Untersuchung von lasergeheizten Siliziumdioxid-Teilchen in einer elektrodynamischen Vierpolfalle

Diplomarbeit

Technische Universität Chemnitz Institut für Physik

vorgelegt von

Falk Windisch

3. September 2001

Archiv: http://archiv.tu-chemnitz.de/pub/2001

Selbständigkeitserklärung

Hiermit wird versichert, daß diese Arbeit selbständig angefertigt wurde. Alle verwendeten Quellen und Hilfsmittel sind angegeben.

Chemnitz, 3. September 2001

Falk Windisch

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung

2	Theo	oretische Grundlagen	8
	2.1	Elektrodynamische Vierpolfalle	8
	2.2	Thermische Strahlung	12
	2.3	Leistungsbilanz	17
	2.4	Kräftebilanz	21
	2.5	Konkrete Abschätzungen für SiO ₂ -Partikel	23
3	Expe	erimenteller Aufbau	29
	3.1	Experimentieranordnung	29
		Quadrupolfalle	30
		CO ₂ -Laser	32
		Nachweissystem	34
	3.2	Automatisierte Datenerfassung & Steuerung	37
4	Vore	experimente	41
	4.1	Charakterisierung des CO ₂ -Lasers	41
	4.2	Genauigkeit der Meßmethode	47

5

T 1	1.	•	
Inha	ltsver	7610	hnis
IIIIIu.	100 101	LUIU	mino

5	Vorgänge auf der Partikeloberfläche		
	5.1	Laserinduzierte Desorptionen	52
	5.2	Adsorptionen aus dem Restgas	54
6	Wechs	selwirkung Laser – Partikel	60
	6.1	Vorexperimente mit SiO ₂ -Pulver	60
	6.2	Laserinduzierte Entladungen	63
	6.3	Ursachendiskussion	67
	6.4	Maßnahmen zur Problembewältigung	70
7	Ausbl	ick	72
	7.1	Transparente Ringfalle	72
	7.2	Partikelexperimente	75
8	Zusan	nmenfassung	77
A	Anhar	ng	79
	Danks	sagung	84
	Literaturverzeichnis		

Kapitel 1

Einleitung

1953 entwickelte Wolfgang Paul in Kooperation mit Helmut Steinwedel die Idee der Stabilisierung und Trennung von geladenen Teilchen in elektrischen Vierpolfeldern. Diese Vierpolfelder bilden die Grundlage heutiger Paulfallen und ermöglichen beispielsweise das Speichern einzelner Ionen und die elektrodynamische Levitation beliebiger geladener Partikel [Wue58]. Von Earl C. Beaty wurde 1986 gezeigt, daß auch eine vergleichsweise einfache Anordnung von Elektroden die für die Speicherung notwendigen Bedingungen gewährleisten kann [Bea86]. Die Vierpolfalle entwickelte sich unter anderem zu einem universell einsetzbaren Hilfsmittel zur Beobachtung isolierter Partikel über lange Zeiträume. Neben der Präzisionsmassebestimmung einzelner Partikel [Sch01] ist es möglich, Massenänderungen im Femtogrammbereich festzustellen, die durch Ad- und Desorptionsvorgänge geeigneter Materialien erzeugt werden [Ill00]. Diese Erkenntnisse gestatten z.B. Einblicke in die Natur der Wechselwirkung von Molekülen mit Oberflächen unter weitgehendem Ausschluß von Beeinflussungen durch das in der Festkörperphysik allgemein verwendete bulk-Material. Gerade nanostrukturierte Materialien sorgen derzeit für großes Aufsehen in der Wissenschaft. Sobald die tatsächlichen Dimensionen der Strukturen kleiner werden als z.B. die Wellenlänge des Lichtes oder irgendeine andere bedeutende charakteristische Länge, treten neue Materialeigenschaften auf, die wiederum neue technische Anwendungen erlauben.

Partikel, deren Abmessungen (Radius *a*) bedeutend größer als die Wellenlänge des Lichtes λ sind, werden in das sogenannte Mie-Regime eingeordnet. Der Größen-

parameter von Mie $x = \frac{2\pi a}{\lambda}$ gibt Auskunft über die zu erwartenden Streumechanismen und Absorptionsverhalten. Ist $(x \ll 1)$, so befindet sich das Partikel innerhalb des Rayleigh-Limits und zeigt beispielsweise eine stärker ausgeprägte Streuung des Lichtes in Vorwärtsrichtung [Hul81]. Insbesondere die Absorption von Licht einer bestimmten Wellenlänge und die damit verbundene Aufheizung des Materials sind Gegenstand zahlreicher wissenschaftlicher Arbeiten [Fil97] [Spj85]. Immer hat dabei die genaue Bestimmung der Temperatur eine besonders wichtige Bedeutung. Oft lassen sich erst dann, wenn man mit Sicherheit sagen kann, daß das Material eine bestimmte Temperatur erreicht hat, weiterführende Aussagen machen. Es ist durchaus nützlich, ein Partikel über einen längeren Zeitraum aufzuheizen, um z.B. sicherzustellen, daß Verunreinigungen von der Oberfläche entfernt werden. Im nächsten Schritt könnte sogar eine gezielte Umstrukturierung (z.B. Schmelzen) des Materials bei einer konkreten Temperatur bewirkt werden, was die Diffusion von tieferliegenden Einlagerungen an die Oberfläche beschleunigen würde. Eine physikalische Eigenschaft aller Körper mit ausreichend hoher Temperatur ist die Emission von thermischer Strahlung. Pyrometrische Methoden zur Temperaturbestimmung wurden schon von R. E. Spjut [Spj85], E. Rohlfing [Roh88] und S. Schraml [Sch00] erfolgreich angewandt. Hierbei nutzt man den direkten Vergleich gemessener thermischer Emissionsspektren mit den analytisch kalkulierbaren Planck'schen Spektren Grauer Strahler, deren spektraler Emissionsgrad konstant, aber im Gegensatz zum Schwarzen Strahler kleiner als Eins ist. Hauptmotivation dieser Arbeit ist der Nachweis der thermischen Emissionsstrahlung eines einzelnen gespeicherten Siliziumdioxid-Partikels im sichtbaren Bereich des Lichtes. Zuerst erfolgt dazu eine Einführung in die Methode der elektrodynamischen Speicherung und in die Theorie der thermischen Strahlung. Die theoretischen Schwarzkörperspektren werden im Hinblick auf die kleinen Teilchendimensionen (Rayleigh-Bereich) korrigiert und die thermische Strahlungsleistung sowie die Temperatur eines levitierten Partikels werden in Abhängigkeit von der Intensität des verwendeten Heizlasers abgeschätzt. Ebenfalls wird eine Bilanz der auf das Teilchen einwirkenden Kräfte vorgestellt und für die speziellen experimentellen Gegebenheiten mit Zahlen belegt.

Im experimentellen Teil der Arbeit wird die verwendete Quadrupolfalle, die eine vereinfachte Elektrodengeometrie gegenüber der idealen Paulfalle aufweist, und ihre Integration in die gesamte Anlage beschrieben. Die Koordination des Zusammenspiels von Heizlaser, Nachweis und den anderen Systemkomponenten erfolgt größtenteils computergestützt und resultiert in einer komplexen Datenerfassung. Der Aufbau von rechnergesteuerten Regelkreisen erlaubt eine zeitlich exakte Durchführung von Experimenten, die einen Eingriff von außen weitgehend überflüssig machen und einen hohen Grad der Reproduzierbarkeit gewährleisten. Die Bestimmung der Masse eines gespeicherten Teilchens und deren zeitlicher Änderung mit immer höherer Präzision stehen ständig im Mittelpunkt der Bemühungen. Untersuchungen von laserinduzierten Desorptionen und Adsorptionsvorgängen von Molekülen auf Partikeloberflächen unter UHV-Bedingungen werden beschrieben. Zusammen mit den Experimenten zur Laser-Partikel-Wechselwirkung sind diese grundlegend für weitere Arbeiten, die sich mit der Speicherung immer kleinerer Partikel befassen sollen. Es sollen in Zukunft zum einen neue Erkenntnisse über optische Teilcheneigenschaften in einem weiten Temperaturbereich gewonnen werden. Zum anderen soll die jeweilige Partikeltemperatur über die Auswertung der thermischen Emissionsspektren gesichert ermittelt werden. Das Fernziel besteht in der laserunterstützten Erzeugung von Siliziumpartikeln mit Durchmessern weniger Nanometer ($\leq 5nm$) aus gespeicherten SiO₂-Partikeln – durch Materialabtrag direkt innerhalb der Vierpolfalle. Es wird vermutet, daß diese Nano-Siliziumpartikel Bestandteile einiger astronomischer Objekte (z.B. interstellarer Nebelwolken) sind. Beispielsweise könnte die Natur der sogenannten Extended Red Emission – eine Erscheinung, die wahrscheinlich auf die Fluoreszenz interstellarer Staubteilchen zurückzuführen ist [Wit98] – auf diese Weise unter Laborbedingungen genauer untersucht werden.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

2.1 Elektrodynamische Vierpolfalle

Die folgenden Ausführungen sollen einen Einstieg in die Physik der Vierpolfalle (Quadrupolfalle) geben, mit deren Hilfe geladene Teilchen sehr effektiv und über lange Zeiträume gespeichert werden können. Wolfgang Paul beschrieb erstmals eine solche Anordnung zur dreidimensionalen Speicherung von Ionen, die allgemein als Paulfalle bezeichnet wird. Die ideale Paulfalle besteht aus einer Ringelektrode und zwei Polkappenelektroden mit jeweils hyperbolischen Oberflächen unendlicher Ausdehnung:



Partikel können an Achsen oder Punkte im Raum gebunden werden, wenn eine rücktreibende Kraft auf sie wirkt, die mit dem Abstand ansteigt. Ein parabolisches Potential bietet gerade diese Voraussetzungen [Pau90]. Das Potential eines elektrischen Quadrupols in kartesischen Koordinaten lautet:

(2.1)
$$\Phi = \frac{\Phi_0}{r_0^2} (\alpha \cdot x^2 + \beta \cdot y^2 + \gamma \cdot z^2).$$

 r_0 ist bei der idealen Paulfalle der kleinste Abstand des Fallenmittelpunktes von der Ringelektrode und z_0 ist die Hälfte des kleinsten Abstandes der Polkappenelektroden. Φ_0 ist ein zeitabhängiges elektrisches Potential, das an die Elektroden angelegt wird und sich aus einem Gleichspannungs- und einem Wechselspannungsanteil zusammensetzen kann (Ω ist die Kreisfrequenz der Wechselspannung):

$$\Phi_0 = U_0 - V_0 \cos(\Omega t)$$

Die Laplace-Gleichung $\Delta \Phi = 0$ fordert nun für die Koeffizienten: $\alpha + \beta + \gamma = 0$. Dies wird im Dreidimensionalen erfüllt durch: $\alpha = \beta = 1$ und $\gamma = -2$. Das Potential eines elektrischen Quadrupols in Zylinderkoordinaten lautet deshalb:

(2.3)
$$\Phi = \frac{\Phi_0(r^2 - 2z^2)}{r_0^2} \quad \text{mit} \quad 2z_0^2 = r_0^2 \quad \text{und} \quad x^2 + y^2 = r^2.$$

Die Beschaltung der Falle kann dabei durchaus unterschiedlich erfolgen:

	Einphasig		Zweiphasig
Polkappenelektroden	Nullpotential	$2\Phi_0$	$\mathbf{\Phi}_{0}$
Ringelektrode	$2\Phi_0$	Nullpotential	$-\Phi_0$

In unseren Experimenten wird mit einer einphasigen Beschaltung gearbeitet, wobei die Ringelektrode auf Nullpotential und die Polkappen auf $2\Phi_0$ liegen. Dadurch ergibt sich eine Konsistenz zu den nachfolgenden Rechnungen mit zweiphasiger Beschaltung.

Ist nun eine solches Potential zwischen Ring und Polkappen angelegt, lauten die **Bewegungsgleichungen** in r- und z-Richtung:

(2.4)
$$\frac{d^2r}{dt^2} + \frac{Q}{mr_0^2} (U_0 - V_0 \cos \Omega t)r = 0$$

und
$$\frac{d^2 z}{dt^2} - \frac{2Q}{mr_0^2} (U_0 - V_0 \cos \Omega t) z = 0$$
.

Sie können in die Form von **Mathieu'schen Differentialgleichungen** überführt werden:

(2.5)
$$\frac{d^2r}{d\tau^2} + (a_r - 2q_r\cos 2\tau)r = 0$$
 und $\frac{d^2z}{d\tau^2} - (a_z - 2q_z\cos 2\tau)z = 0$.

Es ergeben sich durch Vergleich von (2.4) und (2.5) folgende Parameter der Lösung:

(2.6)
$$a_z = 2a_r = \frac{8QU_0}{mr_0^2\Omega^2}$$
 und $\eta = q_z = 2q_r = \frac{4QV_0}{mr_0^2\Omega^2}$ und $\tau = \frac{\Omega t}{2}$

Q und m sind Ladung und Masse des in der Falle befindlichen Partikels.

Die Parameter a_r, q_r, a_z und q_z (η ist die allgemeinere Bezeichnung des speziell für den Quadrupol geltenden Parameters q_z) sind **Stabilitätsparameter** der Lösung, d.h. bei Auftragung von jeweils $a_{r,z}$ über $q_{r,z}$ erhält man Diagramme, die Stabilität oder Instabilität der Lösung deutlich machen [Pau90].

Zur Speicherung eines Teilchens über einen langen Zeitraum gilt für das **Stabilitätskriterium** [Ger92]:

 $\eta > 0.5$... die Trajektorie vergrößert sich schnell in eine Richtung (Instabilität) $0.5 \ge \eta > 0.3$... teilweises Auftreten von Instabilitäten $\eta \le 0.3$... die Teilchenbahn ist stabil. Die Bewegung eines Teilchens besteht aus einer Oszillation (**Sekulärbewegung** mit Frequenz $\omega_{r,z}$), die mit der viel schnelleren Oszillation (**Mikrobewegung** mit Frequenz Ω) der Fallenversorgung moduliert ist - höhere Harmonische werden hier vernachlässigt.

Abb. 2.2:

Skizze einer Trajektorie eines Partikels in einer Vierpolfalle.



Mit Hilfe der **Näherung des Effektiven Potentials**, die in [Ger92] und [Wel98] ausführlich dargestellt ist, läßt sich folgende Beziehung zwischen der Bewegungsfrequenz des Teilchens und der Fallenfrequenz herleiten (C_2 ist eine Konstante, die speziell für den Quadrupol den gezeigten Wert annimmt):

(2.7)
$$\frac{\omega_{r,z}}{\Omega} = C_2 \cdot \eta_{r,z} \quad \text{mit} \quad C_2 = \sqrt{\frac{1}{8}}.$$

Durch Vergleich mit (2.6) ergeben sich die **Bewegungsfrequenzen** des Teilchens in radialer und axialer Richtung:

(2.8)
$$\omega_r = \frac{\sqrt{2}V_0}{2\Omega z_0^2} \frac{Q}{m}$$
 und $\omega_z = 2\omega_r = \frac{\sqrt{2}V_0}{\Omega z_0^2} \frac{Q}{m}$

Das Problem der Bewegung eines geladenen Partikels in einer idealen Quadrupolfalle ist – wie oben gezeigt wurde – analytisch gelöst. Achtet man auf die Einhaltung der Stabilitätsbedingung, kann aus den Bewegungsfrequenzen eines Teilchens direkt dessen Verhältnis von Ladung zu Masse (Q/m-Verhältnis) ermittelt werden (Gleichungen 2.8). Die Gleichungen 2.8 bilden die Grundlage für die in den Experimenten durchgeführte Massebestimmung mit der Streulichtmethode (siehe Kapitel 3).

2.2 Thermische Strahlung

Jeder Körper mit einer Temperatur größer null Kelvin emittiert Strahlung, die als **Wärmestrahlung** bezeichnet wird. Dies ist ein Vorgang, der nicht vom Zustand der Umgebung abhängt, sondern nur von der Beschaffenheit des Körpers selber [Ber93].

Ein Schwarzer Strahler im thermischen Gleichgewicht hat die Eigenschaft, daß er alle auf ihn auftreffende Strahlung vollständig absorbiert und reemittiert. Seine spektrale Strahldichte $L_{\lambda,S}(\lambda,T)$ wird durch die Planck'sche Strahlungsformel wiedergegeben:

(2.9)
$$L_{\lambda,S}(\lambda,T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda kT}\right) - 1} \quad \text{mit} \quad \left[L_{\lambda,S}(\lambda,T)\right] = \frac{W}{m^3 \cdot sr}$$

Die spektrale Strahldichte gibt diejenige Strahlungsenergie wieder, die im Intervall zwischen λ und $\lambda + d\lambda$ und bezogen auf die strahlende Fläche, die Zeit und den Raumwinkel bei der absoluten Temperatur *T* in Richtung der Flächennormalen ausgestrahlt wird [Ber93]. Die Konstanten *h* und *k* sind das Planck'sche Wirkungsquantum und die Boltzmann-Konstante. Es soll an dieser Stelle noch einmal vermerkt werden, daß die Wärmestrahlung ein kontinuierliches Spektrum besitzt, d.h. Körper emittieren bei allen Wellenlängen - wenn auch teilweise nur mit sehr schwacher Intensität.

Alle Körper reflektieren und absorbieren ständig Strahlungsenergie aus ihrer Umgebung und emittieren diese gleichzeitig wieder. Man spricht hier von einem **thermischen Gleichgewicht** mit der umgebenden Wärmestrahlung. Ein Körper, der sich im thermischen Gleichgewicht befindet, besitzt eine feste Temperatur T, da sich alle diese Prozesse im Mittel gegenseitig kompensieren. Kirchhoff formulierte aus diesen Zusammenhängen eine Gesetzmäßigkeit [Ber93]:

(2.10)
$$\frac{L_{\lambda}(\lambda,T)}{\alpha(\lambda,T)} = L_{\lambda,S}(\lambda,T)$$

Das **Kirchhoff'sche Gesetz** besagt, daß das Verhältnis der Strahldichte $L_{\lambda}(\lambda,T)$ zum Absorptionsgrad eines beliebigen Temperaturstrahlers $\alpha(\lambda,T)$ - auch mit $Q_{abs}(\lambda,T)$ bezeichnet - gleich der Strahldichte des Schwarzen Strahlers $L_{\lambda,S}(\lambda,T)$ ist.

Der spektrale Emissionsgrad $\varepsilon(\lambda, T)$ dient zur Charakterisierung des Emissionsverhaltens von Strahlungsquellen. Er ist der Quotient aus der vom **Temperaturstrahler** emittierten Strahldichte und der des Schwarzen Strahlers. Eine alternative Formulierung des Kirchhoff'schen Gesetzes lautet daher:

(2.11)
$$\varepsilon(\lambda,T) = \frac{L_{\lambda}(\lambda,T)}{L_{\lambda,S}(\lambda,T)} = \alpha(\lambda,T) = Q_{abs}(\lambda,T) \,.$$

Ein Körper emittiert genau auf den Wellenlängen sehr gut, auf denen er sehr gut absorbiert. Der Schwarze Strahler hat unter allen Temperaturstrahlern sowohl das größte Emissionsvermögen als auch das größte Absorptionsvermögen: $\varepsilon(\lambda) = \alpha(\lambda) \equiv 1$.

Die spektrale Abstrahlleistung der thermischen Strahlung eines sphärischen Partikels mit dem Radius *a*, das isotrop auf einer Wellenlängen λ in einem Bereich $\Delta\lambda$ abstrahlt, lautet [Roh88]:

(2.12)
$$\frac{dI(\lambda,a)}{d\lambda}\Delta\lambda = \varepsilon(\lambda,a)L_{\lambda,s}(T)4\pi a^2\Delta\lambda \quad \text{mit} \quad \left[\frac{dI(\lambda,a)}{d\lambda}\Delta\lambda\right] = \frac{W}{sr}.$$

Dies ist die spektrale Emission eines Temperaturstrahlers bezogen auf die Oberfläche eines sphärischen Partikels.

Die spektrale Emissivität ist jetzt ebenfalls abhängig vom Partikelradius und muß daher genauer betrachtet werden:

Die **Mie-Theorie** [Roh88] zeigt auf, wie das Emissionsvermögen für ein Teilchen berechnet werden kann, das sich im Rayleigh-Limit befindet $\left(x = \frac{2\pi a}{\lambda} << 1\right)$:

(2.13)
$$\varepsilon_P = Q_{abs,P} = \frac{8\pi a}{\lambda} \operatorname{Im}\left[\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right]$$

m = n - ik ist der komplexe Brechungsindex des Partikelmaterials, der wiederum aus dem Brechungsindex *n* und dem Absorptionskoeffizienten *k* gebildet wird.

Um den Einfluß dieses wellenlängenabhängigen Emissionsvermögens klarer herauszustellen, wird in Abbildung 2.3 eine Gegenüberstellung vorgenommen. Im oberen Diagramm ist die spektrale Strahldichte eines Schwarzkörpers für verschiedene Temperaturen, berechnet nach Gleichung 2.9, dargestellt. Das untere Diagramm zeigt hingegen die spektrale Strahldichte, berechnet unter Einbeziehung des Emissionsvermögens eines sphärischen Partikels im Rayleigh-Bereich (Gleichungen 2.9, 2.11 und 2.13). Im Hinblick auf die durchgeführten Experimente wurden hier bereits ein Partikelradius von a = 250nm und ein komplexer Brechungsindex bei der Wellenlänge $\lambda = 10,6\mu m$ von $m = 2,224 - i \cdot 0,102$ zur Berechnung verwendet. Bei dem in Abb.2.3 verdeutlichten Phänomen spricht man auch von der "Blauverschiebung" der Emission eines kleinen Partikels, die im wesentlichen auf die λ^{-6} -Abhängigkeit zurückzuführen ist. Diese Verschiebung muß bei der pyrometrischen

Temperaturbestimmung unbedingt beachtet werden, denn sonst ermittelt man eine zu hohe Temperatur.

Führt man nun die Gleichungen (2.9) und (2.13) mit Hilfe der Gleichung (2.12) zusammen, so zeigt sich eine modifizierte Strahlungsformel, die ebenfalls die genannte λ^{-6} -Abhängigkeit aufweist (siehe Gleichung 2.14):



Spektrale Strahldichte des Schwarzkörpers nach Planck



(2.14)
$$\frac{dI(\lambda,a)}{d\lambda}\Delta\lambda = \frac{16\pi\hbar c^2 a}{\lambda^6} \operatorname{Im}\left[\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right] \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar c}{\lambda kT}\right) - 1} \cdot 4\pi a^2 \Delta\lambda.$$

Diese Gleichung ist ein guter Ansatzpunkt für die Abschätzung der gesamten Strahlungsleistung P_{Therm} , die ein Partikel mit der Temperatur T emittiert. Integriert man (2.14) über alle Wellenlängen $d\lambda$, erhält man die Strahlungsleistung in den gesamten Raumwinkel $4\pi \cdot sr$:

(2.15)
$$P_{Therm}(T) = 4\pi 64\pi^2 hc^2 a^3 \int_0^\infty \text{Im}\left[\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right] \frac{1}{\lambda^6 \left(\exp\left(\frac{hc}{\lambda kT}\right) - 1\right)} d\lambda$$

Substituiert man $\lambda = \frac{hc}{xkT}$ und $d\lambda = -\frac{\lambda^2 kT}{hc} dx$ vereinfacht sich das Integral:

$$P_{Therm}(T) = 4\pi 64 \frac{\pi^2 a^3 k^5 T^5}{h^4 c^3} \int_0^\infty \text{Im}\left[\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right] \frac{x^4}{(\exp(x) - 1)} dx$$

(2.16)
$$P_{Therm}(T) = 6144 \frac{\pi^3 a^3 k^5 T^5}{h^4 c^3} \operatorname{Im} \left[\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right] \zeta(5)$$
$$\zeta(s) = \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{i^s} \text{ ist die sogenannte Zetafunktion } [\zeta(5) \approx 1,037].$$

Es wird hier angenommen, daß *m* nur schwach von der Wellenlänge λ abhängt. Umgekehrt kann nun auch aus einer absorbierten Leistung P_{Absorb} die Temperatur des Partikels abgeschätzt werden, wobei der komplexe Brechungsindex *m* wieder als konstant über einen weiten Wellenlängenbereich angenommen wird:

(2.17)
$$T = \sqrt[5]{P_{Absorb}} \frac{1}{6144} \frac{h^4 c^3}{\pi^3 a^3 k^5} \left[\operatorname{Im} \left[\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right] \zeta(5) \right]^{-1}.$$

Die durchgeführten Berechnungen erlauben die Abschätzung der Temperatur, die ein gespeichertes Partikel bei Absorption einer bestimmten Leistung, z.B. bei Aufheizung mit einem Laser, erreichen sollte (Gleichung 2.17). Außerdem kann die gesamte Strahlungsleistung berechnet werden, die das heiße Partikel seinerseits wieder als thermische Strahlung emittieren sollte (Gleichung 2.16) [Achtung: Es wird hier jeweils $m(\lambda) = m$ angenommen !].

2.3 Leistungsbilanz

Für eine akkurate quantitative Bestimmung der Temperatur eines einzelnen gespeicherten Partikels müssen die Einflüsse des Umgebungsgases in der Vakuumkammer genau beurteilt werden, um ein korrektes Modell des Wärmeverlustes zu bekommen. Die Kühlung wird dabei vom **Temperaturgradienten** bestimmt, der zwischen Partikel und Umgebung vorherrscht. Dabei müssen besonders lokale Effekte berücksichtigt werden, die beispielsweise aus der Aufheizung des Restgases in der Nähe des Teilchens resultieren. Ziel ist zuerst die Erstellung einer Leistungsbilanz, die ein thermisches Gleichgewicht und damit eine konstante Temperatur ermöglicht.

Eine solche Bilanz der Energieströme, die den geringeren Druck in der UHV-Kammer berücksichtigt, sieht folgendermaßen aus (ohne Anspruch auf Vollständigkeit):

Absorption von	Thermische	Verluste durch	Ablösen von	Änderung der	- 0
Laserstrahlung	Abstrahlung	Stöße mit dem Gas	Molekülen	Inneren Energie	-0

Prozesse endlicher Zeitdauer

Die ersten beiden Mechanismen - die Absorption und Emission elektromagnetischer Strahlung - wurden im vorherigen Abschnitt ausführlich besprochen.

Bei der **Kühlung durch Stöße** mit dem Restgas wird vorausgesetzt, daß sich dieses im thermischen Gleichgewicht mit seiner Umgebung befindet (Temperatur $T_{Gas} = const$).

Bei kleinen Drücken (p kleiner $10^{-2} mbar$) ist die mittlere freie Weglänge A von z.B. Stickstoffmolekülen im Vakuum größer als 5mm. Die Knudsenzahl $Kn = \frac{\Lambda}{d}$ dient der Charakterisierung von Gasströmungen in Abhängigkeit vom Druckbereich. Es liegt an einem Partikel mit Durchmesser $d = a < 1\mu m$ mit Sicherheit molekulare Strömung vor, da $\Lambda >> d$ bzw. Kn >> 1 ist. Die Kühlleistung ergibt sich dann näherungsweise zu:

(2.18)
$$P_{Gas} = \alpha \frac{1}{4} n \overline{v}_{Therm} 4 \pi a^2 \frac{4 + v}{2} k (T_{Gas} - T)$$

mit $\overline{v}_{Therm} = \sqrt{\frac{8kT_{Gas}}{\pi m_{Gas}}}$... mittlere Geschwindigkeit der Gasmoleküle
und $n = \frac{p}{kT_{Gas}}$... Gasteilchendichte.

Die Zahl der inneren Freiheitsgrade v ist für zweiatomige Gase vier und für einatomige null. Der thermische Akkomodationskoeffizient α kann maximal eins sein und ist ein Maß für den Energieaustausch zwischen Oberfläche und Gasteilchen beim Stoß. Eine Maximalabschätzung ergibt [Ill00]:

(2.19)
$$P_{Gas} \le a^2 p \sqrt{\frac{2\pi k}{T_{Gas} m_{Gas}}} (4+v)(T_{Gas} - T) .$$

Die letzten beiden Mechanismen der Leistungsbilanz auf der vorherigen Seite sollten nach endlicher Zeit zum Erliegen kommen und stören diese genaugenommen, da z.B. die Oberflächenreinigung mit einem Masseverlust einhergeht. Es soll verdeutlicht werden, daß sie ebenfalls von der Leistung des Heizlasers zehren. Ein Ziel dieser Arbeit ist gerade die Charakterisierung dieser beiden Prozesse. Die Reinigung der Oberfläche (thermische Desorption von Molekülen), sowie Umstrukturierungen im Innern des gespeicherten Partikels (evtl. Phasenübergänge wie Schmelzen und wieder Verfestigen) setzen definiert ein, sobald das Partikel eine bestimmte Grenztemperatur überschritten hat. Diese Grenztemperaturbereiche sollen im folgenden näher erläutert werden: Einen recht ausführlichen Einstieg in die chemischen Abläufe, die auf den Oberflächen von Kieselsäuren stattfinden können, gibt [Heg97]. In dieser Arbeit wird einleitend die Struktur von Siliziumdioxid als ein Raumnetz aus SiO₂-Tetraedern beschrieben, die über ihre Ecken verknüpft sind. An der Oberfläche eines Partikels unterliegen gebundene Bausteine anderen energetischen Bedingungen, als im Inneren. Laut [Heg97] befinden sich auf einer solchen Oberfläche folgende Gruppen:

 Einfache (freie oder isolierte) Silanolgruppen



- (2) Silandiolgruppen (geminale Silanolgruppen)
- (3) Wasserstoffbrückengebundene vicinale Silanolgruppen (einfach oder geminal)





(5) Gespannte sowie weniger gespannte Siloxanbrücken





Im Inneren der Partikel befinden sich ebenfalls herstellungsbedingt immer Silanolgruppen und Wasser, das sich in Poren festgesetzt hat.

Der Abbau der oben aufgeführten Verunreinigungen erfolgt bei bestimmten Temperaturen, über die es offensichtlich unter den Wissenschaftlern noch Uneinigkeit gibt. Die wichtigsten von [Heg97] recherchierten Temperaturen sind in der Tabelle 2.1 zusammengestellt (eckige Klammern kennzeichnen "Uneinigkeiten"): Tab. 2.1: Temperaturbereiche f
ür den Abbau von Oberfl
ächengruppen des SiO₂(die Zahlen in Klammern beziehen sich auf die Abbildungen der vorherigen Seite).

460 bis 720K	Desorption des adsorbierten Wassers (4)
720 bis 770K	Kondensation der verbrückten Silanolgruppen (3), die zur
[870 bis 970K]	Bildung von Siloxanbrücken (5) unter Wasserabgabe führt
Ab 770K	Abbau der isolierten einfachen (1) und geminalen (unverbrückten)
[ab 970K]	Silanolgruppen (2)
Ab 1125K	Platzwechselvorgänge von Strukturpartikeln im SiO ₂ -Festkörper
1973K	Schmelzpunkt des Siliziumdioxids

Hauffe meint, daß man bei der Adsorption von Wasser an Metalloxiden annehmen kann, daß die erste, chemisorbierte Lage durch Hydroxid-Bildung gekennzeichnet ist [Hau74]. Die zuerst auf eine SiO₂-Oberfläche auftreffenden Wassermoleküle werden seiner Aussage nach chemisorbiert und erst später setzt eine Physisorption ein. Unterhalb 100°C (373K) wird im wesentlichen der physisorbierte Anteil des Wassers desorbiert, während die Desorption des chemisorbierten H₂O erst bei viel höheren Temperaturen stattfindet. Zwischen 180°C (453K) und 400°C (673K) erfolgt die Chemisorption reversibel. Oberhalb 400°C (673K) läuft eine Änderung in der Oberflächenstruktur ab, bei der die günstigen Adsorptionsplätze für die Dissoziation des Wassers verschwinden. Es wird dann eine Reorganisation der Kristallstruktur möglich, bei der der Kristall in eine Konfiguration mit niedrigerer Energie übergehen kann. Hauffe nennt ebenfalls Aktivierungsenergien für die Desorption von Wasser, die überschritten werden müssen:

für physisorbiertes Wasser
$$8.2 \frac{kcal}{mol}$$
 und für chemisorbiertes Wasser $10.0 \frac{kcal}{mol}$.

Auf die wichtigsten Vorgänge, die mit der Aufheizung einhergehen können, wurde nun eingegangen. Es ist jetzt erforderlich zu klären, ob eine Laserheizung ohne weiteres realisiert werden kann, ohne beispielsweise das gespeicherte Partikel zu verlieren. Dazu ist eine Abschätzung der Kräfte nötig, die auf das Teilchen einwirken.

2.4 Kräftebilanz

Innerhalb der Falle wirken auf das levitierte Partikel eine **Vielzahl von Kräften**, auf die nun näher eingegangen werden soll:

Abb. 2.4:

Dargestellt ist eine Übersicht über die bedeutsamsten Kräfte, die auf ein gespeichertes Teilchen einwirken.



Die **Streukraft des Lasers** \vec{F}_{Streu} resultiert aus dem Impulsübertrag beim Auftreffen der Photonen und ist immer parallel zur Ausbreitungrichtung z des Strahls. Sie kann für Teilchen mit Mie-Parameter $x \ll 1$ geschrieben werden als [Gri00]:

(2.20)
$$\vec{F}_{Streu} = \frac{I_0}{c} \frac{128\pi^5 a^6}{3\lambda^4} \left(\frac{m_{eff}^2 - 1}{m_{eff}^2 + 2}\right) n_{Part} \cdot \vec{e}_z.$$

 n_{part} und n_{umg} sind die Brechungsindizes des Teilchens und des umgebenden Mediums. $m_{eff} = n_{part} / n_{umg}$ ist im Gegensatz zum komplexen Brechungsindex m der effektive Brechungsindex des Teilchenmaterials.

 I_0 ist die Intensität des Lasers, a der Partikelradius und c die Lichtgeschwindigkeit.

Die Gravitationskraft \vec{F}_{Grav} eines Partikels wird von den elektrischen Kräften der Falle \vec{F}_{Falle} kompensiert.

Die Kräfte der Falle können mit Hilfe des in Abschnitt 2.1 genannten Effektiven Fallenpotentials V_{eff}^* [Wel98] durch Gradientenbildung dargestellt werden - hier die Kraft in r-Richtung:

(2.21)
$$\vec{F}_{Falle,r} = -gradV_{eff,r}^* = -grad\left(\frac{Q^2 V_0^2}{4mr_0^2 \Omega^2} \left(\frac{r}{r_0}\right)^2\right) = -\frac{Q^2 V_0^2}{2mr_0^4 \Omega^2} r \cdot \vec{e}_r.$$

An einem dielektrischen Partikel mit der Polarisierbarkeit α wird im elektrischen Feld \vec{E} des Lasers ein Dipolmoment $\vec{p} = \alpha \vec{E}$ induziert. Die **Clausius-Mosotti-Gleichung** liefert einen Zusammenhang zwischen der Polarisierbarkeit und der Permittivität ε_r (Dielektrizitätszahl) des Materials (N ist die Dipoldichte, m_{eff} der effektive Brechungsindex und ε_0 die elektrische Feldkonstante):

$$\alpha = \frac{3\varepsilon_0}{N} \left(\frac{(\varepsilon_r - 1)}{(\varepsilon_r + 2)} \right) \quad \text{mit} \qquad \varepsilon_r = m_{eff}^2 \,.$$

Aus diesen Überlegungen leitet sich die sogenannte **Gradientenkraft** F_{Grad} ab, die in der Regel zum Punkt des größten Feldgradienten (Laserfokus) zeigt [Gri00]:

(2.22)
$$\vec{F}_{Grad} = \left(\vec{p} \cdot \vec{\nabla}\right)\vec{E} = 2\pi a^3 \varepsilon_0 n_{umg}^2 \left(\frac{m_{eff}^2 - 1}{m_{eff}^2 + 2}\right)\vec{\nabla}E^2$$

Die Kräfte \vec{F}_{neg_Photo} und \vec{F}_{pos_Photo} sind **photophoretische Kräfte**, die auftreten, wenn eine verstärkte lokale Erwärmung im hinteren oder vorderen Partikelbereich erfolgt. Der Temperaturgradient verursacht dann eine Strömung des Umgebungsgases, mit der eine Kraftwirkung auf das Teilchen einhergeht. Bei Drücken kleiner $10^{-2} mbar$ liegt bereits molekulare Strömung vor (siehe Abschnitt 2.3). Da die Drücke bei den durchgeführten Experimenten $< 10^{-5} mbar$ sind, haben diese Kräfte eine untergeordnete Bedeutung. Die verschiedenen Kräfte, die auf ein gespeichertes Partikel einwirken, können nun berechnet werden. Inwieweit sie sich gegenseitig kompensieren und welche Beeinflussungsmöglichkeiten der Experimentator im Hinblick auf eine erfolgreiche Langzeitspeicherung hat, soll im nächsten Abschnitt geklärt werden. Dort erfolgen konkrete zahlenmäßige Abschätzungen zu den verschiedenen oben genannten Größen. Dabei werden spezielle Eigenschaften der in den Experimenten verwendeten Siliziumdioxid-Partikel berücksichtigt.

2.5 Konkrete Abschätzungen für SiO₂-Partikel

Ein Siliziumdioxid-Partikel hat bei einer Wellenlänge von $\lambda = 10,6\mu m$ einen Brechungsindex n = 2,224 und einen Absorptionskoeffizienten k = 0,102, was in einem komplexen Brechungsindex $m = 2,224 - i \cdot 0,102$ resultiert [Pal98]. Die Temperatur, die ein solches Teilchen (Radius a = 250nm) im Strahlungsfeld eines CO₂-Lasers theoretisch erreichen sollte, kann mit Gleichung 2.17 abgeschätzt werden. Hat ein einzelnes gespeichertes Partikel eine bestimmte Temperatur, so emittiert es ständig Energie in Form von Wärmestrahlung (Gleichung 2.16). Wegen der geforderten Einhaltung der Leistungsbilanz muß ein Äquivalent dieser Strahlungsleistung auch ständig zugeführt werden, was schließlich zu einem thermischen Gleichgewicht führt. Erst wenn der Zustrom von Leistung P_{Absorb} gleich dem Abgang thermischer Strahlungsleistung P_{Therm} ist, kann sich eine konstante Gleichgewichtstemperatur einstellen. Kühlmechanismen, wie etwa durch Stöße mit dem Umgebungsgas werden hier vorerst außer acht gelassen.

Die absorbierte Leistung bei einer konkreten Wellenlänge ergibt sich mit dem Absorptionsvermögen $Q_{abs,P}$ aus Gleichung 2.13 zu:

(2.23)
$$P_{Absorb} = Q_{abs,P} \cdot I_{Laser} \cdot A_{Partikel} = \frac{8\pi a}{\lambda} I_{Laser} \cdot A_{Partikel} \operatorname{Im}\left[\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right]$$

 I_{Laser} ist die Intensität des Heizlasers, $A_{Partikel}$ die bestrahlte Fläche des Partikels. Einsetzen in Gleichung 2.17 ergibt die Gleichgewichtstemperatur für $\lambda = 10,6\mu m$:

(2.24)
$$T = \sqrt[5]{I_{Laser} \cdot A_{Partikel} \cdot \frac{1}{768} \frac{h^4 c^3}{\pi^2 a^2 k^5 \lambda} [\zeta(5)]^{-1}} \approx 18192.2 \cdot \sqrt[5]{I_{Laser} \cdot A_{Partikel} \cdot \left[\frac{K^5}{W}\right]}.$$

Die Absorption elektromagnetischer Strahlung ist für SiO₂ bei einer Temperatur von 300K in der Nähe der Wellenlänge $\lambda = 10,6\mu m$ besonders hoch. Ein weiteres Maximum findet man für ultraviolettes Licht um $\lambda = 100nm$. Im übrigen Spektralbereich sind die Absorptionen außerordentlich schwach [Pal98].

In Gleichung 2.24 wird das hohe Absorptionsvermögen bei $\lambda = 10,6\mu m$ (das gleich dem Emissionsvermögen ist - siehe Gl. 2.11) für alle Wellenlängen gleichermaßen angenommen. Dies bedeutet, daß es sich - zumindest im Bereich nicht zu hoher Temperaturen - um eine Minimalabschätzung handelt. Die tatsächlich erreichte Temperatur sollte unter diesen Bedingungen um einiges größer sein. Leider stehen keine Unterlagen zur Temperaturabhängigkeit des komplexen Brechungsindex von Siliziumdioxid zur Verfügung. Für hohe Temperaturen (>1000*K*) ist die Abschätzung nach Gleichung 2.24 voraussichtlich nicht mehr zuverlässig, da der Brechungsindex temperaturabhängig ist und sich damit erfahrungsgemäß das Emissionsvermögen mit steigender Temperatur verbessert. Dies bedeutet, daß das Partikel besser Wärme abstrahlen kann, was wiederum zu einer geringeren Gleichgewichtstemperatur führt als berechnet. In Abbildung 2.5 ist die minimal erreichbare Partikeltemperatur in Abhängigkeit von der Intensität des Heizlasers dargestellt. Außerdem kann der Grafik die Strahlungsleistung der thermischen Emission eines Partikels bei einer bestimmten Temperatur entnommen werden (in $4\pi \cdot sr$).

Von Interesse ist nun, mit welchem Photonensignal man bei der Detektion der thermischen Strahlung eines Partikels (a = 250nm) tatsächlich rechnen kann. Der Nachweis soll im sichtbaren Bereich des Lichtes erfolgen. Die spektrale Strahlstärke in Abbildung 2.6 wurde entsprechend der optischen Auflösung eines Spektrometers der Firma Ocean Optics nach Gleichung 2.14 und mit $\Delta \lambda = 5nm$ berechnet.



Abb. 2.5: Partikeltemperatur (Gl. 2.24) und -strahlungsleistung (Gl. 2.16) bei Laserheizung (a = 250nm).



Abb. 2.6: Spektrale Strahlstärke der Emission eines einzelnen Partikels (a = 250nm).

Dieses Gitterspektrometer benötigt für einen Count laut Hersteller 86 Photonen. Um die zu erwartenden Counts pro Sekunde abschätzen zu können, wurde die Strahlstärke in Photonen ($E_{Photon} = hc/\lambda$) pro Sekunde ausgedrückt. Sie ist in Abbildung 2.7 zu sehen.



Abb. 2.7: Zahl der Photonen, die theoretisch emittiert werden und Counts pro Sekunde.

Abbildung 2.7 gibt die Zahl der Photonen wieder, die ein Teilchen theoretisch bei einer festen Temperatur in einem Bereich von 5nm um eine bestimmte Wellenlänge emittieren sollte. So ist mit diesem Spektrometer z.B. bei einer Partikeltemperatur von 1000K und bei der Wellenlänge $\lambda = 600nm$ ein Signal von ca. 5000Counts / s zu erwarten, wenn der erfaßte Raumwinkel 1sr beträgt.

Ebenso wie die thermische Strahlungsleistung kann die **Gaskühlungsleistung** für ein Partikel (a = 250nm) in einer Stickstoffumgebung abgeschätzt werden (Gleichung 2.19). Dies wurde exemplarisch für einige Druck-Partikeltemperatur-Kombinationen durchgeführt (Umgebungstemperatur $T_{Gas} = 300K$):

Tab. 2.2:	Temperatur / K	Druck / mbar	Leistung / pW
Gaskühlung durch Stöße	500	10 ⁻²	249
mit Stickstoffmolekülen.	500	10 ⁻⁵	0,249
	1000	10^{-2}	872
	1000	10 ⁻⁵	0,872

Die **Streukraft des CO₂ Lasers**, für ein Partikel mit oben beschriebenen Eigenschaften, wurde mit Gleichung 2.20 für einige beispielhafte Laserintensitäten abgeschätzt. Die nachfolgende Tabelle zeigt Beschleunigungen, die ein Teilchen mit einer Masse von 130 fg erfährt - in Einheiten der Fallbeschleunigung g:

Tab. 2.3:	Intensität I_0 / Wm^{-2}	Beschleunigung / g
Beschleunigung aufgrund.	10 ⁴	$8 \cdot 10^{-6}$
der Streukraft des Lasers.	10 ⁵	$8 \cdot 10^{-5}$
	10 ⁸	$8 \cdot 10^{-2}$

Die **Kraft**, die das **Effektive elektrische Potential** der Falle auf ein solches Partikel ausübt, wurde mit Gleichung 2.21 abgeschätzt. Gerechnet wurde für eine Auslenkung des Teilchens von 100 μm bei verschiedenen Ladungszuständen und Fallenfrequenzen $(V_0 = 1,5kV, m = 1,3 \cdot 10^{-16} kg, r_0 = 11,00mm)$:

T 1 0 4			
1ab. 2.4:	Fallenfrequenz	Ladung / $+e$	Beschleunigung / g
Beschleunigung durch	Ω/Hz		
die rücktreibende Kraft	$2\pi \cdot 300$	10	0,0335
des Effektiven Potentials.	$2\pi \cdot 300$	100	3,3477
	$2\pi \cdot 2000$	10	0,0008
	$2\pi \cdot 2000$	100	0,0753

Durch Vergleichen von Tabelle 2.2 mit Abbildung 2.5 wird deutlich, daß bereits bei Drücken kleiner 10^{-4} mbar die Gaskühlungsleistung gegenüber der Kühlung durch Wärmestrahlung vernachlässigt werden kann. Der dominierende Kühlmechanismus ist unter diesen Bedingungen die Emission thermischer Strahlung. Die Strahlungsleistung eines einzelnen Partikels (a = 250nm) beträgt bei einer Laserintensität von $10^5 W / m^2$ etwa 0.3nW, wenn eine Emission in den Raumwinkel 1sr angenommen wird.

Die Teilchenbeschleunigung durch die Streukraft des CO₂-Lasers (Tabelle 2.3) ist nur bei sehr hohen Laserintensitäten von Bedeutung. Die rücktreibende Kraft der Falle bewirkt beim Partikel selbst für kleine Bahndurchmesser eine Beschleunigung (Tabelle 2.4), die nur dann in der gleichen Größenordnung liegt, wenn das Partikel schwach geladen und die Fallenfrequenz sehr hoch gewählt ist. Photophoretische Kräfte sind in jedem Fall vernachlässigbar. Die maximal erreichbare Laserintensität beträgt ca. $I_0 = 1,81 \cdot 10^9 W/m^2$ (siehe Abschnitt 4.1). Unterhalb von $10^6 W/m^2$ dürfte einer stabilen Speicherung aber vorerst nichts im Wege stehen.

Alle Abschätzungen wurden für einzelne gespeicherte Siliziumdioxid-Partikel im Rayleigh-Bereich gemacht. Als Zusammenfassung sind hier noch einmal die wichtigsten Größen erklärt und es sind typische Werte angegeben:

$\lambda = 10,6\mu m$	Wellenlänge des CO ₂ -Lasers
$2 \cdot V_0 = 1, 01, 7kV$	Spannungsamplitude der Fallenwechselspannung *
$m=1,3\cdot10^{-16}kg$	Durchschnittliche Masse eines SiO ₂ -Teilchens
$r_0 = 7,78mm$	Charakteristische Länge der Falle (ideal: Ringradius)
a = 250nm	Teilchenradius
Q = 10500e	Ladung des Partikels in positiven Elementarladungen
$\Omega = 2\pi \cdot (3002300) Hz$	Fallenkreisfrequenz
$p = 10^{-5} \dots 10^{-9} mbar$	Druck in der Vakuumkammer
$I_0 = 10^4 \dots 10^7 W / m^2$	Intensität des CO ₂ -Lasers

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

3.1. Experimentieranordnung

Die Versuchsanlage besteht im wesentlichen aus einem Gestell, auf dem ein CO₂-Laser und optische Komponenten zur Justage plaziert sind, und dem Fallengestell mit UHV-Kammer und Nachweissystem. Diese Anordnung befindet sich innerhalb eines Raumes, der während der Messung im allgemeinen nicht mehr betreten werden muß, d.h. die Meßdatenerfassung und die Steuerung des Experiments erfolgen von einem Kontrollpult außerhalb des Experimentierzimmers. Auf diese Weise können Störeinflüsse wie Erschütterungen und störendes Umgebungslicht vermieden werden.



Abb. 3.1: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus (alle Angaben in mm).

Die Quadrupolfalle

Wie schon in der Einleitung erwähnt, kann mit Hilfe einer relativ einfachen Elektrodengeometrie eine Vierpolfalle realisiert werden [Bea86]. Diese Geometrie kann dabei stark von der idealen Paulfalle (siehe Abb. 2.1) abweichen. Besonderes Interesse gilt immer dem Bereich des elektrischen Potentials, das sich im Fallenzentrum befindet, d.h. dort wo sich das Teilchen tatsächlich bewegt. Dieser Bereich hat in unserer Anordnung für gewöhnlich eine Ausdehnung von weniger als einem Millimeter in alle drei Raumrichtungen. Sind also im Zentrum die Linearitätsbedingungen gut erfüllt, kann man die Falle dort als annähernd ideal quadrupolar betrachten. Die innerhalb unserer Arbeitsgruppe entworfene Elektrodengeometrie besteht aus zwei konischen Polkappen und acht ringförmig angeordneten Stangen (Durchmesser des Käfigs ca. 25mm), die in ihrer Überlagerung den sonst üblichen Ring bilden. Sie wurde bereits von Illemann und

Abb. 3.2:

Quadrupolfalle mit spezieller Anordnung der Elektroden. Die acht Stangen bilden zusammen den sonst üblichen Ring. Die hyperbolischen Äquipotentialflächen der idealen Paulfalle sind angedeutet.



Wellert verwendet und ausführlich charakterisiert [Ill00]. Die Vorteile einer solchen Konstruktion liegen in der hohen Transparenz der Anordnung. Da in den Polkappen zentrische Bohrungen vorhanden sind, ist die Falle aus vielen Richtungen frei zugänglich. Die Ersetzung des Ringes durch Stangen bietet ideale Voraussetzungen für Streulichtexperimente und eine nahezu ungestörte Bestrahlung des Partikels mit langwelligem Laserlicht. Absorptionen des Lichtes und Reflexionen am Fallenkörper können bei guter Justage vermieden werden. Eingebettet sind die Elektroden in ein Gehäuse aus Kupfer (siehe Abb. 3.3). In diesem Gehäuse befinden sich weiterhin eine Laserdiode [1, Abb. 3.3] mit passender Fokussieroptik, ein dieser gegenüberliegender Lichtsumpf und eine Verdampferquelle [2]. Als Teilchenquelle [3] dient ein Lautsprecher, der von unten an das Gehäuse angebracht ist und die Partikel durch die Bohrung in der Polkappe ins Falleninnere schleudert. Ein levitiertes Partikel kann durch Elektronen aufgeladen werden, die man in vertikaler Richtung durch die obere Polkappe einstrahlt. Beim Auftreffen des Lichtes der roten Laserdiode ($\lambda = 685nm$) auf ein Partikel wird dieses gestreut. Das Streulicht wird mit Hilfe von Glaslinsen [4] gebündelt und kann wahlweise in 45° Vorwärtsrichtung oder in Rückwärtsrichtung detektiert werden. In der Richtung senkrecht zur Detektionsrichtung befinden sich zwei Zinkselenidlinsen [5] am Fallenkörper, die der Fokussierung des CO₂-Laserstrahls dienen.



Abb. 3.3: Das Fallengehäuse. Die Lage der Vierpolfalle ist transparent dargestellt.
 Grün eingezeichnet ist der Strahl des CO₂-Lasers durch die Falle hindurch.
 Der rote Kegel soll das Licht der Laserdiode symbolisieren.

Im Unterschied zur idealen Paulfalle haben die Elektroden eine nur endliche Ausdehnung und sind zudem nicht hyperbolisch geformt, was dazu führt, daß das Potentialfeld neben dem Quadrupolanteil immer auch höhere Multipolanteile enthält (Hexapol, Oktopol, Dekapol, ...), die zu Anharmonizitäten führen und die Genauigkeit der Massebestimmung unter Umständen beeinträchtigen. Deshalb wurde eine Charakterisierung der realen Falle - allerdings in liegender Position - bereits von Wellert [Wel98] und Illemann vorgenommen [Ill00].

In allen Experimenten wurde unser Vierpolspeicher einphasig betrieben, wobei die Stangenelektroden auf Erdpotential und die Polkappen auf Wechselspannungspotential geschaltet wurden. Typischerweise wurde bei Fallenkreisfrequenzen von $\Omega = 2\pi \cdot 300...2\pi \cdot 2300Hz$ und Spannungsamplituden von $2V_0 = 1,0...1,7kV$ gearbeitet.

Der CO₂-Laser

Benutzt wurde ein Laser der Firma SYNRAD, der für den industriellen Einsatz gebaut ist. Folgende Angaben werden vom Hersteller gemacht:

Wellenlänge	10,57 bis 10,63µm
Ausgangsleistung	Max. 25W
Leistungsstabilität	$\pm 5\%$
Modenqualität	TEM00-äquivalent: 95%
Strahldurchmesser $2\omega_0$ / Divergenz	3,5mm / 4mrad
Polarisation	Linear-vertikal 50:1 min. Extinktion

Die Anregung des aktiven Mediums (Gasgemisch aus He, N₂ und CO₂) erfolgt im Laser mit Hilfe von Gasentladungen. Die zur Zündung benötigte Hochspannung wird innerhalb des Lasers aus den 30V der Spannungsversorgung hochtransformiert. Ein Pulsgenerator sorgt für einen Abstand von $200\mu s$ (5*kHz*) zwischen den elektrischen Zündpulsen. Über die Variation der Länge der Pulse kann die Laserausgangsleistung geregelt werden. Ein Puls muß eine Mindestdauer von $1\mu s$ haben, um einen zuverlässigen Betrieb zu gewährleisten. Dies entspricht dann einer Ausgangsleistung von ca. 0,5 Watt. Sehr kleine Leistungen können nicht einfach durch die Einstellung beliebig kurzer Pulsweiten realisiert werden. Nach Beendigung eines Zündpulses klingt die Anregung nicht sofort ab. Es finden immer noch Laserübergänge im Plasma statt, weshalb man von einer quasikontinuierlichen Arbeitsweise des Lasers spricht.

Die Fokussierung infraroter Strahlung erfordert spezielle Linsen, die möglichst wenig von diesem Licht absorbieren. Für unsere Anlage stehen zwei Zinkselenidlinsen mit einer Brennweite von f = 25,4mm zur Verfügung, die direkt an das Fallengehäuse montiert wurden. Um bei stabiler Arbeitsweise des Lasers kleine Intensitäten am Ort des gespeicherten Partikels bereitzustellen, wird zeitweise zusätzlich in den Strahlengang eine weitere defokussierende ZnSe-Linse integriert, die den Brennpunkt aus der Fallenmitte heraus verschiebt:



Abb. 3.4: Strahlengang des infraroten Laserlichts in der Falle (Vergrößerter Ausschnitt von Abb. 3.1).

Bei direkter Fokussierung des Laserstrahls mit der am Fallengehäuse befindlichen Linse (f = 25, 4mm) ergibt sich für den Versuchsaufbau aufgrund der Gauß'schen Strahleigenschaften im Fallenzentrum ein Strahldurchmesser von $110\mu m$ (siehe Abschnitt 4.1). Verwendet man zusätzlich die 63,0mm-Linse (Abbildung 3.4), so wird der Brennpunkt aus dem Fallenzentrum heraus verschoben und der Lichtkegel des Laserstrahls hat am Teilchenort einen berechneten Durchmesser von 1,84mm. Leistungsverluste durch Reflexionen an den optischen Elementen (Linsen und Fenster) werden bei der konkreten Abschätzung der Intensitäten und Leistungen in Abschnitt 4.1 berücksichtigt. Allein die verwendete Blende (siehe Abbildung 3.1) schwächt den Laserstrahl bereits auf 10% seiner Ausgangsleistung ab. Die defokussierende Linse bewirkt eine weitere fast 300-fache Abschwächung der Laserintensität am Teilchenort und garantiert dabei gleichzeitig eine zuverlässige Arbeitsweise des CO₂-Lasers.

Nachweissystem

In den Gleichungen 2.8 sind die Bewegungsfrequenzen eines elektrodynamisch levitierten Teilchens dargestellt, bei deren Kenntnis man das Verhältnis von Ladung zu Masse (Q/m-Verhältnis) bestimmen kann. Eine effektive Möglichkeit, diese Frequenzen zu bestimmen, ist die Streulichtmethode. Ein Partikel, das sich im Lichtkegel eines fokussierten Laserstrahls bewegt, erzeugt ein Streulicht, das mit den Bewegungsfrequenzen und seinen höheren Harmonischen moduliert ist [Wel98]. Das Licht wird zeitaufgelöst detektiert und anschließend wird eine Fast Fourier Transformation (FFT) durchgeführt. Auf diese Weise können die Bewegungsfrequenzen zerstörungsfrei und *in situ* ermittelt werden.

In das Fallengehäuse ist eine Laserdiode ($\lambda = 685nm$) mit einer fokussierenden Optik integriert, die die vollständige Trajektorie eines gespeicherten Teilchens im Fallenzentrum ausleuchtet. Das Streulicht wird mit einer Avalanche-Photodiode (APD) in 45° Vorwärtsrichtung detektiert (siehe Abb. 3.5 und Abb. 3.1).



Zur Signalabschätzung wird die Streutheorie von Mie angewandt [Hul81]. Die räumliche Intensitätsverteilung des Streulichts ist abhängig von der Partikelgröße und vom Brechungsindex des Teilchenmaterials bei der Wellenlänge des Lichtes. In Abbildung 3.6 sind von van de Hulst [Hul81] übernommene Intensitäten i_1 und i_2 des Streulichts einer Kugel in Abhängigkeit vom Beobachtungswinkel dargestellt.



Abb. 3.6: Streulicht einer Kugel (Brechungsindex n = 1,5; Mie-Parameter x = 2,25).

Für die Wellenlänge der Laserdiode ergibt sich bei einer Siliziumdioxidkugel mit dem Radius a = 250nm ein Größenparamter x = 2,29 und ein Brechungsindex n = 1,45. Diese Werte sind in etwa vergleichbar mit denen in Abbildung 3.6. Hier erkennt man die starke Ausprägung der Streulichtintensität in Vorwärtsrichtung. Die Intensitäten des senkrecht und des parallel polarisierten Lichtes (Abbildung 3.6) unterscheiden sich im detektierten Winkelbereich nur unwesentlich. Das Licht der Laserdiode ist polarisiert, deshalb kann die Fläche unter der Kurve i_2 mit der auf die Partikelfläche auftreffenden Intensität I_0 normiert werden, da diese wiederum vollständig in den Raum zurückgestreut wird (Absorptionen werden vernachlässigt). Mit Hilfe von numerischer Integration wird ebenfalls die Fläche unter dem erfaßten Winkelbereich (siehe Abbildung 3.5) ermittelt und zu der vorherigen ins Verhältnis gesetzt. Es ergibt sich daraus eine Intensität von $0,530 \cdot I_0$ (53,0%) für den Detektionswinkelbereich. Der erfaßte Winkelbereich entspricht einem Raumwinkel der Größe 4,25sr. Dies ergibt sich aus einfachen geometrischen Rechnungen mit Kugelflächenabschnitten. Die Detektionslinse hat einen Abstand von 2,4cm zum Fallenmittelpunkt und einen Durchmesser von 2,3cm. Der vom Detektor erfaßte Raumwinkel beträgt deshalb 0,77sr. Es werden demzufolge wiederum ca. 18% der in den Winkelbereich gestreuten Intensität detektiert. Konkret ergeben diese Abschätzungen z.B. für $I_0 = 10mW / mm^2$ und bezogen auf den geometrischen Streuquerschnitt des Partikels die detektierte Streulichtleistung: $P_{Det} = 0.53 \cdot 0.18 \cdot I_0 \cdot \pi (250 nm)^2 \approx 190 \, pW$. In einer APD entsteht bei Auftreffen einzelner Photonen eine Lawine, die ein verstärktes elektrisches Stromsignal zur Folge hat. Die Firma Hamamatsu gibt für die APD eine Faustformel zur Berechnung des Spannungssignals an, in der die Sensitivität, das APD-Gain und das Verstärker-Gain enthalten sind: $V_{out} = P_{Det} \cdot 0.5A/W \cdot 30 \cdot 10^7 V/A$. Mit dieser Formel ergibt sich für das obige Beispiel eine Ausgangsspannung von ca. 30mV. Durch einen zusätzlichen Signalverstärker wird das Ausgangssignal der APD tausendfach verstärkt. Berücksichtigt man die Verluste, die durch Reflexionen an der Optik und vor allem am Strahlteiler entstehen (Abbildung 3.1), kann man insgesamt ein Signal von ca. 5-10Verwarten. Tatsächlich betrug die Signalstärke in den Experimenten etwa 2-3V.
Es wird in der Abschätzung ein rundes Teilchen vorausgesetzt, dessen hinreichend kleine Trajektorie vollständig vom Diodenlaser beleuchtet und dessen Streulicht vom Detektor erfaßt wird. Das Grundprinzip der Frequenzermittlung durch den Streulichtnachweis beruht auf der Überlegung, daß sich ein Partikel im Intensitätsgradienten des kollimierten Laserstrahls bewegt und somit das Streulicht moduliert. Wie das Streulichtsignal weiter aufbereitet wird und welche Informationen man daraus gewinnt soll im folgenden Abschnitt unter anderem geschildert werden.

3.2. Automatisierte Datenerfassung & Steuerung

In diesen Experimenten wird angestrebt, Langzeitmessungen bis hin zu Zeiträumen von Wochen durchzuführen, um Aufschluß über das Verhalten eines Teilchens unter verschiedensten Bedingungen zu erlangen. Beispielsweise können die Temperatur, der Druck oder die Zusammensetzung des Gases in der UHV-Kammer variiert werden. Ebenfalls bekommt man durch Langzeitmessungen wichtige Informationen über mögliche Driften einzelner Parametergrößen. Um dieses Ziel zu erreichen, wurde bei unseren Arbeiten großer Wert auf die automatisierte Erfassung möglichst vieler, das Gesamtexperiment charakterisierender Daten gelegt. Im Mittelpunkt steht dabei ein Personalcomputer, der als Informationsknotenpunkt nicht nur viele Daten erfassen, sondern auch selbständig auf den Ablauf des Experiments Einfluß nehmen soll. Es gibt zu diesem Zweck einige Schnittstellen, mit deren Hilfe dem Computer die Kommunikation mit seiner Umgebung gestattet ist. In Abbildung 3.7 ist schematisch der Aufbau der Datenerfassungsanlage dargestellt. Die Grafik soll verdeutlichen, daß der Computer einzelne Geräte auslesen und diesen auch fast gleichzeitig neue Befehle übermitteln kann. Mit dem gezeigten Aufbau ist es unter Verwendung der grafischen Programmiersprache LABVIEW von National Instruments möglich, sehr komplexe zeitliche Abläufe relativ einfach zu steuern. Dabei werden einzelne Steuer- oder Meßereignisse in Modulen (sogenannte Virtual Interfaces - VI's) programmiert und diese wiederum zu einem Gesamtablauf zusammengefaßt, was gegenüber herkömmlichen textorientierten Programmiersprachen den Vorteil einer erheblich verbesserten Übersichtlichkeit bietet.



Abb. 3.7: Schema der kompletten Versorgung und Datenerfassung der Anlage.

Das von der Avalanche-Photodiode detektierte Streulichtsignal des gespeicherten Partikels wird von einer Analog-Digital-Box der Firma Keithley (ADWIN-Box) ausgelesen und gepuffert direkt an eine Einsteckkarte im PC weitergegeben. Dort erfolgt, synchronisiert mit dem Auslesevorgang, die Fast Fourier Transformation (FFT) der Daten. LABVIEW stellt standardmäßig eine FFT-VI zur Verfügung. Diese wurde in unserer Gruppe zur Verwendung etwas modifiziert bzw. erweitert. Somit können bis zu zwei Millionen Punkte pro Frequenzspektrum realisiert werden. Eine hohe Auflösung der Frequenzen im Spektrum hat zwangsläufig eine längere Meßzeit zur Folge, was wiederum die Möglichkeit der Erfassung schnell ablaufender Prozesse einschränkt. Hier muß ein Kompromiß eingegangen werden zwischen Schnelligkeit und Genauigkeit der Frequenzmessung (siehe Abschnitt 4.2). Aus den einzelnen Spektren werden mit Hilfe einer in LABVIEW integrierten Peakbestimmungsroutine die stärksten Frequenzen herausgesucht und in einer Textdatei abgelegt. Die zu den Frequenzen gehörenden Peakhöhen werden jeweils in einem zweiten Datenblock angehängt. Ein dritter Datenblock enthält die nach Gleichung 2.8 berechneten Q/m-Werte. Es kann also während der Messung direkt das Ladung-zu-Masse-Verhältnis der gespeicherten Teilchens verfolgt werden.

Meßzeit / µs	Frequenzen / Hz	Peakhöhen der	$\frac{Q}{2}$ -Werte / $\frac{mC}{mC}$	
	(maximal 13)	Frequenzen	m kg	
t1	f1 f2 f3 f13	h1 h2 h3 h13	qm1 qm2 qm13	
t2	f1 f2 f3 f13	h1 h2 h3 h13	qm1 qm2 qm13	
t3				

Abb. 3.8: Layout der vom Meßprogramm erzeugten FFT-Textdateien.

Die Daten der jeweils gemessenen Einzelspektren werden fortlaufend an die FFT-Textdatei angehängt, was es theoretisch ermöglicht, über Zeiträume zu messen, die nur durch die Festplattenkapazität begrenzt sind. Wie in der Abbildung 3.8 zu erkennen ist, wird der genaue Zeitpunkt der Messung eines Einzelspektrums ebenfalls protokolliert, was die zeitliche Korrelation mit weiteren gemessenen Größen gestattet. So wird parallel zu den FFT-Daten die Temperatur direkt am Fallenkörper fortlaufend mit einem kalibrierten Platinwiderstand Pt2000 gemessen. Die Druckmessung in der Vakuumkammer erfolgt über eine Bayard-Alpert-Röhre, die von einem Controller der Firma Arun Microelectronics Ltd. (AML) gesteuert wird. Der Druck wird, über die Messung eines äquivalenten Spannungsoutputs, dem Computer übergeben. Die Leistung des CO₂-Lasers wird mit einem LaserMate10-Detektor der Firma Coherent ermittelt, der ebenfalls einen Ausgang mit einem Spannungsäquivalent zur Verfügung stellt. Der LaserMate10 hat einen sogenannten Thermodisk-Sensor, der die Wärme radial auf die am Rand befindlichen Thermoelemente leitet und damit unempfindlich für die Laserstrahlposition ist. Es wird weiterhin ein Effektivwert der Wechselspannung der Fallenversorgung gemessen, der vom Programm vor der Ausgabe in die Datei direkt in den wahren Amplitudenwert umgerechnet wird. Die Frequenz der Fallenversorgung wird durch einfaches Auslesen des eingestellten Wertes am Funktionsgenerator protokolliert. Alle Größen werden jeweils mit dem exakten Zeitpunkt ihrer Messung gespeichert. Die unter LABVIEW entwickelten Programme gestatteten das Ein- und Ausschalten des Lasers und der Elektronenkanone in vorgegebenen Zeitintervallen. Gegebenenfalls kann dabei auch die Intensität des Lasers über die Regelung der Pulsweite, die Intensität des Elektronenstrahls über eine Änderung der Stromstärke am Wolfram-Filament und die Einstellung der Fallenfrequenz computergesteuert erfolgen. Zur Erleichterung der Auswertung wurde mit DELPHI 3.0 von Borland ein Plot-Programm implementiert, das die jeweiligen Teilchenfrequenzen bzw. Q/m -Werte über der Meßzeit darstellt und diesen dabei entsprechend der Peakhöhe einen farblichen Akzent überlagert (starker Peak = dunkelrot, schwacher Peak = grün). Auf diese Weise können schnell sogenannte ,maps' im Bitmap-Format grafisch dargestellt werden. Zur weiteren Erleichterung ist es mit diesem Programm möglich, interessante Frequenzfolgen zu markieren und in eine gesonderte Datei zu extrahieren. Abgerundet wird die Datenerfassung durch die Anbindung des Rechners ans Internet. Durch die Einrichtung eines LABVIEW Web-Servers können jederzeit die laufenden Messungen verfolgt und einzelne Parameter kontrolliert werden, was besonders die Durchführung von Langzeitmessungen erheblich komfortabler gestaltet.

Kapitel 4

Vorexperimente

Nach der Behandlung der theoretischen Grundlagen und einer Einführung in die experimentellen Gegebenheiten werden in diesem Kapitel wichtige Vorexperimente geschildert. Zum einen wird die Arbeitsweise des CO₂-Lasers, der für die Aufheizung eines einzelnen gespeicherten Partikels vorgesehen ist, genauer untersucht. Zum anderen wird auf die Genauigkeit der Partikelmassebestimmung mit der Methode des amplitudenmodulierten Streulichtnachweises eingegangen.

4.1 Charakterisierung des CO₂-Lasers

Die Kenntnis der Charakteristik des verwendeten Kohlendioxid-Lasers ist für die durchgeführten Messungen sehr wichtig. Allgemein besteht das aktive Medium eines solchen Gaslasers aus einem Gemisch von Helium, Stickstoff und Kohlendioxid, in dem eine Gasentladung gezündet wird. Durch Elektronenstoß werden Schwingungsniveaus im CO₂- und N₂- Molekül bevölkert (oberes Laserniveau). Die Entvölkerung des unteren Laserniveaus erfolgt hauptsächlich durch inelastische Stöße mit He-Atomen. Bei dem verwendeten Laser erfolgt die Leistungsregelung durch eine Änderung des Tastverhältnisses der Steuerpulse (siehe Abschnitt 3.1), die einen festen Abstand von $200\mu s$ bei veränderlicher Pulslänge haben. Um die quasikontinuierliche Arbeitsweise des Lasers zu überprüfen, wurde ein Teil des Laserlichtes mit Hilfe eines Strahlteilers ausgekoppelt und mit einem Quecksilber-Cadmium-Tellurid Detektor analysiert. Der stickstoffgekühlte HgCdTe-Detektor J15D12 der Firma Laser Components erlaubt den Nachweis von IR-Licht ($\lambda = 2..12 \mu m$) mit einer Zeitkonstante von $0.5 \mu s$. Das Spannungssignal des Detektors wurde bei einer Pulslänge von $10 \mu s$ mit einem Oszilloskop untersucht und bis zu einer zeitlichen Auflösung von weniger als $200 \mu s$ tatsächlich als kontinuierlich befunden. Zur Überprüfung der Leistungsstabilität wurde die Laserausgangsleistung über mehrere Stunden gemessen und statistisch aufbereitet. In Abbildung 4.1 sind Ausschnitte aus den Messungen zweier verschiedener Laserleistungen gezeigt, bei denen im Abstand von 20s jeweils ein Wert ermittelt wurde:



Abb. 4.1: Zeitlicher Verlauf der Ausgangsleistung des CO₂-Lasers und Darstellung der entsprechenden Häufigkeiten auftretender Leistungswerte (Verwendet wurde ein LaserMate10-Detktor der Firma Coherent).

Es ergibt sich unabhängig von der absoluten Laserleistung eine Schwankung von etwa $\pm 8\%$, was schlechter als die Angabe des Herstellers von $\pm 5\%$ ist.

Ebenfalls ist unmittelbar nach dem Einschalten des Lasers ein Einschwingverhalten feststellbar, das in Abbildung 4.2 verdeutlicht wird:



Abb. 4.2: Einschwingverhalten der Laserleistung beim Einschalten.

Besonders auffällig sind die extremen Leistungsschwankungen innerhalb der ersten 30 Minuten. Eine Wasserkühlung des Lasers brachte keine feststellbare Verbesserung. Der Effekt konnte erst dadurch abgeschwächt werden, daß der Laser zwischen zwei Einsätzen nicht komplett abgeschaltet, sondern nur auf eine kleinere Leistung geschaltet wurde. In Kapitel 6 (Abschnitt 6.2) wird die Verwendung eines computergesteuerten Regelkreises geschildert, der ungeachtet der großen Schwankungen die Durchführung sehr sensitiver Experimente erlaubt.

Um möglichst genaue Aussagen zur Laserintensität (Leistung pro Fläche) machen zu können, wurde die am Fallenkörper befindliche ZnSe-Linse (f = 25,4mm) für die Vorexperimente ausgebaut. Mit Hilfe des durch die Linse fokussierten Laserlichtes konnten kleine Löcher in Film-Negative gebrannt werden. Der Strahldurchmesser d im Fokus konnte so ermittelt werden: Nachdem die unabgeschwächte Laserleistung P_0 bestimmt war, wurde ein Film-Negativ in den Brennpunkt plaziert und der Laser eingeschaltet. Erst als die gesamte Leistung P_0 dahinter detektiert werden konnte, wurde der Laser ausgeschaltet. Durch Verschiebung des Film-Negativs entlang der Strahlrichtung im Bereich des Fokus wurden mehrere Löcher erzeugt, die dann mit Hilfe eines Lichtmikroskops vermessen werden konnten. Die Abbildung 4.3 zeigt ein solches Film-Negativ:



Eingebrannte Löcher in ein Film-Negativ (neun an der Zahl).

Abb. 4.3:

Die gemessenen Strahldurchmesser, bei Plazierung der ZnSe-Linse in einer Entfernung von 1,97*m* relativ zum Austrittsort des Lasers, betrugen $(110 \pm 5)\mu m$. Dabei ergaben die Messungen bei unterschiedlichen Leistungen P_0 (0,07 bis 1,40W) jeweils den gleichen Wert (zur Realisierung der kleinen Leistungen wurde mit einem Strahlteiler ein schwacher Probestrahl ausgekoppelt). Der theoretische Strahldurchmesser, der mit Hilfe der Gauß'schen Optik [Kle98] für gleiche Randbedingungen und für die vom Laserhersteller gemachten Angaben (siehe Abschnitt 3.1) berechnet wurde, beträgt nur $20,1\mu m$. Er weicht erheblich von dem experimentell ermittelten ab. Eine mögliche Ursache dafür ist, daß die reale Linse nur schlecht als dünne Linse behandelt werden kann und astigmatische Fehler aufweist.

Mit Hilfe der experimentell ermittelten Strahldurchmesser kann die vom Laser im Fokus ausgeleuchtete Fläche berechnet werden und zusammen mit der Laserausgangsleistung kann wiederum die Intensität des Strahles abgeschätzt werden. Der Querschnitt des Lasers wird hier - auch im Übereinstimmung mit der Form der gebrannten Löcher als kreisförmig angenommen. Der CO₂-Laser muß für die nachfolgenden Experimente teilweise stark in seiner Intensität abgeschwächt werden. Es werden zu diesem Zweck eine Blende und die schon in Abschnitt 3.1 ausführlich beschriebene defokussierende

Linse verwendet, die die ausgeleuchtete Fläche am Teilchenort auf $A = \pi \left(\frac{1,84}{2}mm\right)^2$ vergrößert.

Zuerst wird die Laserleistung durch die verwendete Blende (Abbildung 3.1) auf ein Zehntel ihres Anfangswertes abgeschwächt. Der Laserstrahl muß beim Durchgang durch die Vakuumkammer weiterhin ein ZnSe-Fenster (Zinkselenid: n = 2,403), dann zwei ZnSe-Linsen und zu guterletzt ein BaF₂-Fenster (Bariumfluorid: n = 1,46) passieren. Die Absorptionsverluste innerhalb von ZnSe- und BaF₂-Optiken sind für die Wellenlänge $\lambda = 10,6\mu m$ sehr gering. Eine nicht zu unterschätzende Rolle spielen aber Reflexionsverluste, die bei einem senkrechten Einfall des Laserstrahls auf ein ZnSe-Fenster (eine ZnSe-Linse) ca. 17% und auf ein BaF₂-Fenster ca. 4% betragen. Insgesamt wird die Laserintensität beim Durchgang durch die Anlage auf ca. 46% abgeschwächt allein durch Reflexionsverluste an der Optik. Dieser berechnete Verlustwert konnte experimentell gut bestätigt werden.

Bei Nutzung des Versuchsaufbaus mit der defokussierenden Linse berechnet sich der Durchmesser der vom Laser ausgeleuchteten (und als kreisförmig angenommenen) Fläche zu $d_2 = 1,84mm$. Die Intensität am Ort des Teilchens beträgt dort unter Berücksichtigung der Verluste durch die Blende und die Reflexionen an der Optik:

(4.1)
$$I_{0,Falle} = P_0[W] \cdot 0.1 \cdot (0.83)^3 \cdot 3.76 \cdot 10^5 W / m^2 \approx P_0[W] \cdot 2.15 \cdot 10^4 W / m^2$$
.

 P_0 ist die Ausgangsleistung des CO₂-Lasers von maximal 25W, was zu einer maximal erreichbaren Laserintensität im Fallenzentrum führt:

$$I_{0,Falle_{\rm max}} = 25 \cdot 2,15 \cdot 10^4 W / m^2 \approx 5,38 \cdot 10^5 W / m^2$$

Die Intensität läßt sich auch aus dem detektierten Signal hinter der gesamten Anlage $P_{0,Detekt}$ berechnen:

$$P_{0,Detekt} = 0.1 \cdot (0.83)^4 \cdot 0.96 \cdot P_0 \approx 0.046 \cdot P_0$$

$$I_{0,Falle} = P_{0,Detekt} [W] / (0.83 \cdot 0.96) \cdot 3.76 \cdot 10^5 W / m^2 \approx P_{0,Detekt} [W] \cdot 4.72 \cdot 10^5 W / m^2$$

Wird beispielsweise eine Leistung von 140mW hinter der Anlage detektiert, so ergibt sich eine Intensität von $6.6W/cm^2$. Mit Hilfe der Abbildung 2.5 und Gleichung 2.24 kann die Temperatur eines gespeicherten Partikels dann auf ca. 480K abgeschätzt werden. Die mit diesem Versuchsaufbau maximal erreichbare Teilchentemperatur läßt sich zu ca. 700K bestimmen.

Verwendet man den Versuchsaufbau ohne die defokussierende Linse und ohne die Blende, beträgt der Strahldurchmesser im Fallenzentrum ca. $d_1 = 110 \mu m$. Die Intensität ergibt sich dann mit der Laserleistung P_1 zu:

(4.3)
$$I_{1,Falle} = P_1[W] \cdot (0.83)^2 \cdot 1.05 \cdot 10^8 W / m^2 \approx P_1[W] \cdot 7.23 \cdot 10^7 W / m^2$$

Maximal erreicht man: $I_{1,Falle \max} = 25 \cdot 7,23 \cdot 10^7 W / m^2 \approx 1,81 \cdot 10^9 W / m^2$.

Diese Intensität würde auf jeden Fall extrem hohe Teilchentemperaturen (>1500K) gestatten, die in Abbildung 2.5 gar nicht mehr dargestellt sind..

Inwieweit sich die großen Schwankungen der Laserausgangsleistung auf die einzelnen Experimente auswirken, soll hier nicht vorweggenommen werden. Diese Problematik wird direkt in den entsprechenden Kapiteln geklärt.

4.2 Genauigkeit der Meßmethode

In der Einleitung wird erwähnt, daß ein Ziel dieser Arbeit die Bestimmung der Masse eines gespeicherten Teilchens und deren zeitlicher Änderung mit hoher Präzision ist. Im letzten Abschnitt von Kapitel 3 wird das Prinzip der Bestimmung des Q/m-Verhältnisses eines levitierten Partikels mit Hilfe der Streulichtmethode beschrieben. An dieser Stelle sollen nun Aussagen zur Genauigkeit dieser Meßmethode gemacht werden.

Die erste der beiden Gleichungen 2.8 lautet:

$$\omega_r = \frac{\sqrt{2}V_0}{2\Omega z_0^2} \frac{Q}{m}$$

Aus dieser Gleichung wird deutlich, daß zur Bestimmung des Q/m-Verhältnisses die Amplitude der Fallenversorgung V_0 , der geometrische Parameter z_0 , die Kreisfrequenz der Fallenversorgung Ω und die Bewegungsfrequenz des Teilchens ω_r (hier in radialer Richtung) von Bedeutung sind. Die Frequenz Ω wird mit einem quarzstabilisierten Frequenzgenerator erzeugt und weist selbst nach der Verstärkung keine drastischen Fehler auf. Der Abstandsparameter z_0 wird als konstant vorausgesetzt. Die Genauigkeit der Meßmethode hängt also im wesentlichen von der Qualität der Frequenzmessung und der Güte der Spannungsversorgung der Falle ab.

Die Abbildung 4.4 zeigt eine Messung der Bewegungsfrequenz $\omega_r / 2\pi$ eines Partikels über einen Zeitraum von vier Stunden nach dem in Kapitel 3 beschriebenen Verfahren. Dabei werden jeweils 32768 Meßwerte, die im Abstand von 250 μ s gemessen werden, an die FFT übergeben und zu einem Einzelspektrum fouriertransformiert. Dies entspricht einer Meßzeit von 8,192*s* pro Einzelspektrum, so daß in vier Stunden 1758 Frequenzwerte protokolliert werden. Die Berechnung der FFT erfolgt dabei jeweils parallel zur Datenerfassung – diese wird also nicht unterbrochen. In Abbildung 4.5 ist das zugehörige Histogramm gezeigt, das bei einer Intervallbreite von 2*mHz* die Verteilung der Frequenzen wiedergibt. Mit der eingefitteten Gauß-Kurve läßt sich die Standardabweichung zu ±5,4*mHz* bei einer mittleren Frequenz von 123,0457*Hz* bestimmen, was einer relativen Genauigkeit von ca. 4,4 · 10⁻⁵ entspricht.



Abb. 4.4: Messung der Bewegungsfrequenz (r-Richtung) eines gespeicherten Partikels. Die durchgezogene Linie ist ein linearer Fit, der eine Standardabweichung von $5,2 \cdot 10^{-3} Hz$ aufweist.





Die Amplitude der Fallenversorgung $2V_0$ wird ebenfalls bei der Messung in 20s-Abständen mitgeschrieben und ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Es resultieren aus einer vierstündigen Meßzeit 720 Spannungswerte. Deutlich sind relativ starke Spannungsschwankungen zu sehen, die von einer offensichtlichen Drift der Amplitude begleitet werden. In der Abbildung ist ebenfalls ein gleitender Mittelwert dargestellt, der jeweils über 500 Spannungswerte berechnet wird (adjacent averaging). Um den Einfluß dieser Drift genauer zu charakterisieren, werden gemäß Gleichung 2.8 die Frequenzen durch die entsprechenden gemittelten Spannungswerte geteilt. Hier wird die Bedeutung der exakten Protokollierung der Meßzeit deutlich. Da 1758 Frequenzwerte und nur 720 Spannungswerte zur Verfügung stehen, müssen die Frequenzen auf die Zahl der gemittelten Spannungen interpoliert werden. In Abbildung 4.7 ist das auf den ersten Blick verwunderliche Ergebnis zu sehen. Die Drift der Fallenspannung hat einen unübersehbaren Einfluß auf das ermittelte Q/m-Äquivalent. Die relativ konstante Teilchenfrequenz wird durch die driftende Versorgungsspannung dahingehend korrigiert, daß ein abfallendes Q/m-Äquivalent entsteht. Es handelt sich hier tatsächlich um einen späten Ausschnitt aus einer Adsorptionsmessung (siehe Kapitel 5), bei dem die Teilchenmasse noch zunimmt - entsprechend fällt das Q/m-Verhältnis ab. Das Beispiel zeigt, daß es nicht ausreicht, sich bei der Massebestimmung allein auf die gemessenen Sekulärfrequenzen des Partikels zu beziehen und die Versorgungsspannung als konstant anzunehmen. Der lineare Anteil, ebenfalls dargestellt in Abbildung 4.7, wird aus den berechneten ω_r / V_0 -Werten herausgerechnet, wodurch eine Standardabweichung von $\pm 3.1 \cdot 10^{-3} Hz/kV$ bei einem mittleren ω_r/V_0 -Wert von 75,1232Hz/kV ermittelt worden ist. Dies ergibt wieder eine relative Genauigkeit von 4,1 · 10⁻⁵, die gleichzeitig die Genauigkeit der Massebestimmung $\Delta m/m$ repräsentiert.



Abb. 4.6: Darstellung der driftenden Amplitude der Fallenversorgung. Die durchgezogene Linie ist ein gleitender Mittelwert über jeweils 500 Werte. Die relative Schwankung der Amplitude beträgt ca. 3,5 · 10⁻⁴.



Abb. 4.7: Frequenzen geteilt durch die Amplitude der Fallenversorgung.

Bei Verwendung einer FFT wird die Masseauflösung von der Meßzeit *T* begrenzt. In den Experimenten wird eine feste Anzahl von Meßpunkten in einer bestimmten Zeit erfaßt. Ein einzelner Spannungswert der verstärkten APD wird alle $\Delta t = 250 \mu s$ von der ADWIN-Box (siehe Abschnitt 3.2) ausgelesen und dort zwischengespeichert. Die maximal bestimmbare Frequenz (Nyquist-Frequenz) ist entsprechend

$$\frac{\omega_{\max}}{2\pi} = \frac{1}{2\Delta t} = 2kHz \; .$$

Bei 32768 Meßwerten ergibt sich eine Gesamtmeßzeit T je Einzelspektrum von 8,192s, welche wiederum den minimal detektierbaren Frequenzunterschied

$$\frac{\Delta\omega}{2\pi} = \frac{1}{T} \approx 0,122Hz$$
 vorgibt

Es resultiert eine maximal erreichbare Auflösung von $\frac{\Delta \omega}{\omega_{\text{max}}} = \frac{2\pi}{\omega_{\text{max}}T} \approx \frac{2\Delta t}{T} = 6,1 \cdot 10^{-5}$, wobei die Auflösung für Frequenzen $< \omega_{\text{max}}$ entsprechend geringer ist: $\frac{\Delta \omega}{\omega_{r,z}} = \frac{2\pi}{\omega_{r,z}T}$. Für die am Anfang des Abschnitts gezeigte Messung ergibt sich nach diesen einfachen Überlegungen eine Frequenzauflösung von $\frac{\Delta \omega}{\omega_r} = \frac{1}{123,0457Hz \cdot 8,192s} \approx 9,9 \cdot 10^{-4}$.

Experimentell wurde ein offensichtlich besserer Wert $4,4 \cdot 10^{-5}$ erreicht. Die Erklärung für die verbesserte Frequenzauflösung ist in der Peakerkennung zu finden (siehe Abschnitt 3.2). Der exakte Wert einer Bewegungsfrequenz wird unter Berücksichtigung der Peakhöhen von bis zu 20 angrenzenden Frequenzwerten aus einem FFT-Einzelspektrum (siehe Abbildung A.1) ermittelt. Dazu wird eine geeignete Fitfunktion verwendet, wodurch die Genauigkeit der Bestimmung der wahren Frequenz verbessert wird.

Aus den obigen theoretischen Ausführungen erkennt man, daß eine verlängerte Meßzeit T zu einer erhöhten Frequenzauflösung der FFT und damit gleichermaßen zu einer verbesserten Masseauflösung führt. Will man auf diese Weise Masseänderungen mit hoher zeitlicher Auflösung verfolgen, muß folglich ein Kompromiß zwischen Genauigkeit und Geschwindigkeit der Messungen eingegangen werden.

Kapitel 5

Vorgänge auf der Partikeloberfläche

5.1 Laserinduzierte Desorptionen

Die Massebestimmung eines einzelnen gespeicherten Partikels mit immer höherer Präzision ist eine Herausforderung, die bei den folgenden Experimenten stets im Vordergrund steht. Der Hauptschwerpunkt liegt im Aufbau einer Anlage, die eine schnelle und dabei möglichst genaue Bestimmung des Q/m-Verhältnisses (Ladung zu Masse) mit der Streulichtmethode (siehe Abschnitt 3.1) und im UHV erlaubt. Vor jeder Langzeitmessung wird das jeweils gespeicherte Partikel mittels eines Elektronenstrahls langsam hochgeladen. Beim Einfang trägt das Teilchen in der Regel wenige positive Ladungen (Q = +10..40e). Die mit 300V gepulst betriebene Elektronenkanone erzeugt auf dem Partikel zusätzliche positive Ladungen. Der diesem Prozeß zugrundeliegende Vorgang ist die Sekundärelektronenemission. Auf diese Weise kann eine stufenartige Änderung des Q/m-Verhältnisses beobachtet werden, die unter Zuhilfenahme des Absolutwertes der Elementarladung wiederum eine Bestimmung der absoluten Ladung und Masse des Teilchens erlaubt. Bei Kenntnis der absoluten Ladung des Partikels, die nach Abschluß der Umladungen in der Regel unverändert bleibt, kann nun mit Hilfe des in situ ermittelten Q/m-Verhältnisses (Streulichtmethode) fortlaufend die Änderung der absoluten Teilchenmasse bestimmt werden. Die relativen Masseänderungen liegen dabei im Sub-Femtogramm-Bereich bei einer durchschnittlichen Absolutmasse der Teilchen von etwa 130 Femtogramm (Teilchenradius $a \approx 250 nm$).

Der Ablauf der Messungen wird so gestaltet, daß mit Hilfe des CO₂-Lasers in festen Zeitintervallen eine Aufheizung des Partikels vorgenommen wird, um dieses von den auf seiner Oberfläche adsorbierten Molekülen zu befreien. Einer halb- bis einstündigen Heizperiode folgt immer eine Ruheperiode von sechs bis neun Stunden, in der sich wieder Moleküle an das Teilchen anlagern können. Die Experimente zeigen, daß es selbst mit relativ geringen Laserintensitäten um 1,1 bis 2,7 W/cm² im UHV ($p \approx 2 \cdot 10^{-8} mbar$) möglich ist, Desorptionen zu induzieren. Es wird nach dem Einschalten des Heizlasers eine deutliche Masseabnahme des gespeicherten Teilchens registriert. Das Teilchen muß sich so stark erwärmen, daß sich ganze Gruppen von abgelagerten Molekülen ablösen können (laserinduzierte Desorption). Eine detaillierte Beobachtung der Desorptionen ist bisher nicht möglich, da die Teilchenfrequenz offensichtlich durch den Strahlungsdruck des Lasers so stark beeinflußt wird, daß keine vernünftigen Meßergebnisse zustande kommen. Mit Hilfe der Abbildung 2.5 und der Gleichung 2.24 kann die Temperatur des levitierten Partikels bei entsprechender Laserintensität unter Berücksichtigung der Intensitätsschwankungen von ±8% auf ca. 340 bis 400K abgeschätzt werden, was ausreichend für die Desorption größerer Mengen physisorbierten Wassers von dessen Oberfläche sein sollte - hier wird auf Abschnitt 2.3 verwiesen. Die genannten Temperaturen sind dabei, aus in Abschnitt 2.5 diskutierten Gründen, Mindestabschätzungen. Hinzu kommt die überhöhte Intensität des Lasers im Zentrum seines Gauß'schen Strahlprofils, die lokal eine noch höhere Partikeltemperatur erlaubt. Ob man an dieser Stelle bereits auf die Desorption chemisorbierter Oberflächenadsorbate spekulieren kann, ist noch etwas unklar. Theoretisch ist es möglich, daß ein Partikel - zumindest in den Bereichen höherer lokaler Laserintensität - eine Temperatur > 460K erreichen kann - diese Temperatur wird als Untergrenze für den Ablauf der Desorption chemisorbierter Adsorbate angesehen (siehe Abschnitt 2.3).

5.2 Adsorptionen aus dem Restgas

Im vorherigen Abschnitt wird beschrieben, daß es uns möglich ist, ein einzelnes gespeichertes Partikel derart aufzuheizen, daß Moleküle von seiner Oberfläche desorbieren. Dieser Vorgang ist als Massenverlust direkt beobachtbar. Umgekehrt kann man auch eine zeitliche Massezunahme beobachten, wenn das Partikel nicht mehr der Laserstrahlung ausgesetzt ist (Ruheperiode). Da das Partikel isoliert in der Falle gespeichert ist, kommen nur Moleküle aus dem Restgas - und hier besonders das Wasser - als Adsorptive in Frage. Das Siliziumdioxid ist bekannt als hydrophiler Stoff, was natürlich bedeutet, daß Wasser sich daran problemlos anlagern kann. Abbildung 5.1 zeigt Ausschnitte aus einer Sorptionsmessung, die bei einem Druck von $2,48 \cdot 10^{-8}$ mbar über 24 Stunden durchgeführt wurde. Deutlich sieht man in beiden Ausschnitten die Masseabnahme von ca. 0.3 fg nach der Lasereinwirkung, die im vorherigen Abschnitt als Desorption beschrieben wurde. Nach dem Ausschalten des Lasers beginnt sofort die Massezunahme, wobei die Formen der Kurven eine veränderliche Rate der Adsorption offenbaren. Offensichtlich erhöht sich die Masse des Partikels in den ersten Stunden schnell. Danach erscheint in den Kurven ein plateauähnlicher Abschnitt, in dem die Massezunahme nur sehr langsam vonstatten geht, bevor wieder eine raschere Zunahme erfolgt. Diese Kurvenformen ließen sich in weiteren Messungen, die teilweise erst Monate später und mit neu gespeicherten Teilchen durchgeführt wurden, sehr gut reproduzieren.

Betrachtet man die Massendifferenz vom Zeitpunkt des Ausschaltens bis zur Einstellung des Plateaus, so kann man diesen Effekt mit der Bildung einer Monolage von Wassermolekülen in Zusammenhang bringen. Geht man von der Dichte von flüssigem Wasser ($\rho = 1g/cm^3$) aus, so ergibt sich für ein Wassermolekül ein Platzbedarf von ca. $(3,1\text{Å})^3$. Bei einem 110 fg -Partikel der Dichte $2,0g/cm^3$ beträgt der Radius ca. 236nm. Eine Monolage entspricht dann einer Bedeckung der Oberfläche mit ca. 7,3 Millionen Wassermolekülen (theoretische Massezunahme von etwa 0,22 fg).



Abb. 5.1: Ausschnitte aus einer Langzeit-Sorptionsmessung mit einem SiO₂-Partikel. Der Doppelpfeil kennzeichnet die Masse einer Wasser-Monolage.

Von Interesse, im Hinblick auf die Untersuchung der Vorgänge auf Partikeloberflächen, sind die Raten, mit denen Moleküle desorbieren und adsorbieren. In den Abbildungen 5.2a bis 5.2c sind verschiedene Adsorptionsmessungen gezeigt. Aus dem zeitlichen Verlauf der Teilchenmasse können vorerst Raten für die Adsorptionen, durch Einpassung von Anstiegsgeraden, ermittelt werden (linearer Fit). In Tabelle 5.1 sind einige wichtige Parameter der einzelnen Messungen gegenübergestellt:

Abbildung	I _{Laser} /	Heizdauer /	p /	Adsorptionsrate	
	Wcm ²	h	10^{-8} mbar	(max. Moleküle pro Sekunde)	
5.2a	1,1	1	2,48	850	
5.2b	2,7	0,5	1,90	1750	
5.2c	2,1	1	2,35	2850	

Tab. 5.1:Parameter der Adsorptionsmessungen.

Die Anstiege der gefitteten Geraden (Abbildungen 5.1) geben in etwa die maximale Zahl der Wassermoleküle an, die je Sekunde auf das Partikel auftreffen und dort auch verbleiben. Man spricht hier von der sogenannten Adsorptionsrate R_{ads} , die sich aus dem Produkt der Haftwahrscheinlichkeit *S* und der Stoßrate *R* ergibt, die

folgendermaßen berechnet wird:
$$R =$$

$$R = \frac{pA}{\sqrt{2\pi mkT}} \,.$$

Die Stoßrate repräsentiert die Zahl der Stöße von Molekülen der Masse m aus der Gasphase (Druck p) mit einem Festkörper mit der Oberfläche A pro Zeit. Die Haftwahrscheinlichkeit ist die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Molekül nach dem Stoß auf der Oberfläche verbleibt.

Die Adsorptionsrate aus Abbildung 5.2c ist viel größer als die der anderen beiden Abbildungen. Der zeitliche Verlauf der Kurve und die Tatsache, daß die Masse einer Wasser-Monolage adsorbiert wird (ca. 0,22fg), legen hier die Annahme einer maximalen Haftwahrscheinlichkeit nahe. Nimmt man an, daß sie in diesem Fall S = 1ist, so kann der Partialdruck des Wassers in der UHV-Kammer abgeschätzt werden:



$$p = \frac{\sqrt{2\pi mkT} \cdot R}{A} = \frac{\sqrt{2\pi \cdot 2,99 \cdot 10^{-26} kg \cdot 1,38 \cdot 10^{-23} JK^{-1} \cdot 300K \cdot 2850s^{-1}}}{4\pi (250nm)^2} = 1,0 \cdot 10^{-9} mbar$$

Die Rechnung ergibt einen Partialdruck des Wassers von $10^{-9} mbar$, unter der Annahme, daß die temperaturbedingte Desorptionsrate unter diesen Bedingungen ($T_{Gas} \approx 300K$) klein gegen die Rate des Adsorptionsprozesses ist. Bei einem Gesamtdruck von 2,35 · 10⁻⁸ mbar ist das ein durchaus realistischer Wert.

Bei einem konstanten Partialdruck des Wassers wird die Adsorptionsrate in erster Linie von der Haftwahrscheinlichkeit bestimmt. Diese steht wiederum im Zusammenhang mit der mikroskopischen Beschaffenheit der Partikeloberfläche und dem Grad der Bedeckung mit (Wasser-) Molekülen. Die Adsorptionsraten der einzelnen Messungen sind demnach stark von der vorhergehenden Reinigung des Partikels durch den Laser abhängig. In Übereinstimmung mit Tabelle 5.1 hat dann sowohl die Intensität als auch die Dauer der Bestrahlung mit Laserlicht Einfluß auf die Qualität der Oberflächenreinigung. Ein mit der Intensität $1,1 W / cm^2$ über eine Stunde geheiztes Partikel zeigte eine geringere Adsorptionsrate als eines, das über den gleichen Zeitraum mit $2,1 W / cm^2$ geheizt wurde. Ein Partikel, das mit $2,7 W / cm^2$ über nur eine halbe Stunde geheizt wurde, weist ebenfalls eine demgegenüber geringere Adsorptionsrate auf. Durch eine detaillierte Untersuchung der Adsorptionsprozesse können Rückschlüsse auf die zeitlichen Verläufe der Desorptionsprozesse gezogen werden – dies ist ein interessanter Ansatzpunkt für weitere Messungen.

Die oben gemachten Aussagen können leider aufgrund der unzulänglichen Kenntnis der tatsächlichen Oberflächenbeschaffenheit der Partikel nicht generalisiert werden. Die Siliziumpartikel sind teilweise porös und können eine sehr inhomogene Verteilung unverbrückter Silanolgruppen auf ihrer Oberfläche aufweisen. Außerdem könnte eine Art Inselwachstum bei der Adsorption vorliegen, welche Molekülen die Anlagerung gerade dort energetisch erleichtert, wo bereits andere Moleküle angesiedelt sind. Dies würde auch erklären, weshalb die Adsorptionsraten zu Beginn nicht sofort maximal sind. Wäre eine Oberfläche von allem physisorbierten Wasser befreit, gelänge eine Anlagerung zunächst langsam, da die Keime für die Inselbildung erst geschaffen werden müßten. Nachfolgende Moleküle könnten sich danach leicht an den Rändern der Inseln anlagern, bis es im weiteren Verlauf immer schwerer werden würde, freie Plätze zu finden. Eventuell gäbe es sogar Verschiebungen innerhalb der Wasserschicht. Dies wiederum würde zu einer geringeren Adsorptionsrate gegen Ende der Fertigstellung der ersten Monolage führen - wie zu beobachten ist.

Um gesicherte Aussagen zum Adsorptionsverhalten machen zu können, ist es dringend erforderlich die Partikeloberfläche im Vorfeld sowohl von Poren als auch von Ablagerungen sämtlicher Art zu befreien. Dies kann nur erreicht werden, indem man zu höheren Temperaturen übergeht. Ideal wäre ein Temperaturbereich, der ein Schmelzen der SiO₂- Partikel erlaubt, so daß sich diese beim Abkühlen zu einer kompakten Kugel formen. Im folgenden Kapitel werden Experimente gezeigt, in denen auf dieses Ziel hingearbeitet wird.

Kapitel 6

Wechselwirkung Laser - Partikel

6.1 Vorexperimente mit SiO₂-Pulver

Erste Versuche zum Heizen von Siliziumdioxid-Partikeln wurden an einem Pulver von Teilchen mit dem Radius a = 600nm an Luft durchgeführt. Diese wurden auf einem Objektträger aus Kaliumbromid vom CO₂-Laser bestrahlt, der im Abstand von 1m durch eine ZnSe-Linse (f = 40mm) fokussiert war. Bei einer Ausgangsleistung von ca. 5W (entspricht einer Intensität von ca. $25kW/cm^2$) war ein helles oranges Leuchten des Partikelpulvers zu sehen, das als thermische Strahlung gedeutet wurde.



Abb. 6.1: Aufbau des Vorexperiments schematisch.

Die im Laserfokus ausgeleuchtete Fläche wurde mit der Lochbrennmethode (siehe Abschnitt 4.1) zu $A = \pi \left(\frac{160}{2}\mu m\right)^2$ bestimmt. Das Profil des Kohlendioxid-Lasers ist gaußförmig, was impliziert, daß die aus Leistung und Fläche berechnete Intensität ein unexakter Wert ist. Die gesamte Ausgangsleistung wird als homogen auf die im Laserfokus ausgeleuchtete Fläche verteilt angenommen. Dies stellt eine starke Simplifizierung dar, da im Zentrum dieser Fläche eine größere Intensität vorherrscht, als in den Randbereichen. Gerade dieser Sachverhalt erschwert eine exakte Temperaturbestimmung der Partikel im Pulver, da Teilchen, die im Zentrum des Fokus liegen, mit Sicherheit heißer sind als Teilchen am Rand. Die resultierenden Spektren der Wärmestrahlung (Abbildung 6.2) sind also höchstwahrscheinlich eine Überlagerung vieler thermischer Emissionen unterschiedlich heißer Partikel.



 Abb. 6.2: Zwei thermische Emissionsspektren eines Partikelhaufens von
 Siliziumdioxid-Partikeln (a = 600nm). Ebenfalls dargestellt sind die Gitterund die Gerätefunktion des Spektrometers der Firma Ocean Optics.

Die Temperaturbestimmung mit Hilfe der Intensitätsspektren erfordert eine genaue Kenntnis der Gitter- und Gerätefunktion ($F(\lambda)$ und $G(\lambda)$) des verwendeten Spektrometers. Die gemessenen Spektren I_{Mess} können mit folgender Formel in die

tatsächlichen überführt werden:
$$I_{\text{Re}al}(\lambda,T) = \frac{I_{Mess}(\lambda,T)}{F(\lambda) \cdot G(\lambda)}$$

Die Gitterfunktion wurde vom Hersteller des Spektrometers bereitgestellt. Die Gerätefunktion, die im wesentlichen die Empfindlichkeit des Detektors charakterisiert, wurde von Praktikumsstudenten aus Messungen von Bogenentladungen an Kohlenstoff-Elektroden ermittelt und freundlicherweise zur Verfügung gestellt. In Abbildung 6.3 sind die auf diese Weise gewichteten Spektren dargestellt und es sind ebenfalls theoretisch berechnete spektrale Strahldichten für ein Partikel im Rayleigh-Limit (siehe Abschnitt 2.2 - Abbildung 2.3) bei verschiedenen Temperaturen gezeigt. Diese wurden jeweils mit einer nicht dimensionslosen Konstanten C multipliziert (gestreckt), so daß sie direkt mit den experimentellen Spektren verglichen werden können:



Abb. 6.3: Gewichtete thermische Emissionsspektren zur Temperaturbestimmung.

Allein die Form und der charakteristische temperaturabhängige Anstieg der Kurven über den relativ weiten Wellenlängenbereich lassen einen Vergleich und damit eine Bestimmung der Temperatur der geheizten Partikel zu. Es wird deutlich, daß Siliziumdioxid-Partikel im Verband bei der Aufheizung mit dem verwendeten Laser offensichtlich sehr heiß werden ($T = (2100 \pm 200)K$) und thermische Strahlung im Wellenlängenbereich ($500nm < \lambda < 870nm$) emittieren. Die zur sichtbaren Emission notwendige Intensität des Lasers kann unter UHV-Bedingungen sehr viel geringer als $25kW / cm^2$ sein, da hier eine unbedeutende Gaskühlung vorherrscht und der Mechanismus der Wärmestrahlung alle anderen Kühlprozesse dominiert (siehe Abschnitt 2.5).

6.2 Laserinduzierte Entladungen

Prinzipiell kann mit dem verwendeten Laser und bei direkter Fokussierung mit einer ZnSe-Linse der Brennweite 25,4mm (Abbildung 3.4 - ohne defokussierende Linse) eine Intensität > $100kW/cm^2$ am Teilchenort erzeugt werden (siehe Abschnitt 4.1). Der Versuch, gespeicherte Partikel (a = 250nm) im UHV einer Laserintensität von ca. 10 kW/cm^2 direkt auszusetzen, scheiterte. Teilchen, die mit ca. 100 positiven Elementarladungen geladen waren, drängte der Laser scheinbar binnen Bruchteilen von Sekunden regelrecht aus der Falle, die mit $\Omega = 2\pi \cdot 2kHz$ betrieben wurde, heraus. Die Beschleunigung, die durch die Streukraft des Lasers unter diesen Bedingungen bewirkt wird, kann zu ca. $0,08 \cdot g$ berechnet werden (siehe Tabelle 2.3). Stellt man dieser die Beschleunigung gegenüber, mit der die Falle entgegenwirken kann - $0,075 \cdot g$ (siehe Tabelle 2.4) - so kann man annehmen, daß die Teilchen tatsächlich aufgrund des Strahlungsdrucks aus ihrer stabilen Bahn geschleudert werden. Um diesem entgegenzuwirken, wurden die Partikel mit Hilfe des Elektronenstrahls noch höher geladen. Gleichzeitig wurde die Fallenfrequenz derart erhöht, daß bei gleichem Stabilitätsparameter gearbeitet werden konnte. Bei einer Fallenfrequenz von ca. 3kHz und einer Teilchenladung von ca. 1000 positiven Elementarladungen trat nun ein ganz neues Phänomen auf: Die Partikel vergrößerten bei Lasereinwirkung deutlich sichtbar ihre Bahn, wurden dann instabil und gingen verloren. Dieser Vorgang spielte sich innerhalb weniger Sekunden ab, konnte aber mit der CCD-Kamera verfolgt werden. Offensichtlich ist die Ursache für den Verlust der Teilchen nicht allein der Strahlungsdruck des Lasers, sondern ein Ladungsverlust, den die Partikel bei Lasereinwirkung erfahren. Durch die verringerte Ladung vergrößert sich zusehends die Ausdehnung der Teilchenbahn, was schlußendlich zum Teilchenverlust führt (Abflachen des Effektiven Potentials). Bemerkenswert ist, daß auf diese Weise auch negativ geladene Teilchen vom Laser entladen werden. Bei positiver Partikelladung tritt ein Verlust positiver Ladungen auf, bei negativer Gesamtladung gehen negative Ladungen verloren. Die oben genannten Experimente wurden bei einem Druck von 1 bis $3 \cdot 10^{-7}$ *mbar* in der Vakuumkammer durchgeführt.

Um die laserinduzierten Entladungen genauer charakterisieren zu können, wurde die Laserintensität wie bei den Sorptionsmessungen im vorherigen Kapitel herabgesetzt. Nun konnte der Ladungsverlust auch mit Hilfe der Q/m-Bestimmung durch die Streulichtmethode verifiziert werden. Es wurde ebenfalls mit guter Reproduzierbarkeit eine Intensitätsschwelle gemessen, bei der die Teilchenentladungen stattfanden. In der Abbildung 6.4 ist eine Langzeitmessung gezeigt, in der ein gespeichertes Partikel bei einem Druck von $1.8 \cdot 10^{-8}$ mbar gleichzeitig vom Laser und von der Elektronenkanone bestrahlt wird. Die Elektronenkanone wird für diese Art von Experimenten kontinuierlich und mit hoher Leistung betrieben. Ihr Einsatz ist erforderlich, um eine positive Aufladung zu realisieren (Sekundärelektronenemission), die das Partikel wieder auf eine kleine Bahn zwingt (kleiner Durchmesser der Trajektorie). Man erkennt in den ersten Stunden deutlich, wie sich die Teilchenladung verringert und erhöht, bis sich schließlich ein Gleichgewicht zwischen Auf- und Entladung einstellt. Um dieses Gleichgewicht zu realisieren, wird die Laserleistung vom Computer automatisch geregelt, während die Elektronenkanone in permanentem Betrieb ist. Der dazu benötigte Regelkreis wurde unter LABVIEW implementiert und kann selbständig auf eine Frequenzänderung mit entsprechender Laserleistungsregelung reagieren.



Abb. 6.4: Langzeitmessung zum Auf / Entladungs-Gleichgewicht.

Es wird jeweils im Abstand von ca. 2 Sekunden das FFT-Spektrum des Partikel-Streulichts detektiert (je 8192 Meßwerte á $250\mu s$). Ein Ladungsverlust bedeutet eine Verringerung des Q/m-Verhältnisses, was ebenfalls eine Erniedrigung der Teilchenbewegungsfrequenzen zur Folge hat. Der Regelkreis erkennt die *in situ* gemessenen Teilchenfrequenzen und vergleicht sie mit vorgegebenen Stufenwerten. Auf diese Weise wird die Laserleistung, wie in einer Kaskade, erniedrigt, wenn die Frequenzen abfallen und erhöht, wenn diese ansteigen. Ein manueller Eingriff - die Definition der Stufenwerte - ist dabei nur zu Beginn der Messung nötig und verlangt viel experimentelles Geschick.

Aus Abbildung 6.4 können Aufladungsraten bestimmt werden, die Aufschluß über die Zahl der Elektronen geben, die vom Elektronenstrahl aus dem Teilchenmaterial in einer Minute herausgeschlagen werden. Es herrscht hier über fast fünf Stunden ein Gleichgewicht zwischen Aufladung und Entladung. Hier muß die Entladungsrate gleich der Aufladungsrate sein, was wiederum bedeutet, daß der Laser pro Minute die gleiche Anzahl positiver Ladungen entfernt haben muß.

Tabelle 6.1 faßt alle wesentlichen Größen der durchgeführten Messungen zusammen:

Tab. 6.1:
 Messungen zur laserinduzierten Entladung.

Spalten : Spannung der Fallenversorgung, Frequenz der Fallenversorgung, Teilchenladung im GGW, Laserintensität, Auf- / Entladungsrate, Druck.

Nr.	$2V_0 / kV$	$\frac{\Omega}{kH_7}$	Ladung $/+e$	I / W	Elektronen pro		$p/10^{-8}$ mbar
		2π		$Laser' cm^2$	Minute(min / max)		
1	1,71	2,728	550 ± 50	$7,2 \pm 0,2$	45	50	2,86
2	1,68	2,261	600 ± 50	7,0±0,2	24	27	3,33
3	1,72	2,222	740 ± 50	7,0±0,3	43	50	3,20
4	1,69	2,115	550 ± 50	7,0±0,3	26	29	4,10
5	1,69	2,115	550 ± 50	7,0±0,3	22	27	1,80

6.3 Ursachendiskussion

Das in Abschnitt 6.2 beschriebene Phänomen beschränkt bedauerlicherweise das Laserheizen von gespeicherten Partikeln zu höheren Temperaturen extrem. Sobald die Laserintensität, unter den gegebenen Bedingungen, den Schwellenwert von rund $7W/cm^2$ überschreitet, setzen Entladungen ein. Die dauerbetriebene Elektronenkanone hat dabei schon eine kompensierende Wirkung. Abschätzungen der Partikeltemperatur (siehe Abschnitt 2.5 - Abbildung 2.5) liefern bei dieser Intensität ein Minimum von knapp 500K. Die Frage ist nun, welcher Mechanismus die Entladungen verursacht.

Erste Möglichkeit: In dem Siliziumdioxid können Verunreinigungen enthalten sein, die aufgrund der Erwärmung des Partikels beschleunigt an die Oberfläche diffundieren. So können beispielsweise durch Ladungstransfer Natrium-Ionen gebildet werden, die im Verlauf der Laserheizung in die Umgebung abgegeben werden und positive Ladungen davontragen. Dies bedeutet, daß der Prozeß nach einer gewissen Zeit von selbst zum Erliegen kommen sollte, wenn sich die Zahl der Verunreinigungen verkleinert hat. Dies konnte über Stunden nicht beobachtet werden. Warum diese Diffusionen erst ab einer konkreten Intensitätsschwelle plötzlich auftreten und unterhalb dieser wieder verschwinden, ist unklar. Die These wäre glaubhafter, wenn das Partikel eine Temperatur erreicht hätte, die eine innere Umstrukturierung zuläßt (z.B. Schmelztemperatur).

Zweite Möglichkeit: Moleküle können aus dem Restgas auf die Teilchenoberfläche treffen und dort einen wie auch immer gearteten negativ geladenen Rückstand hinterlassen. Das nun ionisierte, positiv geladene Molekül verschwindet wieder zurück ins Restgas. Diese These besagt, daß das Teilchen keine positiven Ladungen abgibt, sondern daß es negative empfängt. Dies wiederum setzt voraus, daß das Restgas starke Verunreinigungen in Form von z.B. langkettigen Molekülen enthält. Vorstellbar ist das Vorhandensein von z.B. Pumpenöl oder Gasen von Fingerabdrücken innerhalb der Anlage. Die beobachtete Intensitätsschwelle ist wieder nicht befriedigend zu erklären. Dritte Möglichkeit: Der Laser kann innerhalb des Fallengehäuses eine Metalloberfläche treffen und dort Elektronen herausschlagen. Diese Elektronen springen dann auf das gespeicherte Partikel über und entladen es. Es gibt aber keinen derartigen Prozeß, da die Energie der Photonen $E = hc / \lambda$ bei weitem nicht zur Überwindung der Bindungsenergie der Elektronen ausreicht und die Intensität für Multiphotonenprozesse nicht hoch genug ist.

Vierte Möglichkeit: Die über nunmehr Jahre in Vorratsbehältern aus Kunststoff gelagerten Partikel können auf ihren Oberflächen gleichzeitig mit den in Abschnitt 2.3 genannten Gruppen (Silanol- und Siloxangruppen usw.) auch Verunreinigungen fest eingebaut haben. Diese Verunreinigungen werden erst dann die Oberfläche als positive Ionen verlassen, wenn die Temperatur des Partikels eine Überwindung ihrer Bindungsenergie zuläßt. Hier bestehen gewisse Parallelen zur Ersten These.

Fünfte Möglichkeit: Im Bereich des Laserfokus, wo die Intensität um ein Vielfaches größer als am Teilchenort ist, können Verunreinigungsmoleküle des Restgases ionisiert werden. Hierbei können thermionische Ionisationsprozesse durch sukzessive Absorption von mehreren IR-Photonen eine Rolle spielen. Die auf diese Weise erzeugten Elektronen werden vom levitierten Partikel angezogen und führen zu einer Umladung. Das Partikel fliegt, bildlich gesprochen, durch eine Elektronenwolke und zieht alle Elektronen an, deren thermische Energie zu klein zum entkommen ist. Das Potential auf der Oberfläche eines Teilchens (a = 250nm) kann näherungsweise wie das einer Hohlkugel berechnet werden. Nimmt man für ein freies Elektron je Freiheitsgrad die Energie kT/2 an (T = 300K), so kann nun ein Einzugsbereich des Partikels für Elektronen abgeschätzt werden, wenn die Teilchenladung bekannt ist. Innerhalb dieses Bereiches können dann freie Elektronen vom Teilchenpotential angezogen werden – siehe Tabelle 6.2.

Ladung / +e	100	500	1000	1500
Oberflächenpotential / V	0,58	2,88	5,76	8,64
Einzugsbereich / µm	11	56	111	167

Tab. 6.2: Elektroneneinzugsbereiche und Oberflächenpotentiale eines Partikels.



Die Abbildungen 6.5 und 6.6 sollen den Vorgang des Elektroneneinfangs durch ein geladenes Partikel etwas anschaulicher machen, der als wahrscheinlichste Ursache angenommen wird.

Die fünf genannten möglichen Ursachen für die Teilchenentladungen sind noch unzureichend experimentell überprüft. Sie zeigen aber die Schwachpunkte auf, an deren Verbesserung unbedingt gearbeitet werden muß: Zum einen muß das Vakuum verbessert werden, um die verunreinigenden Stoffe zu beseitigen. Zum anderen ist der Einbau einer vakuumtauglichen Teilchenquelle unbedingt erforderlich.

6.4 Maßnahmen zur Problembewältigung

Nachdem im vorherigen Abschnitt über mögliche Ursachen spekuliert wurde, soll nun gezeigt werden, was alles getan wurde, um dem Problem entgegenzuwirken. Eine der ersten Maßnahmen war das Hochladen der gespeicherten Partikel mit der Elektronenkanone, um den Ladungsverlust zu kompensieren. Eine Aufladung des Teilchens auf >1000 Elementarladungen führt nicht zu der erhofften Stagnation der Entladungen. Aus Tabelle 6.1 kann man aber schlußfolgern, daß eine verbesserte Aufladerate womöglich zu höheren Laserleistungen und Temperaturen führen würde - wenn auch nicht wesentlich höher. Dies ist aber eher die Bekämpfung einer Folgeerscheinung anstelle der eigentlichen Ursache. Der Entladungseffekt darf nicht ohne weiteres ignoriert werden.

Die meisten obengenannten Thesen basieren auf der Annahme, daß sich im Umgebungsgas (Restgas), innerhalb der UHV-Kammer, verunreinigende Stoffe befinden. Um diesem entgegenzuwirken, wurden einige Bemühungen zur Verbesserung des Vakuums unternommen. Es war tatsächlich problematisch, Drücke besser als $3 \cdot 10^{-8} mbar$ zu erreichen. Sämtliche Einzelteile der UHV-Kammer wurden bereits beim Zusammenbau der Anlage gründlich mit Seifenlauge und anschließend mit Aceton gereinigt. Der Fallenkörper wurde komplett zerlegt und teilweise sogar mit speziellen Reinigungstüchern saubergeschliffen. Der Helium-Gaseinlaß erfolgt über ein Nadelventil mit einer Direktverbindung zur Gasflasche. Die gesamte Apparatur wurde vor Inbetriebnahme mehrfach auf Temperaturen >100°C ausgeheizt. Ein Ausheizen mit eingebautem Fallenkörper ist nicht möglich, da unklar ist, ob die Teilchenquelle und die Laserdiode Temperaturen $>60^{\circ}$ C verkraften. Es wurde weiterhin eine stickstoffgekühlte Kühlfalle integriert, die freischwebende Verunreinigungen binden soll. Die Kühlfalle gestattet bei einmaliger Befüllung eine Betriebszeit von ca. 14 Stunden, und es ergibt sich durch ihren Einsatz eine etwa 0,5-fache Druckverbesserung auf ca. $1,8 \cdot 10^{-8} mbar$. Leider gibt es momentan keine Alternative zu der verwendeten Teilchenquelle, die im wesentlichen ein PVC-Lautsprecher ist, der einen Partikelvorrat aufwirbelt. Ebenfalls ist die Laserdiode nicht für den Einsatz im UHV ausgelegt. Diese beiden Komponenten müssen durch einen verbesserten Aufbau als Verunreinigungsquellen eliminiert werden. In Tabelle 6.1 sind Entladungsraten von weniger als einer Elementarladung pro Sekunde aufgeführt. Wenn es sich tatsächlich um eine Elektronenwolke handelt, die am Ort größter Laserintensität durch Ionisationsprozesse entsteht, sollten diese Elektronen auch an den Polkappen der Falle als Strom meßbar sein. Hierzu wurde ein Pikoamperemeter, das sowohl mit 100V vorgespannt als auch unvorgespannt betrieben wurde, an die Polkappen angeschlossen. Bei Erhöhung der Laserintensität auf ein Vielfaches der in den Experimenten eingestellten Leistungen war bei einer Empfindlichkeit von 10 Pikoampere kein Strom meßbar.

Die verwendeten Partikel (a = 250nm) werden vor dem Einbringen in das Vakuum bei ca. 300°C teilweise über Stunden ausgeheizt. Beim Ausheizen mit höheren Temperaturen ist zu beachten, daß die Partikel auch verschmelzen können. Es wird für die SiO₂-Teilchen eine 99,9% ige Reinheit nach dem Glühen und eine Spurenverunreinigung durch Schwermetalle von weniger als 1ppm angegeben.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß zum Erreichen hoher Partikeltemperaturen >1000K durch Laserheizung noch einige Probleme überwunden werden müssen. Speziell die Entwicklung einer vakuumtauglichen Teilchenquelle und die Verbesserung des Vakuums stehen dabei im Vordergrund.

Im nächsten Kapitel wird gezeigt, was in Zukunft auf der Basis der bisherigen Arbeit noch getan werden kann. Speziell wird eine Methode der numerischen Berechnung des elektrischen Potentials einer Ringfalle vorgestellt, die eine Optimierung der Elektrodengeometrie erlauben soll. Weiterhin wird die Tragweite der bisherigen Partikelexperimente im Hinblick auf zukünftige astrophysikalische Arbeiten erläutert.

Kapitel 7

Ausblick

7.1 Transparente Ringfalle

Das im Versuchsaufbau beschriebene Aussehen der Elektrodenanordnung der Falle (Abbildung 3.2) weicht stark von den Elektroden der idealen Paulfalle ab, die im Querschnitt hyperbolisch sind und sich theoretisch bis ins Unendliche erstrecken. Vereinfachte Elektrodengeometrien sind ohne Zweifel kostengünstiger zu beschaffen. Der eigentliche Vorteil liegt aber in einem verbesserten optischen Zugang zum Falleninneren. Die Erfassung eines größeren Raumwinkels ermöglicht, bei Verwendung des Streulichtnachweises, die Speicherung kleinerer Partikel. Ein ungestörter optischer Zugang zum Partikel ist auch für den Anregungslaser wichtig, der wiederum keinesfalls die Elektroden bestrahlen darf. Man will bei hoher Einwirkungsfreiheit aus vielen Richtungen und aus großen Raumwinkeln (Transparenz) gleichzeitig im Fallenzentrum ein gutes Quadrupolfeld zur Levitation haben. Die Überlagerung von acht Segmentelektroden zu einem Ring ist eine Anordnung, die eine extrem hohe Transparenz garantiert, birgt aber ein hohes Risiko, was Asymmetrien des Potentialfeldes betrifft. Von Göbel [Göb98] wird der erfolgreiche Einsatz einer Vierpolfalle beschrieben, die aus vier parallel zueinander angeordneten Ringelektroden besteht (Ringfalle), deren Mittelpunkte sich auf der z-Achse befinden. Die Idee der Ringfalle wurde ebenfalls von unserer Gruppe weiterverfolgt. Zur Optimierung der Fallengeometrie wurde das elektrostatische Potential einer Anordnung von vier Ringen zur numerischen Berechnung aufbereitet. In einem Lehrbuch der Elektrodynamik wird die Berechnung
des elektrostatischen Potentials einer Ringladung (Kreisring) mit Hilfe von Legendre-Polynomen und in Zylinderkoordinaten behandelt [Fli00].

Die ersten vier Legendre'schen Polynome oder Kugelfunktionen 1. Art lauten (mit der reellen Veränderlichen x und dem ganzzahligen Parameter n):

$$P_0(x) = 1$$
, $P_1(x) = x$, $P_2(x) = \frac{1}{2}(3x^2 - 1)$, $P_3(x) = \frac{1}{2}(5x^3 - 3x)$.

Alle weiteren können mit Hilfe einer Rekursionsformel berechnet werden:

$$(n+1)P_{n+1}(x) = (2n+1)xP_n(x) - nP_{n-1}(x) \qquad (n \ge 1).$$

Die Entwicklung des elektrostatischen Potentials einer Punktladung q lautet [Fli00]:

$$(r < r_0):$$
 $\Phi(r,\theta) = \frac{q}{|r-r_0|} = \sum_{l=0}^{\infty} q \frac{r^l}{r_0^{l+1}} P_l(\cos\theta)$

$$(r > r_0):$$
 $\Phi(r,\theta) = \frac{q}{|r-r_0|} = \sum_{l=0}^{\infty} q \frac{r_0^l}{r^{l+1}} P_l(\cos\theta).$

Abbildung 7.1 erklärt die verwendeten Bezeichnungen. Es müssen hier, wie zu sehen ist, zwei Fälle unterschieden werden. Für $r = r_0$ existiert keine Lösung.

Ein Kreisring, der parallel zur x-y-Ebene liegt und dessen Mittelpunkt sich auf der z-Achse im Punkt *b* befindet, hat eine gleichmäßig auf seinem Umfang verteilte Ladung *q* (siehe Abbildung 7.2). Die Lösung der Potentialberechnung sei hier wieder vorweggenommen. Es handelt sich erneut um zwei getrennte Entwicklungen nach Legendre-Polynomen:

$$(r < r_0): \qquad \Phi(r,\theta) = q \sum_{l=0}^{\infty} \frac{r^l}{r_0^{l+1}} P_l(\cos\alpha) P_l(\cos\theta)$$
$$(r > r_0): \qquad \Phi(r,\theta) = \sum_{l=0}^{\infty} q \frac{r_0^l}{r^{l+1}} P_l(\cos\alpha) P_l(\cos\theta).$$

Das Ergebnis ist unbrauchbar bei $r = r_0$ und schlecht in der Nähe dieses Radius. Die elektrostatischen Potentiale beliebig vieler Ringladungen sind entsprechend dem Superpositionsprinzip überlagerbar.



Abb. 7.1: Potential einer Punktladung. Abb. 7.2: Potential eines Kreisrings.

Die Rekursionsvorschrift für die Bildung der Legendre-Polynome ist ein guter Ansatzpunkt für eine numerische Umsetzung des geschilderten Problems mit dem Computer. Die Abbildung 7.3 zeigt das Ergebnis einer Rechnung, bei der zwei positiv und zwei negativ geladene Ringe in geeigneter Form mit dem Mittelpunkt auf der z-Achse und parallel zur x-y-Ebene plaziert wurden. Auf der Oberfläche jeweils eines Ringes wurden sechzehn entsprechende Ringladungen angeordnet (siehe Anhang A: Potentiale.exe).



Abb. 7.3: Numerische Berechnung des Ringfallenpotentials für zweiphasig 500V.

In Abbildung 7.3 ist nur ein Quadrant des Fallenpotentials dargestellt (grau in der Skizze gekennzeichnet). Der Sattelpunkt im Koordinatenursprung ist jedoch gut erkennbar. Er bildet den wesentlichsten Teil des Potentials, da sich hier das gespeicherte Partikel aufhält. Extrahiert man die zwei Potentiallinien entlang der r- und z-Achse, so kann man mit Hilfe der von Beaty beschriebenen Methode [Bea86] die einzelnen Multipolanteile im Fallenzentrum bestimmen. Erwünscht ist ein möglichst hoher Quadrupolanteil bei nahezu verschwindendem Oktopolanteil. Bei der Präzisionsmassebestimmung ist die Qualität des Potentialfeldes von enormer Bedeutung, da z.B. ein hoher Oktopolanteil eine Anharmonizität darstellt, die eine Verfälschung der Bewegungsfrequenzen des gespeicherten Partikels zur Folge hat. Die rechnergestützte Optimierung könnte in Zukunft einen Beitrag zur verbesserten Realisierung eines ungehinderten optischen Zugangs bei guten elektrodynamischen Eigenschaften der Ringfalle leisten.

7.2 Partikelexperimente

Das große Hindernis bei den Experimenten zur Laserheizung sind die im Kapitel 6 beschriebenen Entladungen, deren wahre Ursache noch immer im dunkeln liegt. Zusätzlich zu den bereits durchgeführten Maßnahmen (Abschnitt 6.4) wurden bereits erste Entwürfe einer neuen Teilchenquelle auf der Basis von Piezo-Plättchen gemacht. Kunst- oder Klebstoffe sowie Lötstellen sollen bei der neuen Konstruktion auf jeden Fall vermieden werden. Eine Verbesserung des Vakuumpumpsystems wurde ebenfalls bereits in Angriff genommen. Sollte eine Verbesserung des Vakuums keinen entscheidenden Fortschritt bringen, könnten die Siliziumpartikel eventuell mit verdünnten Säuren vorbehandelt werden, um eine bessere Oberflächenreinheit zu gewährleisten. Das vorhergehende Ausheizen der Teilchen bei höheren Temperaturen (> 300K) sowie das Einbringen von Schutzgas in die Anlage sind weitere Ideen. Überwindet man die Probleme beim Aufheizen, eröffnen sich schlagartig einzigartige Möglichkeiten. Neben der exakten Temperaturbestimmung können mit Hilfe der Emissionsspektren dann auch Aussagen zur Teilchengröße gemacht werden. Die Messung des temperaturabhängigen Brechungsindex von Siliziumdioxid, sowie die Bestimmung von optischen Konstanten über einen weiten Temperaturbereich sind ebenfalls große Herausforderungen. Erreicht man Temperaturen > 1000K, beginnen die wirklichen Reinigungsprozesse im Teilchenmaterial. Die Herstellung eines hochreinen Silizium-Partikels aus einem SiO₂-Partikel wäre möglich. Von Interesse ist auch die bei hohen Temperaturen durch Materialabtrag verursachte Verkleinerung der Partikel. Kleinere Partikel stellen natürlich wieder erhöhte Anforderungen an den Nachweis. Ein Gedanke basiert z.B. auf der direkten Ausnutzung der thermischen Strahlung für die Massebestimmung.

Witt [Wit98] vermutet als Hauptverursacher der sogenannten Extended Red Emission (ERE) Silizium-Nanopartikel, die aus einigen hundert Siliziumatomen bestehen und von einem SiO₂-Mantel umgeben sind. Die ERE ist ein Phänomen, das auf Photolumineszenzerscheinungen von interstellaren Staubteilchen zurückzuführen ist. Sie wurde in vielen verschiedenen astronomischen Objekten als Strahlung mit breitbandigem Spektrum beobachtet [Wit98]. Das Emissionsspektrum hat laut Witt eine Halbwertsbreite von 60 bis 100nm mit einem Maximum zwischen 610 und 820nm. Es wird vermutet, daß der Effekt auf einer Absorption von sichtbaren und ultravioletten Photonen der interstellaren Strahlung durch Staubteilchen und deren Umwandlung in ERE Photonen beruht. Die beschriebenen Silizium-Nanopartikel haben demnach eine extrem hohe Effizienz der Lumineszenz im Bereich von 600 bis 850nm – aber nur wenn ihr Durchmesser im Bereich von 1,5 bis 5nm liegt und sonst nicht. Die spektrale Breite der Photolumineszenz hängt, so meint Witt, von der Größenverteilung der Partikel und die Lage des Wellenlängenmaximums von der dominierenden Größe innerhalb der Verteilung ab. Gelänge die Erzeugung solcher oder ähnlicher Nanoteilchen in einer Vierpolfalle, könnte man von Untersuchungen an interstellarem Staub unter Laborbedingungen - also von echter Laborastrophysik – sprechen und zum besseren Verständnis der ERE beitragen.

Kapitel 8

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in zwei Hauptschwerpunkte, wobei jeweils die Untersuchung von sphärischen Siliziumdioxid-Partikeln (Radius: 250*nm*) in einer elektrodynamischen Vierpolfalle im Mittelpunkt stand:

Den ersten Schwerpunkt bilden Experimente zur Präzisionsmassebestimmung eines gespeicherten Partikels. Es wurden laserinduzierte Desorptionen und Adsorptionen von Molekülen aus dem Restgas an einem einzelnen SiO₂-Teilchen durch die Bestimmung der zeitlichen Masseänderung beobachtet. Den zweiten Schwerpunkt bilden Versuche zur Laserheizung, deren Ziel der Nachweis von thermischer Emissionsstrahlung eines isolierten Partikels im sichtbaren Wellenlängenbereich des Lichtes ist.

Zuerst wurden, basierend auf theoretischen Überlegungen, konkrete Abschätzungen zu den Kräften gemacht, die in der Falle auf ein Partikel einwirken. Die Temperatur und die Strahlungsleistung eines gespeicherten Teilchens bei Aufheizung mit einem CO₂-Laser der Wellenlänge $\lambda = 10,6\mu m$ wurden berechnet. Beim Aufbau der Anlage wurde das komplexe Zusammenspiel der einzelnen Komponenten - Vierpolfalle, CO₂-Laser und Nachweis - geschildert, dessen Steuerung größtenteils vom Computer übernommen wird. Die gute Reproduzierbarkeit der Messungen wurde dabei auf den hohen Grad der Automatisierung zurückgeführt. Es wurde eine Charakterisierung des verwendeten Heizlasers hinsichtlich erreichbarer Intensitäten und eine Abschätzung des Signals beim Streulichtnachweis vorgenommen. Die Genauigkeit der Massebestimmung wurde für die Sorptionsmessungen zu $\Delta m/m = 4 \cdot 10^{-5}$ ermittelt. Es wurden Adsorptionsraten von Molekülen aus dem Restgas auf der Oberfläche eines gespeicherten Partikels bestimmt,

nachdem die Reinigung durch den CO_2 -Laser erfolgt war. Abschätzungen des H₂O-Partialdrucks aus Adsorptionsmessungen sind verträglich mit Haftkoeffizienten nahe 1, was für eine gesäuberte Oberfläche auch erwartet wird.

Experimentell wurde gezeigt, daß ein Pulver von SiO₂-Partikeln (Radius 600*nm*) an Luft mit dem Heizlaser zu thermischem Leuchten angeregt werden kann. Die Temperatur der Teilchen wurde mit Hilfe einer für den Rayleigh-Bereich modifizierten Planck'schen Strahlungsformel gitterspektroskopisch zu ca. 2000*K* ermittelt. Für Partikel mit 250*nm* Radius konnte eine Intensitätsschwelle des CO₂-Lasers bestimmt werden, bei deren Überschreitung eine Entladung der Teilchen erfolgte. Ein Teilchen konnte durch einen softwaregesteuerten Regelkreis über mehrere Stunden in einem stationären Ladungsgleichgewicht gehalten werden, indem die Aufladung durch die Elektronenkanone und die Entladung durch den Heizlaser erfolgte. Hieraus konnten Entladungsraten ermittelt werden (Elementarladungen pro Minute). Es wurden verschiedene Überlegungen und Erklärungsversuche zur Ursache dieses Phänomens dargelegt. Da die Entladungen eine Aufheizung des gespeicherten Teilchens zu Temperaturen > 500*K* verhindern, wurden Maßnahmen zur Problembewältigung geschildert.

Im Hinblick auf zukünftige Aufgaben wurde neben der Lösung des oben genannten Problems auf die rechnergesteuerte Optimierung der Elektrodengeometrie einer Falle eingegangen. Das untersuchte Fallenmodell besteht dabei aus vier Ringelektroden. In Zukunft soll zur Speicherung immer kleinerer Partikel übergegangen werden, was noch viele Neuerungen und Verbesserungen am Nachweis, an der Teilchenquelle und an der Stabilität der Fallenversorgung und des Lasers erfordert.

Von Submikrometer-Partikeln, die interessante Effekte wegen z.B. der endlichen Wärmekapazität zeigen (Materialwissenschaften bei hoher Temperatur), bis hin zu wirklichen Nanoobjekten, die Größenquantisierungseffekte aufweisen, ist es noch ein weiter experimenteller Weg.

Kapitel A

Anhang

Plot_freq_qm.exe

Eine Langzeitmessung über 120 Stunden lieferte ca. 53.000 FFT-Einzelspektren der Bewegungsfrequenzen eines gespeicherten Partikels (Abbildung A.1). Die resultierende FFT-Textdatei (siehe Abb. 3.7) hatte eine Größe von etwa 13 Megabyte. Um eine komfortable Auswertung solch großer Datenmengen zu gewährleisten, wurde unter DELPHI 3.0 eine Auswertungssoftware implementiert (Abbildung A.2). Das Programm Plot_freq_qm.exe stellt zusätzlich zu den Frequenzwerten auch deren Peakhöhe visuell dar. Schwache Peaks (Peakhöhe<255) werden in Helligkeitsstufen der Farbe Grün dargestellt. Hohe Peaks kennzeichnet das Programm in Helligkeitsstufen von Rot. Auf diese Weise wird die Verfolgung einzelner Frequenzen im zeitlichen Verlauf erleichtert. Durch Angabe eines oberen und unteren Peakhöhen-Grenzwertes können einzelne Frequenzen selektiv dargestellt werden (activate limes). Ebenfalls erlaubt das Programm ein komfortables Herauskopieren interessanter Bereiche mit der Maus (activate marker). Die Frequenzen, die sich im markierten Bereich befinden, werden ohne Informationsverlust direkt aus der Datei herausgelesen und in eine Extraktionsdatei geschrieben. Dabei werden die 13 Frequenz-Spalten (Abbildung 3.7) zu einer einzigen zusammengeschoben, so daß nun ein Zeitwert mehrfach mit unterschiedlichen Frequenzwerten auftreten kann. Dies ermöglicht die problemlose Weiterverarbeitung und Analyse mit kommerzieller Software (z.B. Microcal ORIGIN) ohne aufwendige Aufzeichnung von Makros oder ähnlichem.



Abb. A.1: FFT Einzelspektrum der Bewegungsfrequenzen eines Partikels (LABVIEW).



 Abb. A.2:
 Screenshot des Programms Plot_freq_qm.exe.

Erkennbar ist eine dunkle Markierung einer Frequenzfolge.

Ladungen.exe

Dieses Programm ermöglicht die Ermittlung der Ladung und Masse eines gespeicherten Partikels aus Umladungsmessungen. Es basiert auf einem einfachen Algorithmus zur Bestimmung des kleinsten gemeinsamen Vielfachen.



Abb. A.3: Programm Ladungen.exe zur absoluten Bestimmung der Ladung und Masse.

Potentiale.exe



Abb. A.4: Programm zur numerischen Bestimmung des Potentialfeldes von Ringfallen (siehe Kapitel 7 – Abschnitt 7.1).

Danksagung

Zu allererst bedanke ich mich recht herzlich bei Professor Dieter Gerlich für die Bereitstellung dieses Diplomthemas und das von Anfang an in mich gesetzte Vertrauen. Neben der Erfahrung des alltäglichen Physikerlebens ermöglichte er mir durch Reisen nach Amerika und Taiwan auch unvergeßliche Einblicke in die Arbeitsweisen anderer Kulturen, die mein gesamtes Weltbild stark geprägt haben. Dr. Stephan Schlemmer danke ich sowohl für seine hervorragende Betreuung als auch für die zahlreichen Denkanstöße und Ideen, die immer wieder für neuen Wind in den Segeln sorgten. Der Geduld und Ausdauer von Stefan Wellert zolle ich großen Respekt. Durch ihn gelang mir ein reibungsloser Einstieg in die experimentellen Gegebenheiten und es entwickelte sich während der engen Zusammenarbeit schnell ein freundschaftliches Verhältnis. Für die vielen fruchtbaren Diskussionen danke ich besonders Rainer Umbach, Michael Grimm, Jan von Richthofen und Jens Illemann. Silko Barth war stets ein angenehmer Büronachbar und sorgte durch seine unbeschwerte und gesellige Art für immer neue kreative Energie. Danken möchte ich auch dem Werkstatt-Team des Herrn Arnold für die präzise Fertigung der benötigten Anlagenteile sowie allen anderen, die zum Gelingen meiner Arbeit beigetragen und mich unterstützt haben.

Für den Beistand, die Motivation und das unendliche Verständnis danke ich meiner Verlobten Daniela und unserem kleinen Sohn Leon, die ich beide sehr liebe.

Besonderer Dank an meine Eltern für die Finanzierung der fünf Studienjahre und für das unerschütterliche Vertrauen.

Literaturverzeichnis

[Bea86]	Earl C. Beaty, Simple electrodes for quadrupole ion traps,
	J. Appl. Phys. 61 (6), (1987), 2118-2122
[Ber93]	Bergmann, Schaefer, Lehrbuch der Experimentalphysik: Opitk, Band 3,
	de Gruyter, (1993)
[Fil97]	A. V. Filipov, M. W. Markus, P. Roth, In-situ characterisation of
	ultrafine particles by laser-induced incandescence, J. Aerosol Sci. Vol.
	30, No 1, (1999), 71-87
[Fli00]	T. Fließbach, Elektrodynamik: Lehrbuch zur Theoretischen Physik,
	3.Auflage, Spektrum - Akademischer Verlag, (2000)
[Ger92]	D. Gerlich, Inhomogeneous RF fields: a versatile tool for the study of
	processes with slow ions, Adv. In Chem. Phys., Vol. LXXXII,(1992)
[Göb98]	G. Göbel, Größen- und Eigenschaftenbestimmung elektrodynamisch
	<i>levitierter Partikeln (<100µm)</i> , Dissertation,(1998)
[Gri00]	M. Grimm, Speicherung und Charakterisierung von Nanopartikeln
	mit einer optischen Pinzette, Diplomarbeit, TU Chemnitz, (2000)
[Hau74]	K. Hauffe, S. Roy Morrison, Adsorption - Eine Einführung in die
	Probleme der Adsorption, de Gruyter, (1974)
[Hul81]	H. C. van de Hulst, Light scattering by small particles,
	Dover Publications, New York (1981)
[Heg97]	K. Heger, Oberflächenfunktionalisierung synthetischer Kieselsäuren:
	Beitrag zur Erzeugung und Charakterisierung von Silan- und Phenyl-
	gruppen auf Siliciumdioxidoberflächen, Dissertation, TU Chemnitz,
	(2000)

[I1100]	J. Illemann, Präzisionsmassebestimmung einzelner Partikel im
	Femtogrammbereich und Anwendungen in der Oberflächenphysik,
	Dissertation, TU Chemnitz, (2000)
[Kle98]	M. V. Klein, T. E. Furtak, Lehrbuch: Optik, Springer Verlag, (1998)
[Pal98]	E. D. Palik, <i>Handbook of optical constants of solids</i> , Academic Press, (1998)
[Pau90]	W. Paul, Electromagnetic traps for charged and neutral particles,
	Rev. Mod. Phys. 68 (3), (1990), 531-540
[Roh88]	Eric A. Rohlfing, Optical emission studies of atomic, molecular and
	particulate carbon produced from a laser vaporization cluster source,
	J. Chem. Phys. 89 (10), (1988), 6103-6112
[Sch00]	S. Schraml, S. Dnakers, K. Bader, S. Will, A. Leipertz, Soot temperature
	measurements and implications for time-resolved laser-induced
	incandescence, Combustion And Flame 120, (2000), 439-450
[Sch01]	S. Schlemmer, J. Illemann, S. Wellert, D. Gerlich, Nondestructive high-
	resolution and absolute mass determination of single charged particles
	in a three-dimensional quadrupole trap, J. Appl. Phys. 90 (7), (2001)
[Spj85]	R. E. Spjut, A. F. Sarofim, J. P. Longwell, Laser heating and particle
	temperature measurement in an electrodynamic balance,
	Langmuir, Vol. 1, No 3, (1985), 355-360
[Wel98]	S. Wellert, Untersuchungen an elektrodynamisch levitierten
	Nanopartikeln, Diplomarbeit, TU Chemnitz, (1998)
[Wit98]	A. N. Witt, K. D. Gordon, D. G. Furton, Silicon Nanoparticles: Source
	Of Extended Red Emission ?, Astrophysical Journal Letters, May 1, (1998)
[Wue58]	R. F. Wuerker, H. Shelton, R. V. Langmuir, <i>Electrodynamic containment</i>
-	of charged particles, J. Appl. Phys. 30 (3), (1959), 342-349