

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Der Gegenstand dieser Arbeit ist die Untersuchung der nichtlinearen optischen Effekte, die durch Femtosekundenlaserpulse in Mikrotropfen erzeugt werden können. Ich beschreibe einen experimentellen Aufbau, der mit hoher Präzision die Winkelabhängigkeit des von den Mikrotropfen emittierten Lichtes detektieren kann. Die Messungen führen zu einem besseren Verständnis der in den Tropfen ablaufenden elementaren Prozesse, die insbesondere im Hinblick auf eine mögliche Lidar-Anwendung diskutiert werden.

Zwei Effekte wurden für die Experimente ausgewählt. Die Frequenzvervielfachung dient als Beispiel für ein kohärentes Phänomen in der nichtlinearen Optik, die durch Plasma hervorgerufene Emission steht exemplarisch für einen nicht kohärenten Prozeß.

Die Ergebnisse bei der Frequenzverdreifachung ergaben eine starke Vorwärtsstreuung, die je nach Größenparameter eine unterschiedlich ausgeprägte Strukturierung aufweist. Für kleine Tropfen stimmen die Messungen sehr gut mit dem von Carroll und Zheng theoretisch vorhergesagten Verhalten überein. Für große Größenparameter ist diese Theorie aufgrund des Rechenaufwands derzeit nicht anwendbar. Daher wurde aus einer Kombination von Mie-Theorie und geometrischer Optik ein einfaches Modell entwickelt, mit dem die Meßergebnisse gut interpretiert werden können. Zusätzlich ist zum ersten Mal die Erzeugung der Fünften Harmonischen in Mikrotropfen beobachtet und winkelabhängig gemessen worden.

Mie-Resonanzen höherer Güte, die eine verstärkte Rückstreuung zeigen müßten, konnten im Signal unter Verwendung von Femtosekundenlaserpulsen nicht beobachtet werden. Die starke Vorwärtsstreuung der Frequenzvervielfachten läßt vielmehr den Schluß zu, daß es sich um eine nicht resonante Anregung im Tropfen handelt. Es ist daher eher unwahrscheinlich, daß man mit der Technik der Frequenzvervielfachung ein für die Lidar-Anwendung nötiges, starkes Rückstreusignal erhält. Hingegen wäre es interessant, die stimulierte Ramanstreuung auf ein solches Verhalten hin zu überprüfen. Nach den bislang vorliegenden Ergebnissen dürfte es zwar hauptsächlich zu einer Vorwärtsstreuung kommen, aber gerade im Hinblick auf die Möglichkeit einer substanzspezifischen Detektion sollte nichts unversucht gelassen werden [Kasparian, Wolf 1998].

Bei der Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotröpfchen kommt es zu einem explosionsartigen Verdampfen der Tropfen. Für eine Interpretation der Meßergebnisse ist es hilfreich zu wissen, wie der Tropfen durch die Laserpulse deformiert wird und auf welcher Zeitskala der Prozeß abläuft. Daher wurde eine Technik entwickelt, den Tropfen während des Zerplatzens photographisch abzubilden. Es konnten photographische Sequenzen aufgenommen werden, die die - in Bezug zur Tropfenmitte - asymmetrische Verdampfung des Tropfens und den ungefähren Zeitrahmen dieses Vorgangs beschreiben.

Die Plasmalumineszenz, die durch den laserinduzierten Durchbruch in Mikrotropfen entsteht, ist ein isotrop emittierender Prozeß und weist ein ganz anderes Streuverhalten auf als die Frequenzvervielfachung. Bei der Kontinuumsmission des Plasmas im sichtbaren Spektralbereich konnte eine verstärkte Vorwärts- und Rückwärtsstreuung beobachtet werden, wobei die Vorwärtsstreuung leicht überwiegt. Im Gegensatz zur Multiphotonen-Fluoreszenz liegt bei der Beobachtung der Plasmalumineszenz die „Emissionsquelle“ aufgrund der verwendeten Laserintensitäten nicht auf der dem Laser abgewandten Seite, sondern direkt nach Eintritt des Pulses auf der ihm zugewandten Seite. Über inverses Ray-Tracing konnte die beobachtete Winkelverteilung interpretiert werden.

Zur Untersuchung der Plasmafluoreszenz wurden Mikrotropfen eingesetzt, die aus einer 5-molaren Natriumchloridlösung bestanden. Es konnte zusätzlich zum Plasmakontinuum die Emission der durch das Plasma angeregten Natriumatome spektral- und winkelaufgelöst gemessen werden. Dabei hat sich gezeigt, daß diese Fluoreszenz verstärkt in Rückwärtsrichtung emittiert wird. Für dieses Verhalten werden zwei verschiedene Interpretationsmöglichkeiten vorgeschlagen. Zum einen könnte das von den Natriumatomen nach einigen Mikrosekunden emittierte Licht von den Tropfenfragmenten, die sich durch die explosive Verdampfung zu diesem Zeitpunkt bereits gebildet haben, in Vorwärtsrichtung abgeblockt und zurückreflektiert werden. Dadurch würde die Streuung in Richtung der Lichtquelle überwiegen. Zum anderen könnte es sich aber auch um eine verstärkte stimulierte Emission handeln. Wenn sich das Plasma in Rückwärtsrichtung ausbreitet - was nach dem „moving breakdown“-Modell zu erklären wäre -, dann käme es zu einer gerichteten Emission hin zur Lichtquelle.

Um zu entscheiden, um welchen der beiden Prozesse es sich handelt, sollten zusätzlich zeitaufgelöste Messungen durchgeführt werden, da sich die verstärkte stimulierte Emission auf einer Zeitskala bewegt, die viel kürzer ist als die der spontanen Emission.

Außerdem ist für eine fundiertere Interpretation der Plasmalumineszenz ein genaueres Verständnis über das explosionsartige Verdampfen des Tropfens auch bei sehr hohen Laserintensitäten notwendig. Eine kürzere Belichtungszeit könnte durch ein Pump- und Probe-Experiment realisiert werden, bei dem der Pumpuls den laserinduzierten Durchbruch in dem Tropfen auslöst und der Probepuls den Vorgang nach einer definierten Verzögerungszeit belichtet. So wäre es möglich, Informationen über den Explosionsvorgang des Tropfens bei sehr hohen Laserintensitäten zu erhalten, was eine Interpretation der winkelaufgelösten Plasmalumineszenzmessungen erleichtern würde.

Da eine höhenaufgelöste atmosphärische Aerosoldiagnostik von größtem Interesse ist, ist es durchaus lohnenswert, den weiten Weg von der Grundlagenforschung hin zu einer direkten Anwendung in der Atmosphäre zu gehen. Es hat sich im Rahmen dieser Arbeit gezeigt, daß ein erster Schritt in Richtung Aerosolcharakterisierung mit dem Femtosekunden-Lidar die Plasmafluoreszenz in Mikrotropfen ist, da hierbei verstärkt in Rückwärtsrichtung emittiert wird. Die Emission der durch Plasmabildung angeregten Zustände eröffnet somit die Möglichkeit, Informationen über die chemische Zusammensetzung von Mikrotropfen - und damit auch von Aerosolen - zu erhalten.

