

2 Methodische Grundlagen der Messung

2.1 Speicherung von elektrisch geladenen Teilchen

Die Speicherung¹ von Teilchen im Raum kann optisch, akustisch oder elektrodynamisch erfolgen. Bei dem von Wolfgang Paul entwickelten Verfahren wird die Kraftwirkung von elektrischen Feldern auf geladene Partikel ausgenutzt, um diese berührungsfrei über einen längeren Zeitraum in der Schwebe² zu halten. Mit Hilfe dieser Technik ist es möglich, die Eigenschaften von geladenen, isolierten Teilchen mit hoher Präzision zu messen. Vor der zunehmenden Verbreitung dieses experimentellen Instrumentes wurden Messungen meist an Teilchenensembles vorgenommen. Bei solchen Experimenten stellt der gemessene Wert der Größe einen Mittelwert über viele Teilchen dar, wohingegen mit der elektrodynamischen Levitation isolierte Partikel untersucht werden können.

Nachstehend sollen nun die Prinzipien der Fokussierung von Teilchen etwas genauer betrachtet werden. Im Allgemeinen erreicht man eine elastische Bindung an eine Achse oder einen Punkt im Raum genau dann, wenn eine Kraft auf das Partikel einwirkt, die mit dem Abstand r ansteigt. Im einfachsten Fall ist diese rücktreibende Kraft linear abhängig vom Abstand r :

$$F = -cr. \quad (1)$$

Solch eine Kraft setzt ein parabolisches Potenzial voraus:

¹ Unter Speicherung sei hier die dynamische Fixierung des Tröpfchens auf einen festen Raumpunkt (Stabilisierungspunkt) zu verstehen. Bei jeder Abweichung von diesem Punkt wirkt auf das Tröpfchen eine rücktreibende Kraft.

² Das berührungsfreie Schweben eines Körpers im Raum wird als Levitation bezeichnet.

$$\Phi \propto (\mathbf{a}x^2 + \mathbf{b}y^2 + \mathbf{g}z^2). \quad (2)$$

Derartige Potentiale können durch elektrische oder magnetische Multipolfelder realisiert werden (zum Beispiel Quadrupolfelder). Wie allerdings im nächsten Abschnitt dargelegt werden soll, ist eine Teilchenspeicherung mit statischen Potenzialen wie in Gleichung (2) nicht möglich.

2.1.1 Eigenschaften des Potentials zur Levitation

Der allgemeine Ausdruck für das Potenzial in einem elektrischen Quadrupolfeld lautet:

$$\mathbf{F} = \frac{\mathbf{F}_0}{2} \frac{(\mathbf{a}x^2 + \mathbf{b}y^2 + \mathbf{g}z^2)}{r_0^2}. \quad (3)$$

\mathbf{F}_0 : angelegte Spannung (vgl. Abbildung 2)

r_0 : halber Abstand zweier gegenüberliegender Elektrodenscheitelflächen (vgl. Abbildung 2)

\mathbf{a} , \mathbf{b} , \mathbf{g} : Koeffizienten

Für den ladungsfreien Raum gilt die Laplace - Bedingung:

$$\mathbf{D}\mathbf{F} = 0. \quad (4)$$

mit $\mathbf{D} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$

Aufgrund dieser Einschränkung kann das elektrische Potenzial in Gleichung (3) kein Extremum besitzen. Demnach ist die Fokussierung eines geladenen Teilchens durch ein statisches Feld nicht realisierbar. Es soll nun ein Potenzial ermittelt werden, das die Laplace-Bedingung erfüllt. Die einfachste Lösung, die aus den Gleichungen (3) und (4) folgt, lautet:

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}_0 \frac{(r^2 - 2z^2)}{2r_0^2} \quad (5)$$

$$r^2 = x^2 + y^2$$

Die Eigenschaften dieses Potentials sollen mit Hilfe einer mechanischen Analogie (Abbildung 1) veranschaulicht werden.

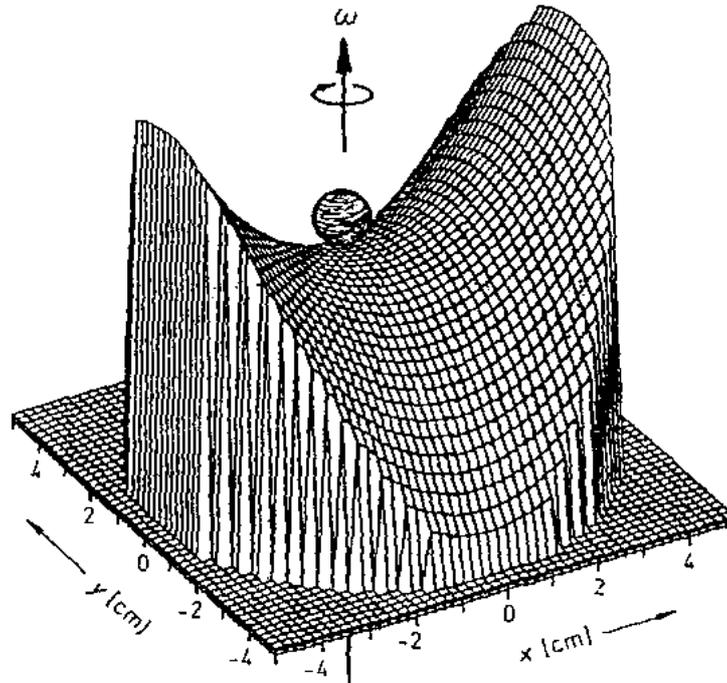


Abbildung 1: Kugel im Sattelpotenzial [Paul 1990]

Das durch dieses Potenzial verursachte Feld genügt zwar der Laplace-Bedingung, aber eine Fokussierung des Teilchens allein durch das statische Feld ist nicht möglich, was anhand des mechanischen Bildes in Abbildung 1 schnell klar wird. Befindet sich der Sattel in Ruhe, wird eine auf dem Scheitelpunkt des Sattels platzierte Kugel sofort herunter rollen und verloren gehen. Rotiert der Sattel dagegen mit der Kreisfrequenz ω , befindet sich die Kugel in einem sogenannten Pseudopotenzial (welches sich auf das zeitliche Mittel aller Kräfte bezieht), das nach allen Seiten hin quadratisch ansteigt und damit ein Potenzialminimum vorweist. Deshalb geht die Kugel nicht verloren. Dieses Verhalten vermittelt einen Eindruck von der Physik der dynamischen Stabilisierung.

In einer elektrodynamischen Falle³ finden wir ähnliche Potenzialverhältnisse. Das Potenzial aus Gleichung (5) ist dort realisiert durch einen hyperbolisch geformten Ring, an dem eine Wechselspannung anliegt, und zwei hyperboloide Schalen, die mit einer Gleichspannungsquelle verbunden sind.

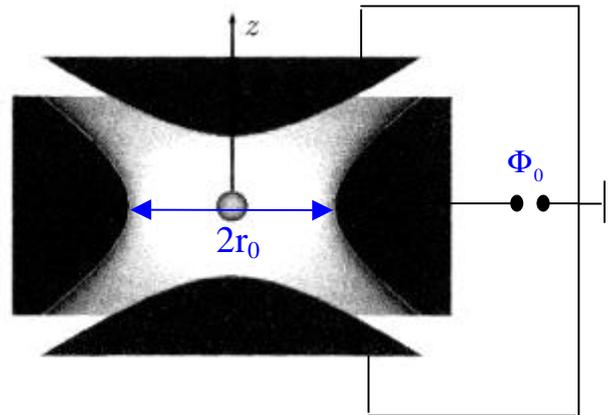


Abbildung 2: Schnitt durch die Paul-Falle

Die Teilchenfokussierung funktioniert in diesem Fall allerdings nicht wie beim mechanischen Modell durch Rotation des Potenzials, vielmehr findet ein „Umklappen“ mit der Frequenz der angelegten Wechselspannung statt (Abbildung 3).

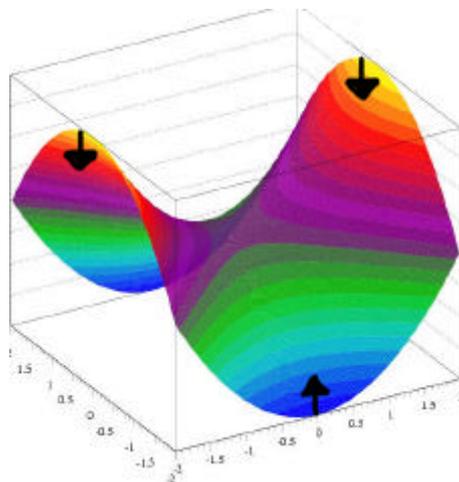


Abbildung 3: „Umklappen“ des Sattelpotenzials⁴

³ Nach ihrem Erfinder auch *Paul-Falle* genannt

⁴ Das Potenzial in einer Paul-Falle hat allerdings nicht die im Bild gezeigte Sattelform.

2.1.2 Teilchenbewegungen in oszillierenden Feldern

Um die Teilchenbewegung in der Paul-Falle verstehen zu können, sollen drei Fälle von oszillierenden Feldern betrachtet werden. Als erstes wird das Feld in einem parallelen Plattenkondensator behandelt. Anschließend wird die Bewegung eines Teilchens untersucht, wenn es sich im oszillierenden Feld eines Kondensators mit gekrümmten Elektroden befindet. Als letztes wird der für die Paulfalle relevante Fall des oszillierenden Quadrupolfeldes diskutiert.

Die allgemeine Bewegungsgleichung für ein geladenes Teilchen in einem elektrischen Wechselfeld lautet:

$$m \frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} = Q \vec{E}(\vec{r}, t) = Q \vec{E}_0(\vec{r}) \cos \omega t. \quad (6)$$

m : Teilchenmasse

Q : Teilchenladung

\vec{E} : elektrischer Feldstärkevektor

\vec{r} : Ortsvektor

t : Zeit

ω : Frequenz der Wechselspannung

\vec{E}_0 : Amplitude der Feldstärke

Plattenkondensator

Bei einem parallelen Plattenkondensator ist der Betrag der elektrischen Feldstärke ortsunabhängig, $E_0 = \text{konstant}$, das Feld ist homogen. Beim Anlegen einer Wechselspannung, muß für die Teilchenbewegung Gleichung (6) gelöst werden. Die Lösung entspricht einer oszillierenden Teilchenbewegung (Abbildung 4). Das Teilchen oszilliert mit konstanter Amplitude und ohne Änderung seiner mittleren Position.

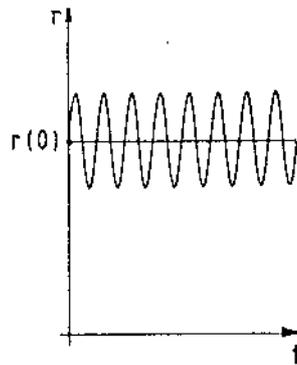


Abbildung 4: Teilchenoszillation in einem homogenen Feld als Funktion der Zeit [Gerlich 1990]

Zylindrischer Kondensator

Bei einem zylindrischen Kondensator (Abbildung 5) ist das Feld auf Grund der gekrümmten Elektroden inhomogen. Der Betrag der Feldstärke nimmt von der linken zur rechten Elektrode stetig ab, da die Feldlinien auseinanderlaufen.

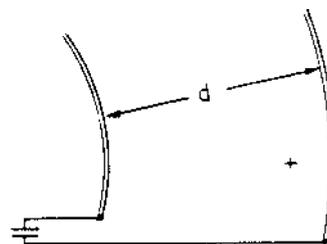


Abbildung 5: Zylinderkondensator [Gerlich 1990]

Diese Inhomogenität des Feldes verursacht beim Anlegen einer Wechselspannung eine zusätzliche Driftbewegung hin zum schwächeren Feld (in Richtung äußerer Elektrode). Diese gekoppelte Teilchenbewegung aus Oszillation einerseits und einer Driftbewegung andererseits ist in Abbildung 6 veranschaulicht.

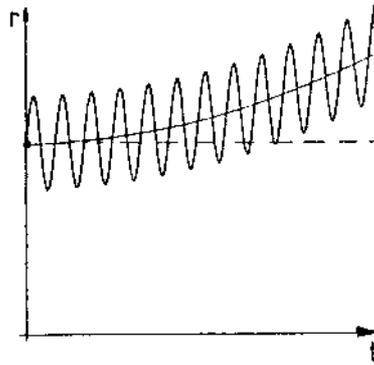


Abbildung 6: Teilchenbewegung in einem inhomogenen Feld [Gerlich 1990]

Die auf das Teilchen aufgrund des inhomogenen Feldes wirkende Kraft wird als Feldgradientkraft bezeichnet. Sie hängt von der Ladung und der Masse des Teilchens, der Frequenz der Wechselspannung und dem Feldgradienten ab. Durch diese Kraftwirkung wird das Teilchen in Richtung des schwächeren Feldes transportiert. Anschaulich ist der Teilchentransport leicht zu verstehen. Wenn das Teilchen (wie in Abbildung 5) zunächst positiv geladen ist und die äußere Elektrode negativ, dann bewegt sich das Teilchen in Folge der Anziehung zur äußeren Elektrode und damit hin zum schwächeren Feld. Nach erfolgter Umpolung wird das Teilchen dann schwächer abgestossen, als er vorher angezogen worden ist. Es werden demnach ungleiche Wege zurückgelegt und das Teilchen würde aufgrund der resultierenden Driftbewegung auf die Elektrode fallen und verloren gehen.

Wenn allerdings zusätzlich zur angelegten Wechselspannung an den Zylinderkondensator eine Gleichspannung angelegt wird, die eine zur Feldgradientkraft entgegengesetzte, elektrostatische Kraft verursacht, hat das effektive Potenzial⁵ am Ort des Kräftegleichgewichtes ein Minimum. Das Teilchen führt nun Schwingungen um eine Gleichgewichtslage (Minimum des effektiven Potentials) aus, denen Oszillationen überlagert sind. Die Amplitude der Schwingungen ist von der angelegten

⁵ Das effektive Potenzial ist die Summe aus dem Potential des oszillierenden, inhomogenen Feldes und dem elektrostatischen Potenzial (Gleichspannung).

Gleichspannung abhängig. In Abbildung 7 ist diese gekoppelte Bewegung im effektiven Potenzial gezeigt.

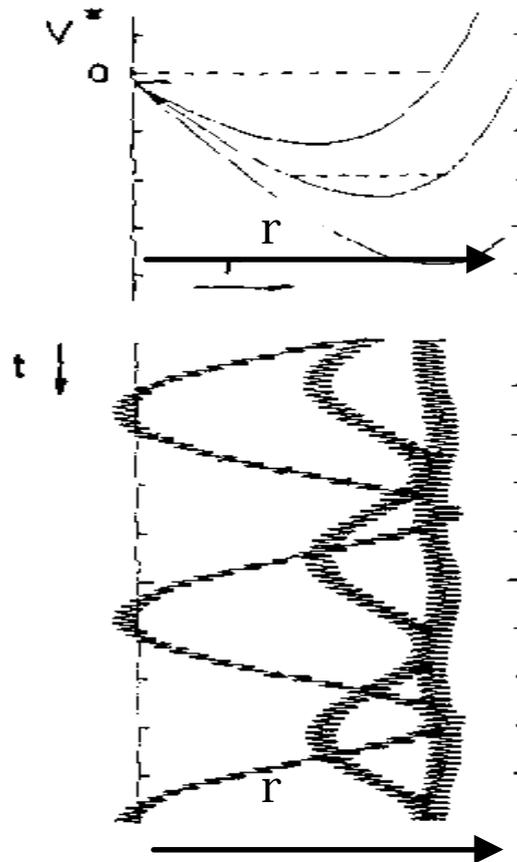


Abbildung 7: Bewegung eines geladenen Teilchens im oszillierenden Feld eines Zylinderkondensators mit verschiedenen überlagerten Gleichspannungen; **oberes Bild:** effektives Potenzial für drei verschiedene Gleichspannungen als Funktion des Abstandes zur inneren Elektrode; gestrichelte Linie = Gesamtenergie des Teilchens; **unteres Bild:** Teilchenbewegungen als Funktion der Zeit in Abhängigkeit von der Lage des Minimums des effektiven Potenzials im oberen Bild [Gerlich 1990]

Quadrupolfeld

Der für die Paulfalle relevante Fall ist die Bewegung eines Teilchens im Quadrupol-Feld. Wird in der allgemeinen Bewegungsgleichung (6) der Feldvektor durch das elektrische Potenzial ausgedrückt, ergibt sich folgende Gleichung:

$$m\ddot{\vec{r}} = -Q\nabla\Phi. \quad (7)$$

$$\nabla = \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial z}$$

Φ : elektrisches Potenzial

Für das Potenzial wird der Ausdruck aus Gleichung (5) eingesetzt, wobei für Φ_0 gilt:

$$\Phi_0 = U + V \cos \omega t. \quad (8)$$

U : Gleichspannung

V : Amplitude der Wechselspannung

Als Ergebnis erhält man drei unabhängige Differentialgleichungen:

$$\frac{\partial x^2}{\partial t^2} + \frac{Q}{mr_0^2} (U + V \cos \omega t) x = 0 \quad (9)$$

$$\frac{\partial y^2}{\partial t^2} + \frac{Q}{mr_0^2} (U + V \cos \omega t) y = 0 \quad (10)$$

$$\frac{\partial z^2}{\partial t^2} - \frac{2Q}{mr_0^2} (U + V \cos \omega t) z = 0. \quad (11)$$

Diese Gleichungen lassen sich durch Parameterisierung auf die Mathieuschen Differentialgleichungen zurückführen, deren mathematische Lösung bekannt ist.

Parameterisierungen:

$$a = \frac{4UQ}{mr_0^2 \omega^2}$$

$$q = \frac{2VQ}{mr_0^2 \omega^2}$$

$$t = \frac{\omega t}{2}$$

Mathieusche Differentialgleichungen:

$$\frac{\partial x^2}{\partial t^2} + (a + 2q \cos 2t) x = 0 \quad (12)$$

$$\frac{\partial y^2}{\partial t^2} + (a + 2q \cos 2t) y = 0 \quad (13)$$

$$\frac{\partial z^2}{\partial t^2} - 2(a + 2q \cos 2p)z = 0. \quad (14)$$

Durch die Mathieuschen Differentialgleichungen ist die Teilchenbewegung im Quadruplofeld vollständig beschrieben. Die allgemeine Lösung [Kneschke 1962] dieses mathematischen Problems zerfällt in zwei Typen von speziellen Lösungen. Der erste Typ beschreibt eine stabile (Abbildung 8), der zweite eine instabile Teilchenbewegung (Abbildung 9).



Abbildung 8: Fotografie einer stabilen Teilchenbewegung [Wuerker 1959]

Im stabilen Fall schwingen die Teilchen mit begrenzter Amplitude in x, y- und z-Richtung und führen somit eine stabile periodische Bewegung aus, welche von Wuerker et al. für ein kleines Aluminiumteilchen photographiert werden konnte (Abbildung 8) [Wuerker 1959].

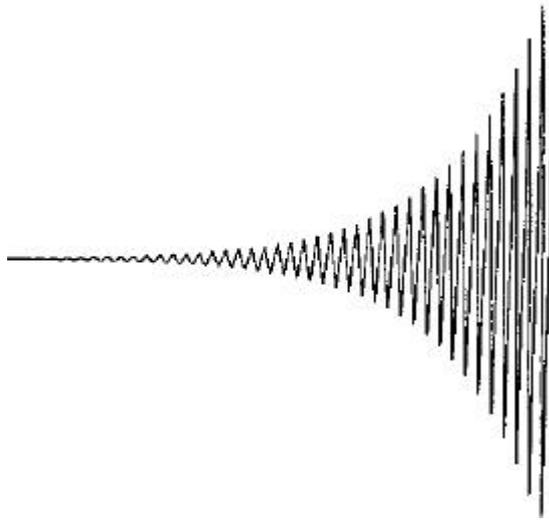


Abbildung 9: Illustration einer instabilen Trajektorie [Gerlich 1990]

Im instabilen Fall wächst die Amplitude exponentiell in eine Raumrichtung, und das Teilchen geht verloren (Abbildung 9).

Dieses durch die Mathieuschen Differentialgleichungen beschriebene Verhalten ist das Resultat der Wirkung eines oszillierenden, inhomogenen Quadrupolfeldes auf ein geladenes Teilchen.

2.2 Mie-Streuung

Die Mie-Streuung beschreibt die Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und Partikeln, deren Teilchenradien in der Größenordnung der Wellenlänge des eingestrahlten Lichtes liegen. Sie nimmt damit eine Position zwischen Rayleighstreuung, bei der die Partikel sehr viel kleiner als die Wellenlänge sind, und linearer Optik, bei der die Streuobjekte sehr viel größer als die Wellenlänge sind, ein. Der folgende Abschnitt soll mit für das Experiment relevanten Eigenschaften der Mie-Streuung vertraut machen.

2.2.1 Die Mie-Theorie

Das Streuverhalten eines Körpers ist abhängig von der Größe des Körpers relativ zur Wellenlänge des eingestrahlten Lichtes. Dieses Verhältnis wird durch den Größenparameter x ($x = 2\pi r / \lambda$) beschrieben. Darüber hinaus werden die optischen Eigenschaften eines Körpers von dessen chemischer Zusammensetzung bestimmt.

Durch das Feld einer einfallenden elektromagnetischen Welle werden Elektronen in Schwingungen versetzt. Die auf diese Weise beschleunigten elektrischen Ladungen haben die Eigenschaft, elektromagnetische Strahlung in alle Richtungen zu emittieren. Neben dieser sekundären Strahlung - der Streustrahlung - wird ein Teil der eingestrahlten Strahlung auch in andere Energieformen (zum Beispiel Wärme) umgewandelt. Dieser Vorgang wird Absorption genannt. Wenn ein Partikel mit Licht einer bestimmten Wellenlänge und Polarisation bestrahlt wird, hängen sowohl die Intensität und die Winkelverteilung des gestreuten Lichtes als auch die Menge des absorbierten Lichtes von Form, Größe und Brechungsindex des Teilchens ab. Bei Partikeln, die verglichen mit der Wellenlänge klein sind ($x \ll 1$, Rayleigh-Streuung), befinden sich die gestreuten Wellen in Phase zueinander, während es bei

größeren Partikeln zur gegenseitigen Verstärkung und Abschwächung der Sekundärwellen kommt.

Im nächsten Abschnitt sollen die mathematischen Grundlagen der Theorie zur Wechselwirkung von Partikeln bestimmter Größe, Form und optischer Eigenschaften mit Licht skizziert werden. Es soll also darum gehen, das elektromagnetische Feld innerhalb und außerhalb eines Teilchens, auf das eine polarisierte, monochromatische Welle trifft, vollständig zu beschreiben.

Die mathematische Herleitung der Mie-Theorie folgt im wesentlichen den Ausführungen in Bohren et al. [Bohren 1984].

In Abbildung 10 ist die Streuung an einem sphärischen Partikel schematisch dargestellt.

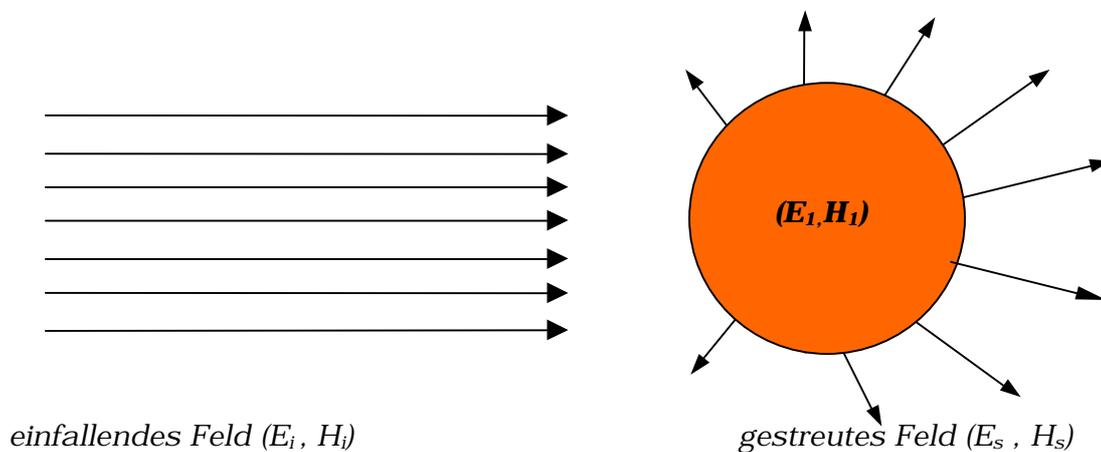


Abbildung 10: Streuung einer elektromagnetischen Welle an einem sphärischen Teilchen: E : elektrische Feldstärke; H : magnetische Feldstärke

Das Feld im Inneren des Teilchens wird hier mit \vec{E}_1, \vec{H}_1 beschrieben. Die Komponenten des einfallenden Feldes, \vec{E}_i und \vec{H}_i , haben die Form einer planaren Welle:

$$\vec{E}_i = \vec{E}_0 \exp(i\vec{k}\vec{x} - i\omega t) \quad (15)$$

$$\vec{H}_i = \vec{H}_0 \exp(i\vec{k}\vec{x} - i\omega t). \quad (16)$$

\vec{E}_s und \vec{H}_s kennzeichnen hingegen das gestreute Feld. Das aus der Überlagerung des einfallenden Feldes, \vec{E}_i und \vec{H}_i , und des gestreuten Feldes, \vec{E}_s und \vec{H}_s , resultierende äußere Feld, \vec{E}_2 , \vec{H}_2 , (in Abbildung 12 nicht dargestellt) ergibt sich aus Gleichung (17) und (18):

$$\vec{E}_2 = \vec{E}_i + \vec{E}_s \quad (17)$$

$$\vec{H}_2 = \vec{H}_i + \vec{H}_s. \quad (18)$$

Alle auftretenden Felder müssen die Maxwell-Gleichungen erfüllen:

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \vec{E} &= 0, \\ \nabla \cdot \vec{H} &= 0, \\ \nabla \times \vec{E} &= i\omega\mu\vec{H}, \\ \nabla \times \vec{H} &= -i\omega\varepsilon\vec{E}. \end{aligned} \quad (19)$$

$$\nabla = \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial z}$$

μ : Permeabilität

ε : Dielektrizitätskonstante

Durch Umformen lassen sich die Maxwell-Gleichungen in die entsprechenden Vektor-Wellengleichungen für \vec{E} und \vec{H} überführen⁶:

$$\nabla^2 \vec{H} = k^2 \vec{H} = 0 \quad (20)$$

$$\nabla^2 \vec{E} = k^2 \vec{E} = 0. \quad (21)$$

$$k^2 = \omega^2 \mu \varepsilon$$

⁶ Das gilt aber genau genommen nur dann, wenn keine Ladungen vorhanden sind.

Hierbei ist $k=\omega/c$ die Wellenzahl des Lichtes, die über die Lichtgeschwindigkeit c im betreffenden Medium von dessen Brechungsindex abhängt.

Zur Lösung der Vektor-Wellengleichung wählt man folgenden Ansatz, wobei M eine beliebige Vektorfunktion darstellt:

$$\vec{M} = \nabla \times (\vec{C}\mathbf{y}). \quad (22)$$

\vec{C} ist ein konstanter Vektor, und \mathbf{y} repräsentiert eine Skalarfunktion. Die Vektorfunktion \vec{M} erfüllt die Vektor-Wellengleichung (22) nur dann, wenn \mathbf{y} eine Lösung der skalaren Wellengleichung ist:

$$\nabla^2 \mathbf{y} + k^2 \mathbf{y} = 0. \quad (23)$$

Somit wurde das Problem der Lösung einer Vektor-Wellengleichung reduziert auf die Lösung einer skalaren Gleichung. Da wir uns hier mit der Streuung an *sphärischen* Teilchen beschäftigen wollen, ist es sinnvoll, Polarkoordinaten einzuführen, die folgendermaßen definiert sind:

$$x = r \sin J \cos j$$

$$y = r \sin J \sin j$$

$$z = r \cos J.$$

In Abbildung 11 sind die Koordinaten veranschaulicht.

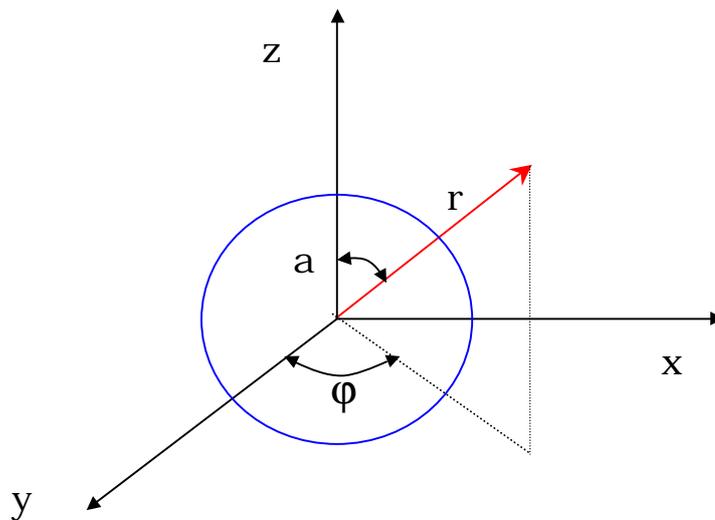


Abbildung 11: Polarkoordinaten für ein sphärisches Teilchen; Kreis: sphärisches Teilchen; a : Teilchenradius; r : beliebiger Radiusvektor; J : Winkel zwischen z -Achse und Radiusvektor; j : Winkel zwischen y -Achse und Projektion von r auf die x, y -Ebene

Als konstanter Vektor \vec{C} in Gleichung (22) wird der Ortsvektor \vec{r} gewählt, und für die Wellenfunktion y in Gleichung (23) wird ein Produktansatz zur Variablenseparation eingeführt:

$$y(r, J, j) = R(r)Q(J)F(j). \quad (24)$$

Auf diese Weise ergeben sich aus Gleichung (23) drei separierte Gleichungen, deren Lösungen für R und Q die Besselfunktionen bzw. die Legendreschen Polynome sind. Für F gibt es lediglich zwei linear unabhängige Lösungen:

$$F_g = \cos mj \quad F_u = \sin mj. \quad (25)$$

Dabei symbolisiert m die Separationskonstante, und die Indizes g und u stehen für „gerade“ und „ungerade“.

Nun ist es möglich, Wellenfunktionen entsprechend Gleichung (24) zu konstruieren, die der skalaren Wellengleichung in Polarkoordinaten genügen:

$$\begin{aligned} \mathbf{y}_{gmn} &= \cos mj P_n^m(\cos J) z_n(kr) \\ \mathbf{y}_{umn} &= \sin mj P_n^m(\cos J) z_n(kr). \end{aligned} \quad (26)$$

Dabei stellt z_n eine von vier sphärischen Besselfunktionen dar, und P_n^m steht für ein Legendresches Polynom. Die Indices g/u stehen wieder für gerade bzw. ungerade, m gibt die Ordnung und n den Grad der Legendreschen Polynome an.

Aus diesen skalaren Wellenfunktionen lassen sich nun über Gleichung (22) Vektorkugelfunktionen erzeugen:

$$\begin{aligned} \vec{M}_{gmn} &= \nabla \times (r \mathbf{y}_{gmn}) \\ \vec{M}_{umn} &= \nabla \times (r \mathbf{y}_{umn}) \\ \vec{N}_{gmn} &= \frac{\nabla \times \vec{M}_{gmn}}{k} \\ \vec{N}_{umn} &= \frac{\nabla \times \vec{M}_{umn}}{k}. \end{aligned} \quad (27)$$

Diese Vektorkugelfunktionen sind unerlässlich für die mathematische Beschreibung der Streuung einer ebenen Welle (vgl. Gl.(15) und (16)) an einem sphärischen Teilchen. In Gleichung (28) wird die ebene Welle nach den Vektorkugelfunktionen entwickelt:

$$\vec{E}_i = \sum_{i=1}^m \sum_{i=1}^n (B_{gmn} \vec{M}_{gmn} + B_{umn} \vec{M}_{umn} + A_{gmn} \vec{N}_{gmn} + A_{umn} \vec{N}_{umn}). \quad (28)$$

B_{gmn} , B_{umn} , A_{gmn} , A_{umn} stellen die Entwicklungskoeffizienten dar. Nach einigen Zwischenschritten ist der gewünschte Ausdruck für eine ebene Welle in Vektorkugelfunktionen gefunden:

$$\vec{E}_i = \vec{E}_0 \sum_{i=1}^n i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\vec{M}_{umnn} - i \vec{N}_{gmn}). \quad (29)$$

Durch die einfallende Welle in Gleichung (29) und die Grenzbedingungen⁷ sind die Ausdrücke für das gestreute Feld \vec{E}_s , \vec{H}_s und das Feld im Inneren des Teilchens \vec{E}_1 , \vec{H}_1 bereits festgelegt:

$$\vec{E}_1 = \sum_{i=1}^n E_n (c_n \vec{M}_{umnn} - i d_n \vec{N}_{gmn}), \quad (30)$$

$$\vec{E}_s = \sum_{i=1}^n \vec{E}_n (i a_n \vec{N}_{gmn} - b_n \vec{M}_{umnn})$$

mit
$$\vec{E}_n = i^n \vec{E}_0 \frac{2n+1}{n(n+1)}.$$

Um auf der Grundlage der formalen Theorie Aussagen zu machen, wie sich verschiedene Observablen tatsächlich mit der Größe und den optischen Eigenschaften des Teilchens und mit dem umgebenden Medium ändern, muß zunächst einmal nach expliziten Ausdrücken für die Koeffizienten a_n und b_n gesucht werden. Zu diesem Zweck werden Gleichung (17) und (18) in Komponentenform gebracht:

$$\begin{aligned} E_{iJ} + E_{sJ} &= E_{1J} \\ E_{ij} + E_{sj} &= E_{1j} \\ H_{iJ} + H_{sJ} &= H_{1J} \\ H_{ij} + H_{sj} &= H_{1j}. \end{aligned} \quad (31)$$

⁷ Von einem elektromagnetischen Feld wird gefordert, dass es die Maxwell-Gleichungen (Gleichung (19)) überall erfüllt, wo die Permeabilität μ und die Dielektrizitätskonstante ϵ kontinuierlich sind. Beim Übergang durch die Grenzfläche zwischen Partikel und umgebendem Medium kommt es aber zu einer sprunghaften Änderung dieser Eigenschaften. Es liegt demnach an dieser Stelle eine Diskontinuität vor. Das Feld hat an dieser Grenzfläche folgenden Bedingungen zu genügen:

$$\begin{aligned} [E_2(x) - E_1(x)] \times \hat{n} &= 0 \\ [H_2(x) - H_1(x)] \times \hat{n} &= 0 \\ E_2 &= E_1 + E_s \\ H_2 &= H_1 + H_s \end{aligned}$$

Aus diesen vier Gleichungen erhält man zusammen mit den Gleichungen (29), (30) und vier lineare Bestimmungsgleichungen für die Entwicklungskoeffizienten a_n , b_n , c_n , d_n deren Lösungen wie folgt lauten:
Für das Feld im Inneren des Teilchens:

$$c_n = \frac{\mathbf{m}_1 j_n(x)[xh_n(x)]' - \mathbf{m}_1 h_n(x)[xj_n(x)]'}{\mathbf{m}_1 j_n(mx)[xh_n(x)]' - \mathbf{m} h_n(x)[mxj_n(mx)]'} \quad (32)$$

$$d_n = \frac{\mathbf{m}_1 m j_n(x)[xh_n(x)]' - \mathbf{m}_1 m h_n(x)[xj_n(x)]'}{\mathbf{m} m^2 j_n(mx)[xh_n(x)]' - \mathbf{m}_1 h_n(x)[mxj_n(mx)]'} \quad (33)$$

Für die Koeffizienten des gestreuten Feldes:

$$a_n = \frac{\mathbf{m} m^2 j_n(mx)[xj_n(x)]' - \mathbf{m}_1 j_n(x)[mxj_n(mx)]'}{\mathbf{m} m^2 j_n(mx)[xh_n(x)]' - \mathbf{m}_1 h_n(x)[mxj_n(mx)]'} \quad (34)$$

$$b_n = \frac{\mathbf{m}_1 j_n(mx)[xj_n(x)]' - \mathbf{m} j_n(x)[mxj_n(mx)]'}{\mathbf{m}_1 j_n(mx)[xh_n(x)]' - \mathbf{m} h_n(x)[mxj_n(mx)]'} \quad (35)$$

x : Größenparameter; $x = ka = 2pa/l$

m : relativer Brechungsindex; $m = m_P/m_M$

m_P : Brechungsindex des Partikels

m_M : Brechungsindex des Mediums

\mathbf{m}_1 : Permeabilität des Partikels

\mathbf{m} : Permeabilität des Mediums

j_n : Besselfunktionen

h_n : Hankelfunktionen

Damit ist das Problem formal gelöst. Die Streukoeffizienten a_n und b_n sind ausgedrückt durch den Größenparameter x und den relativen Brechungsindex m . Das bedeutet, dass eine Variation des Teilchenradius a , der Wellenlänge l oder des Brechungsindex m eine Veränderung der Streukoeffizienten und damit nach Gleichung (30) der gesamten Streuwelle zur Folge hat.

Abhängig vom Größenparameter x werden folgende zwei Grenzfälle für die Gültigkeit der in den vorhergehenden Kapiteln behandelten Theorie betrachtet:

1.) $x \ll 1$

Es handelt sich um die Strahlung eines parallel zur x -Achse schwingenden elektrischen Dipols und damit um den Bereich der Rayleigh-Streuung.

2.) $x \gg 1$

Dieser Grenzfall der Mie-Theorie liegt im Bereich der geometrischen Optik. Die Mie-Theorie besitzt gegenüber der geometrischen Optik den Vorteil, die besondere Struktur der Streuung von Licht an Tröpfchen erklären zu können.

2.2.2 Winkelabhängigkeit des Streulichtes

Die Mie-Streuung weist im Gegensatz zur Rayleigh-Streuung ganz erhebliche Intensitätsschwankungen als Funktion des Streuwinkels auf. In Abhängigkeit von Größe und Brechungsindex des Teilchens sowie Wellenlänge und Polarisation des einfallenden Lichtes treten typische Intensitätsmaxima und -minima auf. Das Streumuster reagiert sehr empfindlich auf Veränderungen dieser Parameter, so dass es zur Charakterisierung des Teilchens verwendet werden kann. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Auswertung der Anzahl der Maxima zur Größenbestimmung herangezogen.

Zur anschaulichen Darstellung der Mie-Streuung werden sogenannte Polardiagramme verwendet. Sie zeigen die relativen Streuintensitäten des senkrecht und parallel zur Streuebene polarisierten Lichtes als Funktion des Streuwinkels.

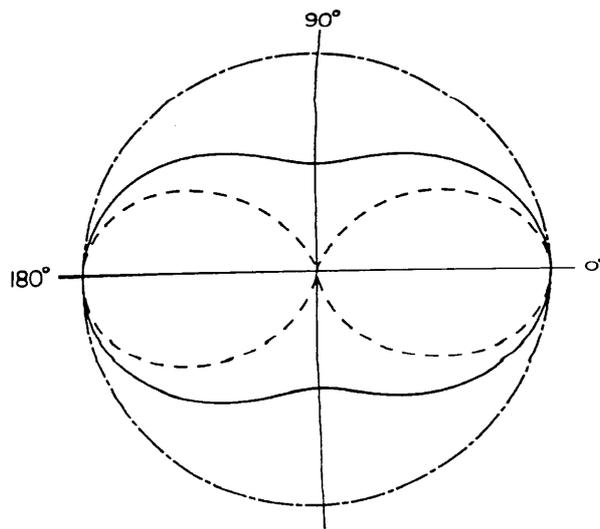


Abbildung 12: Winkelverteilung des Streulichtes für ein sphärisches Teilchen mit $x \ll 1$; (---) parallel polarisiert; (-.-.) senkrecht polarisiert; (—) unpolarisiert [Bohren 1984]

In Abbildung 12 ist die polarisationsabhängige Winkelverteilung des Streulichtes für ein im Verhältnis zur Wellenlänge kleines Teilchen ($x \ll 1$) dargestellt. Es handelt sich um einen typischen Fall der Rayleigh-Streuung mit gleicher Wahrscheinlichkeit für Vorwärts- (180°) und Rückwärtsstreuung (0°). Charakteristisch ist unter anderem der Polarisationsgrad der gestreuten Welle, der bei 90° maximal ist. Es ist nicht möglich, bei Teilchen mit diesem Größenparameter den Radius aus der Winkelabhängigkeit des Streulichtes zu bestimmen.

Mit zunehmendem Größenparameter x nimmt die Vorwärtsstreuung auf Kosten der Rückwärtsstreuung zu (Abbildung 13).

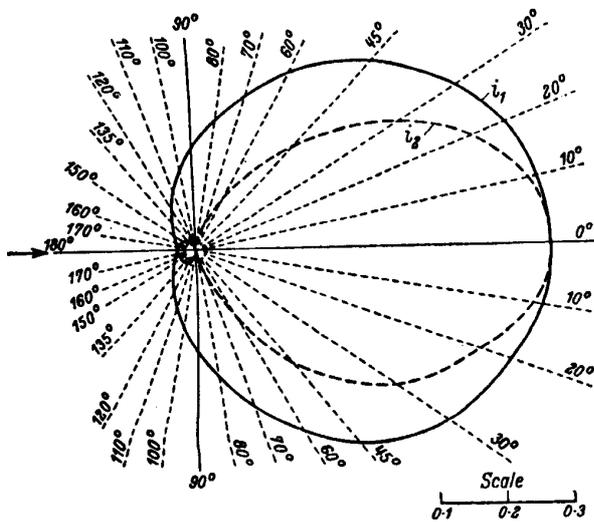
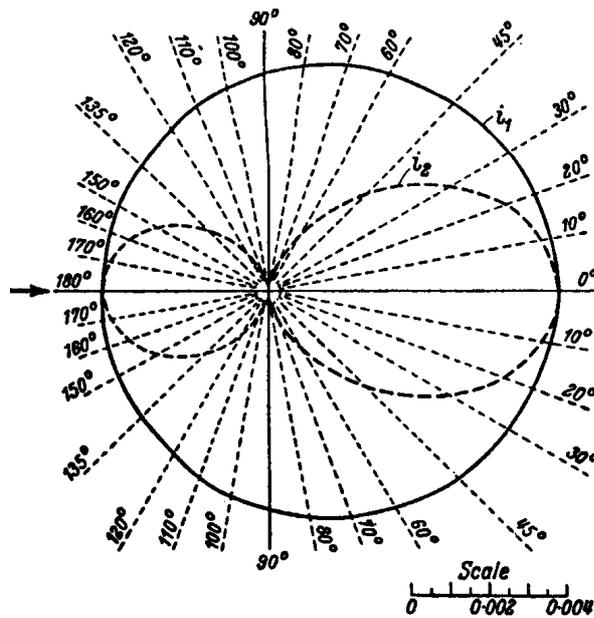


Abbildung 13: Polardiagramme für sphärische Teilchen mit $x=0.8$ (oben) und $x=1.6$ (unten); $i_{\perp}=x^2 i_{\parallel}$; $i_{\parallel}=x^2 i_{\perp}$ ⁸; $n=1.25$ [Born 1980]

Wird der Größenparameter deutlich größer als eins, tauchen neben der ausgeprägten „Vorwärtskeule“ bei anderen Winkeln Minima und Maxima auf, die durch Interferenz der Streuwellen miteinander zustande kommen (Abbildung 14).

⁸ i_{\perp} - Intensität des senkrecht polarisierten Lichtes

i_{\parallel} - Intensität des parallel polarisierten Lichtes

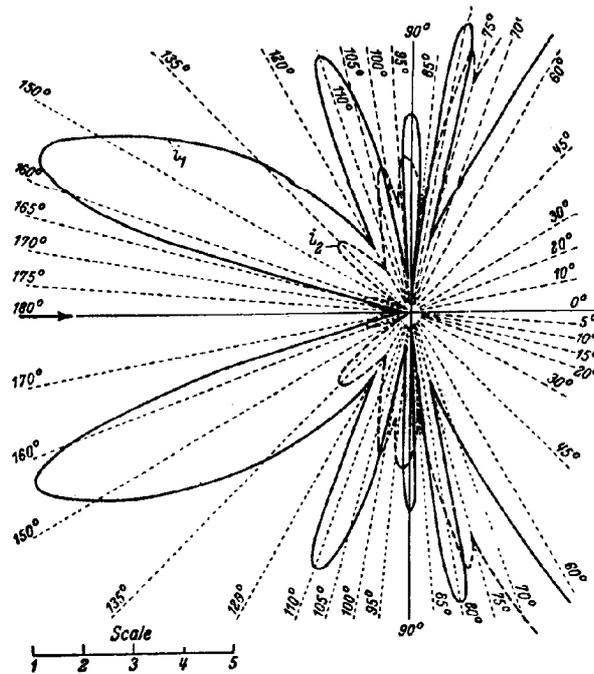
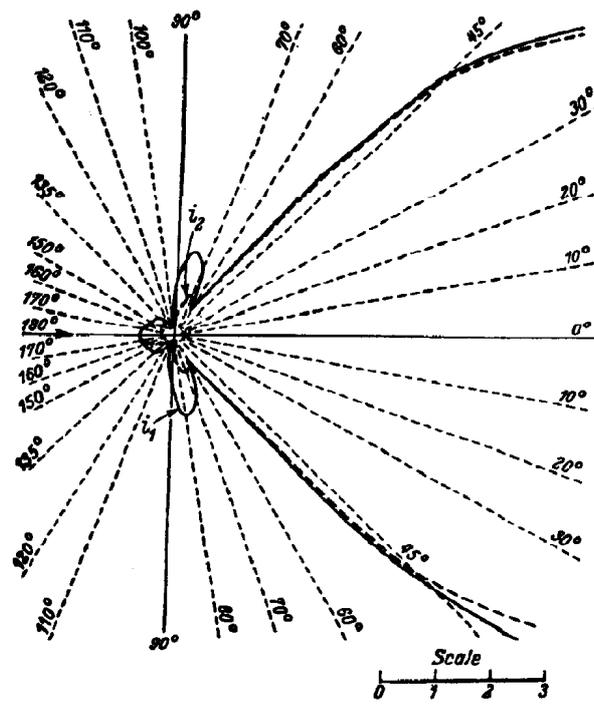


Abbildung 14: Polardiagramme für sphärische Teilchen mit $x=4$ (oben) und $x=8$ (unten); $i_{\perp}=x^2 i_{\perp}^0$; $i_{\parallel}=x^2 i_{\parallel}^0$; $n=1.25$ [Born 1980]

⁹ i_{\perp} - Intensität des senkrecht polarisierten Lichtes

i_{\parallel} - Intensität des parallel polarisierten Lichtes

In unserem Experiment wurde das Streulicht der zu untersuchenden Tropfen winkel- und zeitaufgelöst aufgenommen. Die eben erwähnten Intensitätsmaxima wurden dabei zur Größenbestimmung herangezogen. In Abbildung 15 ist ein mit einer CCD - Kamera aufgenommenes Streubild im Winkelbereich zwischen 84° und 96° zu sehen¹⁰.

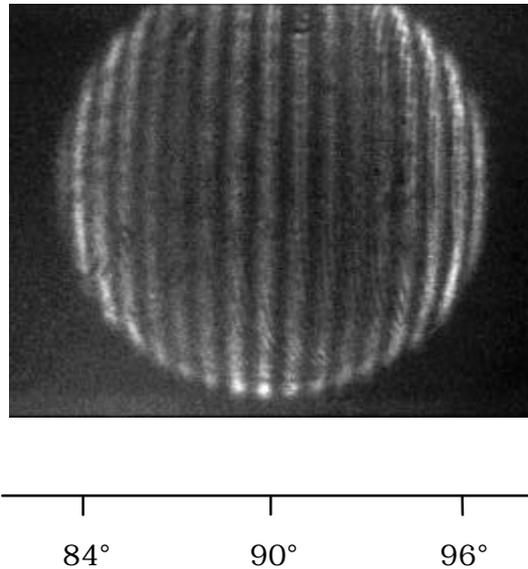


Abbildung 15: Winkelabhängiges Streubild eines flüssigen Glykoltropfens

2.2.3 MDRs (**M**orphology **D**ependent **R**esonances)

Neben der Winkelverteilung weist das Streulicht noch eine andere Besonderheit auf, die in der Teilchenanalyse ausgenutzt werden kann. Bei einem festen Winkel (oder Winkelbereich) treten bei der Streulichtintensität scharfe Intensitätsmaxima als Funktion des Größenparameters x auf. Diese Maxima entsprechen optischen Resonanzen und werden als MDRs (**M**orphology **D**ependent **R**esonances)

¹⁰ Die kreisförmige Peripherie in der mit einer CCD-Kamera gemachte Aufnahme (Abbildung 15) stellt nicht die äußere Begrenzung des Tröpfchens dar, sondern rührt von der in den Strahlengang eingebauten Blende her. Der Durchmesser dieser Blende und deren Abstand zum Fallenzentrum bestimmen den erfaßten Winkelbereich. Um die Größe (und damit auch das Volumen des Tröpfchens) aus dem aufgenommenen Streubild bestimmen zu können, muß der im Experiment erfaßte Winkelbereich sehr genau ermittelt werden.

bezeichnet. Sie sind außer von x auch noch vom Brechungsindex des Teilchens und der Polarisation des eingestrahlten Lichtes abhängig. Um die MDRs beobachten und messen zu können, muß entweder die Teilchengröße (z. B. durch Verdampfen) oder die Wellenlänge des Lichtes innerhalb eines bestimmten Bereiches kontinuierlich verändert werden. In Abbildung 16 ist die über einen festgelegten Winkelbereich integrierte Gesamtintensität des Streuwinkels als Funktion des Tropfenradius bei konstanter Wellenlänge gezeigt.

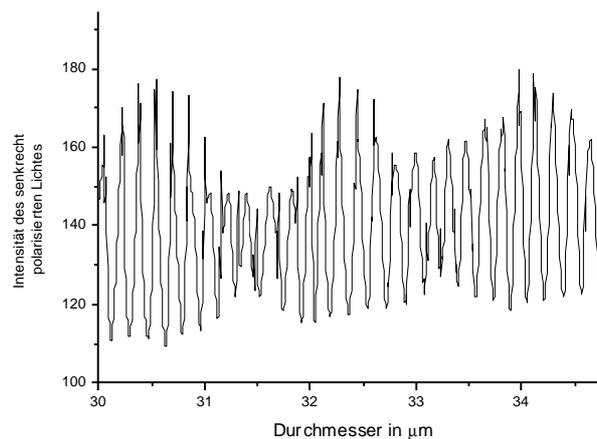


Abbildung 16: MDRs als Funktion des Tropfendurchmessers

Physikalisch können die MDRs als Oberflächenwellen interpretiert werden, welche bei bestimmten Größenparametern x tangential in das sphärische Teilchen eintreten und sich durch wiederholte Reflexion¹¹ an der Phasengrenzschicht mit sehr geringen Intensitätsverlusten durch die Mikrosphäre bewegen und schließlich (in Phase) zu ihrem Ausgangspunkt zurückkehren (Abbildung 17).

¹¹ Da der Eintrittswinkel des Strahles unterhalb eines Grenzwinkels liegt, handelt es sich hierbei näherungsweise um Totalreflexionen.

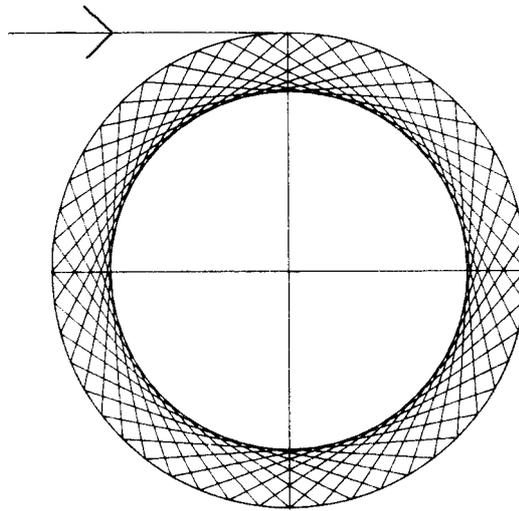


Abbildung 17: Weg eines tangential eintretenden Strahls, der sich mittels Totalreflexion in der Mikrosphäre fortpflanzt, da er sich mit dieser in Resonanz befindet [Barber 1988]

Jede MDR ist charakterisiert durch drei Modenzahlen l , n und m , welche zusammen die räumliche Intensitätsverteilung der Resonanz innerhalb des Tropfens beschreiben. Die Modenzahl l spezifiziert die Zahl der Peaks in der radialen Intensität.

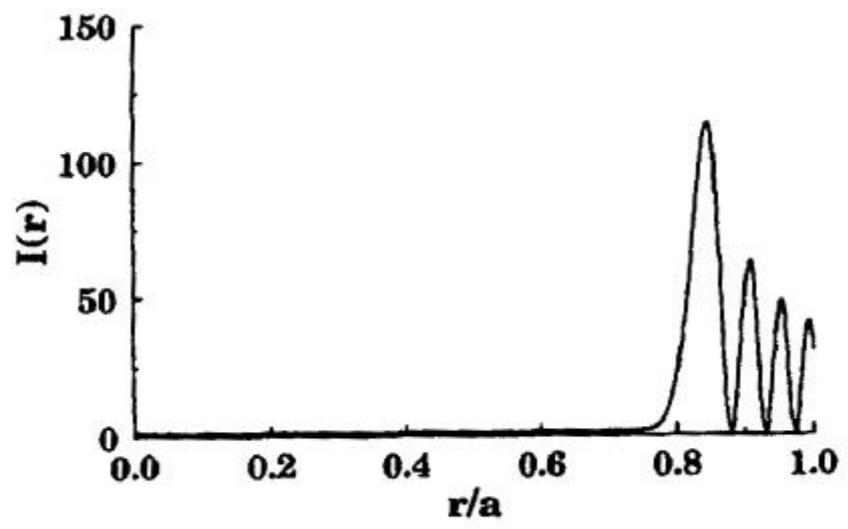


Abbildung 18: Über einen bestimmten Winkelbereich gemittelte, interne Intensität des Streulichtes als Funktion der radialen Entfernung r/a ¹² (vgl. Abbildung 11) [Chen 1996]

¹² r - Abstand vom Tropfenmittelpunkt
 a - Tropfendurchmesser

Wie sowohl in Abbildung 17 als auch in Abbildung 18 deutlich wird, ist die Energiedichte im Falle einer Resonanz in der Nähe der Oberfläche des Teilchens sehr hoch. Demnach handelt es sich bei den MDRs um Oberflächenphänomene. Die Resonanzmoden dringen bis zu einer bestimmten Schichtdicke in die Sphäre ein. Genau bei $r=a/n$ bricht die Energiedichte ein.

Die Modenzahlen m und n beschreiben die Winkelverteilung der Intensität bei einer Resonanz. Dabei gibt die Modenzahl n die Anzahl der Maxima in der Äquatorialebene an im Winkelbereich zwischen $\varphi=0$ und $\varphi=180^\circ$ (vgl. Abbildung 11). Eine grafische Darstellung ist in Abbildung 19 zu sehen.

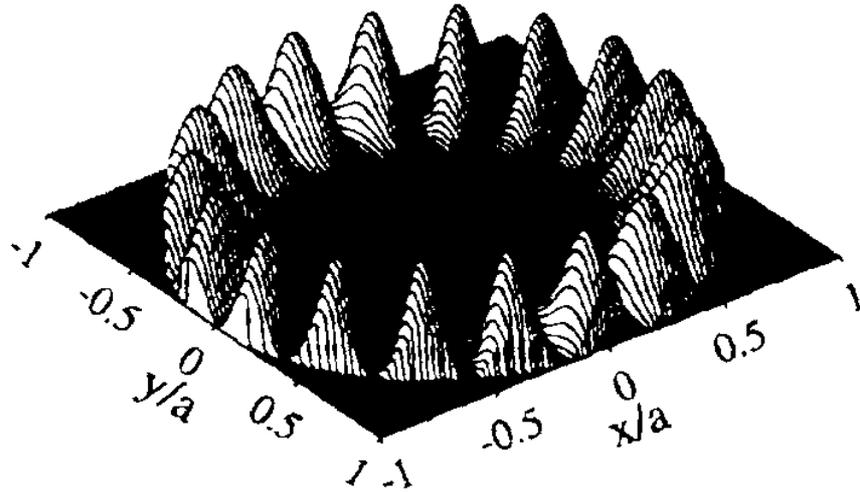


Abbildung 19: Interne Intensitätsverteilung in der Äquatorialebene für eine MDR [Chen 1996]

Die Modenzahl m spiegelt dagegen die Streuintensität für eine Resonanz als Funktion des Azimuthwinkels φ (vgl. Abbildung 11) wider (Abbildung 20).

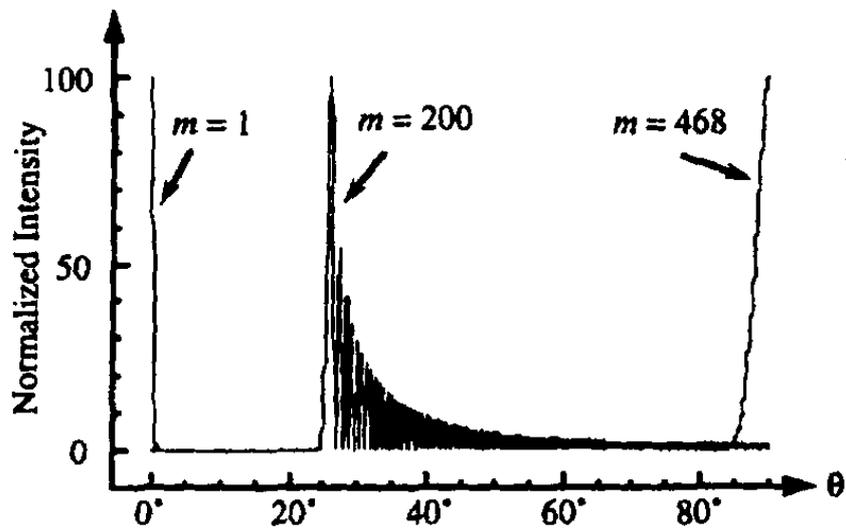


Abbildung 20: Interne Intensitätsverteilung als Funktion des Azimutwinkels θ
[Chen 1996]

In Abbildung 21 ist die winkelabhängige Intensitätsverteilung (entsprechend Abbildung 19) beim Durchlaufen einer Mieresonanz¹³ gezeigt.

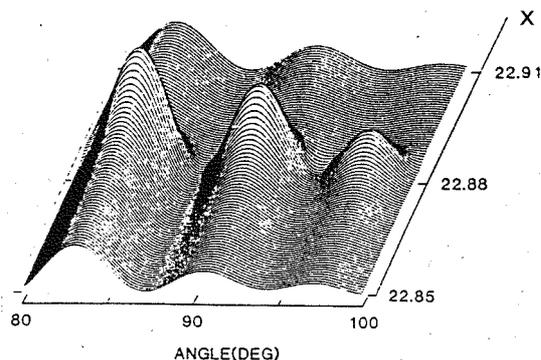


Abbildung 21: Streulichtintensität eines Partikels als Funktion des Streuwinkels beim Passieren einer Mieresonanz; $x=2pr/l$ [Richardson 1986]

Es wird deutlich, wie die Gesamtintensität des Streulichtes bei einem bestimmten Größenparameter x ein Maximum durchläuft.

Im Rahmen dieser Arbeit werden die zeitlichen Abstände zwischen den MDRs bei verdampfenden Tröpfchen zur Bestimmung der Größenänderung und damit zur Ermittlung der Verdampfungsrates

¹³ durch Variation des Größenparameters x (zum Beispiel durch Verdampfen)

benutzt. Die Genauigkeit der Größenmessung mit der Resonanztechnik übertrifft die konventionelle Technik, die auf der Winkelverteilung des Streulichtes basiert, um 2 bis 3 Größenordnungen [Ashkin 1981].