

1 Einleitung

Auch bei der sechsten Klimakonferenz der Vereinten Nationen im Herbst 2000 ist es nicht gelungen, zu einer Einigung bei der CO₂-Reduktion zu kommen. Nach wie vor gibt es einige Staaten, die sich bei diesem Problem hauptsächlich von ökonomischen Gesichtspunkten leiten lassen. Ein wichtiger Grund hierfür ist gewiß die Tatsache, daß gesicherte Prognosen zur globalen Erwärmung bisher nicht möglich sind. Die bestehenden Klimamodelle sind unter anderem deshalb noch mit einer großen Unsicherheit behaftet, weil das Wissen über atmosphärische Aerosole, das eine der Grundvoraussetzungen für genaue Vorhersagen darstellt, zum heutigen Zeitpunkt noch nicht ausreichend ist.

Zusätzlich in die Atmosphäre eingebrachte Partikel und Stäube beeinflussen das Klima der Erde aufgrund von Streuung und Absorption der solaren und terrestrischen Strahlung in einer Größenordnung, die nach Abschätzungen von Experten im globalen Mittel genauso wichtig ist wie der Treibhauseffekt durch anthropogen erzeugte Gase. Das Aerosol wirkt jedoch mit entgegengesetztem Vorzeichen, in verschiedenen Zeitskalen und hauptsächlich lokal in und über den großen Industrieregionen. Entsprechend ihrer Relevanz hat es in jüngster Zeit viele Bemühungen gegeben, die Veränderung der Aerosolbelastung in der Atmosphäre quantitativ zu erfassen, um so die Modellrechnungen für die globale Erwärmung auf ein sichereres Fundament zu stellen. Trotz einer Vielzahl von Meßmethoden ist der derzeitige Wissensstand über Anzahl, Größenverteilung und chemische Zusammensetzung des troposphärischen Aerosols aber noch recht gering, da kontinuierliche Messungen meist nur unmittelbar über dem Erdboden durchgeführt werden. Da vor allem ein großes Interesse für die Aerosolbelastung in höheren Luftschichten besteht, bleibt man noch weit hinter den bestehenden Anforderungen zurück. Die einzige Methode für kontinuierliche und ortsaufgelöste Aerosolmessungen über größere Entfernungen und in größerer Höhe ist das Lidar-Verfahren. Herkömmliche Lidar-Systeme ermöglichen eine Bestimmung der Menge und Größe von Aerosolpartikeln, Aussagen über ihre Zusammensetzung sind jedoch mit dieser Fernerkundungsmethode zum heutigen Zeitpunkt noch nicht möglich.

Eine vielversprechende Neuerung auf dem Gebiet der Lidar-Technik ist der Einsatz von Femtosekundenlasersystemen. Seit 1999 besteht auf diesem Gebiet eine deutsch-

französische Kooperation zur Entwicklung eines solchen Femtosekunden-Lidars, bei der unsere Arbeitsgruppe einer der Hauptinitiatoren war. Diese neue Lidar-Technik nutzt nichtlineare optische Effekte aus, die bei der Ausbreitung von hochintensiven Laserpulsen in der Atmosphäre auftreten. Eine interessante Frage ist in diesem Zusammenhang, wie solche Laserpulse in der Atmosphäre mit Aerosolen interagieren. Kommt es möglicherweise zu nichtlinearen optischen Prozessen, die eine Aussage über die Zusammensetzung der Partikel zulassen?

Um dieser Fragestellung nachgehen zu können, muß man sich mit der Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotröpfchen beschäftigen. Es wurden bisher nur wenige experimentelle Untersuchungen zu dieser Thematik durchgeführt [Kasparian et al. 1997], [Hill et al. 2000] und auch auf der Seite der Theorie stehen kaum Modelle für eine solche Interaktion zur Verfügung.

Daher ist es zuerst einmal erforderlich, grundlegende Untersuchungen in Laborexperimenten durchzuführen. Es ist die Frage zu klären, welche nichtlinearen optischen Prozesse mit einer signifikanten Stärke in Mikrotropfen ausgelöst werden können und ob diese eine Aussage über deren Zusammensetzung und Größe zulassen. Im Hinblick auf eine mögliche Lidar-Anwendung ist hier insbesondere die Winkelverteilung des erzeugten Lichtes von größtem Interesse. Wenn die Richtungscharakteristik der emittierten Strahlung durch anisotrope Streuung nicht mehr der $1/r^2$ -Abhängigkeit folgt, sondern verstärkt in Rückrichtung geht, dann wäre das ein großer Vorteil. Bei der Multiphotonen-Fluoreszenz ist ein solcher Effekt beobachtet worden [Hill et al. 2000]. Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, zu untersuchen, inwieweit noch andere nichtlineare optische Prozesse mit einem ähnlichen Streuverhalten existieren. Daher ist ein Aufbau entwickelt worden, der es ermöglicht, das von Mikrotropfen emittierte Licht winkelaufgelöst zu beobachten. Für die Experimente wurde exemplarisch ein kohärenter und ein nicht kohärenter nichtlinearer optischer Prozeß gewählt: die Frequenzvervielfachung und die Plasmalumineszenz.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in vier Hauptteile. Zuerst werden die relevanten Grundlagen über das troposphärische Aerosol zusammengestellt, um zu verdeutlichen, wie wichtig deren Rolle in der Atmosphäre ist. Die theoretischen Grundlagen im folgenden Kapitel setzen sich mit der nichtlinearen Optik und der Streuung an Mikrosphären

auseinander. Sie werden in einer Beschreibung über die Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotropfen zusammengeführt. Ein experimentelles Kapitel beschreibt dann die Erzeugung ultrakurzer Pulse und die Realisierung der winkelaufgelösten Messung des von Mikrotropfen emittierten Lichtes. Das letzte Kapitel enthält zunächst die Meßergebnisse zur Frequenzvervielfachung, die ausführlich mit der Theorie verglichen werden. Im zweiten Abschnitt wird der laserinduzierte Durchbruch anhand von photographischen Sequenzen diskutiert. Im dritten Teil werden dann die Messungen zur Plasmalumineszenz präsentiert, die zum einen an reinen Wassertropfen und zum anderen an aus Natriumchloridlösung bestehenden Tröpfchen durchgeführt wurden. Daran schließt sich dann eine Interpretation der Meßergebnisse an.

Ich hoffe, mit dieser Dissertation einen Beitrag zu einem besseren Verständnis der nichtlinearen optischen Prozesse, die durch Femtosekundenlaserpulse in Mikrotropfen ausgelöst werden, leisten zu können und damit einen Ausgangspunkt für eine neue Aerosolmeßtechnik auf Basis des Femtosekunden-Lidars zu schaffen.

