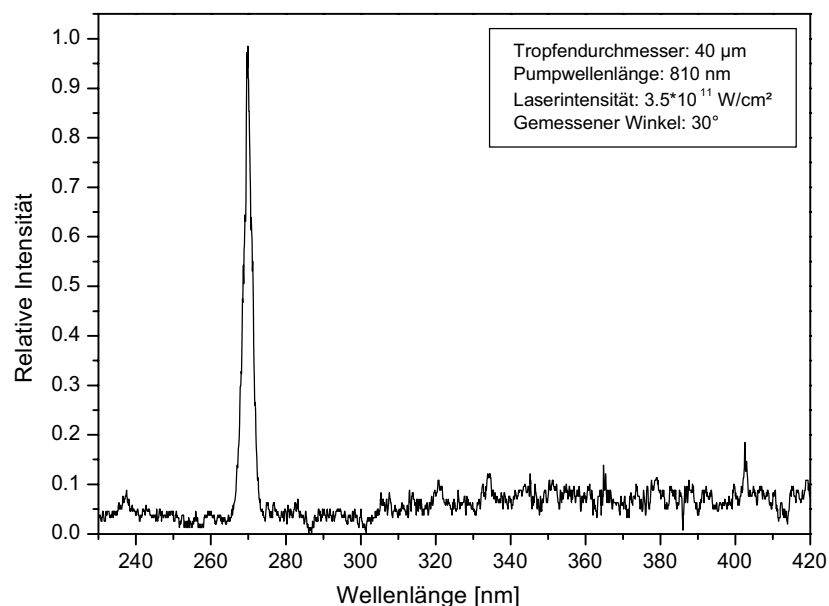


Abbildung 5.2: Spektrum des von einem Wassertropfen in einem Bereich von  $230\ \text{nm}$  bis  $420\ \text{nm}$  emittierten Lichtes. Die Intensität des Lasers liegt bei  $3.5 \cdot 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$  mit einer Zentralwellenlänge von  $810\ \text{nm}$ .

Die Zweite Harmonische konnte nicht beobachtet werden, was wegen der Inversionssymmetrie von Flüssigkeiten zu erwarten ist (Kapitel 3.1.3). Der experimentelle Grenzwert zur Erzeugung der Dritten Harmonischen in kleinen Wassertropfen wurde mit  $2.2 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  bestimmt. Ab einer Intensität von etwa  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  ist zusätzlich ein erhöhter Weißlichtanteil zu beobachten.

Betrachtet man die winkelabhängige Intensitätsmessung der Frequenzverdreifachen in einem Streuwinkelbereich von  $5^\circ$  bis  $165^\circ$  in der Abbildung 5.3, so beobachtet man ausschließlich Vorwärtsstreuung. Wie bei J. Kasparian hat das gemessene Spektrum keine Ähnlichkeit mehr mit der linearen Mie-Streuung [Kasparian et al. 1997]. Auch das Maximum bei  $26^\circ$  konnte reproduziert werden. Jedoch ist der Peak in Rückrichtung bei etwa  $140^\circ$  höchstens durch ein verstärktes Rauschen zu erahnen. Selbst bei maximaler Spannung des Photomultipliers und damit einer sehr empfindlichen Detektion bleibt ein mögliches Signal der Dritten Harmonischen in diesem Bereich unter dem Detektionslimit.

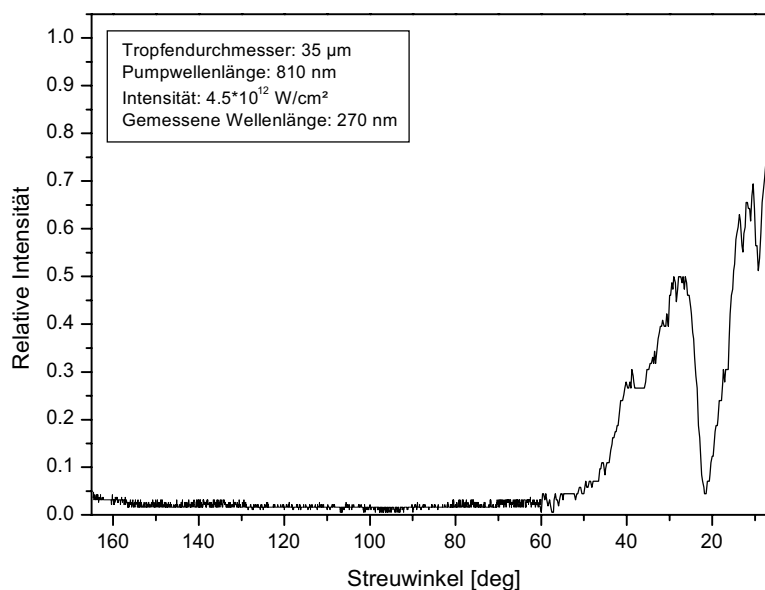


Abbildung 5.3: Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Der Wassertropfen hat einen Durchmesser von  $35 \mu\text{m}$ , die Pumpwellenlänge liegt bei  $810 \text{ nm}$  und die gemessene Wellenlänge bei  $270 \text{ nm}$ .

Um verschiedene Größenparameter in dem Bereich von 70 bis 79 untersuchen zu können, wurde bei konstant gehaltener Tropfengröße die Pumpwellenlänge mit Hilfe des TOPAS verändert. Die Intensitäten des einfallenden Lichtes lagen in einem Bereich von  $3 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  bis  $4 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ . Die Abbildung 5.4 zeigt die Vorwärtsstreuung der Dritten Harmonischen für vier verschiedene Größenparameter von 70, 74, 79 und 135. Zunächst ist

auffällig, daß die einzelnen Messungen einander sehr ähnlich sind. Die Intensität der Dritten Harmonischen fällt zu  $42^\circ$  hin ab, ein Maximum liegt jeweils zwischen etwa  $24^\circ$  und  $30^\circ$  und ein Minimum um  $21^\circ$ . In Richtung  $8^\circ$  steigt die Intensität dann stetig an. Die Messung für den Größenparameter 135 zeigt im Gegensatz zu denen mit einem Größenparameter 70, 74 und 79 eine stärker ausgeprägte Strukturierung.

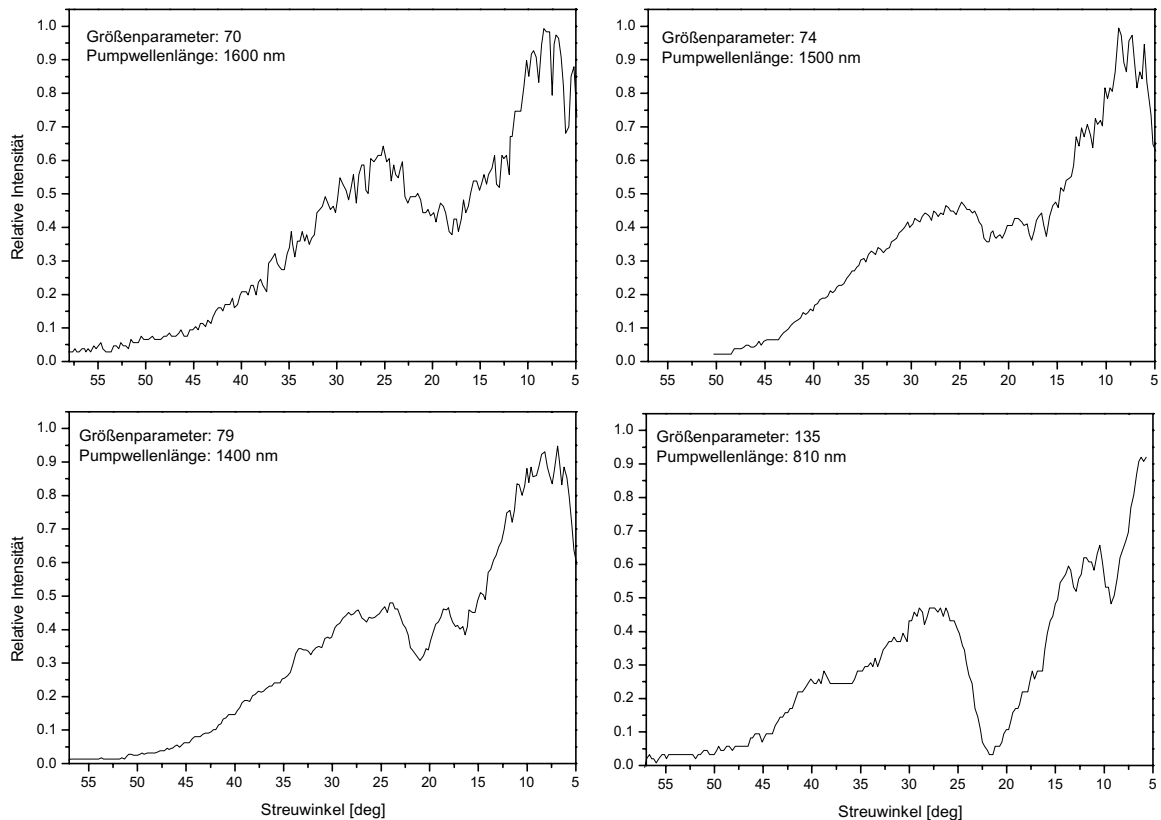


Abbildung 5.4: Vorwärtsstreuung der Dritten Harmonischen in einem Winkelbereich von  $5^\circ$  bis  $57.5^\circ$ . Der Tropfendurchmesser betrug für jede Messung  $35\ \mu\text{m}$ , so daß man für eine Wellenlänge von  $1600\ \text{nm}$  einen Größenparameter von 70 erhält, für  $1500\ \text{nm}$  einen von 74, für  $1400\ \text{nm}$  einen von 79 und für  $810\ \text{nm}$  einen von 135. Die Intensität des Lasers lag in einem Bereich von  $3 \cdot 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$  bis  $4 \cdot 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$ .

Vergleicht man diese Ergebnisse mit den nach der Greenfunktion berechneten Theoriedaten aus Kapitel 3.3.4, so wird sofort deutlich, daß man es hier mit einer nicht resonanten Anregung zu tun hat. Carroll hat für drei verschiedene, nicht resonante Größenparameter die Winkelverteilung berechnet, um zu testen, ob es trotz einer kleinen Änderung im Größenparameter nicht zu einer anderen Intensitätsverteilung kommt [Carroll 1999]. Die Abbildung 5.5 zeigt, daß – zumindest für den nicht resonanten Fall – die

Streuung einer sehr geringen Abhängigkeit vom Größenparameter unterliegt. Das Maximum bei  $30^\circ$  ist in dem berechneten Größenparameterbereich stabil.

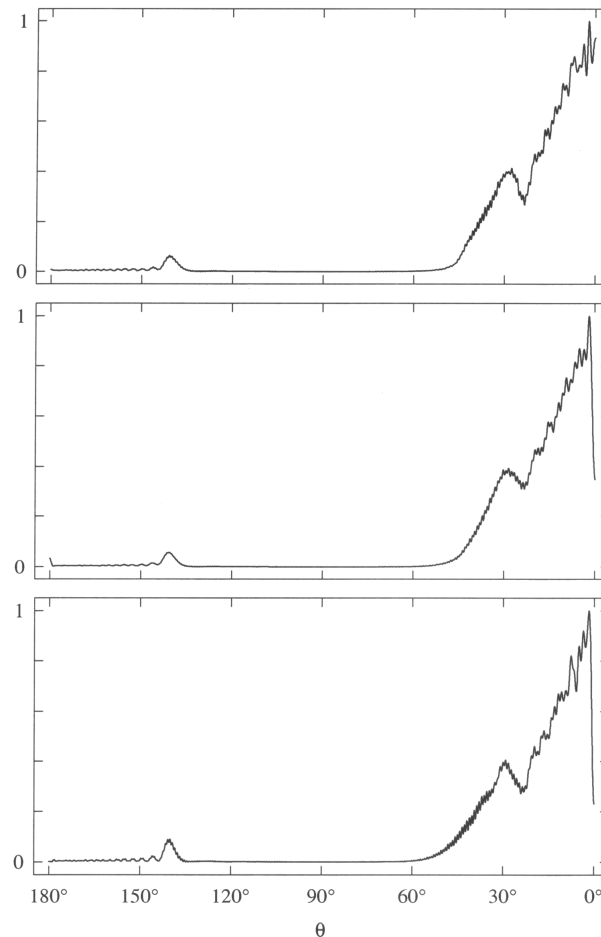


Abbildung 5.5: Theoretische Winkelverteilung der Dritten Harmonischen berechnet für die Größenparameter 80.725 (oben), 81.000 (mittig) und 81.725 (unten) [Carroll 1999].

Dies konnte durch unsere Messungen bestätigt werden. Auch das Experiment zeigt keine signifikante Abhängigkeit vom Größenparameter in einem Bereich von 74 bis 79. Bei dem direkten Vergleich in Abbildung 5.6 sieht man, daß die direkte Vorwärtsstreuung der Messung für einen Größenparameter 79 eine ähnlich Steigung hat wie die von Carroll und Zheng berechnete Winkelverteilung für einen Größenparameter von 80. Auch das gemessene Maximum mit einer Lage von  $26^\circ$  weicht nur leicht von der Theorie ab.

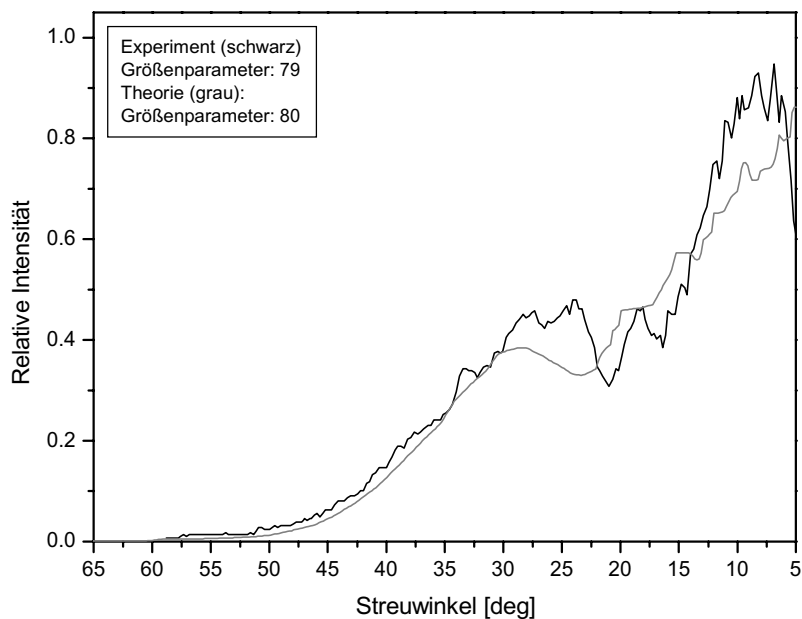


Abbildung 5.6: Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Direkter Vergleich von Experiment (Größenparameter: 79) und der Theorie nach Carroll und Zheng (Größenparameter: 80).

Das kleine Maximum bei  $140^\circ$  konnte in unseren Messungen nicht beobachtet werden. Eine weitere Abweichung der Meßergebnisse von der Theorie tritt ab einem Winkel kleiner als  $10^\circ$  auf. Die bisherigen Ergebnisse wurden jeweils bis zu einem Streuwinkel von  $5^\circ$  vorgestellt. Die Abbildung 5.7 zeigt eine Messung von  $-50^\circ$  bis  $+50^\circ$ .

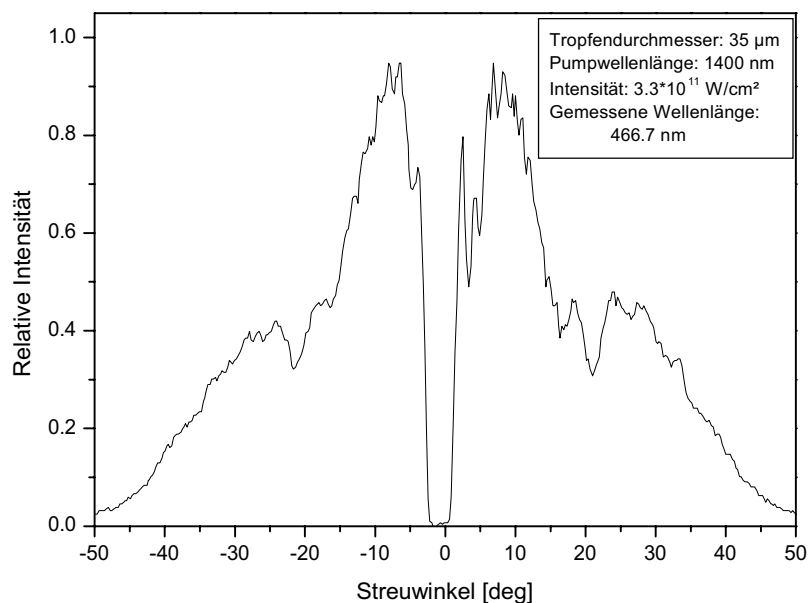


Abbildung 5.7: Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Der Tropfendurchmesser lag bei  $35\ \mu\text{m}$  und die Pumpwellenlänge mit einer Intensität von  $3.3 \cdot 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$  bei  $1400\ \text{nm}$ , der Größenparameter beträgt demnach 79.

Das abrupte Abnehmen des Signals zwischen  $-2.7^\circ$  und  $1.3^\circ$  entsteht durch den Strahlblocker, der sein Zentrum nicht exakt auf der  $0^\circ$ -Position hat. Bei dieser Darstellung sind bei  $\pm 10^\circ$  Maxima zu beobachten und das Signal fällt Richtung  $0^\circ$  wieder ab. Bei etwa  $2.4^\circ$  ist ein zusätzliches Ansteigen der Intensität zu beobachten. Dieses Verhalten läßt sich mit den Berechnungen von Carroll und Zheng nicht erklären und kann auch nicht völlig auf die im experimentellen Teil beschriebene Ungenauigkeit der Winkelbestimmung bei kleinen Streuwinkeln zurückgeführt werden. Die Abweichung des Experiments von der Theorie könnte zusätzlich daraus resultieren, daß die hohe Intensität des einfallenden Lichtes bei der Verwendung von Femtosekundenpulsen in den Berechnungen nicht berücksichtigt wurde. Um eine exakte Berechnung durchführen zu können, müssen die genauen Brechungsindizes von Fundamentaler und Höherer Harmonischer bekannt sein. Diese sind jedoch direkt abhängig von der Intensität des Lichtes

$$m(\omega) = m_0(\omega) + \gamma_\omega \vec{E}^2, \quad (5.1)$$

wobei die Werte für die Hyperpolarisierbarkeit  $\gamma_\omega$  in der Literatur stark schwanken [Ledoux et al. 1982], [Kajzar et al. 1985] und es daher schwierig ist, sie bei der theoretischen Aufarbeitung zu berücksichtigen. Aufgrund des gaußförmigen Intensitätsprofils des Lasers müßten dann noch zusätzlich radial unterschiedliche Brechungsindizes angenommen werden.

Ein anderer Prozeß, der die Erzeugung der Dritten Harmonischen beeinflusst, ist die Ionisation des Mediums während der Wechselwirkung mit dem Laserfeld. Die Ladungsträgerdichte hat ein inhomogenes räumliches Profil, welches zu einem räumlich inhomogenen Brechungsindex und auch zu einer räumlich inhomogenen Dispersion führt. Hierdurch wird die Ausbreitungsrichtung des einfallenden Lichtes verändert und es ergeben sich neue Phasen Anpassungsbedingungen. Die Abweichung des Brechungsindex in einem Plasma ist gegeben durch

$$\Delta m^e = \frac{-\omega_p^2}{2\omega^2} \quad (5.2)$$

[Marcus et al. 1999].  $\omega_p$  ist die Plasmafrequenz, die bereits im Abschnitt 3.4.1 diskutiert wurde. Sie ist von der Elektronendichteverteilung abhängig, wodurch neben örtlichen zusätzlich auch zeitliche Varianzen auftreten. Die Höhere Harmonische, die zu Beginn des Pulses erzeugt wird, „sieht“ nur neutrale Atome, wohingegen das Licht, das am Ende des



Pulses erzeugt wird, möglicherweise Regionen durchläuft, in denen eine Vielzahl von Molekülen bereits ionisiert ist. Zu besonders hohen Intensitäten kommt es in dem hot spot, der direkt auf der Mittelachse von Laser und Tropfen liegt und von dem das gerade bei kleinen Streuwinkeln detektierte Licht ausgeht. Leider stellt eine vollständige theoretische Berechnung der Erzeugung der Dritten Harmonischen in Mikrotropfen durch intensive Femtosekundenlaserpulse aus den genannten Gründen eine sehr komplexe Aufgabe dar, die zum jetzigen Zeitpunkt noch nicht unter Berücksichtigung aller Aspekte bearbeitet wurde. Die Interpretation entsprechend der Thematik dieser Arbeit - nämlich die Untersuchung der Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotröpfchen - kann damit nur näherungsweise durchgeführt werden.

#### 5.1.1.1 Berücksichtigung des fokussierten Gaußstrahls

Ein weiterer interessanter Aspekt besteht darin, daß die bis jetzt diskutierten Berechnungen unter Annahme einer ebenen einfallenden Welle durchgeführt wurden. In der Dissertation von Carroll wurde zusätzlich noch der Fall für einen fokussierten Gaußstrahl betrachtet. Der gaußförmige Strahl wird als eine Serie von Partialwellen ausgedrückt, die über einen Koeffizienten, der die Strahlform beschreibt, gewichtet werden [Gouesbet 1999]. Berechnet wurde die Intensität der Dritten Harmonischen bei einer nicht resonanten Anregung eines Wassertropfens für drei verschiedene Strahldurchmesser. Die Abbildung 5.8 zeigt in dem oberen Teilbild den Fall, bei dem der Strahldurchmesser halb so groß ist wie der Tropfendurchmesser. Auf der linken Seite ist die Quellstärke der Dritten Harmonischen im Tropfen und das im Nahfeld gestreute Licht zu sehen. Der fokussierte Strahl wird noch weiter fokussiert und die winkelabhängige Intensitätsverteilung im Fernfeld (auf der rechten Seite in Polarkoordinaten dargestellt) weist daher eine Vorwärtsstreuung auf, die auf einen sehr schmalen Winkelbereich von  $15^\circ$  bis  $345^\circ$  ( $-15^\circ$ ) beschränkt ist. Das zusätzliche Maximum bei  $30^\circ$  erscheint nicht. In der Mitte ist der Fall dargestellt, bei dem der Strahldurchmesser gleich dem Tropfendurchmesser ist. Die Intensität ist über einen etwas breiteren Streuwinkelbereich verteilt, der von  $22^\circ$  bis  $338^\circ$  ( $-22^\circ$ ) reicht. Auch hier ist das Maximum bei  $30^\circ$  nicht zu beobachten. In der untersten Abbildung beträgt der Strahldurchmesser das Fünffache des Tropfendurchmessers. Sowohl die THG-Verteilung im Tropfen als auch die Intensität der Dritten Harmonischen im Nah-

und Fernfeld sind identisch mit der Berechnung für eine ebene Welle. Die Maxima um  $30^\circ$  treten jetzt in Erscheinung.

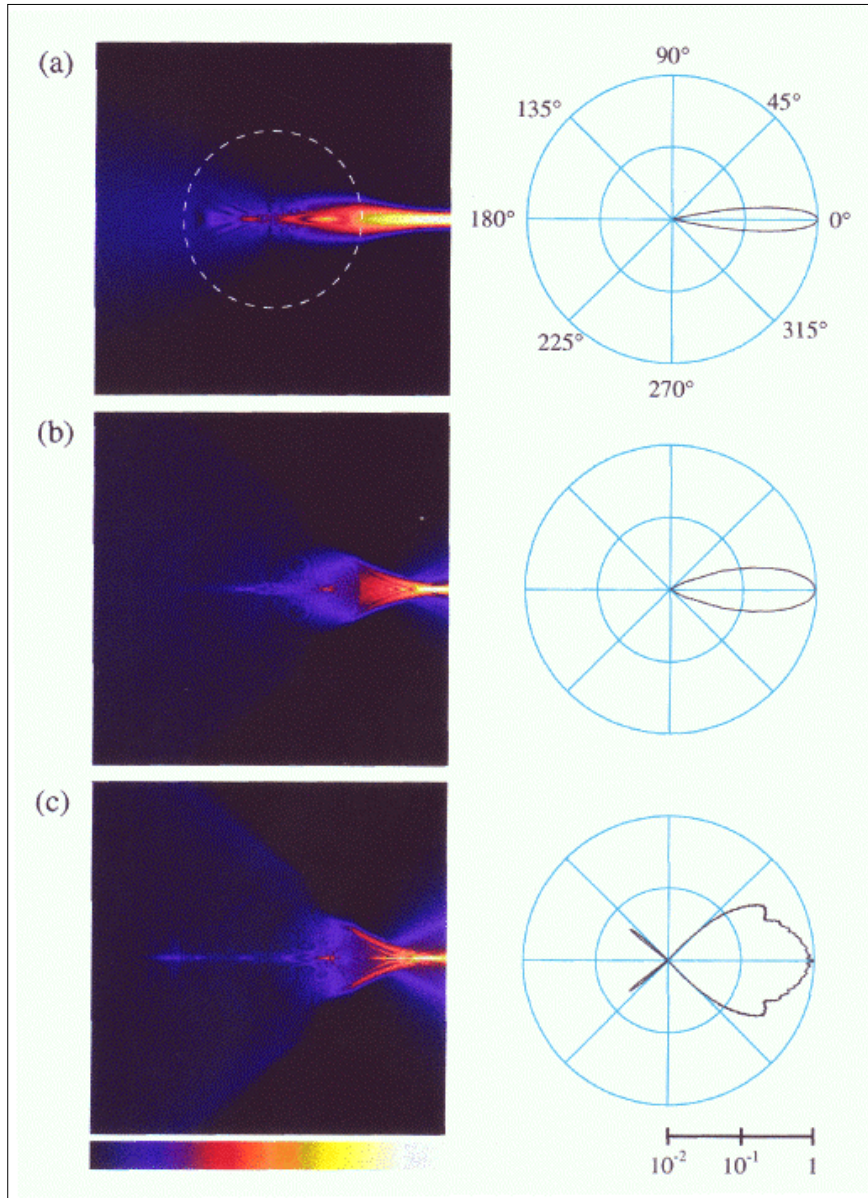


Abbildung 5.8: Amplitude des elektrischen Feldes der Dritten Harmonischen in einem Tropfen und seiner nahen Umgebung als Schnitt durch die äquatoriale Ebene (links). Rechts ist die Winkelverteilung der Dritten Harmonischen im Fernfeld in Polarkoordinaten dargestellt. Gezeigt sind die Berechnungen für drei verschiedene Verhältnisse von Strahl- zu Tropfendurchmesser: 0.5 (a), 1 (b) und 5 (c).

Auch bei den Messungen kann man ein solches Verhalten beobachten. Für einen besseren Vergleich mit der Darstellung der Theoriedaten sind auch die Meßdaten in Polarkoordinaten wiedergegeben. Die Abbildung 5.9 zeigt auf der linken Seite eine Messung mit einem Strahldurchmesser von  $40\ \mu\text{m}$  und einem Tropfendurchmesser von  $50\ \mu\text{m}$ , so daß man ein Verhältnis von Strahl- zu Tropfendurchmesser von 0.8 erhält. Die

Intensität der Dritten Harmonischen fällt bereits zu  $20^\circ$  hin ab und ist damit in etwa mit dem Verhältnis von Strahl- zu Tropfendurchmesser entsprechend den Abbildungen 5.8a und 5.8b zu vergleichen. Die rechte Abbildung zeigt als Gegenüberstellung eine Winkelverteilung der Dritten Harmonischen für einen großen Strahldurchmesser (Verhältnis Strahl-/Tropfendurchmesser: 3.4). Diese Messung weist die bekannten Maxima um  $26^\circ$  auf und fällt zu  $42^\circ$  hin ab, wie es auch schon bei den in der Abbildung 5.4 präsentierten Meßdaten zu beobachten war. Sie entspricht in etwa der Berechnung, bei der als Strahldurchmesser das Fünffache des Tropfendurchmessers angenommen wurde. Sowohl Theorie als auch Experiment zeigen also, daß die Nebenmaxima bei  $26^\circ$  aus Regionen des Tropfens stammen, die weit von der Strahlachse entfernt liegen.

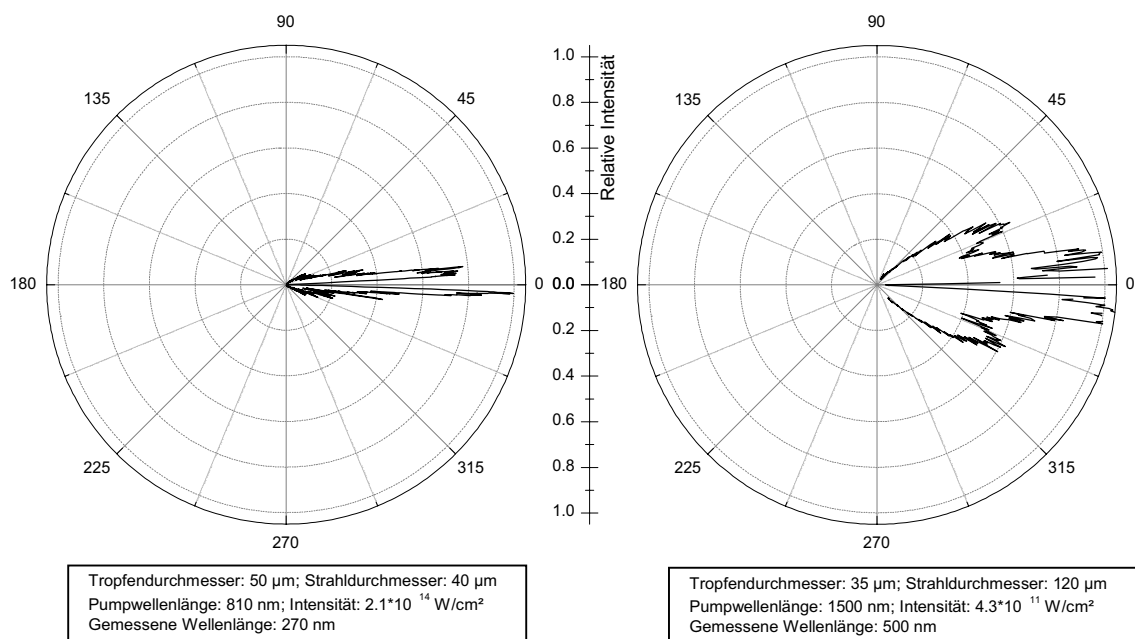


Abbildung 5.9: Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels dargestellt in Polarkoordinaten. Die linke Abbildung zeigt Meßdaten für ein Verhältnis von Strahl- zu Tropfendurchmesser von 0.8, die Abbildung rechts für ein Verhältnis von Strahl- zu Tropfendurchmesser von 3.4.

### 5.1.1.2 Die Polarisation der Dritten Harmonischen

Über einen Polarisationsfilter, der vor der Faser angebracht wurde, ist die Polarisation der Dritten Harmonischen bestimmt worden, die von einem Wassertropfen mit dem Durchmesser  $35\ \mu\text{m}$  emittiert wird. Die Laserintensität bei dieser Messung betrug  $3.4 \cdot 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$ . Es wurde parallel zur Streuebene polarisiertes Licht eingestrahlt und die parallele und senkrechte Komponente des Streulichtes winkelaufgelöst gemessen. Wie die Abbildung 5.10 zeigt, ist der bei weitem größte Anteil der gestreuten Dritten Harmonischen ebenfalls parallel polarisiert, die Depolarisation beträgt unabhängig vom Streuwinkel etwa 5 %. Das emittierte Licht ist also in der gleichen Richtung polarisiert wie das Pumplicht, genau so wie es bei einem kohärenten Prozeß zu erwarten ist.

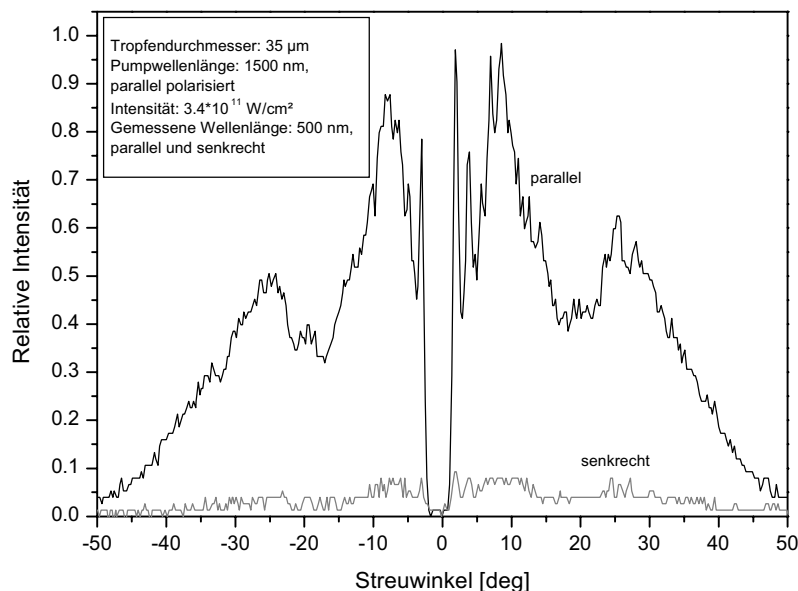


Abbildung 5.10: Intensität der parallel und senkrecht polarisierten Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Das Laserlicht mit einer Wellenlänge von  $1500\ \text{nm}$  und einer Intensität von  $3.4 \cdot 10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$  ist parallel polarisiert.

Auch der Frage, ob es einen Unterschied in der Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels für parallel und senkrecht polarisiertes einfallendes Licht relativ zur Streuebene gibt, ist nachgegangen worden. Über ein Periskop wurde die Polarisation des Lasers geändert. Die Abbildung 5.11 zeigt, daß zwischen den beiden Fällen kein nennenswerter Unterschied im Fernfeld zu beobachten ist.

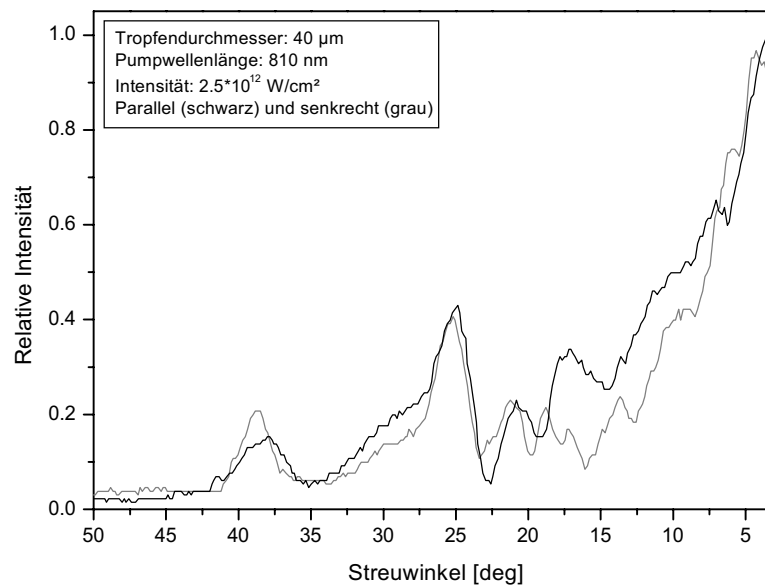


Abbildung 5.11: Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels bei parallel (schwarz) und senkrecht (grau) polarisiertem Laserlicht. Der Durchmesser des Wassertropfens betrug bei dieser Messung  $40\mu\text{m}$ , die Wellenlänge des Lasers  $810\text{ nm}$  und die Intensität etwa  $2\cdot 10^{12}\text{ W/cm}^2$  bei beiden Messungen.

Was jedoch auffällt, ist die stärkere Strukturierung der winkelabhängigen Intensitätsverteilung im Vergleich mit den bisher vorgestellten Resultaten. Die Veränderung dieser Messung gegenüber den vorherigen ist der größere Tropfen mit einem Durchmesser von  $40\mu\text{m}$ . Es handelt sich nun um einen Größenparameter von 155. Um zu klären, ob die Änderung des Größenparameters für die stärkere Strukturierung verantwortlich ist, wird im folgenden Abschnitt eine Auswahl von Meßergebnissen vorgestellt und diskutiert, die in einem Größenparameterbereich um 210 erhalten wurden.

### 5.1.2 FREQUENZVERDREIFACHUNG BEI EINEM GRÖßENPARAMETER UM 210

Die Abbildung 5.12 zeigt ein Beispiel für die winkelabhängige Intensitätsverteilung der Dritten Harmonischen, die in einem  $55\mu\text{m}$  großen Wassertropfen generiert wurde. Mit einer Zentralwellenlänge des Lasers von  $810\text{ nm}$  befindet man sich damit in einem Größenparameterbereich um 210. Wie bei den kleineren Tropfen liegt eine mögliche Intensität der Rückwärtsstreuung bis auf ein leichtes Ansteigen des Signals ab  $160^\circ$  zu größeren Streuwinkeln hin unter dem Detektionslimit des Meßaufbaus.

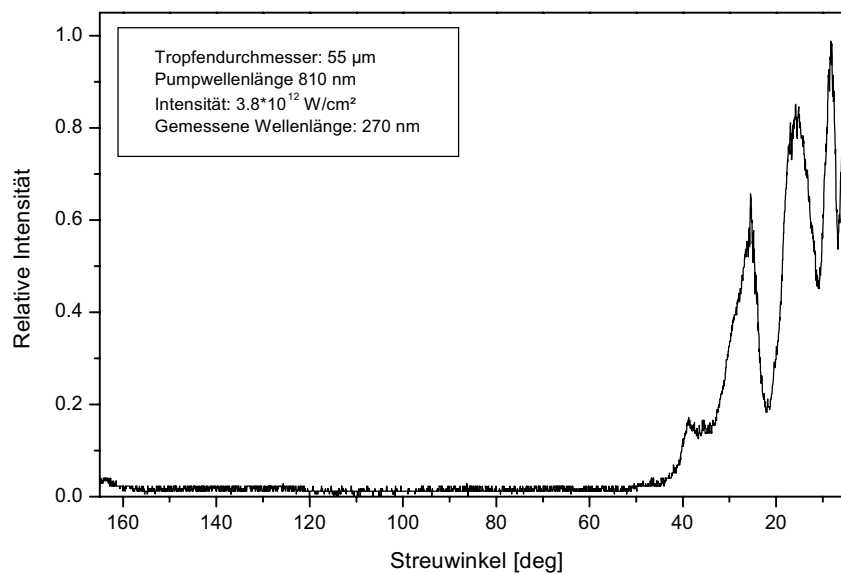


Abbildung 5.12: Intensitätsverteilung der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Die Messung wurde an einem Wassertropfen mit einem Durchmesser von 55 µm durchgeführt. Die Pumpwellenlänge lag bei 810 nm und die Intensität bei  $3.8 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>.

In Vorwärtsrichtung ist eine starke Modulation des Signals zu beobachten. Es handelt sich nicht mehr nur um ein Maximum bei 26°, sondern um mehrere Maxima, die bei 6°, 8°, 16°, 26° und 38° auftreten. Die hohe Symmetrie des winkelaufgelösten Signals der Abbildung 5.13 soll noch einmal verdeutlichen, daß es mit dem experimentellen Aufbau möglich ist, sehr exakte Messungen durchzuführen.

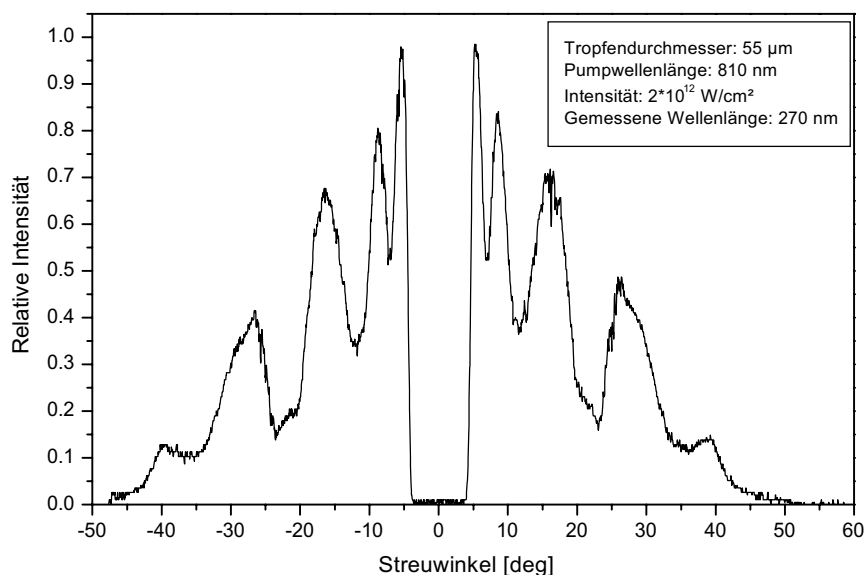


Abbildung 5.13: Intensitätsverteilung der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels in Vorwärtsrichtung. Die Messung wurde an einem Wassertropfen mit dem Durchmesser 55 µm durchgeführt. Die Pumpwellenlänge lag bei 810 nm und die Intensität bei  $2 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>.

Leider gibt es derzeit noch keine genaue Berechnung für den Fall etwas größerer Tropfen. Die beobachtete Modulation soll daher anhand eines einfachen Modells diskutiert werden, das in der Lage ist, die wesentlichen Aspekte zu erklären.

#### 5.1.2.1 Entwicklung eines Interpretationsmodells

Im folgenden wird der Weg beschrieben, der beschritten wurde, um mit einer Kombination von Ray-Tracing und Mie-Theorie die Meßergebnisse interpretieren zu können. Hierfür wird zunächst die Streuung an einer Kugel unter Zuhilfenahme der geometrischen Optik betrachtet und dann die Abhängigkeit der Dritten Harmonischen von der Kohärenzlänge und von der Intensität des erzeugenden Lichtes berücksichtigt.

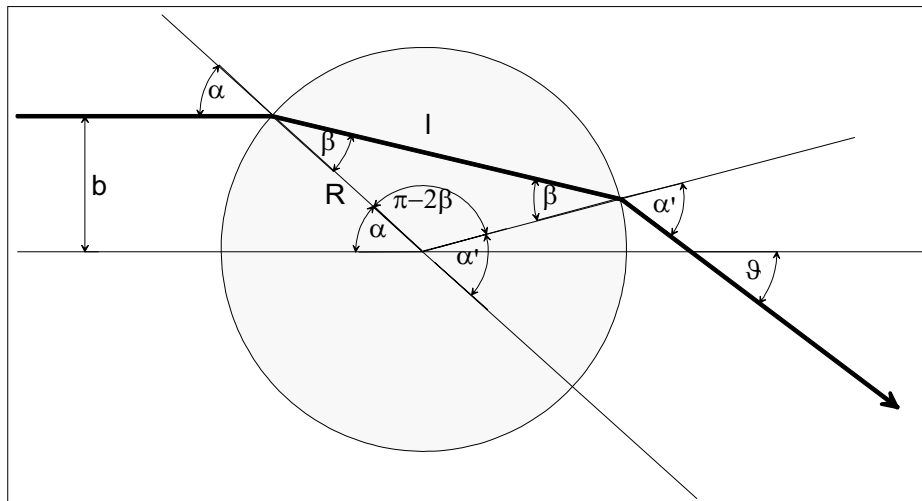


Abbildung 5.14: Strahlengang durch eine Kugel, Grundlage der Berechnungen über die geometrische Optik.

Die Abbildung 5.14 veranschaulicht die Parameter des Grundgedankens: Man betrachtet einen Strahl, der mit einem Abstand  $b$  von der Mittelachse des Tropfens mit dem Radius  $R$

unter einem Winkel  $\alpha$  einfällt. Der Einfallswinkel  $\alpha$  läßt sich über  $\sin \alpha = \frac{b}{R}$  berechnen

zu

$$\alpha = \arcsin\left(\frac{b}{R}\right) . \quad (5.3)$$

Über das Brechungsgesetz

$$\frac{\sin \alpha}{\sin \beta} = m \quad (5.4)$$

erhält man  $\sin \beta = \frac{b}{Rm}$  und damit den Winkel  $\beta$

$$\beta = \arcsin\left(\frac{b}{Rm}\right). \quad (5.5)$$

Da das Licht den Tropfen mit der Wellenlänge der Harmonischen verläßt, muß noch ein relativer Ausfallswinkel aus dem Tropfen  $\alpha'$  definiert werden

$$\frac{\sin \alpha'}{\sin \beta} = m_j. \quad (5.6)$$

Wenn man für  $\beta$  Gleichung (5.5) einsetzt, erhält man über  $\sin \alpha' = \frac{m_j b}{mR}$

$$\alpha' = \arcsin\left(\frac{m_j b}{mR}\right). \quad (5.7)$$

Für den absoluten Ausfallswinkel des transmittierten Strahls  $\mathcal{G}$  gilt damit

$$\mathcal{G} = \alpha + \alpha' + (\pi - 2\beta) - \pi \quad (5.8)$$

$$\mathcal{G} = \arcsin\left(\frac{b}{R}\right) + \arcsin\left(\frac{m_j b}{mR}\right) - 2 \arcsin\left(\frac{b}{Rm}\right). \quad (5.9)$$

Für einen Wassertropfen mit den Brechungsindizes  $m_\omega = 1.329$  und  $m_{3\omega} = 1.359$  [Hale, Querry 1973] und einer Wellenlänge des einfallenden Lichtes von 810 nm ergibt die Aufsummierung über 2000 Strahlen (mit  $b = -R \dots + R$ ) eine winkelabhängige Intensitätsverteilung, die quasi Einhüllende des Meßergebnisses ist.

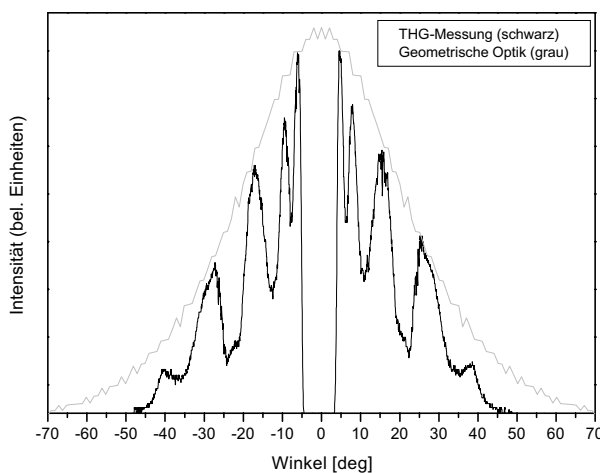


Abbildung 5.15: Vergleich der gemessenen Winkelverteilung aus der Darstellung 5.13 (schwarz) mit der Winkelverteilung, die über die geometrische Optik für eine Wellenlänge von 810 nm, einen Brechungsindex der Fundamentalen von 1.329 und einem Brechungsindex der Dritten Harmonischen von 1.359 berechnet wurde (grau).



Es stellt sich nun beim Betrachten der Darstellung 5.15 die Frage, aus welchem Grund es zu den Intensitätsabnahmen bei bestimmten Streuwinkeln kommt. Rufen wir uns nochmals mit der Gleichung (3.37) die Intensitätsabhängigkeit der Dritten Harmonischen ins Gedächtnis. Sie ist abhängig von der Strecke der Wechselwirkung (wegen einer möglichen Interferenz der erzeugten Harmonischen) und von der Intensität der Pumpstrahlung.

Demnach kann die Phasenbeziehung zwischen den erzeugten harmonischen Wellen deren Intensität beeinflussen. Bei Änderung der Propagationslänge in einem Material ändert sich die Intensität der Höheren Harmonischen aufgrund der Kohärenzlänge des nichtlinearen optischen Prozesses. Kajzar und Kollegen haben für verschiedene organische Flüssigkeiten die Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit der durchlaufenen Flüssigkeitsstrecke gemessen und darüber die Kohärenzlänge und die nichtlineare Suszeptibilität der dritten Ordnung berechnet [Kajzar et al. 1985]. Der nichtlineare Anteil des Brechungsindex konnte ebenfalls mit dieser Methode näherungsweise bestimmt werden [Blom et al. 1999].

Auch bei der Frequenzvervielfachung in Mikrotropfen könnte der Aspekt der Phasenanpassung eine entscheidende Rolle spielen, da das Licht, das den Tropfen durchquert, je nach dem Ort seines Auftreffens eine unterschiedliche Wegstrecke in der Flüssigkeit zurücklegt. Die Abbildung 5.16 soll veranschaulichen, daß ein Lichtstrahl, der den Tropfen am Rand trifft, eine kürzere Strecke  $l$  im Tropfen zurücklegt, als ein Strahl, der ihn direkt in der Mitte trifft.

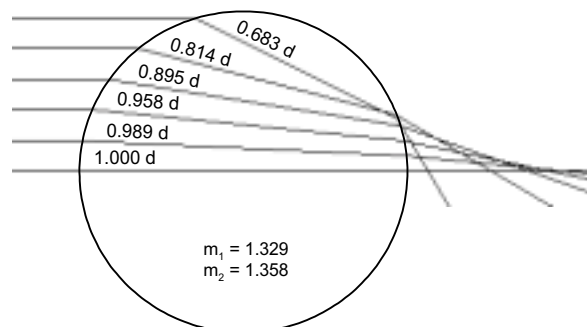


Abbildung 5.16: Die im Tropfen zurückgelegte Strecke im Verhältnis zum Tropfendurchmesser  $d$  für Strahlen, die an verschiedenen Orten auf den Tropfen treffen.  $m_1$  beschreibt den Brechungsindex bei Eintritt in den Tropfen und  $m_2$  beschreibt den Brechungsindex bei Austritt aus dem Tropfen.

In Abhängigkeit vom Einstrahlort läßt sich eine Formel für die Wechselwirkungslänge als Funktion des Streuwinkels aufstellen. Über trigonometrische Betrachtungen erhält man für die Strecke  $l$  (Abb.5.14)

$$\frac{\sin \beta}{R} = \frac{\sin(\pi - 2\beta)}{l} \quad (5.10)$$

$$l = \frac{R \sin(\pi - 2\beta)}{\sin \beta} = \frac{R \sin(2\beta)}{\sin \beta} = \frac{R 2 \sin(\beta) \cos(\beta)}{\sin \beta} = 2 R \cos \beta \quad (5.11)$$

$$l = 2R \sqrt{1 - \left(\frac{b}{Rm}\right)^2}. \quad (5.12)$$

Aufgrund geometrischer Überlegungen ist die gestreute Intensität zusätzlich proportional zu

$$\frac{2\pi b db}{\sin \vartheta} \frac{1}{\frac{d\vartheta}{db}} \quad (5.13)$$

[Haken, Wolf 1993]. Setzt man die Gleichungen (5.12) und (5.13) in die Gleichung (3.37) für die Intensität der Dritten Harmonischen ein, so erhält man die Intensität der  $j$ -ten Harmonischen in Abhängigkeit des Ausfallswinkels und damit auch in Abhängigkeit des Auftreffortes des einfallenden Lichtes

$$I(\vartheta(b)) = \frac{b}{\sin(\vartheta(b)) \frac{d\vartheta}{db}} \frac{\sin^2 \left( \frac{2j\pi}{\lambda} (m_j - m) R \sqrt{1 - \left(\frac{b}{Rm}\right)^2} \right)}{\left( \frac{j\pi}{\lambda} (m_j - m) \right)^2}. \quad (5.14)$$

Die Abbildung 5.17 auf der nächsten Seite stellt die unter Berücksichtigung des durchlaufenen Flüssigkeitsvolumens berechnete Intensität für die Dritte Harmonische als Funktion des Streuwinkels dar. Angenommen wurden vier verschiedene Tropfendurchmesser von 53  $\mu\text{m}$ , 54  $\mu\text{m}$ , 55  $\mu\text{m}$  und 56  $\mu\text{m}$ . Auffällig ist, daß bei einer Durchmesserdiffereenz von nur wenigen Mikrometern die Intensitätsverteilung stark variiert. Das Minimum, das für  $d = 53 \mu\text{m}$  bei  $27^\circ$  liegt, befindet sich für  $d = 56 \mu\text{m}$  bereits bei  $33^\circ$ .

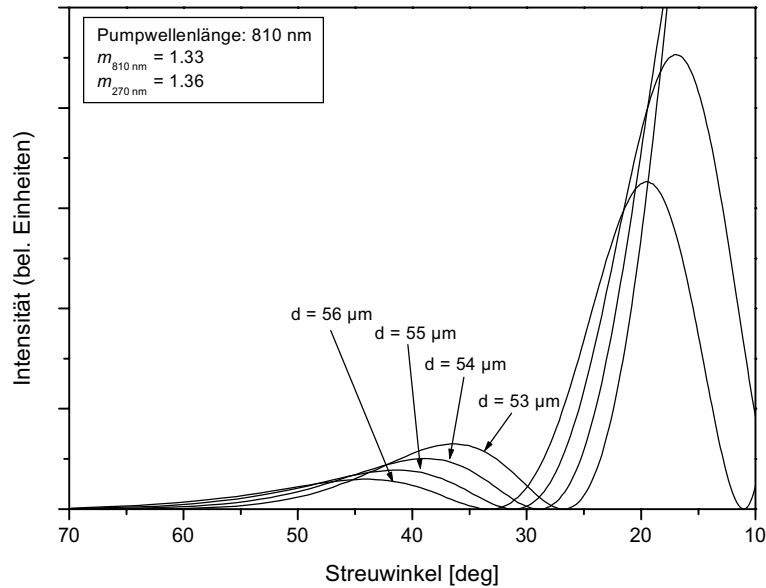


Abbildung 5.17: Berechnete Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels unter der Berücksichtigung der Kohärenzlänge. Bei der Berechnung wurde eine Laserwellenlänge von 810 nm, dementsprechend eine Wellenlänge der Dritten Harmonischen von 270 nm, und die Brechungsindizes 1.33 und 1.36 angenommen.

Die Tropfengröße im Experiment fluktuiert um etwa 2%. Das entspricht bei einem Durchmesser von 55  $\mu\text{m}$  einer Änderung von  $\pm 0.6 \mu\text{m}$ . Daß die beobachtete Modulation in der Winkelverteilung der Intensität der Dritten Harmonischen durch die Phasen Anpassungsbedingung erklärt werden kann, ist daher sehr unwahrscheinlich. Die berechnete Intensitätsverteilung im Fernfeld reagiert zu sensibel auf eine Änderung der Tropfengröße, als daß sie die beobachtete Modulation der Messungen erklären könnte.

Die zweite veränderliche Größe, die die Intensität der Dritten Harmonischen nach Gleichung (3.37) beeinflusst, ist die Intensität des erzeugenden Lichtes, also die stark inhomogene Intensitätsverteilung innerhalb des Tropfens. Unser vereinfachter Ansatz um dies zu berücksichtigen ist nun ein ähnlicher wie bei Carroll und Zheng. Man nimmt die über die Mie-Theorie berechnete Intensitätsverteilung als Quelle zur Erzeugung der Dritten Harmonischen an. Nach Gleichung (3.37) ist die Intensität der  $j$ -ten Harmonischen proportional der  $j$ -ten Potenz der Intensität des erzeugenden Lichtes. Für die Intensität der Frequenzverdreifung gilt demnach eine Proportionalität zur dritten Potenz der Intensität des einfallenden Lichtes. Wenn man diesen Fall graphisch darstellt, erscheinen nur noch wenige Orte mit einer hohen Effizienz zur Erzeugung der Dritten Harmonischen.

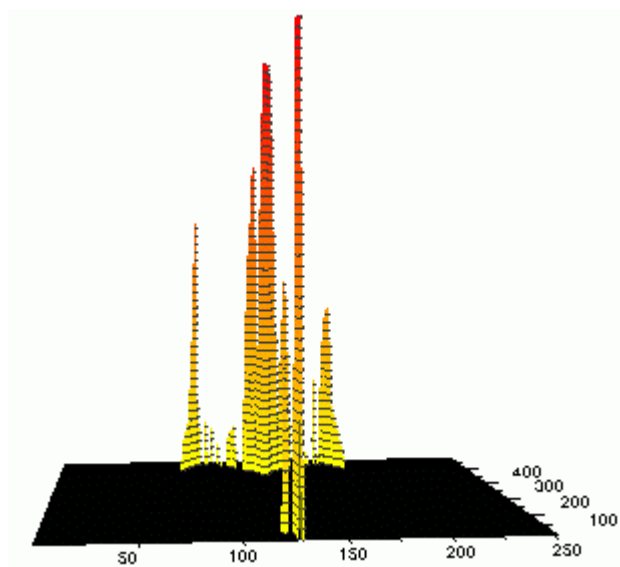


Abbildung 5.18: Dreidimensionale logarithmische Darstellung der internen Intensität zur dritten Potenz. Gezeigt ist der Schnitt durch die äquatoriale Ebene eines Tropfens mit den Parametern  $d = 50 \mu\text{m}$  und  $m = 1.329$ . Es handelt sich hierbei um eine Aufsummierung über 593 Mie-Berechnungen entlang der spektralen Breite des Laserpulses. Der Laser kommt aus der Richtung des Betrachters.

Betrachtet man einzelne Strahlen des einfallenden Lichtes, durchläuft jeder Orte von unterschiedlichem  $I^3$  innerhalb des Tropfens. Für jeden dieser Strahlen ist demnach die Wahrscheinlichkeit, daß es entlang des Strahls zu einer Erzeugung der Dritten Harmonischen kommt, verschieden.

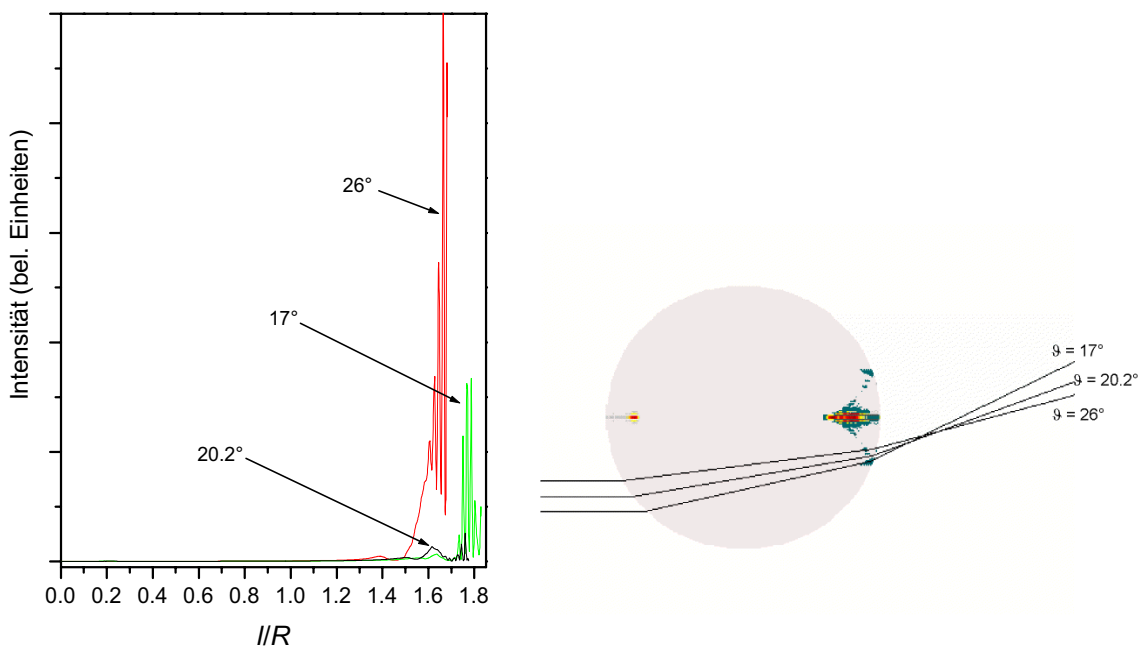


Abbildung 5.19: Intensitätsverteilung entlang dreier Strahlen durch eine Tropfen, die bei  $17^\circ$ ,  $20.2^\circ$  und  $26^\circ$  zu einem Signal im Fernfeld führen. Die x-Achse beschreibt die durchlaufene Strecke  $l$  in Einheiten des Radius  $R$  (links). Rechts ist zur Verdeutlichung der Weg durch den Tropfen für diese drei Winkel dargestellt.

Der theoretischen Berechnung der genauen Fernfeldverteilung wird die 500x256 Matrix der zur dritten Potenz erhobenen internen Intensitätsverteilung aus Abbildung 5.18 zugrunde gelegt. Die Abbildung 5.19 zeigt drei Beispiele für den Intensitätsverlauf entlang dreier Strahlen, die im Fernfeld bei  $\vartheta = 17^\circ$ ,  $20.2^\circ$  und  $26^\circ$  zu einem Signal führen. Die kleine Abbildung auf der rechten Seite ist zur Verdeutlichung der Vorgehensweise für die drei beschriebenen Winkel hinzugefügt. Nur in einem sehr kleinen Bereich, kurz vor Austritt des Lichtes aus dem Tropfen, werden hohe Intensitäten erreicht.

Geht man davon aus, daß es zur Frequenzverdreifung nur an diesen Punkten höchster Intensität im Tropfen kommt, dann kann man einen Einfluß der Phasenanpassung auf die beobachtete Modulation der Winkelverteilung der Dritten Harmonischen ausschließen. Die Größe der Gebiete hoher Intensität liegt im Bereich von nur einigen Mikrometern. Die Kohärenzlänge der THG in Wasser beträgt jedoch  $9 \mu\text{m}$  und ist damit um einiges länger als die Strecke, auf der es zur Erzeugung der Dritten Harmonischen kommt.

Insgesamt wurden 1000 Strahlen durch den Tropfen gelegt und entlang jedes einzelnen Strahls die Intensität aufintegriert. Das Ergebnis ist in der Abbildung 5.20 dargestellt und zeigt in erstaunlich guter Übereinstimmung mit dem Meßergebnis eine ebenfalls modulierte Intensitätsverteilung im Fernfeld. Die Streuwinkel der Maxima bei  $26^\circ$  und  $17^\circ$  sind gut reproduziert.

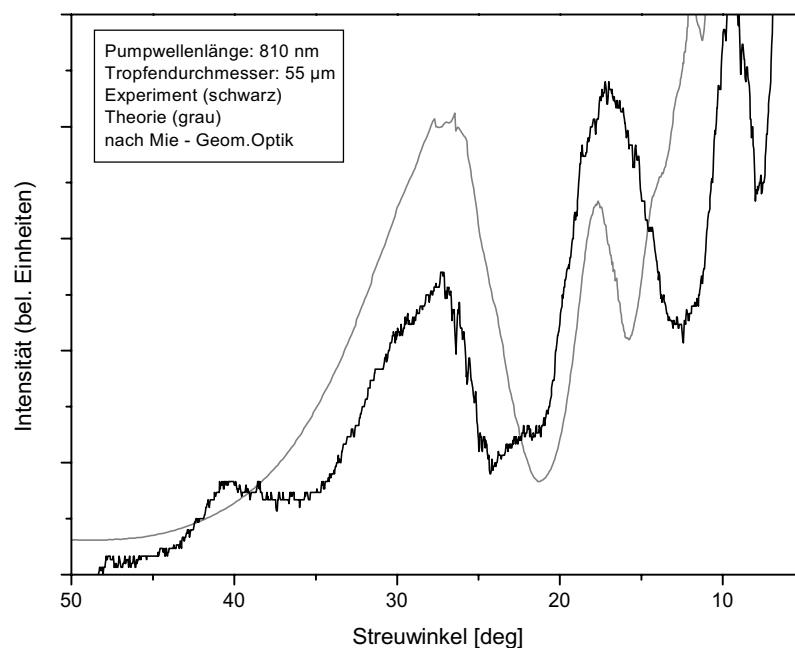


Abbildung 5.20: Gemessene und berechnete Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Als Vergleichsmessung wurden die in der Abbildung 5.13 beschriebenen Daten gewählt. Die Theoriedaten sind aus einer Kombination von Mie-Theorie und geometrischer Optik berechnet worden.

Eine starke Abhängigkeit von dem Tropfendurchmesser oder der eingestrahnten Wellenlänge liegt nicht vor, da für die Berechnung der internen Intensität wie auch in Kapitel 3.3.1 beschrieben die gesamte spektrale Breite eines Femtosekundenlaserpulses zugrunde gelegt wurde. Jedoch stimmen die Intensitätsverhältnisse nicht genau überein. Wie bei dem Vergleich kleinerer Größenparameter mit der Methode über die Green-Funktion kommt es auch diesmal zu einer größeren Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment bei kleineren Streuwinkeln. Die Maxima bei  $6^\circ$  und  $9^\circ$ , die in der Abbildung 5.13 deutlich in Erscheinung treten, sind mit den Berechnungen nicht zu reproduzieren.

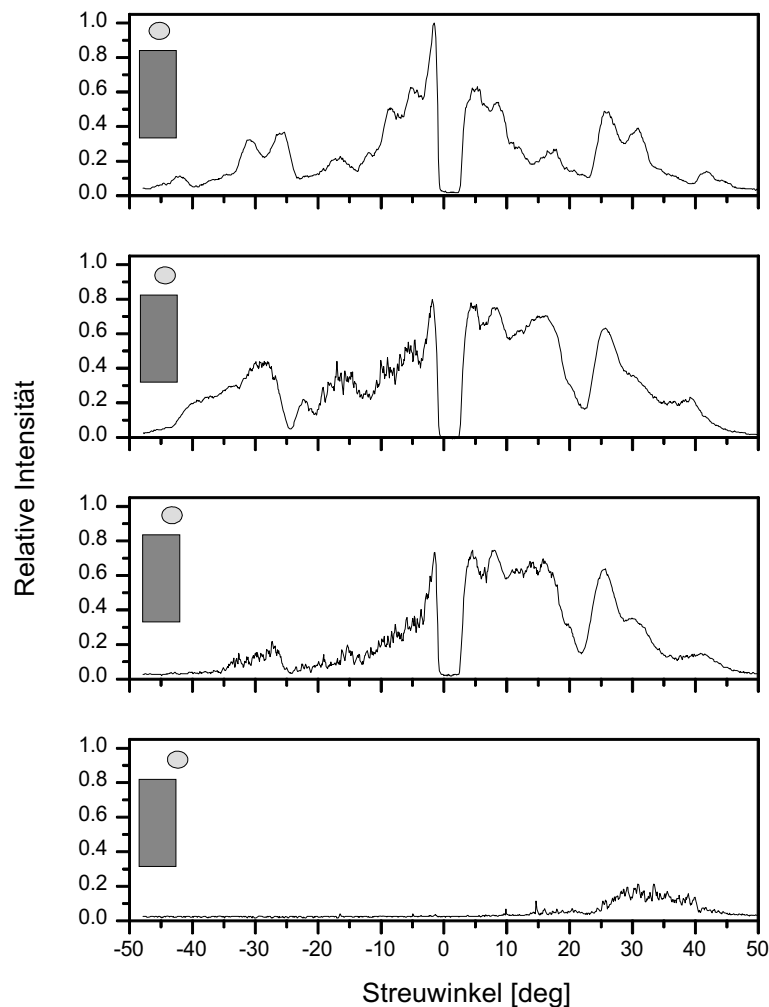


Abbildung 5.21: Intensität der Dritten Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Verwendet wurden ein Wassertropfen mit einem Durchmesser von  $55 \mu\text{m}$ , eine Pumpwellenlänge von  $810 \text{ nm}$  und eine Intensität von  $3.9 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . In der oberen Abbildung trifft der Laserpuls den Tropfen zentral und wandert dann weiter nach links, bis er in der untersten Abbildung nur noch am linken Rand streift.

Um diese Methode der Interpretation zu überprüfen, wurden verschiedene Messungen durchgeführt, bei denen der Tropfen unterschiedlich ausgeleuchtet wurde. Das Ergebnis ist in der Abbildung 5.21 dargestellt. Der Tropfen wurde in der obersten Abbildung zentral getroffen. Dann wurde der Laser Schritt für Schritt nach links versetzt, bis er den Tropfen nur noch am linken Rand streift, was in der untersten Abbildung dargestellt ist. Die Intensität der einzelnen Maxima ändert sich, ihre Position dagegen bleibt gleich. Man kann daher davon ausgehen, dass es sich bei diesen Maxima um lokale Effekte jedes einzelnen Teilstrahls handelt. Dieses Ergebnis rechtfertigt die vorgenommene Erklärung des Streumusters aus einzelnen Teilstrahlen.

### 5.1.3 FREQUENZVERFÜNFACHUNG

Die spektrale Untersuchung des von Wassertropfen emittierten Lichtes ergab als weitere kohärente nichtlineare optische Effekte keine Höheren Harmonischen gerader Ordnung. Wir konnten jedoch mit ausreichender Stärke die Fünfte Harmonische beobachten. Damit ist nach unserem Wissen zum ersten Mal die Frequenzverfünffachung in Mikrotropfen gemessen worden. Die Siebte Harmonische konnte nicht nachgewiesen werden, so wie es auch von Zürl und Graener berichtet wurde, die die Frequenzverdreifachung und -verfünffachung in Chloroform an makroskopischen Proben untersucht haben [Zürl, Graener 1998].

Die Fünfte Harmonische wurde in Wassertropfen mit einem Durchmesser von 35  $\mu\text{m}$  erzeugt. Als Pumpwellenlänge wurde 1500 nm eingesetzt, da die mit höherer Intensität zur Verfügung stehende Grundwellenlänge des Lasersystems von 810 nm eine Fünfte Harmonische bei 162 nm erzeugt, die nur im VUV zu detektieren wäre und außerdem von Wasser selbst absorbiert wird. Beim Einsatz von 1500 nm liegt die Fünfte Harmonische bei 300 nm und ist für die vorhandene Detektion sichtbar.

Wie die Abbildung 5.22 zeigt, konnte die winkelabhängige Intensitätsverteilung der Fünften Harmonischen bestimmt werden, obwohl bei einer Pumpwellenlänge von 1500 nm nur eine Intensität von maximal  $4.5 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> zur Verfügung steht. Sie verhält sich nahezu wie die Winkelverteilung der Dritten Harmonischen bei entsprechendem Größenparameter, die in der Abbildung 5.4 präsentiert wurde. Auch hier ist keine Rückwärtsstreuung zu beobachten.

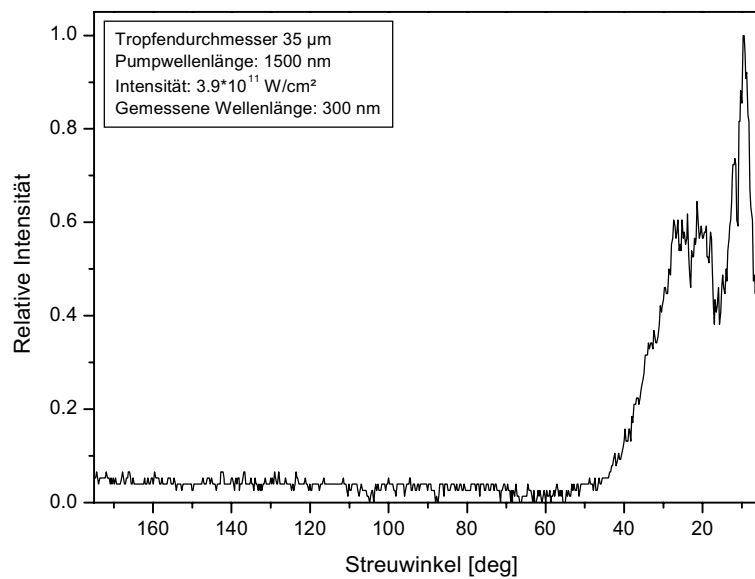


Abbildung 5.22: Intensität der Fünften Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Die Pumpwellenlänge lag bei 1500 nm mit einer Intensität von  $3.9 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>. Der Wassertropfen hatte einen Durchmesser von 35 µm

Um die Variabilität sowie die Reproduzierbarkeit des Signals zu demonstrieren, ist in der Abbildung 5.23 eine unabhängige Messung in einem Winkelbereich von  $-50^\circ$  bis  $+50^\circ$  dargestellt.

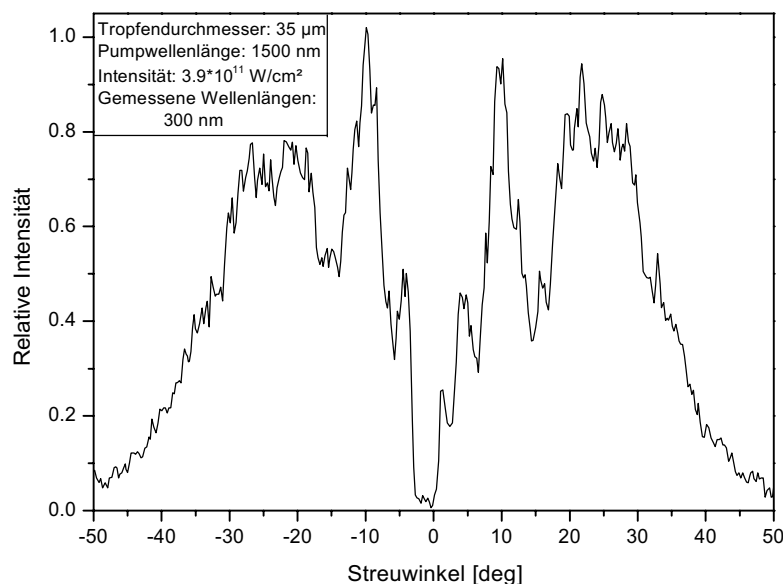


Abbildung 5.23: Intensität der Fünften Harmonischen als Funktion des Streuwinkels. Die Pumpwellenlänge 1500 nm hatte eine Intensität von  $3.9 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>. Der Wassertropfen hatte einen Durchmesser von 35 µm.

Die Bereiche links und rechts der Nullrichtung zeigen die gute Reproduzierbarkeit des Signals, die relativen Höhenverhältnisse der einzelnen Maxima weichen jedoch von der Messung aus Abbildung 5.22 ab. Das Verhalten des vorwärts emittierten Lichtes entspricht



in etwa der Dritten Harmonischen. Auch die Intensität der Fünften Harmonischen fällt zu  $42^\circ$  hin ab und hat im Vergleich zu der Frequenzverdreifachten leicht verschobene Maxima und Minima. Die Modulation ist bei der Fünften Harmonischen dichter als bei der Dritten Harmonischen und es wäre interessant, wenn man dieses Verhalten mit der Methode nach Carroll und Zheng überprüfen könnte.

#### 5.1.4 ZUSAMMENFASSUNG

Zusammenfassend kann man zur Erzeugung Höherer Harmonischer sagen, daß die winkelabhängigen Messungen der von einem Wassertropfen emittierten Dritten Harmonischen für kleine Größenparameter die theoretischen Daten von Carroll und Zheng sehr gut wiedergeben. Nur bei dem theoretisch beobachtbaren Maximum um  $140^\circ$  und bei Streuwinkeln kleiner als  $8^\circ$  kommt es zu Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment, wobei letzteres mit großer Wahrscheinlichkeit auf die bei den Berechnungen nicht berücksichtigten Effekte der hohen Laserintensitäten auf den Brechungsindex zurückzuführen ist. Da nach der Green-Funktion-Methode nur die kleinen Größenparameter mit endlichem Aufwand berechnet werden können, ist für die Meßergebnisse bei großem Tropfendurchmesser eine Methode entwickelt worden, über eine Kombination von Mie-Theorie und geometrischer Optik die Meßergebnisse zu simulieren. Dafür wurde die interne Intensitätsverteilung - berechnet mit der Mie-Theorie - zugrunde gelegt. Davon ausgehend, daß die Dritte Harmonische in Richtung des erzeugenden Laserlichtes emittiert wird, wurde mit der geometrischen Optik die relative Intensität der Frequenzverdreifachten im Fernfeld als Funktion des Streuwinkels berechnet, sie zeigt bei Streuwinkeln größer als  $10^\circ$  gute Übereinstimmung für Tropfen mit einem Größenparameter um 210.

Die Ergebnisse der Frequenzvervielfachung lassen aufgrund des Streuverhaltens in Vorwärtsrichtung den Schluß zu, daß es sich bei den beobachteten Intensitätsverteilungen ausschließlich um die Frequenzvervielfachung bei nicht resonanter Anregung handelt. Nur bei einer resonanten Anregung ist auch eine Streuung in Rückwärtsrichtung zu erwarten, wie es von Carroll und Zheng berechnet wurde (Abb. 3.12). Eine resonante Einkopplung von Femtosekundenlaserpulsen in Mikrotropfen ist jedoch, wie auch schon in Kapitel 3.3.2 besprochen, nicht sehr effektiv. Im folgenden Abschnitt wird ein anderer nichtlinearer optischer Effekt vorgestellt, bei dem es zu einer erhöhten Rückstreuung kommt.

## 5.2 Laserinduzierter Durchbruch

Experimente mit Femtosekundenlaserpulsen und Mikrotröpfchen sind in diesem Gebiet noch nicht durchgeführt worden. Im Gegensatz zu dem im vorherigen Abschnitt vorgestellten kohärenten Phänomen ist die Plasmalumineszenz – wie in Kapitel 3.4 dargestellt – ein zeitverzögerter Prozeß. Es kann also nicht von einem unverändert vorhandenen Tropfen ausgegangen werden. Daher ist es für eine Interpretation der durch den laserinduzierten Durchbruch hervorgerufenen Plasmalumineszenz zunächst notwendig, nachvollziehen zu können, wie der Tropfen explodiert und in welchem ungefähren Zeitrahmen dieser Prozeß abläuft.

Um den Tropfen unter der Einwirkung des Laserpulses abbilden zu können, ist zur Unterdrückung der Pumpwellenlänge ein BG39-Filter in das Mikroskop eingefügt. Belichtet wird der Tropfen mit einer Leuchtdiode, die mit einem kurzen elektrischen Impuls angesteuert wird. Damit ist es möglich, die Belichtungszeit auf 400 ns zu begrenzen. Durch Variieren der Verzögerungszeit zwischen Laserpuls und Leuchtdiode können Bildsequenzen aufgenommen werden. Die Verzögerungszeiten der folgenden Abbildungen sind so gewählt worden, daß eine merkliche Veränderung sichtbar ist. Der Tropfen hatte jeweils einen Durchmesser von 30  $\mu\text{m}$ . Die Darstellung 5.24 auf der nächsten Seite präsentiert eine photographische Sequenz bei einer Intensität von  $10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Das zweite Bild in dieser Reihe zeigt das erste Anzeichen für eine Blasenbildung innerhalb der bereits deformierten Grenzfläche, ein sicheres Zeichen für einen laserinduzierten Durchbruch. Es hat sich ein Plasma in dem kleinen Volumen des hot spots gebildet, wo es zu hohen Temperaturen und Drücken kommt. Dieser örtlich konzentrierte, hohe Druck löst eine Expansion der geheizten Flüssigkeit aus, die zu einer Bildung von Schockwellen führt, von denen eine sich in Richtung des Lasers und die andere in entgegengesetzter Richtung ausbreitet. Der Tropfen dehnt sich nach 1.8  $\mu\text{s}$  bis zum Dreifachen seiner ursprünglichen Größe aus (Bild 4). Die erste Schockwelle, die sich sehr schnell vom Laser wegbewegt, bricht die Tropfenoberfläche auf. Es kommt zu der Bildung eines jet streams von kleinen Wassertröpfchen, der Material in Richtung  $\vartheta = 0^\circ$  herausschleudert. Aufgrund eines Rückstoßes, der durch das Expandieren des Wasserdampfes in Richtung Schattenseite entsteht, wird der Tropfen nach  $\vartheta = 180^\circ$  hin beschleunigt, bricht zusammen und zerfällt in kleinere Tropfenfragmente.

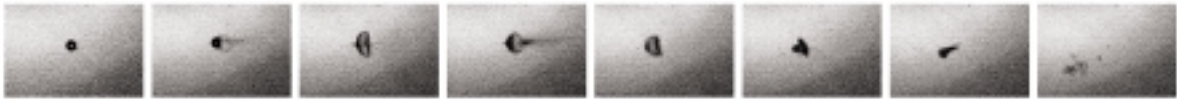


Abbildung 5.24: Photographische Sequenz der Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotropfen. Der Tropfendurchmesser beträgt  $30\ \mu\text{m}$ , die Laserintensität  $10^{12}\ \text{W}/\text{cm}^2$  und der Laser breitet sich von links nach rechts aus. Die Verzögerungszeit zwischen Auftreffen des Laserpulses und der Bildbelichtung beträgt von links nach rechts  $\Delta t = 0\ \text{ns}$ ,  $700\ \text{ns}$ ,  $1400\ \text{ns}$ ,  $1800\ \text{ns}$ ,  $8700\ \text{ns}$ ,  $12000\ \text{ns}$ ,  $20700\ \text{ns}$ ,  $69700\ \text{ns}$ .

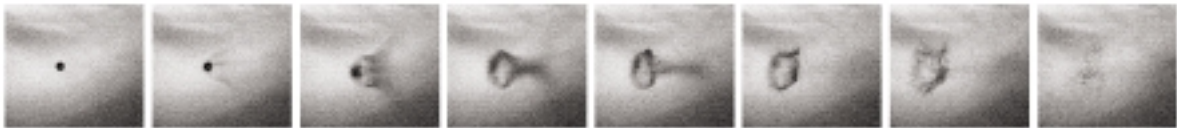


Abbildung 5.25: Photographische Sequenz der Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotropfen. Der Tropfendurchmesser beträgt  $30\ \mu\text{m}$ , die Laserintensität  $3.4 \cdot 10^{12}\ \text{W}/\text{cm}^2$  und der Laser breitet sich von links nach rechts aus. Die Verzögerungszeit zwischen Auftreffen des Laserpulses und der Bildbelichtung beträgt von links nach rechts  $\Delta t = 0\ \text{ns}$ ,  $400\ \text{ns}$ ,  $1100\ \text{ns}$ ,  $2200\ \text{ns}$ ,  $3300\ \text{ns}$ ,  $5000\ \text{ns}$ ,  $6600\ \text{ns}$ ,  $9100\ \text{ns}$ .

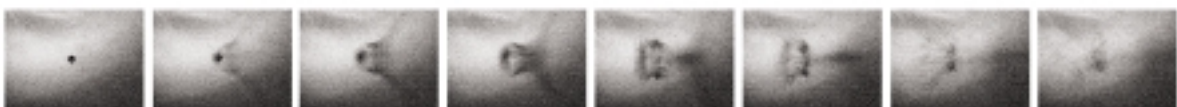


Abbildung 5.26: Photographische Sequenz der Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotropfen. Der Tropfendurchmesser beträgt  $30\ \mu\text{m}$ , die Laserintensität  $9.7 \cdot 10^{12}\ \text{W}/\text{cm}^2$  und der Laser breitet sich von links nach rechts aus. Die Verzögerungszeit zwischen Auftreffen des Laserpulses und der Bildbelichtung beträgt von links nach rechts  $\Delta t = 0\ \text{ns}$ ,  $500\ \text{ns}$ ,  $1100\ \text{ns}$ ,  $1700\ \text{ns}$ ,  $3000\ \text{ns}$ ,  $4300\ \text{ns}$ ,  $5900\ \text{ns}$ ,  $7100\ \text{ns}$ .

Bei den in den Abbildungen 5.25 und 5.26 dargestellten Experimenten wurde eine Intensität von  $3.4 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> bzw.  $9.7 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> verwendet. Auch hier bricht der Tropfen initiiert durch eine Schockwelle zunächst in die Richtung  $\vartheta = 0^\circ$  auf. Jedoch läuft dieser Prozeß sehr viel schneller ab als in der ersten Bildersequenz. Die Geschwindigkeit, mit der sich der Tropfen öffnet, liegt für die Intensität der Abbildung 5.25 bei etwa 150 m/s und in der Abbildung 5.26 bei etwa 200 m/s. Dies ist weit oberhalb einer Geschwindigkeit von 50 m/s, die Chang und Kollegen bei einer Intensität von  $10^9$  W und einer Pulslänge von 20 ns für Wassertropfen mit einem Durchmesser von 35  $\mu\text{m}$  bestimmt haben [Chang et al. 1988]. Die zweite Schockwelle, die sich durch den Tropfen in Richtung des Lasers bewegt, komprimiert, heizt und ionisiert die Flüssigkeit, die sie durchquert. Es kommt zu einem verstärkten Rückschlag und der Tropfen bricht auch in die Rückrichtung auf. Bei einer Intensität von  $3.4 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> hat sich der Tropfen bereits nach einer Zeit von 9.1  $\mu\text{s}$  in ein Gas- und Aerosolgemisch aufgelöst, bei einer Intensität von  $9.7 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> bereits nach 7.1  $\mu\text{s}$ . Messungen mit noch höherer Laserintensität waren mit der angewandten Technik nicht möglich, da dieser Prozeß dann so schnell abläuft, daß eine Belichtungszeit von 400 ns keine Information mehr liefert.

### 5.3 Plasmalumineszenz

Die Untersuchung der Plasmalumineszenz gestaltete sich experimentell sehr schwierig, da durch die hohe Intensität, die für ein ausreichendes Signal notwendig ist, der Tropfen so heftig explodiert, daß Flüssigkeitsreste an der Kapillarspitze des Tropfengenerators auftreffen. Dadurch kann es zu einer instabilen Tropfengeneration kommen, was jedoch gerade die spektralen und winkelabhängigen Messungen, die einige Zeit in Anspruch nehmen, stark verwaschen läßt.

#### 5.3.1 SPEKTRAL AUFGELOSTE MESSUNG DES VOM PLASMA EMITTIERTEN LICHTES

Die Plasmafluoreszenz wurde am Beispiel der Natrium D-Linie untersucht. Es wurden Tropfen verwendet, die aus einer 5-molaren Natriumchloridlösung bestehen. Ab einer Laserintensität von  $4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> kommt es zu einem orange-gelben Leuchten, das auch mit bloßem Auge sichtbar ist. Die Abbildung 5.27 zeigt das Spektrum des bei einer Intensität von  $1.2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> von einem Tropfen bei dem Streuwinkel von  $165^\circ$  emittierten Lichtes.

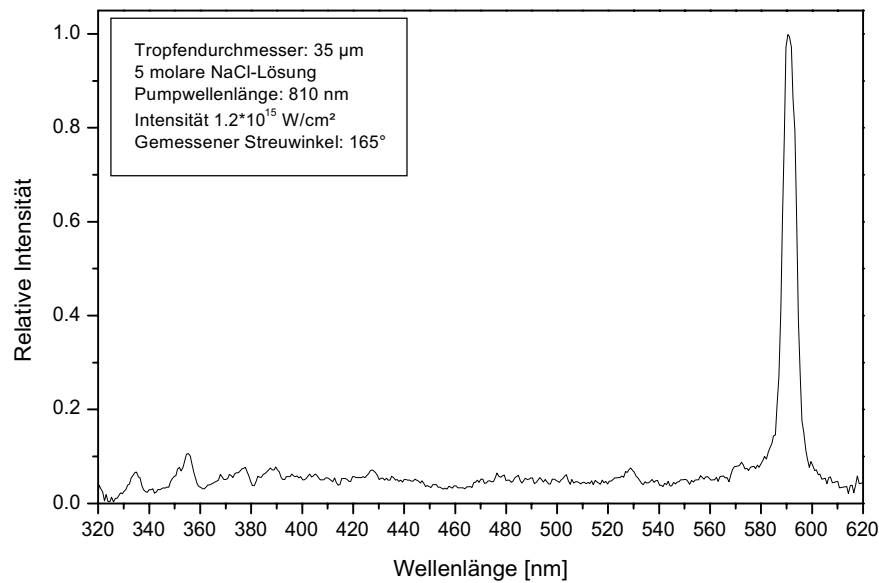


Abbildung 5.27: Spektrum von 320 nm bis 620 nm des von einem Tropfen bestehend aus 5-molarer NaCl-Lösung in Richtung 165° emittierten Lichtes. Die Laserintensität betrug bei einer Pumpwellenlänge von 810 nm  $1.2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

Eindeutig tritt die Natrium-D-Linie bei 589 nm in Erscheinung. Eine Emission von Wasserstoff ( $H_{\beta}$  bei 486.1 nm oder  $H_{\gamma}$  bei 434.0 nm) ist nicht zu beobachten. Die Sauerstofflinie O(I) und die Wasserstofflinie  $H_{\alpha}$  liegen mit 777.4 nm und 656.3 nm außerhalb des spektralen Detektionsbereiches.

Die kleinen Maxima bei 420 nm, 380 nm, 375 nm, 355 nm und 333 nm konnten auch ohne den Tropfen beobachtet werden. Dieser Teil des Spektrums, das ohne Tropfen in der Luft erzeugt wird und in Abbildung 5.28 noch einmal extra dargestellt ist, konnte nicht zugeordnet werden. Ausgeschlossen werden kann durch den Einsatz zusätzlicher Filter, daß es sich um Reflexe im Spektrometer oder um Streulicht aus dem Labor handelt.

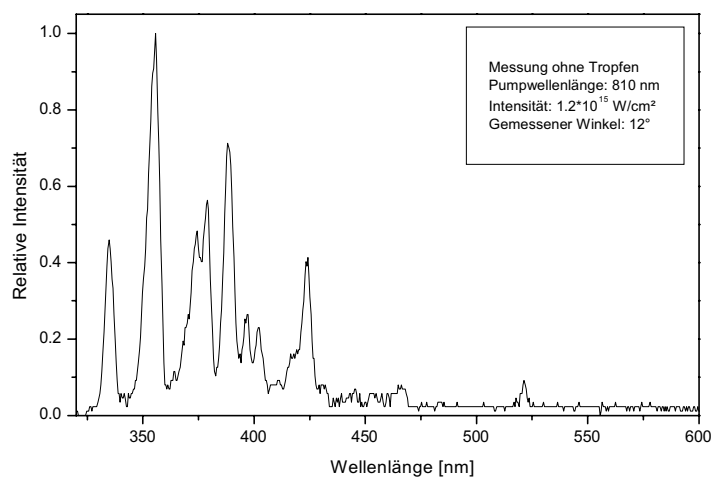


Abbildung 5.28: Spektrum von 320 nm bis 600 nm, das bei der Fokussierung des Laserstrahls mit einer Intensität von  $1.2 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> in Luft entsteht.

Auch eine Plasmafluoreszenz der Luftmoleküle ist auszuschließen. Die Messungen von Phuoc und White zeigen bei der Plasmaerzeugung in Luft vor allem ein intensives Signal von 500.2 nm bis 503.3 nm, das auf die Emission von Stickstoff zurückzuführen ist und in dem von uns gemessenen Spektrum nicht zu beobachten ist [Phuoc, White 2000]. Es war nicht möglich, die nicht zugeordneten Peaks bei einer Intensität über  $8.8 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> zu unterdrücken. Da aber für die Messungen der Plasmalumineszenz höhere Intensitäten notwendig sind, tritt es in den folgenden Spektren jeweils auf.

Kommen wir zurück zu der Abbildung 5.27, der Messung des emittierten Lichtes bei  $\vartheta = 165^\circ$ . Das Natrium-Dublett, dessen Linien einen Abstand von 0.6 nm haben, ist nicht aufgelöst. Der Grund hierfür ist eine Starkverbreiterung, die durch die Ladungsträger im Plasma hervorgerufen wird [Eickmans et al. 1987]. Die Linienbreite in Rückwärtsrichtung beträgt 6 nm. Ein Weißlichtanteil in dieser Richtung ist im Verhältnis zu der Natriumlinie nicht zu beobachten.

In Vorwärtsrichtung bei  $\vartheta = 12^\circ$  zeigt die Abbildung 5.29 dagegen eine leichtes Ansteigen des Weißlichtanteils ab 540 nm in Richtung höherer Wellenlängen. Die Natriumlinie ist mit 4 nm schmaler und ihre Intensität ist niedriger als in Rückwärtsrichtung.

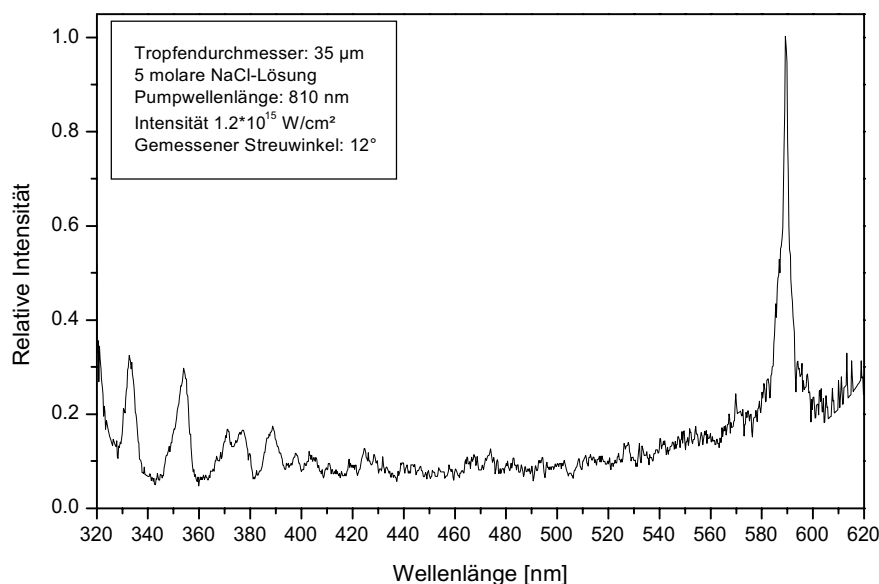


Abbildung 5.29: Spektrum von 320 nm bis 620 nm des von einem Tropfen bestehend aus 5-molarer NaCl-Lösung in Richtung  $165^\circ$  emittierten Lichtes. Die Laserintensität betrug bei einer Pumpwellenlänge von 810 nm  $1.2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

Dieses leichte Ansteigen des Signals in Richtung höherer Wellenlängen kann im Prinzip zwei Ursachen haben: Zum einen kann es sich um eine Weißlichterzeugung durch

Selbstphasenmodulation handeln. Bei kurzen Pulsen tritt eine Beeinflussung des Brechungsindex  $m$  nicht nur räumlich, also in transversaler Richtung, auf, sondern auch als zeitlicher Effekt innerhalb der Pulsdauer. Bestimmt wird dies durch die Steilheit der Pulsflanke  $dm(I)/dt$ . Für die modulierte Frequenz eines Pulses der Ausgangswellenlänge  $\omega_0$  gilt dann nach Durchlaufen eines Mediums der Länge  $l$ :

$$\omega_m(t) = \omega_0 \left[ 1 - \frac{l}{c} \frac{dm(t)}{dt} \right]. \quad (5.15)$$

Das Spektrum kann sich damit bis zu einer Breite von

$$\Delta\omega = \frac{\omega_0}{c} \frac{m_2 l I}{t_{Puls}} \quad (5.16)$$

ausdehnen, wobei  $m_2$  der nichtlineare Brechungsindexkoeffizient ist [Manassah 1989]. In Wasser wurde beispielsweise bei einer Ausgangswellenlänge von 800 nm ein Weißlichtspektrum gemessen, das bis 420 nm reicht [Brodeur, Chin 1998].

Zum anderen kann das beobachtete Licht auch ein Plasmakontinuum sein, das sich aus Elektron-Ion-Rekombination und Bremsstrahlung zusammensetzt. Eine Möglichkeit zu entscheiden, um welchen Prozeß es sich handelt, wäre die Messung der Depolarisation des emittierten Lichtes. Die Selbstphasenmodulation ist ein kohärenter Prozeß, bei dem es nicht zu einer Depolarisation des erzeugten Lichtes kommt. Das Plasmakontinuum dagegen besteht aus unpolarisiertem Licht. Leider war die Signalintensität so schwach, daß eine Messung mit den zur Verfügung stehenden Polarisationsfiltern kein eindeutiges Ergebnis ergab.

Aber auch durch theoretische Überlegungen läßt sich eine Selbstphasenmodulation ausschließen. Sie ist über die Gleichung (5.16) abhängig von dem Produkt der Wechselwirkungstrecke mit der Intensität des einfallenden Lichtes. Die Intensität ist nur an den hot spots des Tropfen so hoch, daß es zu einer spektralen Verbreiterung bis hin zu 600 nm kommen könnte. Jedoch haben die Orte hoher Intensität innerhalb des Tropfens nur eine geringe räumliche Ausdehnung. Nimmt man dagegen den ganzen Durchmesser des Tropfens als Strecke  $l$  an, dann reicht die Intensität gemittelt über diesen Bereich nicht aus, um eine Verbreiterung des Laserpulses bis zu 600 nm zu erreichen.

Daher wird im folgenden davon ausgegangen, daß es sich bei dem beobachteten Weißlichthintergrund um ein Plasmakontinuum handelt. Um die Kontinuumsstrahlung besser charakterisieren zu können, wurden reine Wassertropfen verwendet, damit die

relativ stärkere Natriumemission das Signal nicht verschlechtert. Zusätzlich wurde mit einer erhöhten Laserintensität von  $1.7 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  gearbeitet. Bei dieser Intensität verschiebt sich die Frequenz des emittierten Lichtes in den sichtbaren Spektralbereich und das Weißlicht ist mit dem experimentellen Aufbau besser zu detektieren. Das Kontinuumspektrum ist in der Abbildung 5.30 dargestellt. Es gleicht etwa der Schwarzkörperstrahlung eines Gegenstandes mit einer Temperatur von 7300 K. Diese Art der Temperaturbestimmung von Plasmen wird neben dem Intensitätsverhältnis von Emissionslinien häufig herangezogen. Sie ist jedoch, wie bereits in den Grundlagen erwähnt, mit einem großen Fehler behaftet, da hauptsächlich die Emission der Plasmaoberfläche beobachtet werden kann. Da das Spektrum zu 600 nm hin abfällt, kann an dieser Stelle eine Selbstphasenmodulation des Laserlichtes bis zur Weißlichterzeugung entgültig ausgeschlossen werden.

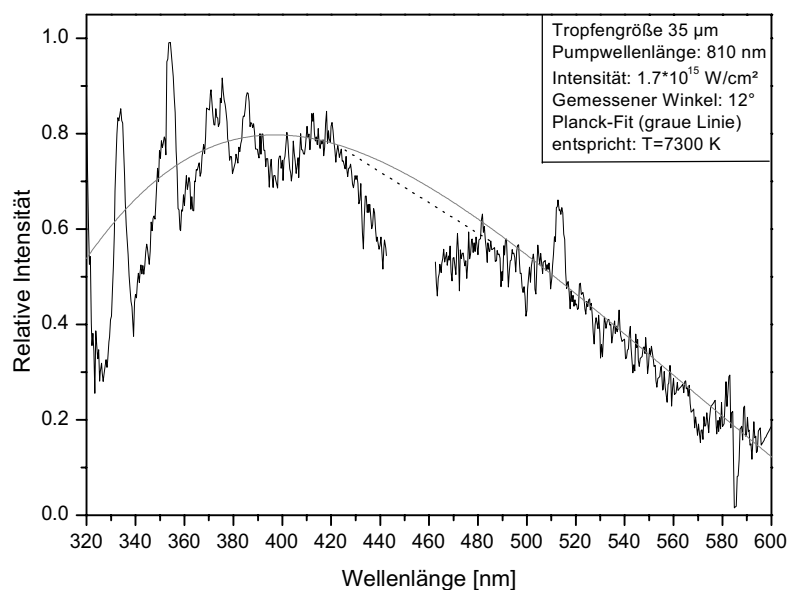


Abbildung 5.30: Spektrum des von einem Wassertropfen bei einer Laserintensität von  $1.7 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  in Richtung  $\vartheta = 12^\circ$  emittierten Lichtes. Im Bereich der gestrichelten Linie kam es zu einer Unregelmäßigkeit bei der Tropfenproduktion. Die graue Linie entspricht nach Gleichung (3.41) der Emission eines Schwarzkörperstrahlers bei 7300 K.



### 5.3.2 WINKELAUFGELÖSTE MESSUNG DES VOM PLASMA EMITTIERTEN LICHTES

Um die Winkelverteilung des durch das Plasma erzeugten Weißlichtes zu messen, wurde eine Wellenlänge von 420 nm zur Detektion gewählt, damit die Messung nicht durch das in der Luft entstehende Signal beeinflusst wird. Beobachten läßt sich bei einer Laserintensität von  $1.4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> eine verstärkte Streuung in Vorwärtsrichtung, die zu etwa 70° hin abfällt und dann in Rückwärtsrichtung langsam wieder ansteigt. Das Verhältnis von Rückwärts- zu Vorwärtsstreuung beträgt 0.7.

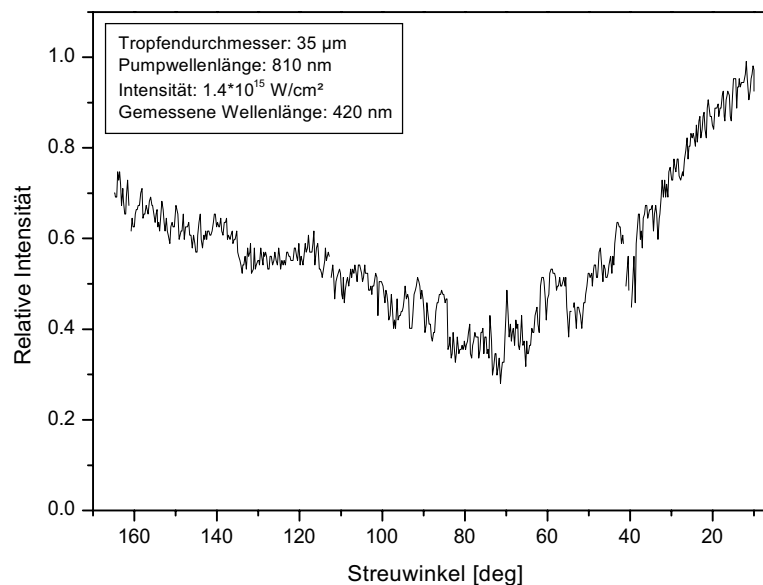
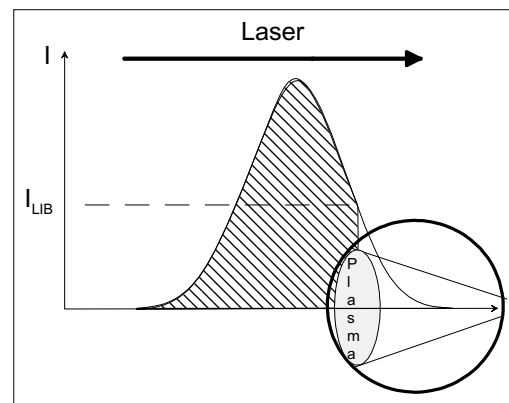


Abbildung 5.31: Intensität des bei 420 nm von einem Plasma emittierten Lichtes als Funktion des Streuwinkels. Die Laserintensität betrug  $1.4 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> und der Tropfendurchmesser 35 µm.

Die Hauptkomponenten des Plasmakontinuums, die Emission von Bremsstrahlung und Elektron-Ion-Rekombination, entstehen in einem Zeitbereich von Pikosekunden [Abraham et al. 2000]. Exakte Angaben über die geometrische Form des Tropfens zu diesem Zeitpunkt können nicht gemacht werden, da Intensitäten von mindestens  $4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> benötigt werden, um das emittierte Licht beobachten zu können. Man kann aber sicher annehmen, daß der Tropfen – wenn vielleicht schon ein wenig deformiert – nach einigen Pikosekunden noch eine intakte Grenzfläche besitzt und keine Flüssigkeit oder verdampfte Flüssigkeit ausgestoßen wurde. Wie aber läßt sich die Winkelverteilung der Abbildung 5.31 erklären? Das durch das Plasma erzeugte Weißlicht wird isotrop emittiert. Wenn dies in der Region der hot spots des Tropfens geschieht, dann müßte die Winkelverteilung des Weißlichtes der der Multiphotonen-Fluoreszenz entsprechen, also eine erhöhte

Rückwärtsstreuung aufweisen. Wir haben jedoch eine leicht verstärkte Vorwärtsstreuung beobachtet. Eine Erklärung dafür könnte die von uns verwendete hohe Laserintensität sein. Um eine Emission im sichtbaren Spektralbereich messen zu können, muß das Plasma sehr heiß sein. Die dafür nötige Laserintensität ist so hoch, daß bereits beim Auftreffen auf den Tropfen die Plasmabildung einsetzt. Der Laserpuls ist räumlich gesehen mit etwa  $18 \mu\text{m}$  sehr kurz. Wenn der Schwellwert für den laserinduzierten Durchbruch  $I_{\text{LIB}}$  bereits an der beleuchteten Tropfenseite erreicht ist, hat der Anfang des Pulses die Regionen der hot spots im Tropfen noch gar nicht erreicht, wo - wie in Kapitel 3.4 beschrieben - bei mittlerer Intensität der Durchbruch initiiert wird. Die Abbildung 5.32 soll dies in schematischer Weise verdeutlichen.

Abbildung 5.32: Schematische Darstellung eines kurzen Laserpulses, der auf einen Mikrotropfen trifft. Die Intensität des Pulses ist so hoch, daß der laserinduzierte Durchbruch bereits beim Auftreffen auf den Tropfen ausgelöst wird.



Es konnte kein solcher Übergang von einer Plasmabildung im hot spot bei geringerer Intensität hin zu einer Plasmabildung an der beleuchteten Seite des Tropfens bei höheren Intensitäten beobachtet werden, aber die Winkelverteilung des Weißlichtes unterstützt diese Interpretation. Die Abbildung 5.33 zeigt schematisch, daß an der dem Laser zugewandten Seite des Tropfens das Plasma entsteht, das isotrop Licht abstrahlt. Dieses Licht wird jetzt von dem Detektor an verschiedenen Streuwinkelpositionen gemessen. Wie bei der Multiphotonen-Fluoreszenz kann man mit dem Prinzip der Umkehrbarkeit des Strahlenganges arbeiten. Bei dieser Variante des Ray-Tracings verfolgt man nicht die vom Leuchtkörper ausgehenden Strahlen bis hin zum Detektor, sondern betrachtet ein aus der Detektionsrichtung einfallendes, paralleles Strahlenbündel und bestimmt dessen Überlapp mit dem abstrahlenden Volumen. Entsprechende Diagramme sind in der Abbildung 5.33 für die Detektionspositionen  $0^\circ$ ,  $90^\circ$  und  $180^\circ$  dargestellt. Wenn der Detektor an der  $0^\circ$ -Position steht, dann befindet er sich komplett im Sichtfeld des isotrop emittierenden Plasmas. Wenn er sich in Rückrichtung befindet, dann treffen bereits weniger Strahlen auf

die Lichtquelle im Tropfen, aber immer noch mehr als in der 90°-Position. Es ist eine verstärkte Vor- und Rückwärtsstreuung zu erwarten, wobei die Vorwärtsstreuung ausgeprägter sein sollte.

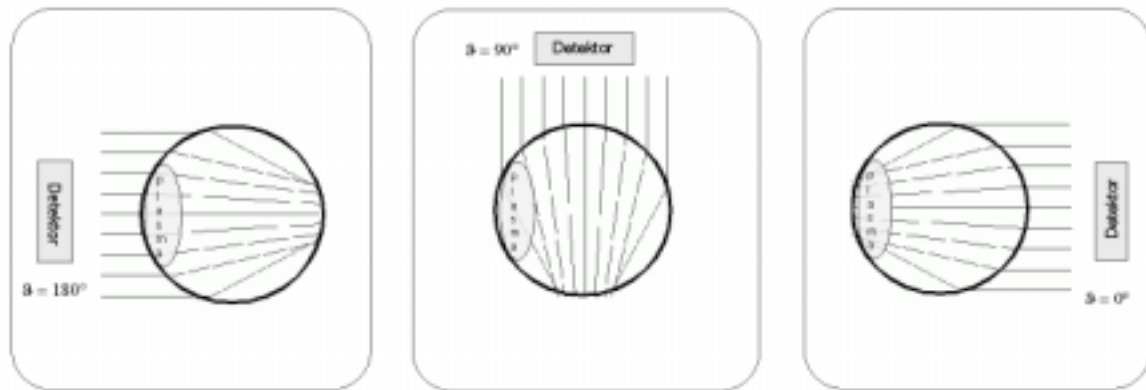


Abbildung 5.33: Schematische Darstellung des Sichtfeldes eines Detektors an verschiedenen Streuwinkelpositionen eines Tropfens. Der Laser breitet sich von links nach rechts aus.

Das entspricht der von uns gemessenen Winkelverteilung bei 420 nm, die in Abbildung 5.31 gezeigt wurde. Der Ansatz dieser Interpretation könnte demnach richtig sein. Eine genaue Berechnung der Winkelverteilung des Weißlichtes steht jedoch noch aus.

Die Winkelverteilung des bei 598 nm emittierten Lichtes von Tropfen, die aus einer 5-molaren NaCl-Lösung bestehen, ist in der Abbildung 5.34 dargestellt. Es ist eine Emission in Vorwärtsrichtung zu beobachten, die langsam bis etwa 80° hin ansteigt. Ab 80° kommt es dann zu einem stärkeren Anstieg zu größeren Streuwinkeln hin, so daß man ein

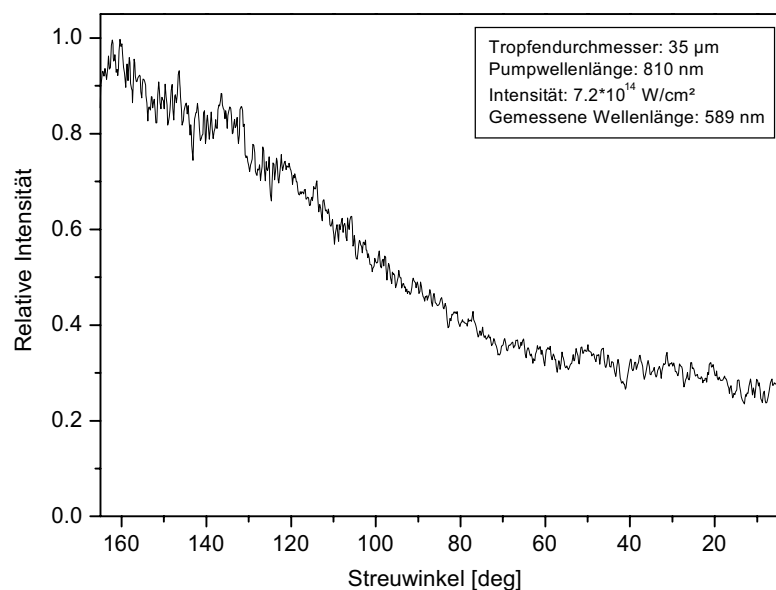


Abbildung 5.34: Intensität des bei 598 nm von Tropfen bestehend aus 5-molarer NaCl-Lösung emittierten Lichtes als Funktion des Streuwinkels. Die Laserintensität betrug  $7.2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und der Tropfendurchmesser 35 µm.

Verhältnis von Rückwärts- zu Vorwärtsstreuung von 3.1 erhält. Hier handelt es sich also um einen in Mikrotropfen erzeugten nichtlinearen optischen Prozeß, der verstärkt in Rückwärtsrichtung streut.

Das bestätigt sich auch, wenn man das mit einer CCD-Kamera aufgenommene Bild eines Tröpfchens bestehend aus NaCl-Lösung unter Einwirkung einer Laserintensität von  $5.2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> betrachtet. Die Abbildung 5.35 zeigt die Wechselwirkung des Laserstrahls mit dem Tröpfchen, die über die CCD-Kamera mit einer Belichtungszeit von 40 ms

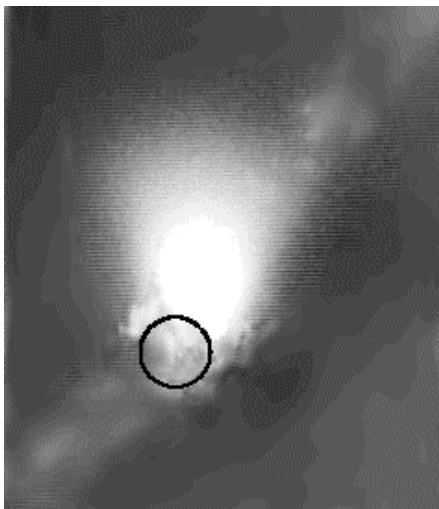


Abbildung 5.35: CCD-Aufnahme einer Plasmafahne, die bei dem Auftreffen eines Laserpulses mit einer Intensität von  $5.2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> auf ein Tropfen bestehend aus einer 5-molaren NaCl-Lösung entsteht. Der Laserstrahl breitet sich von oben rechts nach unten links entlang des hellen Streifens aus und trifft den Tropfen leicht versetzt.

aufgenommen wurde. Das Bild stellt demnach eine Integration über vier Laser-Tropfen-Wechselwirkungen dar. Der Laserstrahl geht von oben rechts nach unten links. Der in dem Mikroskop installierte BG39-Filter läßt nur das Licht in einem spektralen Bereich von 300 nm bis 620 nm passieren. Die helle Leuchterscheinung kann also nicht von der Pumpwellenlänge erzeugt werden, sondern ist auf die Natriumemission zurückzuführen. Die exakte Position des Tropfens und seine Größe wurde vor der Aufnahme durch stroboskopische Belichtung bestimmt und ist mit einem gestrichelten Kreis markiert. Es zeigt sich wieder, daß es bei der hier verwendeten Laserintensität von  $5 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> zu einer Natriumemission hauptsächlich in Rückrichtung kommt.

Für die Erklärung der Natriumemission bildet die sphärische Form des Tropfens mit großer Wahrscheinlichkeit nicht mehr die Grundlage. Die Lebensdauer des angeregten Zustandes der Natriumatome wurde bei der Messung an Seesalzaerosolen mit mehreren Mikrosekunden bestimmt [Poulain, Alexander 1995]. Nach den in Abschnitt 5.2 gezeigten photographischen Bildsequenzen ist der Tropfen dann zum Zeitpunkt der Emission schon zum Teil oder vollständig zerstört. Die Intensität steigt nach der Abbildung 5.34 ab einem Streuwinkel von 80° in Rückrichtung kontinuierlich an. Das ließe sich damit erklären, daß

das Natriumlicht in Vorwärtsrichtung durch das entstandene Wasseraerosol zum Teil abgeblockt und zurückreflektiert wird. Da der laserinduzierte Durchbruch bereits auf der dem Laser zugewandten Seite stattfindet, wird der Plasmajet in Richtung  $\vartheta = 180^\circ$  ausgestoßen. Der Rest des Tropfen wird durch den Rückschlag in entgegengesetzter Richtung beschleunigt und zerbricht in Flüssigkeitsfragmente. Diese blocken das von den Natriumatomen emittierte Licht in Vorwärtsrichtung ab. Das würde die verstärkte Rückstreuung bei der Plasmafluoreszenz erklären.

Es gäbe aber noch eine weitere höchst interessante Theorie zur Erklärung der verstärkten Rückstreuung. Wenn das Plasma mit einer leichten zeitlichen Verzögerung entsteht, dann kann es zu einer gerichteten Emission durch die Natriumatome kommen. Das Plasma breitet sich nach dem „moving breakdown“-Modell zum Laser hin aus, da an der dem Laser zugewandten Plasmafront der nicht zum Auslösen des Durchbruchs benötigte Anteil des Laserpulses absorbiert wird (vgl. dazu nochmals 3.4). Dadurch entsteht das Plasma mit einer zeitlichen Verzögerung auf einer räumlichen Achse, die in Richtung  $\vartheta = 180^\circ$  zeigt. Die spontane Emission beginnt an der Stelle, an der das Plasma zuerst entstanden ist und damit einhergehend zuerst angeregte Natriumatome vorliegen. Die von den angeregten Natriumatomen zunächst isotrop emittierten Photonen stimulieren die Emission von angeregten Atomen in den Nachbarregionen. Die verstärkte stimulierte Emission durchläuft das Plasmavolumen in Richtung  $180^\circ$ , so daß es sich quasi um ein in Rückrichtung „lasendes“ Tröpfchen handelt.

Da die Emission von durch Plasmabildung angeregten Atomen in Mikrotropfen verstärkt in Rückrichtung geht und zusätzlich Informationen über deren atomare Zusammensetzung gewonnen werden kann, stellt sie ein höchst interessantes Phänomen für eine Anwendung mit dem Femtosekunden-Lidar dar. Um dies nun auf die Charakterisierung von Aerosolen anwenden zu können, sollte zunächst sowohl die Emission weiterer Substanzen untersucht, als auch der zur Rückwärtsstreuung führende Mechanismus genauer verstanden werden. Hierfür müssen im folgenden vor allem zeitaufgelöste Messungen durchgeführt werden. Wenn es sich um eine spontane Emission der angeregten Natriumatome handelt, bewegt man sich auf einer Zeitskala von Mikrosekunden. Die verstärkte stimulierte Emission dagegen ist ein Prozeß, der sehr viel schneller abläuft. Zusätzlich wären für eine genauere Interpretation der Plasmalumineszenz in Mikrotropfen Bildsequenzen interessant, die eine zeitliche Aussage über das explosionsartige Verdampfen des Tropfens auch bei sehr hohen

Laserintensitäten zulassen. Die Bedingung dafür wäre eine kürzere Belichtungszeit, die durch einen Pump- und Probeaufbau erreicht werden kann. Ein zweiter (schwächerer) Femtosekundenlaserpuls könnte je nach Verzögerungszeit den Tropfen beleuchten.