

5. DIE APPARATUR

Am Anfang der Bearbeitung dieses Projektes standen die Einrichtung eines Labors und der Aufbau der Meßapparatur. Diese Apparatur sollte die folgenden Funktionen beinhalten:

- stabile berührungsfreie Lagerung (Levitation) einzelner Flüssigkeitströpfchen mit Größen im 10 μm -Bereich,
- winkel- und polarisationsaufgelöste Aufnahme des elastischen Streulichtes (Mie-Streuung)
- reproduzierbare Erzeugung solcher Tröpfchen,
- Kontrolle und Beeinflußbarkeit der Temperatur,
- Veränderbarkeit der Gasatmosphäre
- Größenbestimmung,
- zeitaufgelöste Ramanspektroskopie.

Zur berührungsfreien Levitation von Partikeln stehen mehrere Verfahren zur Verfügung, die unterschiedliche Anforderungen an die Teilchen und deren Erzeugung stellen. Die Partikel können aufgrund einer Wechselwirkung mit akustischen, optischen oder elektrodynamischen stehenden Wellen bzw. Feldern in der Schwebe gehalten werden. Jede dieser Methoden hat ihre spezifischen Vor- und Nachteile. Die akustische Levitation mittels stehender Ultraschallwellen wurde bisher nicht erfolgreich an Partikeln mit Größen im 10 μm -Bereich durchgeführt, sondern nur an deutlich größeren Teilchen. Die optische Levitation (vgl. z.B. [Ashkin und Dziedzic, 1971]) von Partikeln in einem fokussierten Laserstrahl eignet sich prinzipiell gut für den anvisierten Größenbereich. Sie erfordert aber die Möglichkeit einer schnellen Laserleistungsregelung und schränkt die Wahl der Flüssigkeiten auf solche mit geringem Dampfdruck ein. Dennoch wurde und wird die optische Levitation häufig für Ramanspektroskopische Untersuchungen an Mikropartikeln eingesetzt, da der Levitationslaser gleichzeitig zur Anregung der Ramanstreuung verwendet werden kann. Entsprechende Veröffentlichungen werden in der vorliegenden Arbeit zitiert. Einen aktuellen Überblick über die Einzelteilchenlevitation gibt [Davis, 1997b], (Erratum: [Davis, 1997a]).

Die berührungsfreie Levitation einzelner Partikel mittels elektrodynamischer Felder geeigneter Geometrie und Frequenz ist eine sehr flexible Methode. Die Partikel müssen zwar elektrisch geladen sein, dies hat aber in den meisten praktischen Anwendungsfällen keinen signifikanten Einfluß auf den zu untersuchenden Vorgang. Die Existenz von Oberflächenladungen kann auch gezielt genutzt werden, etwa zur Untersuchung sogenannter Coulomb-Explosionen. Bei Anpassung der umgebenden Gasatmosphäre können die schwebenden Teilchen prinzipiell beliebig lange beobachtet werden. Die

elektrodynamische Levitation kann in vergleichsweise kompakten Aufbauten realisiert werden und steht den meisten Diagnoseverfahren nicht nennenswert im Wege.

Das Verfahren wird seit einigen Jahren in unserer Arbeitsgruppe erfolgreich angewandt. Viele Erfahrungen aus früheren Experimenten wurden bei der Planung dieses Projektes berücksichtigt. Drei weitere Aufbauten mit sehr ähnlichen Grundzügen wurden während der Durchführung dieses Projektes in unserer Arbeitsgruppe ([Weritz, 2001]) sowie der Arbeitsgruppe von Prof. Baumgärtel am Fachbereich Chemie der Freien Universität Berlin aufgebaut ([Stöckel, 2001], [Klein, 2002], [Weidinger, 2003]). Im folgenden wird die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Apparatur schrittweise vorgestellt. Die Abbildung 5.1 zeigt eine Skizze der wesentlichen Teile der Anlage in Aufsicht.

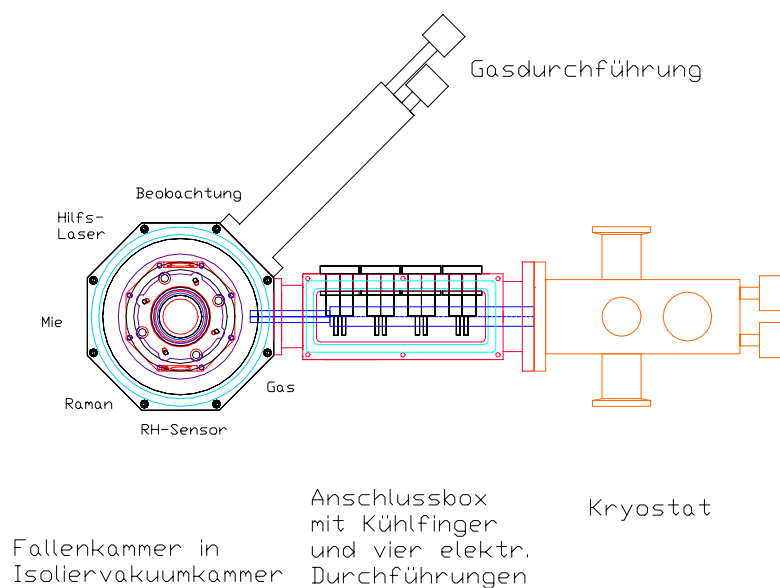


Abbildung 5.1: Skizze (Aufsicht) der Apparatur. Links: Fallenkammer in der Isolierkammer. Die Funktionen der einzelnen Ports der Fallenkammer sind angegeben. Mitte: Anschlußbox mit vier elektrischen Durchführungen. Rechts: Kühlfinger-Kryostat. Der Kühlfinger reicht durch die Anschlußbox bis zur Fallenkammer. Oben: Gasleitungsdurchführung.

Zentrales Funktionselement der Apparatur ist eine elektrodynamische Ringfalle, die im folgenden Abschnitt genauer beschrieben wird. Die Falle besteht aus zwei konzentrischen, koplanaren Kupferringen. Sie ist in einen achteckigen Kupferkörper integriert, der Ports zur elektrischen Kontaktierung und zur optischen Beobachtung enthält. Desweiteren ist die Fallenkammer mit einem Gasein- und -auslaß, einem temperaturkompensierten Feuchtesensor¹ und einem Widerstandsthermometer versehen. Über zwei auf Ober- und Unterseite der Fallenkammer aufgebrachte Kupferringe wird die Fallenkammer gekühlt. Dazu sind die Kühlringe mit einem Kaltfingerkryostaten verbunden. Zur thermischen Isolierung befindet sich die Fallenkammer in einer Isolierkammer. Der Raum zwischen den beiden Kammern kann mit einer Turbomolekularpumpe evakuiert

¹RH-Sensor (engl. *relative humidity* = relative Luftfeuchtigkeit).

werden. Die Isoliervakuumkammer ist mit entsprechenden Durchführungen für Sensoren, Falle und Gas sowie Fenstern zur Auskopplung des an den gespeicherten Partikeln elastisch (Mie) bzw. inelastisch (Raman) gestreuten Lichtes ausgestattet. Das elastisch gestreute Licht wird zur Bestimmung des Tropfchendurchmessers und des Aggregatzustandes mit einer CCD-Kamera detektiert. Der inelastische Anteil des Streulichtes wird mit einem Raman-Spektrometer analysiert. Ein weiterer Port zur Beobachtung des Falleninnenraums mit dem Auge und einer weiteren CCD-Kamera sowie zur Kontrolle der Tröpfchenposition genutzt. Zwei einander gegenüberliegende Ports werden zur Ein- und Auskopplung eines zusätzlichen Hilfs-Lasers genutzt. Der Einschub der Tröpfchen und des Lasers erfolgt senkrecht von oben.

5.1. Die elektrodynamische Ringfalle

5.1.1. Vorüberlegungen

Die Aufgabe der elektrodynamischen Falle ist es, die Position elektrisch geladener Partikel berührungsfrei an einem Punkt im Raum zu fixieren. Dazu wird die Kraftwirkung eines geeignet geformten elektrischen Feldes auf die geladenen Partikel genutzt. Der Gradient eines solchen Feldes muß zu jedem Zeitpunkt auf den Raumpunkt gerichtet sein, in dem das Teilchen gefangen werden soll. Gleichzeitig muß das Feld die Laplace-Gleichung erfüllen, d.h. divergenzfrei sein. Das einzige elektrostatische Feld, das die erste Bedingung erfüllt, ist das radialsymmetrische Feld einer Punktladung bzw. einer punktförmigen Elektrode. Eine solche Elektrode fiele räumlich mit dem zu speichernden Partikel zusammen. Dem entspricht die nichtverschwindende Divergenz des Punktladungsfeldes. Somit scheidet die Verwendung eines rein statischen Feldes aus. Die Levitation aufgrund elektrischer Wechselwirkung läßt sich nur mit dynamischen Feldern bewerkstelligen.

Im folgenden wird kurz die Kraftwirkung eines harmonischen Wechselfeldes auf ein geladenes Teilchen allgemein beschrieben und im zweiten Schritt eine mögliche Elektrodenform aufgezeigt. Die Darstellung folgt [Vortisch, 1998], dort finden sich auch hier fortgelassene Details.

5.1.2. Kraftwirkung eines harmonischen Wechselfeldes

Bringt man ein Teilchen der Masse m und der Ladung Q in ein räumlich homogenes und zeitlich harmonisches elektrisches Wechselfeld der Frequenz Ω , so unterliegt es der Bewegungsgleichung

$$F(z) = m \ddot{z} = Q E_0 \cos \Omega t \quad (5.1)$$

Dabei wurde entlang der z -Richtung verlaufende Feldlinien angenommen. Die Feldstärke ist mit E_0 bezeichnet. Die Bewegung des Teilchens kann man als Superposition einer durch das Feld aufgezwungenen schnellen Oszillation $\xi(t)$ mit einer relativ langsamen Bewegung $\bar{z}(t)$ des Schwingungsmittelpunktes auffassen. Mit dem Ansatz $z(t) = \bar{z}(t) + \xi(t)$ erhält man durch Integration der Bewegungsgleichung (5.1)

$$\xi(t) = -\xi_0 \cos \Omega t \quad (5.2)$$

mit

$$\xi_0 = \frac{Q E_0}{m \Omega^2} \quad (5.3)$$

Das zeitliche Mittel der Oszillation über eine Periode verschwindet.

Diese Formulierung läßt sich auf räumlich inhomogene Wechselfelder übertragen, die sich in der Form $E(\bar{z}, t) = E(\bar{z}) \cos \Omega t$ schreiben lassen. Dabei sei die Inhomogenität des Feldes auf der Skala ξ_0 der schnellen Schwingung des gefangenen Teilchens klein. Unter dieser Bedingung wird die Bewegungsgleichung des Schwingungsmittelpunktes zu

$$F(\bar{z}) = Q E(\bar{z}, t) + Q \xi \frac{\partial E(\bar{z}, t)}{\partial \bar{z}} \quad (5.4)$$

Für die zeitlich gemittelte Kraft erhält man unter Berücksichtigung der Gleichungen (5.2) und (5.3) sowie der Bedingung schwacher räumlicher Inhomogenität

$$\bar{F}(\bar{z}) = -\frac{Q^2}{4 m \Omega^2} \frac{d}{d \bar{z}} E^2(\bar{z}) \quad (5.5)$$

Die mittlere Kraft auf den Schwingungsmittelpunkt der Teilchenbewegung ist also immer in Richtung abnehmender Feldstärke gerichtet und dabei von der Polarität der Ladung unabhängig. Die Gleichung (5.5) kann man analog für ein in allen drei Raumrichtungen inhomogenes Feld formulieren.

Ein elektrisches Feld läßt sich als der negative Gradient eines skalaren Potentials schreiben. Durch Multiplikation mit der Ladung Q läßt sich diese Aussage auf die Kraft übertragen. Das zeitliche Mittel der Kraft (Gl. (5.5)) kann also durch ein mittleres Potential, das so genannte Pseudopotential Ψ , ausgedrückt werden:

$$\Psi = \frac{Q}{m} \frac{1}{4 \Omega^2} E^2(\bar{x}, \bar{y}, \bar{z}) \quad (5.6)$$

Damit ist die zeitlich gemittelte Kraftwirkung eines inhomogenen elektrischen Wechselfeldes auf ein geladenes Teilchen beschrieben. Der folgende Abschnitt widmet sich der räumlichen Form eines zur stabilen Levitation geeigneten Feldes.

5.1.3. Die Elektrodenform

Die möglichen Elektrodenformen sind recht vielfältig. Die Abbildung 5.2 zeigt einige Konfigurationen, die vorgeschlagen bzw. in der Praxis erprobt wurden. Wir verwenden eine Doppelringfalle nach Art der Konfiguration (b) in der Abb. 5.2. Das Potential dieser Falle läßt sich nicht mehr analytisch formulieren. Um einen Einblick in die Funktionsweise der Falle zu geben, wird hier stattdessen das Potential der klassischen Partikelfalle nach Paul (Konfiguration (a) in Abb. 5.2) entwickelt.

5.1.4. Die klassische Partikelfalle nach W. Paul

Die zeitlich gemittelte Kraftwirkung ist nach Gl. (5.5) immer in Richtung abnehmender Feldstärke gerichtet. Wählt man den Koordinatenursprung als den Punkt, in dem ein

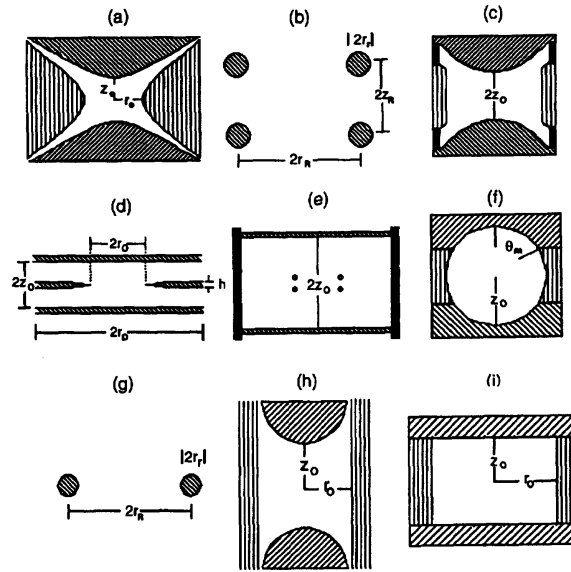


Abbildung 5.2: Vorgeschlagnene bzw. bereits erprobte Elektrodenkonfigurationen elektrodynamischer Fallen (Vertikalschnitte, alle Konfigurationen sind rotationssymmetrisch zu vertikalen Achsen in der Papierebene). Konfiguration (a) ist die klassische Paul-Falle. Die in der vorliegenden Arbeit genutzte Doppelringversion entspricht am ehesten Konfiguration (b), hat aber rechteckige Querschnitte. Abb. aus [Davis, 1997b]. Weitere Informationen zu Variante (f) in [Arnold et al., 1999].

elektrisch geladenes Partikel stabilisiert werden soll, so sollte der Gradient des elektrischen Feldes immer zu diesem Punkt weisen. Im Ursprung selbst soll das Feld verschwinden. Das Potential zu einem solchen Feld hat im Ursprung ein Minimum, d. h. seine ersten Ableitungen verschwinden dort. Die einfachste Taylor-Entwicklung des Potentials um den Ursprung lautet daher

$$\Phi = \Phi_0(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2) \quad (5.7)$$

Die Falle soll im Innern ladungsfrei sein, die Divergenz ihres elektrischen Feldes muß also verschwinden. Das ist gewährleistet, wenn das Potential die Laplace-Gleichung erfüllt:

$$\Delta\Phi = 0 \quad (5.8)$$

Aus dieser Forderung ergibt sich für das Potential (5.7) die Bedingung

$$\alpha + \beta + \gamma \stackrel{!}{=} 0 \quad (5.9)$$

Um diese Forderung zu erfüllen, muß mindestens einer der drei Koeffizienten negativ sein. In der entsprechenden Koordinatenrichtung ist der Gradient stets vom Ursprung weg gerichtet, das Potential ist deshalb statisch zum Fangen geladener Partikel nicht geeignet. Setzt man jedoch das aus dem Potential (5.7) resultierende elektrische Feld

in die Gleichung (5.6) für das Pseudopotential ein, so erhält man

$$\Psi = \frac{Q}{m} \frac{\Phi_0^2}{\Omega^2} (\alpha^2 x^2 + \beta^2 y^2 + \gamma^2 z^2) \quad (5.10)$$

Dieses Pseudopotential hat das geforderte Minimum im Ursprung, der Gradient seines Feldes zeigt immer auf diesen Punkt. Es erfüllt also alle Bedingungen an das Potential einer elektrodynamischen Falle.

Einfache Lösungen der Bedingung (5.9) führen auf das Potential des Quadrupol-Massenfilters ([Paul und Raether, 1955])

$$\alpha = -\beta \wedge \gamma = 0 \quad (5.11)$$

bzw. auf das hier gesuchte Potential der Partikelfalle nach W. Paul ($\alpha = \beta \wedge \gamma = -2\alpha$)

$$\Phi(x, y, z) = \alpha \Phi_0 (x^2 + y^2 - 2z^2) \quad (5.12)$$

das am zweckmäßigsten mit $\alpha = \frac{1}{r_0^2}$ in Zylinderkoordinaten zu schreiben ist

$$\Phi(r, z) = \frac{\Phi_0}{r_0^2} (r^2 - 2z^2) \quad (5.13)$$

Die Äquipotentialflächen dazu sind zur z -Achse rotationssymmetrische Hyperbeln. Dem entsprechend haben auch die Elektroden der Paul-Falle diese Form. Sie besteht aus einer hyperbolischen Torus-Innenfläche und zwei hyperbolischen Schalen. Die Konfiguration (a) in Abb. 5.2 zeigt einen Schnitt durch die Paul-Falle.

Ein geladenes Teilchen vollführt in der Paul-Falle Bewegungen entlang einer 1:2-Lissajous-Kurve um den Ursprung. Die vollständige Lösung der Bewegungsgleichungen führt auf Mathieu'sche Differentialgleichungen mit bekannten Lösungen für $r(t)$ und $z(t)$. Diese Lösungen bleiben nur für bestimmte Bereiche je zweier Parameter a und q beschränkt. Nur in diesen Fällen werden Situationen beschrieben, in denen das geladene Teilchen dauerhaft stabil gefangen ist. Andernfalls wächst sein Abstand vom Ursprung mit der Zeit unaufhörlich, ein solches Teilchen ginge aus der Falle verloren. Die Parameter a und q hängen wiederum von der Größe der Falle (r_0), der Amplitude und Frequenz des angelegten Wechselfeldes sowie der spezifischen Ladung des Teilchens ab. Parameterbereiche, die stabilen Lösungen entsprechen, werden in sog. Stabilitätsdiagrammen verzeichnet (vgl. [Busolt, 1995]).

Durch die in der bisherigen Beschreibung der Falle nicht enthaltene Reibung mit den Molekülen der Luft wird die Bewegung in der Falle gespeicherter Partikel weiter gedämpft. Die Luftreibung vergrößert also die Stabilitätsbereiche der Falle. Eine Untersuchung des experimentell realisierbaren Stabilitätsbereichs findet sich in [Aardahl et al., 1997b]. Ebenfalls bisher nicht berücksichtigt ist die Schwerkraft auf das Teilchen. Sie kann durch ein elektrisches Gleichfeld zwischen Boden und Deckel der Falle kompensiert werden.

5.1.5. Die verwendete Doppelringfalle

Wie der Querschnitt (a) in Abb. 5.2 zeigt, ist die klassische Paul-Falle relativ "dicht", ein Zugang von außen z.B. zur Beobachtung gefangener Partikel ist nur durch zusätzliche Bohrungen möglich, die das elektrische Feld der Falle stören. Für die geplanten

spektroskopischen Untersuchungen wurde deshalb eine andere als die klassische Elektrodenkonfiguration gewählt. Die Doppelringfalle besteht aus zwei koplanaren und koaxialen Ringen, wie es in der Variante (b) in Abb. 5.2 dargestellt ist. Wir verwenden Ringe mit rechteckigen Querschnitten von 2 mm Breite und 1 mm Höhe. Der Innendurchmesser der vergoldeten Kupferringe beträgt 10 mm, ihr freier Abstand voneinander 3mm.

Wie eingangs erwähnt, läßt sich das Feld der Doppelringfalle nicht mehr analytisch formulieren, es kann aber numerisch berechnet werden. Denis Duft hat solche Berechnungen mit dem Programm *Simion* 3D durchgeführt. Ausgangspunkt der Berechnungen ist die Vorgabe der Elektrodengeometrie. Das Programm berechnet dann Potentialverläufe, indem es die Laplace-Gleichung iterativ mit der Methode der finiten Differenzen löst.

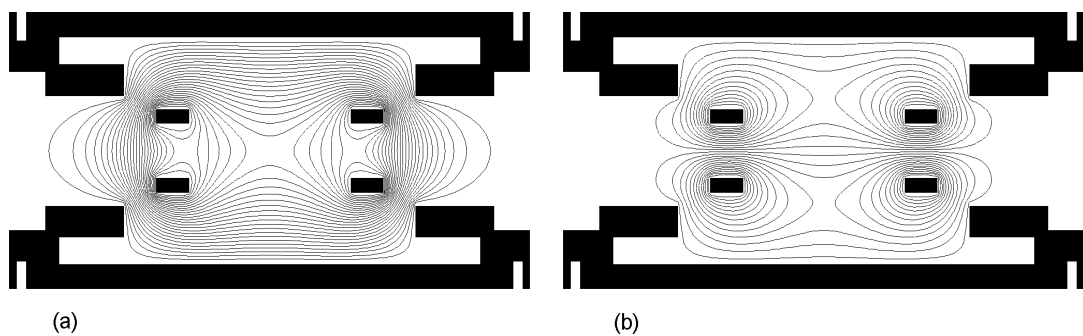


Abbildung 5.3: Vertikale Schnitte durch die Doppelringfalle mit berechneten Potentialverläufen. (a) Potential an beiden Ringen 3500 V, im Fallenzentrum 2515 V, Feldstärke im Zentrum 0 V/m. (b) Potential am oberen Ring 50 V, Potential am unteren Ring -50 V. Potential im Zentrum 0 V, Feldstärke im Zentrum 6.74 V/m.

Die Abbildung 5.3 zeigt so berechnete Potentialverläufe als Äquipotentiallinien für zwei relevante Fälle. Im ersten Falle (a) liegt an beiden Ringen das gleiche Potential von 3500 V. Das Fallenzentrum bleibt dabei feldfrei, die Potentiallinien in der Nähe des Fallenzentrums sind den Hyperbeln der Paul-Falle recht ähnlich. Dieser Fall beschreibt das eigentliche zeitlich harmonische "Fangfeld". Im zweiten Fall (b) liegen an den beiden Ringen ± 50 V an, die Fallenmitte ist jetzt potentialfrei, es herrscht dort jedoch ein (schwaches) elektrisches Feld, das etwas an das einfache Feld des Plattenkondensators erinnert. Ein solches zeitlich konstantes und "zentriertes" Gleichfeld wird standardmäßig verwendet, um die Gewichtskraft auf gefangene Partikel zu kompensieren.

Die Doppelringfalle wurde vor allem von der Gruppe um E. James Davis (University of Washington, Seattle, USA) beschrieben. In einer Arbeit wurde die Stabilität des Doppelringfeldes genauer untersucht ([Davis et al., 1990]). Das Verhalten von Gruppen aus je zwei Partikeln ([Aardahl et al., 1997a]) sowie aus mehr Partikeln ([Vehring et al., 1997]) wurde untersucht, um weiteres über das Stabilitätsdiagramm der Doppelringfalle und die Felder der Partikel untereinander zu erfahren. Die Vereinigung zweier gleichzeitig gefangener Partikel mit entgegengesetzten Ladungsvorzeichen ist in [Widmann et al., 1998b] beschrieben.

Gruppen aus mehreren gleichzeitig gefangenen Partikeln bilden aufgrund des Wechselspiels zwischen äußerem Fangfeld und gegenseitiger elektrostatischer Abstoßung sehr symmetrische Anordnungen aus. Im Idealfall einer absolut rotationssymmetrischen Falle sollten diese "Coulombkristalle" um die senkrechte Fallenachse rotieren. Kleinste Asymmetrien reichen jedoch aus, um die Rotation der Partikelgruppen zu unterbinden. Bilder von Partikelgruppen finden sich z.B. in [Vehring et al., 1997] und [Stöckel, 2001].

Kaum zu verhindern ist allerdings die Rotation einzelner gefangener Partikel um ihre senkrechte Achse. Im Fall der hier untersuchten Tröpfchen fällt diese Rotation wegen ihrer sehr gut sphärischen Gestalt erst auf, wenn sie nach einem flüssig/fest-Phasenübergang Oberflächenfacetten ausbilden, deren Rotation zu sehen ist.

5.2. Die Fallenkammer

In der experimentellen Realisierung ist die Ringfalle in eine Kammer integriert, die in dieser Arbeit als Fallenkammer bezeichnet wird. Die Kammer ist als flacher, achteckiger Kupferkörper ausgestaltet. Die Seitenflächen sind 23 mm breit, der Abstand gegenüberliegender Seiten beträgt 56 mm. Die Fallenkammer ist 16 mm hoch. In die acht Seitenflächen sind optische Zugänge ("Ports"), ein Widerstandsthermometer (Pt100), ein Luftfeuchtigkeitsensensor mit integrierter Temperaturmessung (Pt1000) sowie die Gaszuleitungen integriert (siehe Abb. 5.1). Auf der Oberseite der Fallenkammer befindet sich das in den Deckel integrierte Fallrohr, durch das die Tröpfchen in die Falle eingeschossen werden. Der Boden der Fallenkammer besteht aus einem Glasfenster, das von einer Kupferscheibe mit zentralem Loch angepreßt wird. Durch dieses Bodenfenster tritt der von oben durch das Fallrohr eingestrahlte Laser wieder aus. Tröpfchen, die nicht stabil gefangen werden konnten, sammeln sich auf dem Fallenboden an. Das Bodenfenster ist elektrisch leitfähig mit Indium-Zinn-Oxid (ITO) beschichtet, damit die mit diesen Tröpfchen aufgebrachtene Ladungen abfließen können.

Die Abbildung 5.4 zeigt einen Blick auf die geöffnete Fallenkammer. Auf der Ober- und der Unterseite des achteckigen vergoldeten Grundkörpers ist jeweils ein kupferner Kühlring aufgeschraubt, der beim Einbau der Fallenkammer in die Isoliervakuumkammer über die Anschlüsse (1) mit dem Kaltfingerkryostat verbunden wird. Auf den Seitenflächen sitzen Linsen- bzw. Fensterhalter aus Kunststoff sowie der isolierte elektrische Anschluß (6) für die Ringelektroden. Zwei einander gegenüberliegende Fenster sind leicht schräg gestellt. Den Fensterhalter des einen dieser für die Einstrahlung eines Lasers von der Seite vorgesehenen Fenster kann man in der Abb. 5.4 auf der dem Kammerdeckel unten rechts zugewandten Seitenfläche erkennen. Im Hintergrund oben links ist ein mehrpoliger Stecker (3) für den Feuchtesensor zu sehen.

Über das Gaseinlaßrohr (2) können Gase über den angeschlossenen weiß ummantelten Teflonschlauch in die Fallenkammer eingeleitet werden. Ein entsprechender zweiter Schlauch führt das Gas aus der Falle ab. Bei dem Schlauchmaterial handelt es sich um einen speziellen Teflon-Dualschrumpfschlauch (IFK Isoflour). Das Material ist dünnwandig, um ein Abknicken zu verhindern, wurden die gasführenden Schläuche mit Teflonband und stärkerem Teflonschlauch "geschient". Der Gaseinlaß endet oberhalb der oberen Ringelektrode in einer ringförmigen Nut (4), die im Betrieb durch den Kammerdeckel (7) nach oben verschlossen ist. Das Gas verteilt sich in der Ringnut (4) und strömt durch die radialen Nuten im Kunststoff-Isolator (5) in den Kammerinnenraum. Der Gasaustritt am Kammerboden ist entsprechend symmetrisch gestaltet. Der Iso-

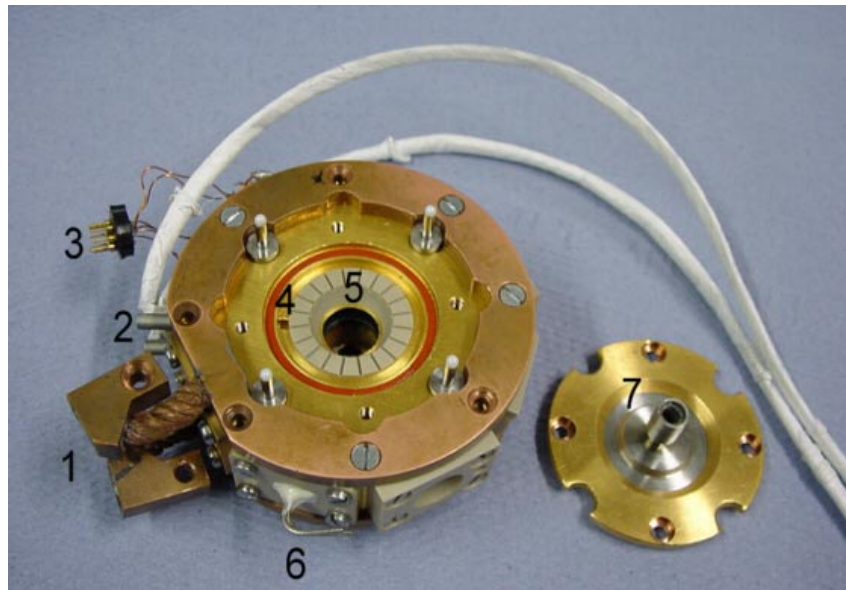


Abbildung 5.4: Blick auf die geöffnete Fallenkammer mit den Kühlringen. 1: Kühlringanschluss. 2: Gasein-/auslass. 3: Anschluss Feuchtesensor. 4: Einströmungskanal Gaseinlass. 5: Isolator mit oberer Ringelektrode. 6: Anschlüsse der Ringelektroden. 7: abgenommener Kammerdeckel mit Fallrohr.

Isolator (5) trägt auch die obere Ringelektrode der Falle, im Bild als goldener Ring an der Unterkante des Isolators zu sehen. Die Ringelektroden sind auf den relevanten Seiten ebenso wie der Falleninnenraum (\varnothing 18 mm) mit elektrisch leitendem Graphitlack geschwärzt.

Um den Wärmekontakt nach außen zu minimieren, steht die Fallenkammer auf vier schmalen Edelstahlsäulen in der Isoliervakuumkammer. Edelstahl wurde wegen der vergleichsweise schlechten Wärmeleitung gewählt. Um den Wärmeübergang weiter zu verringern, sind auf die Edelstahlfüße Keramikugeln aufgeklebt. Nach oben wird die Fallenkammer durch wie die Füße gestaltete Federbeine abgestützt. Die vier Federbeine mit den aufgeklebten Keramikugeln sind in Abb. 5.4 deutlich zwischen der Gaseinlaßnut (4) und dem Innenrand des oberen Kühlringes zu erkennen. Die Fallenkammer steht letztlich auf den Keramikugeln in Kegelbohrungen im Boden der Isoliervakuumkammer. Dadurch wird die Kontaktfläche auf ein Minimum reduziert. Alle Zuleitungen wurden so lang wie möglich ausgeführt, Kabel insbesondere für das Widerstandsthermometer sind am Kaltfingerkryostat thermisch verankert. Sämtliche Dichtungen werden durch spezielle temperaturfeste Silikondichtringe (Hutchinson) gewährleistet. Diese Dichtringe haben sich auch im Vergleich mit verpreßten Indiumdichtungen bewährt. Sie wurden einem temperaturstabilen Vakuumfett eingerieben (Apiezon N), um ihre Elastizität auch bei tiefen Temperaturen zu erhalten.

Der Deckel der Fallenkammer (7 in Abb. 5.4) ist zweiteilig. Ein Kupferring preßt den eigentlichen Edelstahldeckel an, der auch das Fallrohr trägt. Zur Verminderung des Wärmeübergangs ist das Fallrohr doppelwandig ausgelegt. Das eigentliche dünnwandige Fallrohr hat mit der stärkeren Hülse, die das Fallrohr im Deckel der Isoliervakuumkammer dichtet, nur über eine Schweißnaht Kontakt.

5.2.1. Elektronik zum Betrieb der Falle

Zum Betrieb der Falle muß diese mit einer an beiden Ringen angelegten Wechselspannung variabler Frequenz und Amplitude versorgt werden. Diese Aufgabe wird von einem in der Elektronikwerkstatt des Fachbereichs Physik der FU Berlin von den Herren Luft und Kleindienst entwickelten und gebauten Hochspannungsgenerator erfüllt. Die Frequenz läßt sich im Bereich 90 Hz bis 10 kHz einstellen, die Amplitude im Bereich 0 bis 5 kV. Typische Einstellungen im Betrieb waren eine Frequenz um 250 Hz und eine Amplitude um 3 kV. Da die Zuleitungen mit den angeschlossenen Ringen eine Impedanz darstellen, wurde die Elektronik entsprechend kompensiert. Der Hochspannungsgenerator verfügt über einen Ausgang, der zum Zeitpunkt des Nulldurchgangs der Wechselspannung jeweils einen TTL-Puls abgibt. Dieses Signal wird zur Synchronisation des Einschubzeitpunktes mit dem Feld in der Falle verwendet (s.u.).

Wie oben beschrieben, ist die auf gefangene Partikel wirkende Schwerkraft durch ein dem Wechsellpotential überlagertes konstante Potentialdifferenz zu kompensieren. Diese Potentialdifferenz wird zweckmäßig "zentriert" angelegt, d.h. an beiden Ringen liegt ein Potential gleicher auf Masse bezogener Höhe, aber mit jeweils entgegengesetzten Vorzeichen. Die entsprechende Gleichspannungsquelle wurde von Herrn Schwartz, Institut für Chemie der FU Berlin, gebaut. Das Gerät liefert zwei Ausgangsspannung im Bereich -300 bis +300 V. Im Betrieb wird jeweils ein Kanal passend eingestellt, der andere Kanal wird automatisch auf die gleiche Spannung mit entgegengesetztem Vorzeichen geregelt. Typische Potentialdifferenzen zwischen den beiden Ringen betragen 5 bis 100 V. Die zur Kompensation der Schwerkraft nötige Spannung ist dem Kehrwert der spezifischen Ladung proportional. Gelingt eine Regelung der vertikalen Partikelposition auf das Fallenzentrum, so stellt die entsprechende Spannung bei Massenänderungen des Teilchens z.B. durch Verdampfen ein Maß für eben diese Änderung der Masse dar.

Schaltbilder der hier verwendeten Elektronik finden sich in der Dissertationsschrift von Peter Stöckel ([Stöckel, 2001]).

Optionaler Küvettenhalter

Für die Aufnahme von Raman-Vergleichsspektren an Küvetten wurde ein Küvettenhalter entwickelt, der anstelle der Falle in die Isoliervakuumkammer einzusetzen ist. Der Küvettenhalter trägt Richtung Spektrometer die gleiche Linse an der gleichen geometrischen Position, die auch im Raman-Strahlengang der Fallenkammer eingebaut ist. Durch diese Konstruktion wurde erreicht, daß der äußere optische Aufbau beim Wechsel zwischen Ramanspektroskopischen Untersuchungen an Küvetten bzw. an Tröpfchen in der Falle nicht verändert werden mußte.

5.3. Die Isoliervakuumkammer

Zur thermischen Isolierung ist die Fallenkammer in eine ebenfalls achteckige Vakuumkammer aus Aluminium eingebaut. Die Abbildung 5.5 zeigt die offene Fallenkammer (ohne oberen Isolatorring) in der Isoliervakuumkammer zusammen mit anderen wesentlichen Teilen des Aufbaus (vgl. Abb. 5.1). Die optischen Komponenten (2) - (6) werden in späteren Abschnitten dieses Kapitels beschrieben.

An einer der acht Seitenflächen der Isoliervakuumkammer ist die Anschlußbox (1)

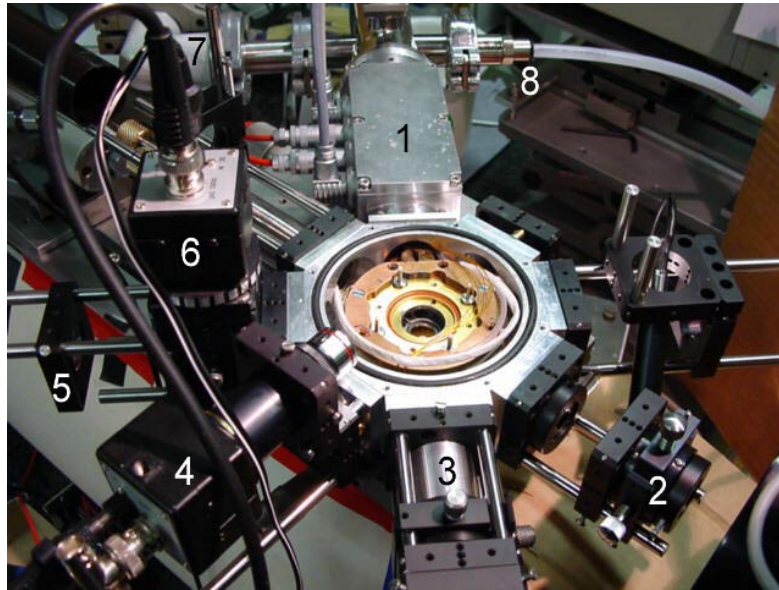


Abbildung 5.5: Offene Fallenkammer, eingesetzt in die Isoliervakuumkammer aus Aluminium. 1: Anschlußbox mit Kryostat. 2: Raman-Strahlengang. 3: Verrohrter Mie-Strahlengang. 4: Mikroskopkamera zur Kontrolle des Injektors. 5: Mikroskoparm des Beobachtungs-Strahlengangs. 6: Beobachtungskamera auf Strahlteilerwürfel. 7: Vakuumpumpenanschluß. 8: N_2 -Saugleitung des Kryostaten.

zur Durchführung der elektrischen Leitungen angesetzt. Diese Anschlußbox ist nach oben zu öffnen, an einer Längsseite trägt sie vier vakuumdichte elektrische Buchsen (Lemo). Zwei der Buchsen sind einpolig und dienen der Kontaktierung je einer Fallenelektrode. Die zwei übrigen Buchsen sind sechspolig, an eine ist das Widerstandsthermometer zur Messung der Temperatur der Fallenkammer angeschlossen, an die andere ein temperaturkompensierter Sensor zur Bestimmung der relativen Luftfeuchtigkeit in der Falle.

An das rückwärtige Ende der Anschlußbox ist der Kaltfingerkryostat zur Kühlung der Fallenkammer angeflanscht. Der Kaltfinger verläuft längs durch die Anschlußbox und ragt etwas in die Isoliervakuumkammer hinein (vgl. Abb. 5.1). Die Isoliervakuumkammer wird über den Kryostat evakuiert, der Pumpenanschluß (7) ist hinten links in der Abb. 5.5 zu sehen. Über den Stutzen (8) wird kalter Stickstoff durch den Kryostaten gesaugt (siehe nächster Abschnitt).

Links neben der Anschlußbox ist die Durchführung der Gasanschlüsse an die Isoliervakuumkammer angesetzt. Die beiden Gasschläuche von der Fallenkammer (vgl. Abb. 5.4) enden in Schraubkupplungen, der Gegenstücke über kurze Stücke Dualschumpfschlauch mit Edelstahlrohren verbunden sind. Die beiden Edelstahlrohre werden in der Gasdurchführung durch Quetschdichtungen gedichtet. Derselbe Anschluß der Isoliervakuumkammer trägt oberhalb der Gasdurchführung eine verschiebbare und höhenverstellbare Linse, die zur Fokussierung des Laserstrahls auf ein Tröpfchen in der Falle dient (vg. Abschnitt Optik, Anregung). Der Linsenhalter befindet sich in Abb. 5.5 zwischen der Beobachtungskamera (6) und dem Pumpstutzen (7), er wird teilweise durch

die Kamera (6) verdeckt.

Die sechs übrigen Seitenflächen der Isoliervakuumkammer sind mit großen Fenstern versehen. Runde Quartzglasplatten (Heraeus Suprasil 3) werden von Fensterhaltern auf Dichtringe gepreßt. Zur einfachen Montage der optischen Komponenten wurde die Isoliervakuumkammer kompatibel zum Mikrobank-System der Firma LINOS Photonics (früher Spindler & Hoyer) ausgelegt. Die Fensterhalter der Isolierkammer haben entsprechende Gewindebohrungen, auf die Mikrobank-Aufnahmeplatten geschraubt werden können (schwarze Bauelemente in Abb. 5.5).

Die Isoliervakuumkammer wurde in allen drei Raumrichtungen verschiebbar montiert. Zur Höhenverstellung wurde sie zusammen mit den Spiegeln zur Lasereinkopplung auf einem schweren Hubtisch angebracht. In der horizontalen Ebene konnte die Position der Kammer durch zwei Verschiebetische mit Mikrometerschrauben unabhängig in x- und y-Richtung eingestellt werden. Diese Mimik war notwendig, um die Falle gegenüber dem Spektrometer (Eintrittsspalt: untere rechte Ecke in Abb. 5.5) justieren zu können. Da alle obengenannten optischen Komponenten fest mit der Isoliervakuumkammer verbunden sind, werden sie bei allen Verschiebungen des Kammeraufbaus mitbewegt. Dadurch ist sichergestellt, daß nicht bei jeder Justage Falle \Leftrightarrow Spektrometer alle übrigen Strahlengänge nachjustiert werden müssen.

Der Kammeraufbau wurde zusammen mit dem Laser, der Gasmischanlage und dem OMA-Detektor auf einen schwingungsgedämpften Granittisch montiert. Die Tischplatte (Masse ca. 750kg, $2 \times 1\text{m}^2$) ist mit Gewindebohrungen in einem Raster versehen. Durch den Aufbau auf dem Tisch konnte der Einfluß von Vibrationen auf die Position in der Falle gefangener Tröpfchen weitgehend unterdrückt werden.

5.3.1. Deckel der Isolierkammer mit Prismenschieber

Sowohl die Einstrahlung des Laserstrahls zur Anregung der Lichtstreuung an gefangenen Tröpfchen als auch der Einschuss der Tröpfchen in die Falle erfolgte senkrecht von oben. Durch die Lasereinstrahlung entlang der Symmetrieachse der Falle konnten alle optischen Beobachtungen unter dem gleichen Winkel von 90° relativ zum Laser durchgeführt werden. Außerdem wurden so Querimpulse durch den fokussierten Laser auf die Tröpfchen vermieden. Der Tröpfcheneinschuß erfordert ein Öffnen der Fallenkammer. Dadurch wird das Temperaturfeld in der Fallenkammer unvermeidlich gestört. Diese Störung ist bei Öffnung der gekühlten Fallenkammer nach oben am geringsten, da dann die stabile Luftschichtung in der Kammer erhalten bleiben kann. Demgegenüber würde bei Öffnung der Fallenkammer zur Seite oder nach unten die kalte Luft gleichsam aus der Kammer "herausfallen". Aus diesen Gründen wurden die Tröpfchen von oben in die Falle eingeschossen.

Der Deckel der Isolierkammer hat also mehrere Aufgaben zu erfüllen. In der Abbildung 5.6 ist die technische Umsetzung dieser Aufgaben als Schnitt gezeigt. Der eigentliche Kammerdeckel ist schraffiert dargestellt, man erkennt die Senkungen für die Befestigungsschrauben an den Rändern sowie zwei der vier Kegelbohrungen auf der Unterseite, in die die Federstützen der Fallenkammer einrasten. Das Fallrohr, das beim Einschuß die Fallenkammer mit dem Außenraum verbindet, befindet sich in der zentralen Bohrung (4) im Isolierkammerdeckel und ist mit einem O-Ring gedichtet.

Auf dem Kammerdeckel ist ein Schieber (hellgrau) in einem Gehäuse (dunkelgrau) gleitend gelagert. Der Schieber kann mit dem Handgriff (rechts im Bild) in drei ver-

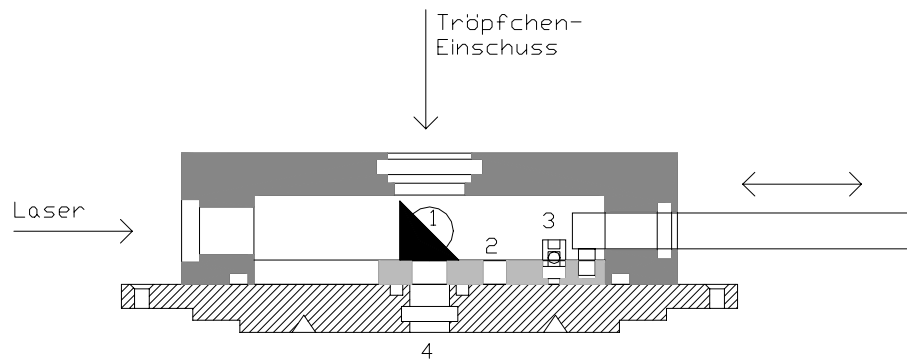


Abbildung 5.6: Schnitt durch den Deckel der Isoliervakuumkammer mit Prismenschieber. Kammerdeckel (schraffiert), Schiebergehäuse (dunkelgrau), Schieber (hellgrau). 1: Umlenkprisma, 2: Einschussöffnung, 3: Auffangbehälter, 4: zum Fallrohr.

schiedene Positionen gebracht werden. In der abgebildeten ersten Position wird der von links einfallende Laserstrahl über das Umlenkprisma (1, Kantenlänge 10 mm) in die Falle gelenkt. Das Umlenkprisma schließt dabei gleichzeitig den Innenraum der Fallenkammer nach außen ab. In der zweiten Position des Schiebers liegt die Bohrung (2) im Schieber koaxial über dem Fallrohr. Durch diese Bohrung werden die Tröpfchen in die Falle eingeschossen.

Das Schiebergehäuse hat zwei Fenster mit Achsen senkrecht zur Schnittebene in Abb. 5.6, das hintere dieser Fenster wird im Bild durch das Prisma (1) teilweise verdeckt. Durch diese Fenster wird der von oben in das Schiebergehäuse ragende Tröpfcheninjektor (nicht abgebildet) stroboskopisch beleuchtet bzw. mit einer Kamera durch ein Mikroskop betrachtet. Dies dient der Kontrolle der Injektorfunktion (siehe entsprechender Abschnitt weiter unten). Bei der Einstellung der Injektorparameter unter stroboskopischer Beobachtung werden sehr viele Tröpfchen erzeugt, die nicht in die Fallenkammer gelangen sollen. Daher trägt der Schieber einen Auffangbehälter (3), der in der dritten Schieberposition zwischen Injektor und Fallrohr ist. In dieser Schieberstellung ist ein Gasaustausch zwischen Fallenkammer und Labor durch ein Metallfilter unter dem Auffangbehälter möglich.

Auf der Oberseite des Schiebergehäuses ist der Injektor in allen drei Achsen verschiebbar gehaltert. Dazu wurde ebenfalls das Mikrobank-System (LINOS Photonics) verwendet. Der entsprechende Aufbau ist in Abb. 5.6 nicht dargestellt. Alle in der Abb. 5.6 gezeigten Teile (mit Ausnahme des Prismas natürlich) wurden aus Aluminium gefertigt und schwarz eloxiert. Das Prisma ist auf seinen Kathetenflächen entspiegelt und auf der Hypothenusenfläche mit einer Silberschicht verspiegelt. Zum Schutz der Silberschicht vor versehentlich eijzierten H_2SO_4 -Tröpfchen wurde die Hypothenusenfläche mit einem Schutzblech versehen.

5.4. Die Kühlung der Fallenkammer

Im folgenden wird die zur Kühlung der Fallenkammer benutzte Technik beschrieben. Mit ihrer Hilfe wurde die Fallenkammer auf bis zu -134°C abgekühlt. Die Fallenkammer wird über die beiden auf Ober- und Unterseite angebrachten Kühlringe (vgl. Abb. 5.4) thermisch leitend mit dem Kaltfingerkryostaten (vgl. Abb. 5.1) verbunden. Der Kaltfingerkryostat (Cryovac, Sonderanfertigung) wird mit flüssigem bzw. siedendem Stickstoff gekühlt und geregelt elektrisch geheizt, um eine bestimmte vorgewählte Temperatur zu halten. Zur thermischen Isolierung der Fallenkammer und des gekühlten Teils des Kryostaten wird die umgebende Fallenkammer und die Anschlußbox über einen Pumpstutzen am Kryostaten evakuiert.

Der Druck in der Isolierkammer wurde auf etwa 1×10^{-4} mbar abgesenkt. Dazu wurde eine Turbomolekularpumpe verwendet. Diese Turbopumpe war mit einer Membranvorpumpe in einem kompakten Pumpstand integriert (Pfeiffer TSH065D). Zur Druckmessung wurde eine Meßröhre (Pfeiffer SG TPR 250) über den Pumpstand ausgelesen. Um den Kammeraufbau von den Vibrationen der Membranpumpe zu entkoppeln, wurde die Isolierkammer über einen langen Wellbalg bepumpt. Dadurch konnte der Pumpstand auf einem separaten Tisch untergebracht werden.

Über einen vakuumisolierten Heber wurde kalter Stickstoff aus einem Dewar-Gefäß zum Kryostaten geleitet. Der Dewar mit 20 Litern Inhalt blieb dabei drucklos (s.u.). Zur Förderung des Stickstoffs wurde eine Pumpe mit regelbarem Gasdurchsatz (Cryovac) verwendet, die das Kühlmittel durch den Kryostaten saugte. In den stickstoffdurchströmten Kühlfinger des Kryostaten sind eine elektrische Heizung (40 W) sowie ein Widerstandsthermometer (Typ Pt100) integriert. Ein Steuergerät (Lake Shore, Modell 330) regelte die Heizleistung je nach Differenz zwischen gemessener Temperatur und vorgewählter Zieltemperatur. Das Steuergerät liest auch die Temperatur der Fallenkammer aus, welche mit einem einzelkalibrierten Pt100-Widerstand gemessen wird. Der Pt100-Sensor ist mit maximalem thermischem Kontakt in diejenige Seitenfläche der Fallenkammer integriert, die auch das Fenster zur Einkopplung des Hilfs-Lasers trägt (vgl. Abb. 5.1). Aufgrund der massiven Auslegung und der Symmetrie der Fallenkammer kann mit guter Sicherheit davon ausgegangen werden, daß die Temperatur über den Kammerkörper konstant ist. Die Identifikation der nicht direkt zugänglichen Temperatur in der Falle gefangener Tröpfchen mit der gemessenen Temperatur der Fallenkammer ist korrekt, wie die Experimente zeigen werden.

Im Prinzip kann das Steuergerät die Temperatur des Kryostaten oder die der Fallenkammer regeln. Wegen der thermischen Trägheit der Apparatur und des größeren Abstands der Fallenkammer von der Heizung hat sich die Temperatur des Kryostaten als Regelgröße bewährt. Das Steuergerät hielt die Kryostat-Temperatur typischerweise auf $\pm 0.1^{\circ}\text{C}$ konstant.

In den hier vorgestellten Experimenten wurde die Kühlleistung durch ein Nadelventil im Heber und den Gasflußregler an der Kühlmittelpumpe so eingestellt, daß die elektrische Gegenheizung mit 20-50% ihrer Maximalleistung lief, um die gewählten Temperaturen zu halten. Ein zu hoher Stickstofffluß führte selbst bei voller Heizleistung zu ständig sinkender Temperatur, wurde die Flußmenge zu gering gewählt oder war der Stickstoff im Dewar aufgebraucht, erwärmte sich die Apparatur entsprechend. Um eine konstante Kühlleistung zu erhalten, wurde der Dewar drucklos betrieben, d.h. ein im Deckel des Dewars befindliches Handventil wurde nicht geschlossen. Damit wurde

ein Druckaufbau verhindert, der mit der Zeit zu einer steigenden Kühlleistung geführt hätte. Insgesamt war die Kühlung recht stabil und unproblematisch, der Stickstoffverbrauch war so gering, daß die Fallenkammer 8 Tage durchgehend auf -100°C gehalten werden konnte, bevor der Dewar leer war.

Aufgrund ihrer diversen Verbindungen zum Außenraum (Kabel, Schläuche, insbesondere das Fallrohr) war die Fallenkammer thermisch nicht ganz isoliert. Dadurch war die Temperatur der Fallenkammer bei eingeschalteter Kühlung immer höher als die des gekühlten Kryostaten. Die Differenz war umso größer, je tiefer die Temperatur des Kryostaten eingestellt wurde. Um eine bestimmte Temperatur der Fallenkammer zu erreichen, mußte die Zieltemperatur des Kryostaten entsprechend tiefer eingestellt werden.

Die Temperatur im Falleninnenraum wurde zusätzlich über einen im Sensor für die relative Luftfeuchtigkeit integrierten Pt1000-Widerstand gemessen. Bei Raumtemperatur war die vom Pt1000 angezeigte Temperatur immer auf $\pm 0.2^{\circ}\text{C}$ mit der Temperatur der Fallenkammer identisch. Bei Abkühlung der Fallenkammer ergaben sich jedoch Werte für die vom Pt1000-Widerstand des Feuchtesensors angezeigte Temperatur, die zunehmend höher lagen als die jeweilige Temperatur der Fallenkammer. Dieser Unterschied ist wohl darauf zurückzuführen, daß der Feuchtesensor mit einem Kunststoffteil in der Fallenkammer gehalten wird und seine elektrischen Zuleitungen relativ große Querschnitte haben. Dadurch ist zum einen die thermische Ankopplung an die Fallenkammer schlecht, zum anderen wird über die Kabel Wärme von außen zum Sensor geführt. Der Feuchtesensor bezieht jedoch sein Signal auf die vom integrierten Pt1000 gemessene Temperatur. Aus diesem Grund gibt die ermittelte relative Luftfeuchtigkeit nur dann korrekt die Verhältnisse in der Fallenkammer wieder, wenn die vom Pt1000-Sensor gemessene Temperatur nah an der Temperatur der Fallenkammer liegt.

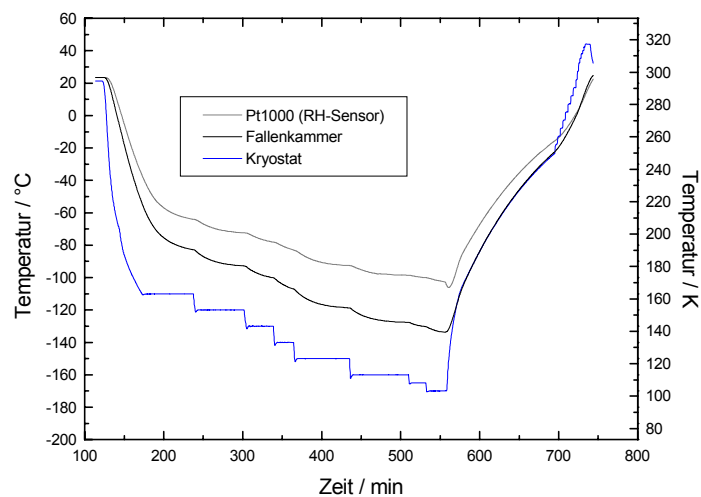


Abbildung 5.7: Verlauf der gemessenen Temperaturen im Experiment. Kühlung ab $t=125\text{min}$, Aufwärmen ab $t=560\text{min}$. Erläuterungen im Text.

Die Abbildung 5.7 zeigt die in einem typischen Experiment gemessenen Temperaturen der drei Sensoren im Feuchtesensor (Pt1000), in der Fallenkammer und im Kryostaten als Funktion der Zeit in Minuten. Die unterste Kurve gibt die Temperatur

des Kryostaten an, die Stufen zeigen die jeweils eingestellten Zielwerte. Zum Zeitpunkt $t=125\text{min}$ beginnt die Kühlung der Fallenkammer, alle Temperaturen fallen. Es wurde darauf geachtet, daß die Abkühlrate $-2.5\text{K}/\text{min}$ nicht überschritt, um Schäden durch unterschiedliche Temperatúrausdehnungskoeffizienten der verbauten Materialien zu vermeiden. Erste Zieltemperatur des Kryostaten war im dargestellten Experiment -115°C , dieser Wert wird bei $t=175\text{min}$ erreicht. Die Temperatur der Fallenkammer (mittlere Kurve) nähert sich in etwa exponentiell einer um einen festen Versatz (s.o.) höheren Temperatur, bis bei $t=238\text{min}$ die Zieltemperatur des Kryostaten auf -120°C abgesenkt wird. Wie oben erläutert, liegt die vom Pt1000-Widerstand im Feuchtesensor gemessene Temperatur (obere Kurve in Abb. 5.7) mit zunehmendem Abstand über der der Fallenkammer.

Im weiteren Verlauf wurde die Zieltemperatur des Kryostaten in 10°C - bzw. 5°C -Schritten bis auf -170°C abgesenkt, die Temperatur der Fallenkammer folgte diesen Veränderungen zeitlich verzögert. Bei $t=558\text{min}$ wurde die Kühlung abgeschaltet, die Kryostat-Temperatur stieg sofort. Die Fallenkammer folgte etwas verzögert, bei weiterer Erwärmung waren die Temperaturen der Fallenkammer und des Kryostats praktisch identisch, bis ab $t=695\text{min}$ die Kryostat-Heizung angeschaltet wurde, um das Erreichen der Raumtemperatur zu beschleunigen.

5.5. Produktion und Einfang elektrisch geladener Tröpfchen

In diesem Abschnitt wird beschrieben, wie die in den Experimenten untersuchten Flüssigkeitströpfchen erzeugt und eingefangen werden. Da die Tröpfchen durch elektrische Felder in der Falle gehalten werden sollen, müssen sie elektrisch aufgeladen werden. Weitere Anforderungen an die Injektionstechnik sind ein möglichst konstanter Durchmesser und ein reproduzierbares Einfangen der Tröpfchen.

5.5.1. Der Tröpfcheninjektor

Zur Erzeugung von Flüssigkeitströpfchen sind mehrere Techniken bekannt, die zum Teil auch in Tintenstrahldruckern zum Einsatz kommen. Letztlich basieren die meisten Techniken auf der Einbringung eines Druckstoßes in die Flüssigkeitssäule hinter einer Düse. Dieser Druckstoß kann durch Ultraschall, schnelles lokales Erhitzen, das eine Gasblase erzeugt, oder piezoelektrisch erfolgen. Wir benutzen die letztgenannte Technik. Der Vollständigkeit halber seien noch Tröpfchenkettengeneratoren des VOAG-Typs erwähnt (*Vibrating Orifice Aerosol Generator*). Bei dieser Technik durchströmt ein Flüssigkeitsstrom eine nach unten gerichtete Düse, die durch einen Ultraschallgeber in Vibration versetzt wird, so daß der Strom in eine Kette von Tröpfchen zerreißt (vgl. [Davis et al., 1998], Fig. 4).

Die in unserer Arbeitsgruppe seit einiger Zeit genutzten Piezoinjektoren bestehen im wesentlichen aus einer Glaskapillare, die in einen Tubus aus einem piezoelektrischen Material eingeklebt ist. Der Innendurchmesser der Glaskapillare verjüngt sich zur Düsenöffnung hin. Das Piezoröhrchen ist auf seiner Innen- und seiner Außenseite elektrisch kontaktiert, ein elektrischer Spannungsstoß führt zur Ausdehnung des Materials in radialer Richtung, wodurch die flüssigkeitsgefüllte Glaskapillare zusammengedrückt wird. Der in der Flüssigkeit erzeugte Druckstoß treibt im Idealfall ein einzelnes Tröpfchen

aus der Düsenöffnung. Die Abbildung 5.8 zeigt die wesentlichen Elemente eines solchen Injektors ([Stöckel, 2001]). Der Zulaufschlauch (c) endet in einem Reservoirgefäß.

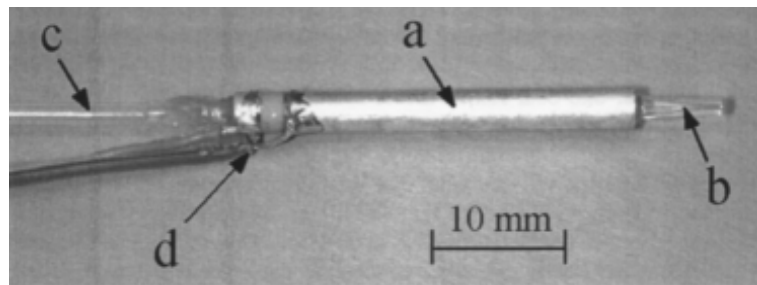


Abbildung 5.8: Funktioneller Aufbau des Tröpfcheninjektors. a: Piezoelektrischer Tubus; b: Kapillare mit verengter Düsen Spitze; c: Teflonzuleitung für die Flüssigkeit; d: elektrische Kontaktierung des Piezotubus. Foto von Peter Stöckel, [Stöckel, 2001].

Die Größe der entstehenden Tröpfchen hängt im wesentlichen vom Durchmesser der Düse ab. Sie wird in geringerem Maße von der Höhe und Dauer des elektrischen Pulses am Piezokristall beeinflusst. Die optimalen Werte dieser Parameter hängen wiederum stark von der individuellen Spritze und der Viskosität der Flüssigkeit ab. Sie müssen im Einzelfall bestimmt werden, was mitunter einige Erfahrung, vor allem aber Geduld voraussetzt. Die Injektoren sind der mit Abstand stör anfälligste Teil der hier verwendeten Apparatur.

Wird der Injektor wie hier senkrecht nach unten betrieben, spielt außerdem noch die Höhendifferenz zwischen der Flüssigkeitsoberfläche im Reservoir und der Düsenöffnung eine Rolle. Gasblasen in der Zuleitung beeinträchtigen die Funktion erheblich. Alle mit der zu injizierenden Flüssigkeit in Berührung kommenden Teile müssen sehr staubfrei gehalten werden, da Partikel oder Fasern die Injektordüse irreversibel verstopfen können. Aus diesem Grund wurden alle verwendeten Flüssigkeiten ausnahmslos durch Millipore-Filter (max. Porengröße $<0.2 \mu\text{m}$) in das Reservoir eingefüllt. Das Reservoir wurde nur zum Nachfüllen und dann so kurz wie möglich geöffnet. Berührungen der Düse und des offenen Zulaufschlauchendes wurden wo immer möglich vermieden.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit kamen sowohl kommerziell erhältliche Injektoren der Firma Microdrop als auch Eigenbauten unseres früheren Gruppenmitglieds Benedikt Krämer sowie aus der kooperierenden Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Baumgärtel am Fachbereich Chemie der Freien Universität Berlin. Dort haben sich insbesondere Herr E. Biller und Dr. Peter Stöckel mit der Herstellung und Charakterisierung der optimalen Kapillarform befaßt. Die dabei gesammelten Erfahrungen finden sich in der Dissertationsschrift von P. Stöckel ([Stöckel, 2001]). Der Antrieb zum Eigenbau ergab sich vor allem aus den hohen Stückpreisen der kommerziellen Systeme bei gleichzeitiger Anfälligkeit der Technik gegen Totalverlust durch Verschmutzung. In der genannten Arbeit von Peter Stöckel sind alle wesentlichen Erkenntnisse zum Normalbetrieb sowie zu Störungen der Injektoren zusammengefaßt, der Verweis auf diese Arbeit soll hier genügen.

Die zum Antrieb des Injektors nötige Elektronik erzeugt Rechteckpulse mit Breiten im Bereich $100 \mu\text{s}$ und Amplituden um 100V . Das entsprechende Gerät wurde von P.

Schwartze, Institut für Chemie der Freien Universität Berlin, gebaut. Ein Schaltbild findet sich in [Stöckel, 2001].

5.5.2. Kontrolle der Injektorfunktion

Zur Kontrolle der Funktion des Injektors wurde ein einfaches Mikroskop mit stroboskopischer Beleuchtung in das Schiebergehäuse auf dem Isolierkammerdeckel integriert. Das Mikroskop besteht aus einem einfachen 4×-Objektiv, das über einen geschwärzten Tubus auf eine CCD-Kamera geschraubt ist. Das Objektiv "blickt" von der Seite in das Scheibergehäuse auf die nach unten gerichtete Düse des Injektors. Gegenüber der Kamera ist eine helle Leuchtdiode angebracht, die speziell für den Blitzbetrieb ausgelegt ist. Bei der Ejektion eines Tröpfchens blitzt diese LED mit einer einstellbaren Zeitverzögerung gegenüber dem Spannungspuls am Injektorpiezo einmal kurz auf. Wird dieser Vorgang periodisch mit ausreichender Frequenz wiederholt, entsteht auf dem Monitor der Eindruck eines stehenden Bildes, da viele Tröpfchen nacheinander in der gleichen Phase ihrer Entstehung abgebildet werden. Durch Veränderung der Verzögerung zwischen Injektorpuls und LED-Blitz können alle Stadien der Tröpfchenentstehung beobachtet werden. Diese Kontrollmöglichkeit ist unverzichtbar, weil Düse und Tröpfchen viel zu klein sind, um eventuelle Probleme mit dem bloßen Auge erkennen zu lassen. Die hier verwirklichte feste Integration des Injektor-Mikroskops in den Aufbau ist Resultat der Erfahrungen aus früheren Experimenten. Der Injektor muß zur Kontrollbeobachtung nicht mehr bewegt werden, was seine Betriebsstabilität deutlich erhöht.

5.5.3. Elektrische Aufladung der Tröpfchen

Um in der elektrodynamischen Falle gefangen werden zu können, müssen die injizierten Tröpfchen elektrisch geladen sein. Dazu reichen etwa 10^5 Elementarladungen bei den hier untersuchten Tröpfchen mit Massen im Bereich einiger zehn bis hundert Nanogramm aus ([Krämer, 1998]). Dem entspricht eine Ladungsträgerkonzentration von etwa 10^{-10} mol/l, ein Wert, der bereits von pH-neutralem Wasser um drei Zehnerpotenzen übertroffen wird ([Stöckel, 2001]). In wässrigen Elektrolytlösungen, zu denen man hier auch die H_2SO_4 -Lösungen zählen darf, werden noch zusätzlich Ionen freigesetzt. Die zur Levitation nötige Menge an Überschußladungen kann durch eine einfache Ladungstrennung beim Abriß der Tröpfchen vom Flüssigkeitsvolumen im Injektor erreicht werden. Dazu wird ein elektrisches Feld zwischen der Flüssigkeit in der Düse und dem auf Masse liegenden Fallrohr erzeugt, indem eine Elektrode im Reservoir des Injektors auf eine Spannung von 800 V bis 1500 V gelegt wird. Da die verwendeten Schwefelsäurelösungen sehr korrosiv sind, wurde die Elektrode mehrfach vergoldet. Sie befand sich dauerhaft im Reservoir des Injektors, wurde aber nur bei Bedarf in die Lösung eingetaucht. Beim ersten Anzeichen von Korrosion an der Aufladungselektrode wurde diese ausgetauscht.

Wird der Injektionsprozess durch einen Spannungspuls am Piezokristall ausgelöst, wölbt sich der Meniskus der Flüssigkeit in der Düsenöffnung vor und schiebt sich als Flüssigkeitsschlauch aus der Düse heraus. Der "Hals" zwischen Düse und Flüssigkeitsfront schnürt sich zunehmend ein und reißt schließlich ab, so daß ein von der Düse wegfliegendes Tröpfchen entsteht (siehe Fotosequenz in [Stöckel, 2001], S. 98-100). Geschieht dieser Vorgang in einem äußeren elektrischen Feld, werden die Ladungsträger in

der Flüssigkeit je nach Polarität und Feldrichtung durch Influenz entweder in den sich abschnürenden Tropfen hineingezogen oder aus diesem verdrängt. Dadurch entsteht eine ausreichend große Verschiebung im Ladungsträgergleichgewicht, um dem neuen Tröpfchen genug Überschußladung mitzugeben. Eine quantitative Untersuchung dieser Aufladungsmethode findet sich in [Reischl et al., 1977].

Stellt die Flüssigkeit nicht von sich aus Ladungsträger bereit, müssen diese extra erzeugt werden. Dies kann etwa durch stark inhomogene elektrische Felder mit Stärken kurz unterhalb des Funkenschlags, in einer Koronarentladung (vgl. [Aardahl et al., 1997b]) oder auch durch radioaktive Strahlung erreicht werden.

5.5.4. Das Einfangen einzelner Tröpfchen

Vom Injektor mit einer gewissen Anfangsgeschwindigkeit von einigen Metern pro Sekunde versehen, fallen die Tröpfchen von oben in die elektrodynamische Doppelringfalle. Bei geeignetem Verhältnis von Tröpfchenladung zu -masse und passender Einstellung der Fallenparameter Wechselfrequenz und -amplitude sowie überlagerte Gleichspannungsdifferenz kann ein Tröpfchen im Feld der Falle eingefangen und stabil gespeichert werden. Die Anzahl der aufgelisteten Parameter allein zeigt schon, daß dazu wiederum Erfahrung notwendig ist. Selbst wenn alle Parameter zum stabilen Speichern führen sollten, ist immer noch der Anfangsimpuls des Tröpfchens abzufangen.

Um dies reproduzierbar zu bewerkstelligen, wird der Einschußzeitpunkt mit der Phase des Wechselfeldes synchronisiert (vgl. [Holler et al., 1995]). Der Nutzen einer solchen Synchronisation besteht darin, daß unter gleichen sonstigen Bedingungen injizierte Tröpfchen beim Eintritt in die Fallenkammer immer dem gleichen Feld ausgesetzt sind. Dieses ist idealerweise zu diesem Zeitpunkt so geartet, daß es dem nach unten gerichteten Impuls des Tröpfchens entgegenwirkt, es also ausreichend abbremst. Gelingt dies, bewegt sich das Tröpfchen im Bereich des Fallenzentrums nur noch mit einer geringen Geschwindigkeit, es wird im Potentialtopf der Falle eingefangen.

Unter Einbeziehung der Zeitverzögerung bei der Tröpfchenerzeugung am Injektor und der zurückzulegenden Fallstrecke sollte also eine feste Zeitdifferenz zwischen dem Injektorpuls und dem Nulldurchgang der Fallenamplitude zu finden sein, die ein reproduzierbares Einfangen von Tröpfchen unter sonst identischen Bedingungen erlaubt. Im realen Experiment gelang dies auch phasenweise. Das lag vor allem daran, daß "sonst identische Bedingungen" kaum zu garantieren sind und es noch weitere den Fangernfolg beeinflussende Größen gibt. Neben den eingangs aufgezählten Parametern war z.B. noch die Lage der Injektorachse zur Symmetrieachse der Falle bzw. zum Fallrohr zu optimieren. Die meisten Schwierigkeiten bereitete aber der Injektor selbst (s.o.). So unterbrachen z.B. häufig -nicht immer sichtbare- Luftbläschen in der Zuleitung des Injektors den Ladungstransfer in der Flüssigkeitssäule.

5.6. Der Anregungslaser

Zur Anregung der Raman-Streuung und der Mie-Streuung in einzeln levitierten Tröpfchen wurde ein Argon-Ionen-Laser verwendet. Der Ar^+ -Laser (Coherent, Serie Innova 70) stellt die beiden Wellenlängen 488.0 nm und 514.5 nm zur Verfügung. Wegen der größeren maximalen Ausgangsleistung (ca. 1.4 W) wurde zu Projektbeginn die

Wellenlänge 514.5 nm gewählt. Der grüne Strahl verläßt den Laser mit einem Strahldurchmesser von 1.5 mm, 0.5 mrad Divergenz und ist linear polarisiert (elektrischer Feldvektor 100:1 vertikal). Für die später durchgeführten Raman-spektroskopischen Meßreihen an einzelnen Tröpfchen wurden Ausgangsleistungen im Bereich von 150 mW bis 400 mW verwendet. Hier angegebene Ausgangsleistungen beziehen sich immer auf die mit einem Leistungsmeßgerät (LOT Oriol) direkt nach Austritt aus der Laserkavität gemessene Leistung.

Der Laser, ein relativ altes Gerät, bereitete im weiteren Verlauf der Arbeit Schwierigkeiten wegen mangelnder Leistungsstabilität. Um nach einem durchgeführten Experiment den Anteil der Leistungsschwankungen an der Dynamik des am Partikel gestreuten Lichtes nachvollziehen zu können, wurde eine einfache Möglichkeit zur Leistungsüberwachung realisiert. Dazu wurde direkt hinter einem der vier dielektrischen Spiegel (S3 in Abb. 5.9, siehe unten) auf dem Weg vom Laser in die Falle die durch den Spiegel transmittierte Strahlung mit einem Phototransistor gemessen. Das Ausgangssignal nach einer einfachen Verstärkerstufe wurde zusammen mit anderen Spannungswerten (Fallenparameter, Feuchte, Temperatur etc.) über eine Computer-Schnittstelle ausgelesen. Zwischen der Ausgangsleistung des Lasers und der Spannung am Phototransistor bestand ein einfacher linearer Zusammenhang. Wegen einer Abhängigkeit dieses Zusammenhangs von der Lichtsituation im Labor und um Störstrahlung im Spektrometer zu vermeiden wurden alle Experimente bei einheitlich abgedunkelter Beleuchtung durchgeführt.

5.7. Optik

Die verwendeten optischen Komponenten lassen sich in zwei Gruppen unterteilen, nämlich diejenigen zur Einkoppelung des Ar⁺-Lasers in die Falle zur Anregung der elastischen und inelastischen Lichtstreuung bzw. solche zur Detektion des Streulichts und zur Beobachtung von Tröpfchen und Falleninnenraum. Beide Gruppen werden im folgenden beschrieben. Einige Bemerkungen zum Einbau spektraler Filter schließen sich an.

5.7.1. Anregung

Der Laserstrahl zur Anregung der Ramanstreuung einzelner in der Falle gefangener Tröpfchen wird von vier Spiegeln vom Laser aus auf die richtige Höhe gebracht und mit einem Umlenkprisma senkrecht von oben in die Falle eingestrahlt. Das Umlenkprisma dient gleichzeitig als Verschluss der Fallenkammer. Die Abbildung 5.9 zeigt eine Skizze mit den wesentlichen Komponenten.

Alle Spiegel sind dielektrisch und für 45° Einfallwinkel optimiert. Das Umlenkprisma hat entspiegelte Vorderseiten, die 45°-Fläche ist versilbert. Die Spiegel S3 und S4 wurden nachträglich hinzugefügt, da der Abstand zwischen dem Spiegel S2 und dem Umlenkprisma zu groß war. Kleinste Veränderungen der Spiegelneigung führten wegen des langen Hebelweges zu großen Änderungen der Strahlposition in der Falle. Die Halter der Spiegel S3 und S4 haben ein verschwindend kleines mechanisches Spiel und werden bei Justagen um ihren Flächenmittelpunkt gekippt. Der einfachere Halter des Spiegels S2 hingegen verschiebt den Strahl auch in seiner Position, wenn die Spiegelfläche gekippt wird. Erst mit den hochwertigeren Spiegelhaltern und den gezeigten Positionen der

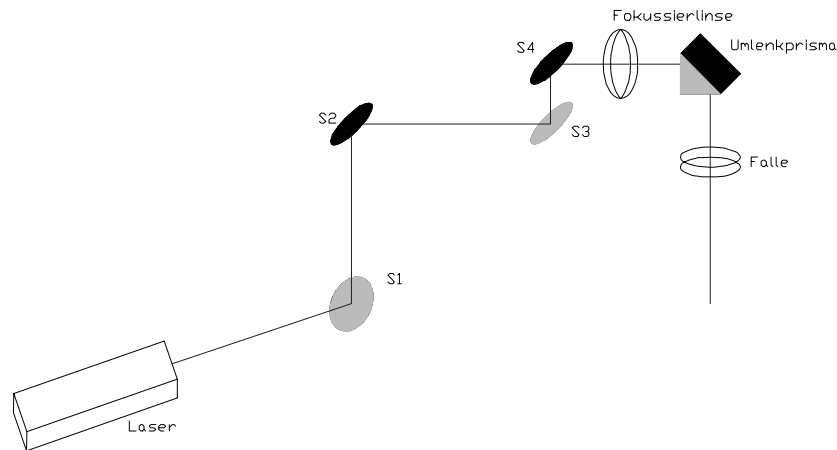


Abbildung 5.9: Aufbau der Lasereinkopplung. Zur Justage des von der Fokussierlinse gebündelten Laserstrahls auf das in der Falle gefangene Tröpfchen werden die Spiegel S3 und S4 justiert.

Spiegel S3 und S4 wurde der optische Aufbau ausreichend stabil, um zuverlässig über längere Zeiträume Ramanstreuung an Tröpfchen aufnehmen zu können.

Die Brennweite der entspiegelten Fokussierlinse betrug 150 mm bzw. 200 mm. Ihre Position wurde meist so gewählt, daß die sich aus dem gemessenen Abstand zwischen Fokussierlinse und Umlenkprisma berechnete Position des Brennpunktes einige Millimeter unterhalb des Tröpfchens befand. Die Justage des fokussierten Laserstrahls auf das Tröpfchen gestaltete sich bei anfangs unjustiertem Aufbau mitunter schwierig. Am sichersten war eine gute Justage zu erreichen, indem die Fokussierlinse vom geringstmöglichen Abstand zum Umlenkprisma schrittweise weggeschoben wurde, wobei nach jeder Verschiebung der Strahlengang nachzujustieren war.

Der aus der Falle senkrecht nach unten austretende Laserstrahl endet in einem Beamstop, der beim Einschub von Tröpfchen durch eine einschwenkbare Halogenlampe verdeckt wird.

5.7.2. Detektion und Beobachtung

Die Abbildung 5.10 zeigt die wesentlichen zur Beobachtung des Tröpfchens und des Falleninnenraums sowie zur Detektion des am Tröpfchen elastisch bzw. inelastisch gestreuten Lichtes. Die Skizze gibt eine Aufsicht wieder, der graue Ring mittig oben deutet die Fallenelektroden an. Linsen sind vereinfacht durch die geraden Striche senkrecht zu den gestrichelten optischen Achsen dargestellt.

Die von der Falle aus gesehen jeweils erste Linse der drei Strahlengänge ist in der Fallenkammer vakuumdicht eingebaut. Blenden gegen Reflexe, Graufilter und die Quartz-Planfenster der Isoliervakuumkammer wurden der Übersicht halber weggelassen. Die Winkel zwischen den Strahlengängen entsprechen dem Aufbau. Alle beschriebenen Komponenten sind fest mit der Isoliervakuumkammer verbunden, ihre Position relativ zum Tröpfchen bleibt dadurch auch bei Verschiebungen z.B. der Falle gegenüber dem Spektrometer erhalten.

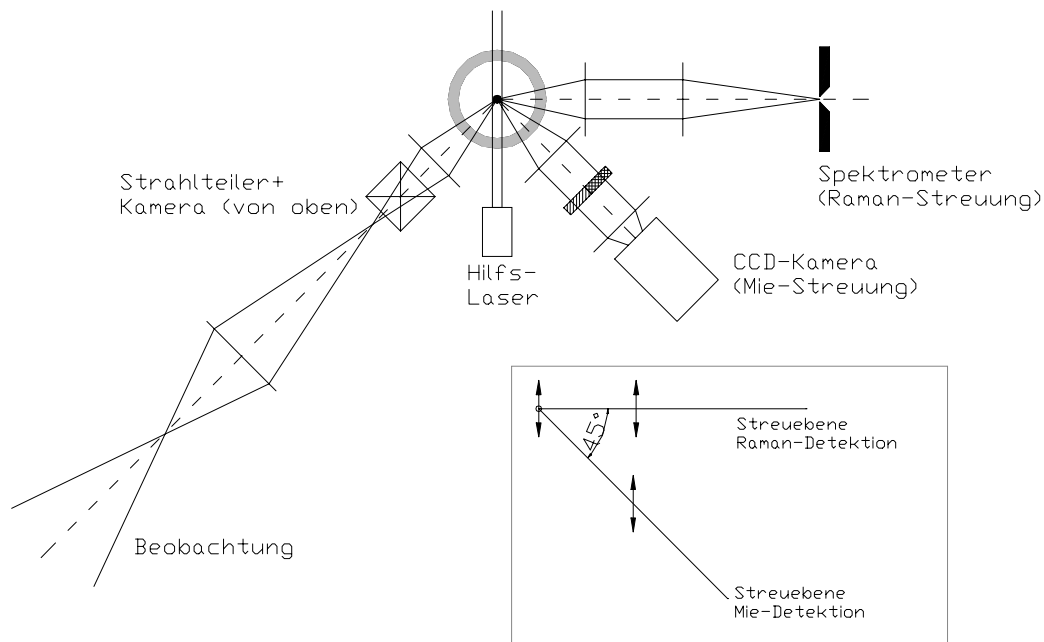


Abbildung 5.10: Skizze (Aufsicht) der optischen Komponenten zur Detektion der Raman-Streuung (rechts), der Mie-Streuung (rechts unten) sowie zur Beobachtung des Falleninneraums (links unten). Die Fallenelektroden sind durch den grauen Ring angedeutet. Graufilter und Blenden gegen Reflexe wurden zur besseren Übersicht weggelassen. Die eingesetzte Grafik unten rechts verdeutlicht die Polarisationsverhältnisse.

Detektion der Raman-Streuung

Der in der Abb. 5.10 von der Falle waagrecht nach rechts weisende Strahlengang dient der Abbildung des Tröpfchens auf den Eintrittsspalt des Spektrometers. Eine Achromatlinse ($f=20$ mm) parallelisiert das vom Tröpfchen kommende Licht, eine zweite Achromat ($f=80$ mm) bildet das Tröpfchen auf den Eintrittsspalt ab. Die Brennweite der zweiten Linse ergibt sich mit dem Strahldurchmesser von ca. 10 mm nach der ersten Linse aus der Anpassung an die Apertur des Spektrometers von $f/7.8$. Um Reflexe aus dem Fallinnenraum am Eintritt ins Spektrometer zu hindern, befinden sich vor und hinter der 80 mm-Linse verschiebbare Irisblenden. Der Eintrittsspalt wurde zusätzlich in seiner Höhe mit einem in der Spaltnähe integrierten Schieber eingeschränkt. Diese Maßnahmen waren trotz Schwärzung der Elektrodenringe und des Fallinnenraums sowie der optischen Ports notwendig, insbesondere weil auf ein spektrales Filter zur Unterdrückung des elastisch gestreuten Lichtes verzichtet werden mußte (siehe nächster Abschnitt).

Die unten rechts in Abb. 5.10 eingesetzte Grafik verdeutlicht die Polarisationsverhältnisse. Die Streuebene der Raman- und der Mie-Streuung erscheinen in der Aufsicht als Kantenlinien. Sie sind um 45° gegeneinander geneigt. Bezüglich der Streuebene der Raman-Detektion ist die Strahlung des Anregungslasers senkrecht polarisiert.

Detektion der Mie-Streuung

Der Detektionsweg für das elastisch gestreute Licht ist in der Abb. 5.10 unten rechts von der Falle eingezeichnet. Genauer wird das Fernfeld der Mie-Streuung winkel- und polarisationsaufgelöst von einer CCD-Kamera registriert. Der Lichtweg beginnt von der Falle aus gesehen mit einer in Abb. 5.10 nicht gezeigten Metallblende. Aus dem bekannten Innendurchmesser und der Lage der Blende ergibt sich ein von der Kamera sichtbarer Winkelbereich des Streufeldes von 19.13° Breite. Dieser Wert geht in die Bestimmung von Tröpfchendurchmessern aus dem Streubild ein. Als nächstes folgt eine achromatische Linse ($f=20$ mm). Eine zweite Linse direkt vor der Kamera dient nur zur geringfügigen Anpassung des Strahlquerschnitts an die Fläche des Kamera-Chips. Der gesamte Strahlengang ist lichtdicht verrohrt.

Zwischen den beiden Linsen ist ein Polarisationsstrenner eingesetzt, der aus zwei halbkreisförmigen Polarisatorfolien mit senkrecht zueinander stehenden Durchlaßrichtungen besteht. Die Beobachtungsrichtung der Kamera, das Tröpfchen in der Falle und der senkrecht von oben eintretende Laserstrahl definieren die Streuebene der Mie-Streuung (siehe Abb. 2.2 auf S. 21). Bezüglich dieser Streuebene ist die Polarisations Ebene des linear polarisierten Laserlichts um 45° geneigt (siehe unten rechts in Abb. 5.10 eingesetzte Grafik). Der Polarisationsstrenner zerlegt das Streulicht in seine Anteile parallel bzw. senkrecht zur Streuebene. Das Kamerabild zeigt dementsprechend einen kreisrunden Ausschnitt des Streufeldes, der in zwei Halbkreise mit zueinander senkrechter Polarisation zerfällt. Beispiele werden im Kapitel zur Mie-Streuung gezeigt (Abb. 2.16 auf S. 43).

Das Bild der Mie-Kamera wurde auf einem Monitor dargestellt sowie über eine spezielle Digitalisierungskarte (Data Translation DTA 3155 MACH Series Frame Grabber) vom Meßcomputer zusammen mit fast allen anderen relevanten Parametern des Experiments gespeichert. Zusätzlich wurde das Videosignal mit einem Videorekorder auf Band aufgezeichnet.

Die CCD-Kamera (Modell DMK30H12/C von "The Imaging Source", früher DBS) wurde ausgewählt, weil sie über eine abschaltbare Verstärkerautomatik sowie eine manuell einstellbare Belichtungszeit verfügt. Insbesondere die Möglichkeit zur Abschaltung der in einfachen Kameras allgemein üblichen Verstärkerautomatik ist sehr wichtig, da sonst der Dynamikbereich der Kamera ständig an die jeweils aktuelle Beleuchtungssituation angepaßt wird und somit ein Vergleich von Streuintensitäten deutlich erschwert wird. Dies trifft vor allem auf die beobachteten Phasenübergänge in Tröpfchen zu, bei denen die kristallinen Partikel erheblich stärker streuen als ihre flüssigen Vorläufer. Eine nachträgliche Auswertung wird erst durch einen konstanten Verstärkungsfaktor des Videosignals möglich. Die Anpassung an die Streulichtdynamik des Experiments muß dann aber durch Vorwahl der Belichtungszeit erfolgen. Die kürzeste einstellbare Belichtungszeit der Kamera ist $1/10.000$ s. Selbst bei dieser kurzen Belichtung wurde der Chip durch das an gefrorenen Tröpfchen gestreute Licht in einigen Experimenten übersteuert. Um den meistens damit verbundenen Ausfall des Meßcomputers zu verhindern, wurde ein Graufilter ("neutral density" NG 0.3) direkt vor der Kamera eingesetzt.

Beobachtung des Falleninnenraums

Aus mehreren Gründen ist es wichtig, den Innenraum der Falle optisch überwachen zu können. Das reproduzierbare Einfangen von Tröpfchen ist ohne diese Kontrollmöglich-

keit kaum zu realisieren. Desweiteren ist bei geeigneter Vergrößerung die horizontale und vor allem die vertikale Position des gefangenen Partikels zu sehen. Diese Information ist zur Anpassung der Fallenparameter unerlässlich. Außerdem bietet eine mikroskopische Abbildung zusätzliche Informationen über den Aggregatzustand des Partikels, insbesondere im frühen Stadium des Übergangs flüssig=>fest.



Abbildung 5.11: *Blick durch das Mikroskop auf ein Tröpfchen in der Falle im grünen Licht des Ar^+ -Lasers. Die tatsächliche Größe des Tröpfchens ist kleiner als der helle Punkt in der Bildmitte. Die hellen Bereiche oben und unten im Bild sind die Ringelektroden.*

In der Abb. 5.10 verläuft der für diese Zwecke aufgebaute Strahlengang von der Falle aus nach unten links. Der Strahlengang wird zweifach genutzt. Eine Linse ($f=25$ mm) im Fallenkörper erzeugt außerhalb der Isoliervakuumkammer ein Bild des Tröpfchens. Dieses wird zum einen mit einem halbdurchlässigen Strahlteilerwürfel nach oben auf eine einfache CCD-Kamera abgebildet, zum anderen entlang der gezeigten optischen Achse als Zwischenbild für eine Mikroskop-Abbildung verwendet. Das Bild der Beobachtungskamera wurde auf einem Monitor dargestellt. Als zweite Linse im Mikroskoparm wurden je nach Situation unterschiedliche Brennweiten benutzt. Der Mikroskopaufbau wird mit dem Auge genutzt, bei eingeschaltetem Ar^+ -Laser ist dies nur mit einem Graufilter möglich, da das Streulicht sehr intensiv ist.

Die Abbildung 5.11 zeigt einen Blick durch das Mikroskop auf ein gefangenes Tröpfchen im grünen Licht des Ar^+ -Lasers. Für die Aufnahme wurde die Laserleistung stark reduziert. Dennoch überstrahlt das Streulicht vom Tröpfchen dessen tatsächliche, kleinere Gestalt (s.u.). Die hellen horizontalen Balken oben und unten im Mikroskopbild sind die Elektroden der Falle.

Das von der direkt auf dem Strahlteilerwürfel montierten CCD-Kamera aufgenommene Bild hängt stark von der Beleuchtung des Partikels in der Falle ab, wie die Abbildung 5.12 verdeutlicht. Dargestellt sind zwei genau gleich große Kamerabilder zweier praktisch gleich großer Tröpfchen. Die Bilder wurden invertiert, dunkel dargestellte Regionen sind also im Original hell. Die unterschiedlich hellen Hintergründe werden von der automatischen Dynamikanpassung der Kamera verursacht.

Im linken Teilbild A erkennt man zwei schwache senkrecht übereinanderliegende Punkte etwa in der Bildmitte. Das Tröpfchen wurde von unten mit einer Halogenlampe beleuchtet, die Punkte entstehen durch den direkten Reflex an der unteren Hälfte der Kugeloberfläche bzw. durch das einmal intern gebrochene Licht, das kurz unterhalb des oberen Randes austritt. In der kleinen Grafik unten links in Teilbild A (Ausschnitt

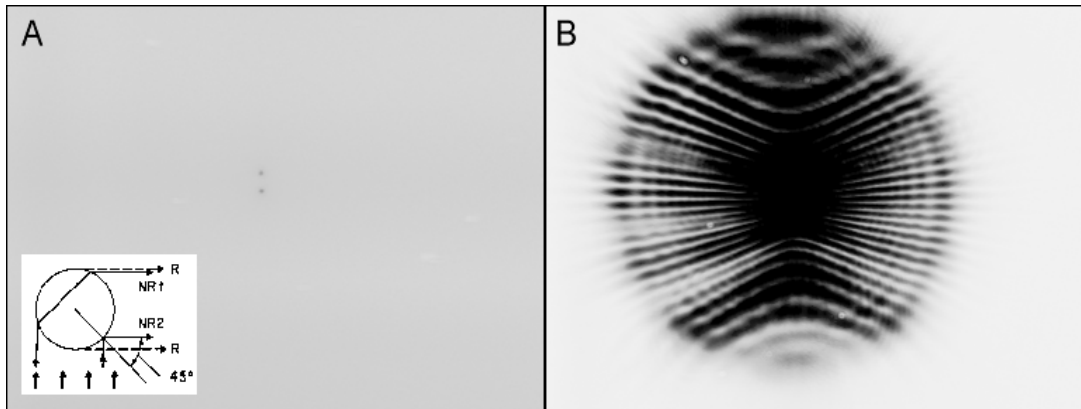


Abbildung 5.12: Zwei etwa gleich große Tröpfchen aus der Sicht der Beobachtungskamera. Die Bilder wurden invertiert. A: Tröpfchen wird von unten mit der Halogenlampe beleuchtet. Einsatz unten links: Ausschnitt aus Fig. 9 aus [Ashkin und Dziedzic, 1981]. B: Tröpfchen wird von oben mit dem Ar^+ -Laser beleuchtet. Erläuterungen im Text.

aus [Ashkin und Dziedzic, 1981], Fig. 9) sind diese beiden Strahlen mit NR2 bzw. NR1 bezeichnet. Der äußere Abstand der beiden Punkte ist also etwas kleiner als der reale Durchmesser des Tröpfchens.

Das Teilbild B der Abb. 5.12 zeigt ein von oben mit dem Ar^+ -Laser beleuchtetes Tröpfchen. Das eigentliche Tröpfchen etwa in der Bildmitte wird von seinem eigenen Streulicht überstrahlt, ein strukturierter Streulichtkranz umgibt das Tröpfchenabbild. Die Struktur wird durch die Theorie der Mie-Streuung beschrieben. Im Vergleich mit Teilbild A, das ein Tröpfchen praktisch gleicher Größe zeigt, wird klar, daß bei intensiver Beleuchtung der "zentrale helle Fleck" deutlich größer erscheint als der reale Durchmesser des Tröpfchens.

Hilfslaser

Der in der Abb. 5.10 mittig unterhalb der Falle gezeigte Hilfslaser (675 nm, 0.75 mW) diente der Kontrolle beim Einfang der Tröpfchen und kurz danach. Die Hauptlichtquelle zur Beleuchtung des Falleninnenraums beim Einfang ist eine unterhalb der Falle schwenkbar gehaltene Halogenlampe. Diese Lampe muß vor dem Öffnen des Ar^+ -Lasers beiseite geschoben werden, um den unter ihr befindlichen Beamstop für den Ar^+ -Laserstrahl freizugeben. Um in der Zeitspanne zwischen dem Ausschalten der Halogenlampe und dem Öffnen des Ar^+ -Lasers kontrollieren zu können, ob das gerade eingefangene Tröpfchen stabil in der Falle bleibt, wird der Hilfslaser zugeschaltet.

5.7.3. Spektrale Filter

Standardmäßig werden in der Ramanspektroskopie zwei Arten von spektralen Filtern eingesetzt. Ein Bandpaßfilter im Anregungsstrahlengang soll bei Verwendung von Gaslasern auftretende unerwünschte Plasmalinien aus der Laserröhre unterdrücken, indem er möglichst nur die nominelle Wellenlänge passieren läßt. Die Filter haben eine gewisse Durchlaßbandbreite. Filter des zweiten Typs werden zwischen Probe und Spektrometer

eingesetzt. Sie sollen das elastisch gestreute Licht blockieren, das sonst bei Aufnahme von Spektren im Bereich nah an der Anregungswellenlänge das viel schwächere Raman-gestreute Licht überstrahlt. Für diese Anwendung werden üblicherweise so genannte Notch-Filter benutzt. Diese mehrschichtigen Interferenzfilter blockieren Strahlung der Laserwellenlänge sehr effizient und schmalbandig.

Beide Filtertypen standen zur Verfügung, wurden aber aus unterschiedlichen und im Folgenden genannten Gründen nicht eingesetzt. Der probeweise zwischen den Spiegeln S2 und S3 eingebaute Bandpaßfilter war nicht nötig, da im gewählten Spektralbereich keine Plasmalinien des Lasers auftraten. Der Filter brachte so keinen Nutzen, sondern hatte nur nachteilige Effekte wie Leistungsminderung und zusätzliche Streustrahlung im Labor. Der Notch-Filter (SuperNotch plus von Kaiser Optics) wurde direkt vor dem Eintrittsspalt des Spektrometers gehalten. Er konnte aber nicht verwendet werden, weil damit eine unerläßliche Justagekontrolle verloren ging.

Das streuende Tröpfchen bewegte sich während der Experimente seitlich in der Falle², damit wanderte auch sein Abbild in der Ebene des Eintrittsspalt. Da dieser gegen Reflexe aus der Falle so eng wie möglich gehalten wurde, ging damit bei Bewegungen des Tröpfchens ein Teil des Raman-Lichtes verloren, weil es an einer Spaltblende abgeblockt wurde. Aus diesem Grund mußte die Position der Falle und damit des Tröpfchens relativ zum Spektrometer im Verlauf eines Experiments mehrfach korrigiert werden. Dazu war aber ein in der Spaltebene sichtbares Tropfenabbild notwendig, weil eine Kontrolle der Qualität der Spektren während ihrer Aufzeichnung nicht möglich war (siehe Abschnitt zum Detektor). Bei eingebautem Notch-Filter ging diese Justagemöglichkeit verloren, daher wurde er nicht benutzt. Der gewählte Spektralbereich um 1000 cm^{-1} (relativ zur Laserwellenlänge) lag aber soweit von der Anregungswellenlänge entfernt, daß auch ohne Notch-Filter kein Effekt des elastischen Streulichtes zu erkennen war. Die gute Streulichtunterdrückung des Doppelmonochromators macht sich hier bezahlt.

5.8. Das Ramanspektrometer

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Spektrometer zur Aufnahme von Raman-Spektren ist ein Doppelmonochromator. Als Detektor diente ein stickstoffgekühlter OMA (optical multichannel analyzer). Beide Komponenten werden im folgenden kurz beschrieben.

5.8.1. Die Optik des Spektrometers

Das Spektrometer SPEX Modell 1402 ist aus zwei Monochromatoren in sogenannter Czerny-Turner-Anordnung aufgebaut. Es enthält als dispersive Elemente zwei holographische Gitter mit 1200 Linien pro Millimeter, Blaze-Wellenlänge 500 nm. Die numerische Apertur beträgt $f/7.8$ bei 500 nm. Die Abbildung 5.13 zeigt das optische Design.

Das Licht tritt durch den Spalt S1 in das Spektrometer ein und trifft auf den ersten (M1) von insgesamt vier konkaven Spiegeln mit der Brennweite 85 cm. Dieser Spiegel leuchtet das Gitter G1 flächig aus. Vom ersten Gitter wird das Licht auf den zweiten Konkavspiegel M2 reflektiert bzw. gebeugt. Dieser wiederum fokussiert es

²Seitliche Bewegungen gefangener Tröpfchen können durch thermische Verspannungen der Apparatur beim Abkühlen/Aufwärmen oder durch einen Gasstrom ausgelöst werden.

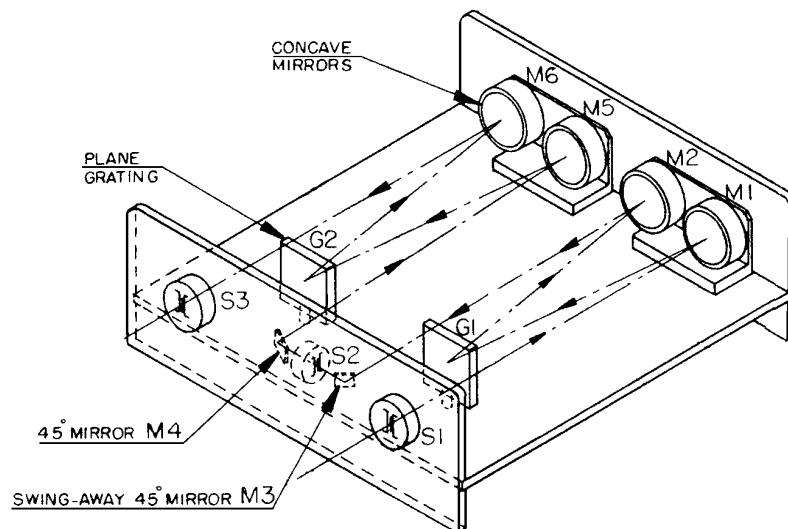


Abbildung 5.13: Optischer Aufbau des Doppelmonochromators SPEX 1402. S1: Eintrittsspalt; S3: Austrittsspalt; M1, M2 und M5, M6: konkave Spiegel ($f=85\text{cm}$); M3, M4: Planspiegel; G1, G2: Gitter. Abb. aus dem Benutzerhandbuch (bearbeitet).

auf den Planspiegel M3, der das Licht durch den Spalt S2 in den zweiten baugleichen Monochromator lenkt. Anstelle des Austrittsspalt S3 wurde der Detektor angebaut.

Das parallelisiert aus der Falle austretende elastisch (Mie) und inelastisch (Raman) gestreute Licht wurde mit einer Linse ($f=80\text{ mm}$) auf den Eintrittsspalt S1 des Spektrometers fokussiert. Die Brennweite ergibt sich aus der Aperturanpassung unter Berücksichtigung der Querschnittsfläche des Streulichtbündels. Die Aperturanpassung wurde im komplett abgedunkelten Labor bei geöffnetem Spektrometer mehrfach überprüft: Nach genauer Ausrichtung des Spektrometers (Achse S1-M1) am Streulichtbündel wurde der erste Spiegel M1 durch das Mie-Streulicht genau ausgeleuchtet. Um Reflexe aus der Falle zu unterdrücken, wurde vor und hinter der Fokussierlinse jeweils eine Irisblende eingebaut und der Spalt S1 in seiner Höhe begrenzt. Der Spalt S2 zwischen den beiden Monochromatoren wurde ausgebaut, weil er selbst bei größtmöglicher Breite Teile des Detektorchips abschattete.

Zur Auswahl des durchgelassenen Spektralbereichs werden die Gitter G1 und G2 mit einem Elektromotor gedreht. Das Spektrometer verfügt über eine mechanische Wellenlängenanzeige in Angström, verschiedene Scangeschwindigkeiten können ausgewählt werden. Die Wellenlänge war nicht sehr gut reproduzierbar (siehe Abschnitt zur Kalibrierung weiter unten). Eine Computersteuerung des Spektrometers war leider nicht möglich.

5.8.2. Der OMA-Detektor

Der Detektor OMA-Vision CCD Cryogenic der Firma EG&G ist eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte CCD-Kamera. Dabei steht CCD für die Chiptechnik "charge coupled device". Der $9.7 \times 9.7\text{ mm}^2$ große CCD-Chip ist in 512×512 Bildpunkte (Pixel)

unterteilt. Seine Quanteneffizienz beträgt im hier relevanten Wellenlängenbereich 27% (500 nm) bis 38% (600 nm). Die Kombination aus Stickstoffkühlung und geregelter elektrischer Heizung erlaubt eine stabile Kühlung ($\pm 0.01^\circ\text{C}$) des Detektors im Temperaturbereich -140°C bis -80°C . Für die hier vorgestellten Experimente wurde standardmäßig -120°C als Detektortemperatur eingestellt. Bei dieser Temperatur registrierte in der typischen abgedunkelten Laborbeleuchtung und ohne Partikelstreulicht aus der Falle jede Detektorspalte 450-500 counts pro 10 ms³, das entspricht etwa zehnmal so vielen Photonen in dieser Zeitspanne. Zählraten des ungekühlten Detektors in der gleichen Situation betragen $5-8 \times 10^5$ counts pro 10 ms.

Der Detektor wird per Glasfaserkabel über eine zugehörige Steuerkarte von einem Computer ausgelesen. Die Steuersoftware summiert die gezählten Photonen über alle Zeilen des Chips, so daß ein Spektrum in der Form {CCD-Spaltennummer, Intensität} entsteht, welches auf dem Monitor dargestellt wird. Die Belichtungszeit und die Anzahl der nacheinander aufzunehmenden Spektren sind ebenfalls über die Software einzugeben. Wenn Spektren auf Festplatte oder Diskette aufgezeichnet werden, können sie nicht gleichzeitig am Monitor betrachtet werden. Dadurch fehlt eine wichtige Kontrollmöglichkeit der Spektren im Verlauf eines Experiments. Diese massive technische Einschränkung war durch ständige Kontrolle des Tropfenabbildes in der Ebene des Eintrittsspaltes sowie der Fokussierung des Lasers auf das untersuchte Tröpfchen weitgehend auszugleichen.

Aus der Breite des CCD-Chips und der Dispersion des Spektrometers ergab sich ein relativ schmaler vom Detektor erfaßter Spektralbereich. Die Breite dieses Spektralbereichs betrug nur ca. 4.5 nm, das entspricht bei einem zentralen Raman-shift von 1000 cm^{-1} etwa 165 cm^{-1} . Dafür wurde dieser Bereich sehr gut spektral aufgelöst, rechnerisch mit einer Auflösung von 0.33 cm^{-1} pro Pixel ($165\text{ cm}^{-1} : 512$ Pixel). Dadurch kann die mit 0.2 cm^{-1} angegebene Auflösung des Spektrometers fast vollständig ausgeschöpft werden.

5.8.3. Kalibrierung der Wellenzahlskala

Das Steuerprogramm des OMA-Detektors speichert gemessene Spektren in der Form {CCD-Spaltennummer, Intensität}. Um bei gegebener Wellenlängenanzeige des Spektrometers den Spaltennummern des Detektors Wellenlängen bzw. Wellenzahldifferenzen relativ zur Laserwellenlänge (Raman-Shifts) zuordnen zu können, wurde das Spektrometer kalibriert. Dazu wurden verschiedene Gaskalibrierlampen verwendet. Zum einen war die Wellenlängenskala des Spektrometers zu kalibrieren, zum anderen die Abbildung der Wellenlängen auf die Fläche des Detektorchips.

Da anfangs der später relevante Spektralbereich noch nicht bekannt war, wurde zuerst bestimmt, wie sich die Position einer Linie bekannter Wellenlänge auf dem Detektorchip bei Verfahren des Spektrometers verschob. In einem zweiten Schritt wurden Linien der Kalibrierlampen auf die Chipmitte abgebildet, um das Spektrometer zu kalibrieren. Dabei ergab sich ein Wellenlängenversatz des Spektrometers um 3.8 nm. Dieser Versatz war bereits aus den Messungen mit einem Photomultiplier bekannt.

Nach Abschluß dieses Verfahrens stand eine Zuordnung der Pixelspalten des OMA-Detektors zu Wellenzahlen und damit zu Raman-Shifts abhängig von der am Spektrometer eingestellten Wellenlänge zur Verfügung. Im weiteren Verlauf der Arbeit stellte

³Davon waren unabhängig von der Belichtungszeit etwa 400 counts Ausleserauschen.

sich diese Kalibrierung aber als aus mehreren Gründen zu ungenau heraus. Das Spektrometer hat ein signifikantes mechanisches Spiel, z.B. bei Erhöhung der Wellenlänge und anschließender Rückkehr zur nominellen Anfangsposition weicht die tatsächliche Wellenlänge deutlich und unberechenbar von der vorher eingestellten Wellenlänge ab. Die Methode der Verschiebung einer Linie über den Chip zur Zuordnung von Detektorpixelspalten zu Wellenlängen führte außerdem in anderen Spektralbereichen zu Verzerrungen vor allem an den Rändern der Spektren.

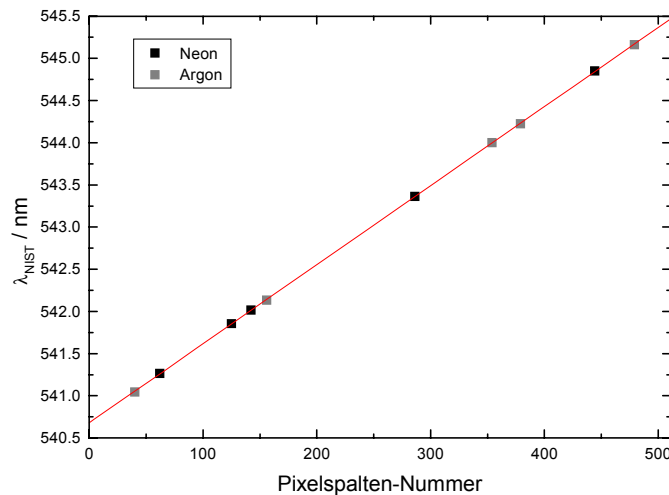


Abbildung 5.14: Kalibrierung des OMA-Detektors. Es wurden jeweils fünf Spektrallinien einer Neon- und einer Argon-Kalibrierlampe verwendet. Die zugeordneten Wellenlängen wurden der Datenbank des NIST entnommen. Die Gerade ist Ergebnis eines linearen Fits an die Meßpunkte.

Aus diesen Gründen wurde für die hier vorgestellten Experimente nach jeder Veränderung der Spektrometerwellenlänge das spektrale Fenster des Detektors neu kalibriert. Dazu wurden jeweils fünf Spektrallinien der Neon- und der Argonlampe genutzt. Die dazugehörigen Wellenlängen wurden der Spektrendatenbank des US-amerikanischen NIST entnommen (National Institute for Standards and Technology, Atomic Spectra Database, http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/lines_form). Wie aus der Abbildung 5.14 hervorgeht, ist die Zuordnung der Wellenlängen zu Pixelspalten des Detektors sehr gut linear.

Beim Vergleich zweier so durchgeführter Kalibrierungen, zwischen denen die Spektrometerwellenlänge verändert wurde, ergab sich ein durch mechanisches Spiel im Gitterantrieb (s.o.) verursachter Versatz der Spektren von 4.3 cm^{-1} , das ist sehr viel mehr als die vom Hersteller angegebene Reproduzierbarkeit von 0.3 cm^{-1} . Über den erfaßten Spektralbereich war diese Differenz praktisch konstant.

5.8.4. Synchronisation der Ramanspektren mit den übrigen Meßdaten

Das Steuer- und Ausleseprogramm für den OMA-Detektor läuft auf einem relativ alten Computer, der nicht netzwerkfähig ist. Eine Übertragung gemessener Spektren über das hauseigene Netzwerk zum Meßrechner war somit nicht möglich. Frühere Versuche

anderer Mitglieder der Arbeitsgruppe, die Steuerkarte in einen moderneren Computer einzubauen, blieben erfolglos. Wahrscheinlich liegt das daran, daß die Software bezüglich Speicherverwaltung und Datenträgerzugriffen sehr hardwarenah geschrieben ist und somit nicht auf neueren Betriebssystemen funktioniert. Das Betriebssystem des OMA-Computers ist zudem nicht "Jahr 2000"-kompatibel, sodass das beim Speichern von Spektren mitgeschriebene Erstellungsdatum nicht korrekt sein kann.

Daraus resultierte im Rahmen dieser Arbeit die Aufgabe, die während der Experimente aufgezeichneten Ramanspektren auf den Meßcomputer zu übertragen und den übrigen, allesamt vom Meßrechner gespeicherten Daten zeitlich korrekt zuzuordnen. Für den Datentransfer wurden Disketten gewählt. Gemessene Spektren wurden direkt auf Diskette gespeichert. Aus der Diskettenkapazität von 1.44 MB ergab sich, daß maximal 350 Spektren am Stück aquiriert werden konnten.

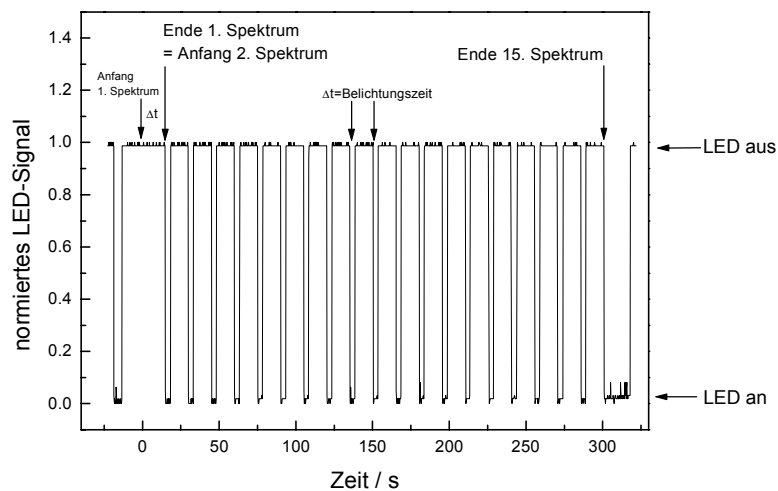


Abbildung 5.15: Normiertes Signal der Diskettenlaufwerks-LED des OMA-Computers bei Aufnahme von 20 Spektren mit je 15s Belichtungszeit. Erläuterungen im Text.

Zur Synchronisation der Spektren mit den übrigen Meßdaten wurde folgende Methode entwickelt: Das OMA-Programm erstellt zu Beginn der Spektrenaquisition eine neue Datei (mit dem angegebenen Namen) und speichert dann die Raman-Intensitäten jedes einzelnen Spektrums nach dessen Aufnahme. Jeder dieser Diskettenzugriffe wird durch die Leuchtdiode des Diskettenlaufwerks angezeigt. Es wurde beobachtet, daß die Speicherung der Intensitäten auf Diskette sehr regelmäßig erfolgte, also offenbar keine Daten im Computerspeicher "zwischengelagert" werden, wie es bei neueren Betriebssystemen üblich ist. Nach Speicherung der Intensitäten der zuvor festgesetzten Anzahl von Spektren werden die OMA-Pixelnummern -also die x-Achsen- für jedes einzelne Spektrum gespeichert.

Daraus ergibt sich eine eindeutig interpretierbare Sequenz von Hell-Dunkel-Phasen der Laufwerks-LED, die zur Synchronisation der Spektren mit den Meßdaten genutzt wurde. Dazu wurde auf die Laufwerks-LED ein Phototransistor geklebt, der -mit Vorwiderstand und Batterie beschaltet- vom Interface des Meßrechners ausgelesen wurde.

Die so entstehenden Spannungswerte wurden während der Experimente mit den übrigen Meßdaten zusammen abgespeichert. Die Abbildung 5.15 zeigt als Beispiel das LED-Signal als Funktion der Zeit bei Speicherung von 20 Spektren mit jeweils 15 s Belichtungszeit.

Das LED-Signal wurde auf das Intervall $[0, 1]$ abgebildet, der Wert 0 entspricht der leuchtenden LED. Der Nullpunkt der Zeitachse ist der Beginn der Belichtungszeit des ersten Spektrums. Am Anfang der Sequenz ($t < 0$ s) wird die Datei erstellt, die LED leuchtet bei diesem Diskettenzugriff auf, das LED-Signal fällt von 1 = dunkel auf 0 = hell und springt zurück auf 1. Danach wird der Detektor initialisiert, das erste Spektrum aufgenommen und abgespeichert ($t = 10$ s), während bereits die Belichtungszeit des zweiten Spektrums beginnt. Der Beginn der Belichtungszeit des ersten Spektrums ist im LED-Signal nicht direkt abzulesen, er wird berechnet als (Ende erste Belichtung) - (durchschnittliche Belichtungszeit aller übrigen Spektren). Bis zum Ende der Belichtungszeit des 15. Spektrums ($t = 300$ s) markiert jeweils ein Sprung des LED-Signals von 1 auf 0 das Ende einer Belichtung. Nach dem 15. Spektrum leuchtet die LED länger weiter, da jetzt die x-Achsenwerte gespeichert werden.

Diese Interpretation der LED-Signalfolge wurde für die Auswertung der Spektren in ein Programm integriert, das als Ergebnis die Spektren mit ihren Anfangs- und Endzeiten auf der Basis der Meßrechnerzeit auflistet. Die Zuordnung ist auf ± 0.1 s genau.

5.9. Computersteuerung und Meßprogramm

Die während eines Experiments erfaßten Daten wurden von zwei Computern sowie per Videorekorder auf Videoband aufgezeichnet. In diesem Abschnitt werden die im einzelnen erhobenen Signale sowie die Aufgabenverteilung zwischen den Computern beschrieben. Der im folgenden als Meßcomputer bezeichnete Rechner speicherte alle relevanten Daten mit Ausnahme der Raman-Spektren. Diese wurden vom sog. OMA-Computer gespeichert. Die Synchronisation beider Rechner wurde im vorangegangenen Abschnitt beschrieben. In den folgenden Abschnitten werden die vom Meßrechner zeitgleich mit 3-6 Hz aufgezeichneten Signale charakterisiert. Die Signale werden als Videosignal, über GPIB-Kabel oder über ein mehrkanaliges Computerinterface (Stanford Research Systems, Modell SR245) zugeführt. Das Computerinterface selbst wird ebenfalls über eine GPIB-Verbindung angesprochen.

5.9.1. Erfaßte Daten

Zeit

Als Zeitbasis für alle Daten und alle Eintragungen sonstiger Vorkommnisse und Beobachtungen in Laborbücher diente die Zeit ab Start des Meßprogramms in Sekunden, die mit einer Auflösung von einer Millisekunde protokolliert wurde.

Gleichspannungsdifferenz zwischen den Ringelektroden

Die Differenz der an den Ringelektroden der Falle angelegten Gleichspannungen zur Kompensation der Gewichtskraft auf das Tröpfchen wurde von einem Digitalmultimeter

(Hewlett Packard, Modell 30441A) gemessen und per GPIB-Leitung an den Meßcomputer übertragen.

Signal der Leuchtdiode des OMA-Diskettenlaufwerks

Wie im vorangegangenen Abschnitt erläutert, wurden die Raman-Spektren vom OMA-Computer direkt auf Diskette gespeichert. Das mit einem Phototransistor abgetastete Signal der LED des Diskettenlaufwerks wurde über das Computerinterface SR245 digitalisiert. Die Hell-Dunkel-Sequenzen der Laufwerks-LED dienen der Synchronisation der Raman-Spektren mit der Zeitbasis des Meßrechners.

Spannungswert vom Laserleistungsmonitor

Um den Einfluß von Leistungsschwankungen des zur Anregung der elastischen und inelastischen Lichtstreuung benutzten Ar^+ -Lasers auf die Streuintensitäten nachträglich von anderen Faktoren trennen zu können, wurde die Intensität des durch einen der dielektrischen Spiegel hindurchtretenden Laserlichts mit einem weiteren Phototransistor mit Signalverstärker gemessen und ebenfalls über das Computerinterface eingelesen. Der Spannungswert ist proportional zur Laserleistung.

Summierte Intensitäten des elastisch gestreuten Lichtes

Das von einer CCD-Kamera polarisations- und winkelaufgelöst erfaßte elastisch gestreute Licht (Mie-Streuung) wurde sowohl von einer speziellen Video-Digitalisierungskarte im Meßrechner verarbeitet als auch parallel dazu von einem handelsüblichen Videorekorder auf Standard-Kassetten aufgenommen.

Wie im Abschnitt über die Detektion der Mie-Streuung erläutert, besteht das von der Kamera aufgenommene Bild aus zwei halbkreisförmigen Ausschnitten des winkelaufgelösten Streufeldes. Die beiden Halbkreise unterscheiden sich durch zueinander senkrechte Polarisationsrichtungen des abgebildeten Streulichtes. Das Meßprogramm stellt das Kamerabild als Vollbild dar und summiert zusätzlich in je einem rechteckigen Ausschnitt der beiden Polarisierungen entlang der Kameraspalten. Ergebnis dieser Summation ist für jede der beiden Polarisationsrichtungen die Lichtintensität als Funktion des Streuwinkels. Der Streuwinkel liegt dabei in der von Kamera, Tröpfchen und beleuchtendem Laserstrahl aufgespannten sog. Streuebene, er wird relativ zum einfallenden Laserstrahl gemessen.

In den hier vorgestellten Experimenten wurden die Mie-Daten weiter reduziert, indem je Zeitschritt noch über die Streuwinkel summiert wurde. Es wurde also je Polarisation die (normierte) Gesamtintensität in den rechteckigen Ausschnitten berechnet und gespeichert. Um den Informationsverlust durch diese zweite Summation zu minimieren, wurde das Videosignal zusätzlich von einem Rekorder auf Band gespeichert.

Rauschfaktor der Mie-Streuung

Neben der Intensität der Mie-Streuung wurden im Verlauf der Arbeit verschiedene Algorithmen zur Strukturanalyse von Ausschnitten aus dem Streufeld ausprobiert. Sie lieferten pro Polarisationsrichtung einen Rauschfaktor, der ebenfalls gespeichert wurde.

Berechneter Tröpfchendurchmesser

Der aus der Breite des von der Mie-Kamera erfaßten Winkelbereichs und der Dichte charakteristischer Streifen des Streubildes berechnete aktuelle Wert des Tröpfchendurchmessers wurde standardmäßig mitgeschrieben.

Temperaturen von Fallenkammer und Kryostat

Die Temperatur der Fallenkammer wurde über die Temperatur des N₂-Kryostaten mit elektrischer Gegenheizung von einem professionellen Steuergerät geregelt (Lake Shore, Modell 330). Das Steuergerät kommunizierte mit dem Meßrechner über eine GPIB-Leitung. Im Meßprogramm werden die geregelte Temperatur des Kryostaten (eingebauter Pt100-Widerstand) sowie der Fallenkammer erfaßt. Die Temperatur der Fallenkammer wurde mit einem einzelkalibrierten Pt100-Widerstand (Lake Shore) in Vierpunktmessung mit thermisch verankerten Zuleitungen bestimmt. Dazu wurde die Kalibriertabelle des Widerstandes in den Speicher des Steuergeräts einprogrammiert.

Relative Luftfeuchtigkeit und Temperatur im Falleninnenraum

Die relative Luftfeuchtigkeit innerhalb der Fallenkammer wurde mit einem werkseitig kalibrierten Halbleitersensor (Honeywell, HIH-3602-C) gemessen. Da die relative Luftfeuchtigkeit auf die Temperatur bezogen ist, beinhaltet der Sensor auch ein Thermometer, in diesem Fall einen Pt1000-Widerstand. Die zur Nutzung des Sensors notwendige Beschaltung (Konstantstromquelle, Verstärker) wurde in der Elektronikwerkstatt des Fachbereichs konzipiert und hergestellt. Das entsprechende Auslesegerät kodiert das Feuchtesignal und die Temperatur des Sensors als Spannungen, die wiederum über das Computerinterface SR245 eingelesen werden. Die Zuverlässigkeit der so bestimmten Feuchtedaten bewegte sich in engen Grenzen, insbesondere bei Absenkung der Fallentemperatur ist die Genauigkeit dieser Information gering. Dies wird im Ergebniskapitel ausführlich diskutiert.

5.9.2. Das Meßprogramm

Das Meßprogramm erfaßt alle oben genannten Daten und stellt sie grafisch dar. Beim Programmstart initialisiert es die über GPIB angeschlossenen Geräte (HP-Multimeter, Temperatursteuergerät, Computerinterface) und die Video-Digitalisierungskarte. Insgesamt stellt diese Programm eine sehr komplexe und zeitkritische Anwendung dar, die aus über hundert Unterprogrammen besteht. Ein abgestimmtes Timing zwischen der Abfrage der angeschlossenen Geräte und den Arbeitsschritten der Video-Digitalisierungskarte mußte realisiert werden. Die Grundversion des Meßprogramms wurde von Thomas Leisner und Friederike Weritz in LabView (grafische Programmiersprache von National Instruments) geschrieben. Sie wurde vom Autor der vorliegenden Arbeit an die Bedürfnisse dieses Projektes angepaßt.

Bei Aufzeichnung aller genannter Signale lief das Meßprogramm mit einer Geschwindigkeit von 3-6 Hz, d.h. es wurden 3-6 komplette Datensätze pro Sekunde erfaßt und im Arbeitsspeicher abgelegt. Wegen der zunehmenden Belastung des Arbeitsspeichers nahm die Meßfrequenz mit der Zeit ab. Jeweils am Ende einer Raman-Sequenz wurden die Daten dann auf Festplatte gespeichert. Diese Methode beinhaltete zwar das Risiko

eines Datenverlustes bei Computerausfällen, und solche Verluste traten auch vereinzelt auf, meist ausgelöst durch ein inkorrektes Videosignal bei übersteuerter Mie-Kamera. Laufendes Speichern während der Messung hätte aber die Festplatte belastet und wegen des "Cachings" (Sammeln abzulegender Daten durch das Betriebssystem) zu einer ungleichmäßigen Zeitbasis geführt.

Die Meßrate des Programms ließ sich prinzipiell bis auf etwa 10 Hz erhöhen, indem die Vollbilddarstellung des Mie-Streufeldes abgeschaltet wurde. Das entsprechende LabView-Anzeigeelement ist offenbar wegen der automatischen Anpassung seines Wertebereichs an die Dynamik des Videobildes recht langsam. Da die hier vorgestellten Experimente aber bis zu 12 Stunden dauerten und keine derart schnellen Prozesse zu erwarten waren, wurde das Meßprogramm auf die oben genannte Frequenz von 3-6 Hz "gebremst", um die anfallende Datenmenge im Rahmen zu halten.

Die Einstellung der von der Temperatursteuerung zu haltenden Kryostat-Temperatur wurde in das Meßprogramm zusammen mit einer Kontrollmöglichkeit für die Heizleistung sowie zur Abschaltung der Heizung integriert. Auf diese Weise konnten Veränderungen der Parameter vorgenommen werden, deren Ausführung dem Programmablauf eingegliedert war. So wurde ein reibungsloses Funktionieren der Computersteuerung sichergestellt.