

Modifikation der spontanen Emission
nanoskopischer Partikel - Potential von
optischen Pinzetten für Untersuchungen und
Anwendungen der Quantenelektrodynamik

Diplomarbeit

Humboldt-Universität zu Berlin
Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät I
Institut für Physik

eingereicht von
Gesine Anne Steudle
geb. am 08.11.1978
in Aachen

Betreuer: Prof. Oliver Benson

Berlin, den 15.12.2005

Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung des Potentials optischer Pinzetten zur Detektion quantenelektrodynamischer Effekte. Dazu wurden am vorhandenen Aufbau einer optischen Pinzette die Voraussetzungen geschaffen, Fluoreszenzuntersuchungen in einer modifizierbaren dielektrische Umgebung durchzuführen. Die für die Experimente verwendeten Emitter befanden sich im Arbeitsvolumen der optischen Pinzette und konnten durch gezielte Annäherung eines Spiegels in ihren Emissionseigenschaften verändert werden.

Es wurde untersucht, wie die optische Pinzette zur kontrollierten Anordnung von Partikeln auf einem Substrat genutzt werden kann und wie genau sie die Position in Lösung eingefangener Partikel festlegt. Weiterhin wurde analysiert, wie die Fluoreszenz farbstoffdotierter Mikrokugeln durch Änderungen in ihrer Umgebung beeinflusst wird. Für die im Versuchsaufbau gegebene Anordnung wurde modelliert, wie sich die Emission in Abhängigkeit vom Abstand der Kugel zum Spiegel verändert. Dazu wurden sowohl Effekte der Änderung der spontanen Emission berücksichtigt wie auch solche, die durch aufbaubedingte Interferenzen des Anregungslichts zu Stande kamen. Es wurden Messungen zur Intensitätsänderung der Emission in Abhängigkeit vom Abstand zum Spiegel an den Mikrokugeln durchgeführt, deren Ergebnisse die Modellrechnungen bestätigen.

Außerdem wird dargelegt, wie an diesem Aufbau die Fluoreszenzexperimente in einem nächsten Schritt mit der optischen Pinzette durchgeführt werden könnten und welche Möglichkeiten dies für weitere Experimente und eventuelle Anwendungen bietet.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Aufbau	7
2.1	Experimentelle Komponenten	7
2.1.1	Optische Pinzette	7
2.1.2	Detektionsoptik	10
2.1.3	Nanopartikel	13
2.2	Gesamtaufbau	14
3	Experimente und Ergebnisse	17
3.1	Einfang und Manipulation von Partikeln	17
3.1.1	Einfang und gezielte Anordnung der Mikrokugeln	17
3.1.2	Fallenpotential und Brownsche Bewegung	19
3.2	Fluoreszenzuntersuchungen	21
3.2.1	Änderung der spontanen Emission in der Nähe von Oberflächen	21
3.2.2	Effekte durch Interferenzen des Anregungslichts	27
3.2.3	Überlagerung von Interferenzeffekten des Anregungs- lichts und der Änderung der spontanen Emission	31
3.2.4	Messung der Intensitätsänderung der Emission	36
3.3	Vorüberlegung zu weiterführenden Experimenten	40
4	Ausblick	43

Kapitel 1

Einleitung

Die Fluoreszenzeigenschaften optisch aktiver Partikel sind keine fundamentalen Eigenschaften der Partikel selbst, sondern hängen von ihrer elektromagnetischen Umgebung ab. Die Untersuchung dieser Effekte, die auch durch eine Modifikation des Vakuums durch Verändern der dielektrischen Umgebung hervorgerufen werden können, ist ein Teilgebiet der Quantenelektrodynamik [Mil94]. Die Änderungen der Emissionseigenschaften spielen sich räumlich auf Entfernungen in der Größenordnung der Wellenlänge des emittierten Lichts ab.

Gezeigt wurden diese Effekte bisher hauptsächlich an einzelnen Atomen in Dipolfallen [Tho92, Wal98] oder gefangenen Ionen in Paulfallen [Gut01, Esc01]. Diese Versuche werden im Ultrahochvakuum und mit Laserkühlung durchgeführt. Die Atome werden mit Hilfe der Falle in der untersuchten Umgebung, einem optischen Resonator oder in der Nähe eines Spiegels, positioniert und ortsabhängige Messungen können entweder durch kontrollierte Verschiebung der Ionen oder der sie umgebenden Elemente verwirklicht werden.

Zur Manipulation größerer Partikel im Bereich einiger Nano- bis Mikrometer gibt es die Möglichkeit, Rastersondentechniken wie Rasternahfeldmikroskope oder Atomkraftmikroskope zu benutzen. Dabei wird das Nanopartikel an der verwendeten Spitze angebracht, die sich mit Hilfe von Piezoelementen bewegen lässt. Auch auf diese Weise wurden Änderungen der spontanen Emission eines Nanoemitters beobachtet [Buc05]. Der Nachteil dieser Methode ist, dass das untersuchte Partikel in direktem Kontakt zur Spitze steht, und dadurch schon in seinen optischen Eigenschaften modifiziert wird.

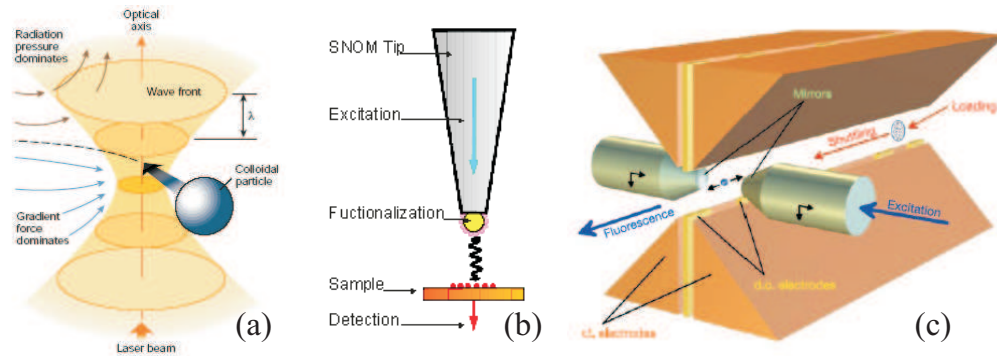


Abbildung 1.1: Verschiedene Methoden zur Positionierung von Partikeln (a) optische Pinzette (aus [Gri03]), (b) SNOM-Spitze (aus [Mül03]), (c) Ionenfalle (aus [Gut01]).

Eine weitere Möglichkeit, Partikel dieser Größenordnung zu manipulieren, die diesen direkten mechanischen Kontakt vermeidet, bieten optische Pinzetten. Dabei handelt es sich um eine aus einem stark fokussierten Laserstrahl bestehende optische Falle. Dielektrische Partikel werden in diesem Laserstrahl polarisiert und auf Grund der Gradientenkräfte, die bei starker Fokussierung hinreichend groß sind, zum Fokus hin beschleunigt. Bisher wird diese Art der optischen Falle hauptsächlich zur gezielten Verschiebung und Drehung von Mikro- bzw. Nanopartikeln [Coh05], insbesondere auch von Zellen und Makromolekülen [Ash87, Son02], benutzt. Weiterhin findet sie Anwendung in der Anordnung von Mikrokugeln [Xu01], in der Messung von Kräften im Pikonewtonbereich [Ghi94] und bei Untersuchungen im Bereich der statistischen Physik, z.B. der Brownschen Bewegung in Potentialen [Sim92, Joy05].

Ziel dieser Arbeit ist es, das Potential optischer Pinzetten zur Beobachtung quantenmechanischer Effekte zu untersuchen.

Dies geschieht im Hinblick darauf, die Emissionseigenschaften optisch aktiver Partikel, die mit der optischen Pinzette in die Nähe komplexer dielektrischer Strukturen gebracht werden, zu verstehen (Abb. 1.2). Gegenüber den Versuchen mit einzelnen Ionen bestünde ein Vorteil bei Verwendung optischer Pinzetten darin, dass der experimentelle Aufwand reduziert ist: Man benötigt einen weniger komplexen Fallenaufbau und muss nicht im Vakuum arbeiten,

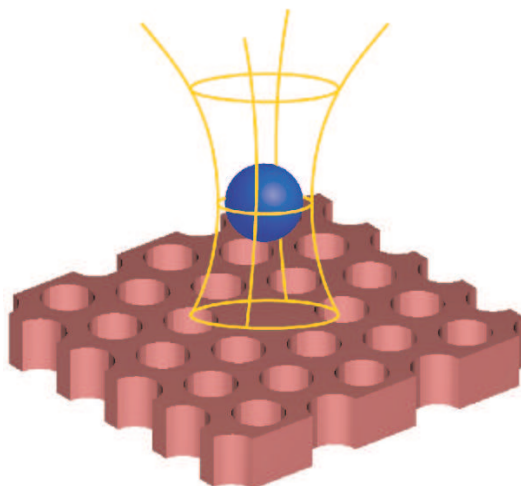


Abbildung 1.2: *Mit der optischen Pinzette gefangener Partikel in der Nähe einer periodischen dielektrischen Struktur.*

sondern kann die Versuche bei Raumtemperatur und z.B. in Wasser als umgebendem Medium durchführen. Das ist auch im Hinblick auf mögliche Anwendungen, z.B. in der (Bio-)Sensorik von Interesse. Dort wäre es z.B. denkbar, die Emissionseigenschaften des verwendeten Indikators durch die Modifikation seiner Umgebung so zu verändern, dass sich die Detektionseffizienz erhöht.

Zunächst würde man solche Experimente mit größeren Partikeln, d.h. Partikeln mit einem Durchmesser von etwa 10 nm bis zu einigen 100 nm durchführen, die mit Farbstoffmolekülen dotiert sind. Das bedeutet, dass man bei Beobachtung der optischen Eigenschaften Mittelungen über ein Ensemble vieler Emittter sieht. Die Experimente können dann im nächsten Schritt bis hin zu einzelnen Emitttern, die in Nanopartikel integriert sind, vorangetrieben werden.

Die Arbeit ist folgendermaßen gegliedert: In Kapitel 2 wird der Aufbau beschrieben, an dem die Experimente durchgeführt wurden. Insbesondere wird hier auf die Wirkungsweise einer optischen Pinzette eingegangen.

In Kapitel 3 werden die Experimente und Ergebnisse dargestellt. Dabei geht es im ersten Teil des Kapitels um die Untersuchung des mit der optische Pinzette bewirkten Einfangs von Mikropartikeln. Im zweiten Teil wird dargelegt,

welche Änderungen im Emissionsverhalten eines fluoreszierenden Emitters man im verwendeten Aufbau auf Grund theoretischer Überlegungen erwartet. Es wird dies mit den Messergebnissen verglichen. Im dritten Teil des Kapitels wird ein Ausblick gegeben, wie man nun am selben Aufbau diese Fluoreszenzuntersuchungen unter Verwendung der optischen Pinzette durchführen kann.

Kapitel 4 gibt einen Ausblick, welche weiterführende Experimente man durchführen könnte und in welchen Bereichen Anwendungen denkbar sind.

Kapitel 2

Aufbau

Der verwendete experimentelle Aufbau besteht aus einer optischen Pinzette in Kombination mit verschiedenen Möglichkeiten der Fluoreszenzanregung und Fluoreszenzdetektion. Im ersten Teil dieses Kapitels wird auf einige Komponenten des Experimentes einzeln eingegangen, im zweiten Teil wird der Gesamtaufbau dargestellt.

2.1 Experimentelle Komponenten

2.1.1 Optische Pinzette

Unter einer optischen Pinzette versteht man eine optische Falle, mit der unter Ausnutzung der Gradientenkräfte in stark fokussierten elektromagnetischen Feldern dielektrische Partikel eingefangen und gezielt manipuliert werden können. Dies wird durch einen stark fokussierten Laserstrahl realisiert. Seit der ersten Demonstration einer solchen Falle durch Ashkin und andere im Jahr 1986 [Ash86] werden optische Pinzetten vielfältig eingesetzt. Der Einfang eines Partikels durch eine optischen Pinzette basiert auf dem Impulsübertrag von Photonen auf das Partikel bei Streuung und Brechung an diesem. Die durch den Impulsübertrag ausgeübte Kraft kann man in zwei Beiträge zerlegen, einen Anteil \vec{F}_{grad} in Richtung des Feldintensitätsgradienten und einen Streuanteil \vec{F}_s in Richtung des Laserstrahls:

$$\vec{F} = \vec{F}_{grad} + \vec{F}_s. \quad (2.1)$$

Stabiler Einfang von Partikeln ist nur dann möglich, wenn die Gradientenkraft den überwiegenden Beitrag leistet, d.h. wenn der Quotient aus Gradienten-

ten- und Streukraft größer als 1 wird [Ash86]:

$$\frac{F_{grad}}{F_s} \geq 1. \quad (2.2)$$

Andernfalls werden die Partikel lediglich in Richtung des Laserstrahls beschleunigt, wie dies in Vorläuferexperimenten von Ashkin beobachtet wurde [Ash70].

Es gibt zwei Ansätze zur Berechnung der beteiligten optischen Kräfte, einen wellen- und einen strahlenoptischen, die je nach Größe der gefangenen Objekte verwendet werden können [Ker69, Ash92].

Für Teilchenradien R viel kleiner als die Wellenlänge λ des Laserlichts, d.h. im Regime der Rayleigh-Streuung, kann man das eingefangene Teilchen als einen mit dem Feld wechselwirkenden elektrischen Dipol betrachten. Man erhält dann für die Gradientenkraft den Ausdruck [Har96]

$$\vec{F}_{grad} = -\frac{n_m \alpha}{2} \nabla E^2. \quad (2.3)$$

α ist hier die Polarisierbarkeit des gefangenen Teilchens, für die

$$\alpha = n_m^2 R^3 \left(\frac{n_p^2 - 1}{n_p^2 + 2} \right) \quad (2.4)$$

gilt. Dabei sind n_m und n_p die Brechungsindices für das umgebende Medium bzw. für das Partikel. Die Ursachen der Streukraft \vec{F}_s sind Absorption und Rückstreuung der Photonen am Partikel. Sie wirkt in Richtung des Laserstrahls und ist gegeben durch [Ash86]

$$F_s = I \frac{128\pi^5 n_m R^6}{3c\lambda^4} \left(\frac{n_p^2 - 1}{n_p^2 + 2} \right)^2. \quad (2.5)$$

Für Radien $R \gg \lambda$ lässt sich das Problem in strahlenoptischer Näherung betrachten. Durch die Brechung am Partikel ändert sich die Richtung und damit der Impuls eines Lichtstrahls. Dabei wird die Impulsdifferenz auf das Partikel übertragen. Abb. 2.1 zeigt schematisch, wie die durch den Impulsübertrag resultierenden Kräfte zweier zur optischen Achse symmetrischer Lichtstrahlen

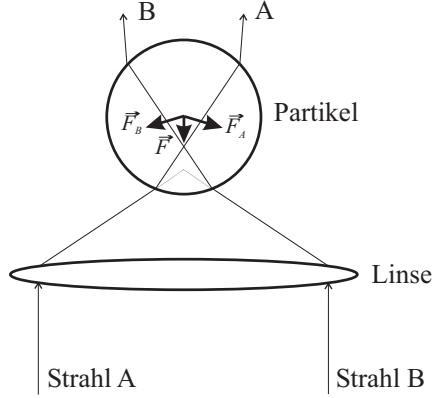


Abbildung 2.1: Verlauf zweier zur optischen Achse symmetrischer Lichtstrahlen A und B. Die aus der Brechung und damit der Impulsänderung der Strahlen resultierenden Kräfte beschleunigen die Kugel zum Linsenfokus hin.

das Teilchen zum Fokus hin beschleunigen. Eine vollständige Diskussion des Problems findet man in [Ash92]. Um die resultierende Gradientenkraft zu erhalten, muss man diese Kräfte für alle Lichtstrahlen bis hin zum maximalen Einfallswinkel aufsummieren. Für den Betrag der zum Fokus hin gerichteten Gradientenkraft gilt

$$F_{grad} = \frac{n_p P}{c} Q_{grad}. \quad (2.6)$$

Dabei ist n_p der Brechungsindex des das Partikel umgebenden Mediums, c die Vakuumlichtgeschwindigkeit und P die auftreffende Laserleistung. Q_{grad} ist ein dimensionsloser Faktor, der vom Teilchenradius R und dem Unterschied der Brechungsindices des Partikels und des umgebenden Mediums abhängt und auch als Fangeffizienz bezeichnet wird. Analog lässt sich für die in Richtung des Laserstrahls wirkende Streukraft schreiben:

$$F_s = \frac{n_p P}{c} Q_s. \quad (2.7)$$

Abb. 2.2 zeigt die Werte für Q_{grad} , in der Abbildung mit Q_g bezeichnet, und Q_s sowie deren Summe Q_t in Abhängigkeit der Fokusposition relativ zum Kugelmittelpunkt auf der optischen Achse. Man sieht, dass die auftretenden Kräfte für Foki nahe der Kugeloberfläche am größten sind. Für Foki in Strahlrichtung vor dem Kugelmittelpunkt wirken \vec{F}_{grad} und \vec{F}_s in unterschiedliche, für Foki hinter dem Kugelmittelpunkt in dieselbe Richtung.

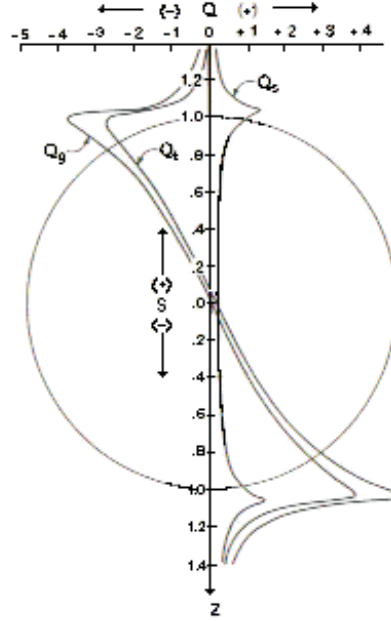


Abbildung 2.2: Werte für Q_g , Q_s sowie Q_t in Abhängigkeit von der Position des Fokus relativ zum Mittelpunkt einer Kugel mit Radius 1, aus [Ash92].

Die strahlenoptische Näherung ist gut anwendbar für Partikelradien $R > 10 \mu\text{m}$. Für Teilchengrößen bis zu maximal einigen 10 nm kann man die Kräfte gut in der Näherung der Rayleigh-Streuung beschreiben. Die in den meisten Anwendungen optischer Pinzetten eingesetzten Partikel haben allerdings Radien im Bereich von $1 \mu\text{m}$. Die theoretische Behandlung von Kugeln dieser Größe ist deutlich komplizierter, weil auf Grund der Ausdehnung des Objekts weitere Feldeffekte berücksichtigt werden müssen [Bar89]. Allerdings ändert sich qualitativ, d.h. im Hinblick auf ihre Art und Richtung, nichts an den auf das Partikel wirkenden Kräften.

2.1.2 Detektionsoptik

Ein Teil des Aufbaus ist ein Ölimmersionsobjektiv mit hoher numerischer Apertur, das teilweise zur Fluoreszenzanregung, vor allem aber zum Fokussieren des Laserstrahls der optischen Pinzette und als Mikroskop zur Detektion verwendet wird. Da die untersuchten Objekte dieselbe Größenordnung wie die Wellenlänge des verwendeten Lichts haben, kann beim Beobachten

des Partikels durch das Objektiv auch das begrenzte Auflösungsvermögen der Abbildung eine Rolle spielen. Man sollte sich deshalb in Erinnerung rufen, bis zu welcher Grenze die beobachteten Objekte überhaupt aufgelöst werden können.

Der Aufbau bietet die Möglichkeit, konfokal abzubilden. Auf das Prinzip dieser Art von optischer Abbildung soll hier ebenfalls eingegangen werden.

Auflösungsvermögen

Für das Auflösungsvermögen einer optischen Abbildung gibt es verschiedene Kriterien. Eines der am häufigsten verwendeten geht auf Rayleigh zurück [Ray96]. Es bezieht sich auf inkohärent beleuchtete bzw. selbstleuchtende Objekte.

Bei einer optischen Abbildung wird eine punktförmige Lichtquelle auf Grund der Beugung an der Apertur der verwendeten Optik auf ein Airy-Muster abgebildet, d.h. am Ort der Apertur gilt für die Intensität I des Beugungsbildes in Abhängigkeit vom Winkel θ mit der optischen Achse [Hec01]

$$I(\theta) = I(0) \left(\frac{2J_1(ka \sin \theta)}{ka \sin \theta} \right)^2. \quad (2.8)$$

Dabei ist J_1 die Besselfunktion erster Ordnung, k die Wellenzahl des verwendeten Lichts und a der Radius der Apertur.

Beim Auflösungskriterium von Rayleigh geht man davon aus, dass zwei punktförmige Lichtquellen genau dann noch getrennt zu sehen sind, wenn das Maximum des Beugungsbildes eines Punktes im ersten Minimum des Beugungsbildes des anderen Punktes liegt (siehe Abb. 2.3). Mit der ersten Nullstelle der Besselfunktion erster Ordnung $J_1(x)$ bei $x = 3,83$ ergibt sich damit für den minimal auflösbaren Abstand d zweier Punkte

$$d = 0,61 \frac{\lambda}{N.A.}. \quad (2.9)$$

Dabei ist $N.A.$ die numerische Apertur des Objektivs, für die mit dem Brechungsindex n im Objektraum und dem halben Öffnungswinkel α des Objektivs gilt

$$N.A. = n \sin \alpha. \quad (2.10)$$

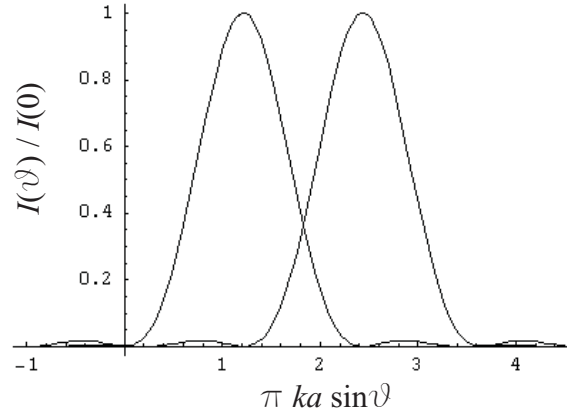


Abbildung 2.3: *Beugungsmuster zweier nach dem Rayleigh-Kriterium gerade noch auflösbarer Punktquellen.*

Konfokale Abbildung

Unter einer konfokalen Abbildung versteht man das von Minsky entwickelte Prinzip einer optischen Abbildung [Min57], das in Abb. 2.4 schematisch dargestellt ist. Im Gegensatz zum herkömmlichen Mikroskop gibt es im Detektionsweg eine Blende, die Licht, das von anderen Punkten als aus dem Fokus des Objektivs stammt, zum größten Teil herausfiltert. Der Vorteil besteht darin, dass so die Abbildung des sich im Fokus befindenden Objekts nicht durch z.B. ein sehr helles Objekt in dessen Nachbarschaft gestört wird. Die konfokale Abbildung wird oft auch benutzt, wenn es darauf ankommt, gut entlang der optischen Achse auflösen zu können. Im hier verwendeten Aufbau bestand der Vorteil der konfokalen Abbildung darin, dass auf diese Weise nur Licht von einem Partikel, der sich im Fokus der optischen Pinzette befindet, detektiert wird.

Von konfokaler Beleuchtung spricht man, wenn wie in Abb. 2.4 mit einer punktförmigen Lichtquelle beleuchtet wird, die auf das beobachtete Objekt im Fokus des Objektivs abgebildet wird.

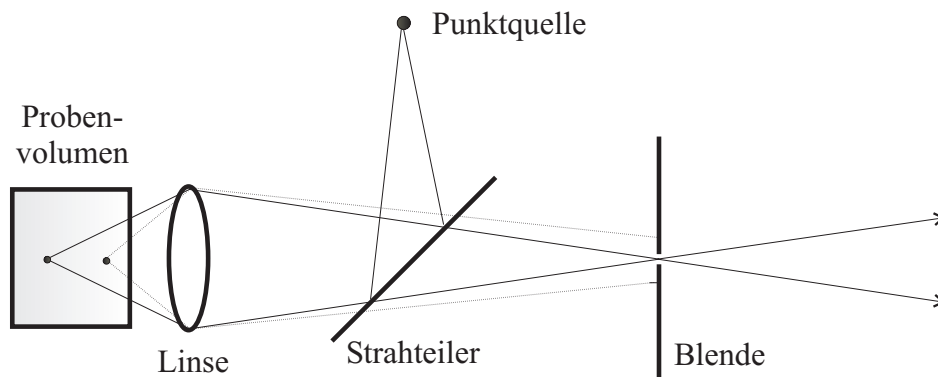


Abbildung 2.4: *Das Prinzip der konfokalen Abbildung.*

2.1.3 Nanopartikel

In den Experimenten wurden unterschiedliche Partikel der Größenordnung von einigen zehn Nanometern bis hin zu einigen Mikrometern verwendet. Für die Anwendungen der optischen Pinzette befanden sich die Partikel in Lösung, in den meisten Fällen in Wasser. Für die Fluoreszenzmessungen wurden sie auch an Luft untersucht.

Hauptsächlich handelte es sich bei den verwendeten Objekten um mit roten Farbstoffmolekülen¹ dotierte Polystyrolkugeln der Firma Molecular Probes mit Durchmessern zwischen 20 nm und 10 μm . Das Absorptionsmaximum befindet sich bei 580 nm, das Emissionsmaximum bei 605 nm. Abb. 2.5 zeigt ein typisches Emissionsspektrum.

Im Prinzip sind mit der optischen Pinzette aber auch andere Mikro- bzw. Nanopartikel manipulierbar. Besonders biologische Partikel, z.B. Zellen, Viren etc., sind dabei interessant. Als ein Beispiel wurden hier auch einige Fluoreszenzmessungen an aus Blattspinat gelösten und mit der optischen Pinzette eingefangenen Mikropartikeln durchgeführt und die typische Emission von Chlorophyll *a* mit dem Intensitätsmaximum bei 669 nm beobachtet. Zur Zielstellung dieser Versuche siehe auch Kapitel 4.

¹Die genauen Bestandteile des Farbstoffs werden von Molecular Probes nicht mitgeteilt.

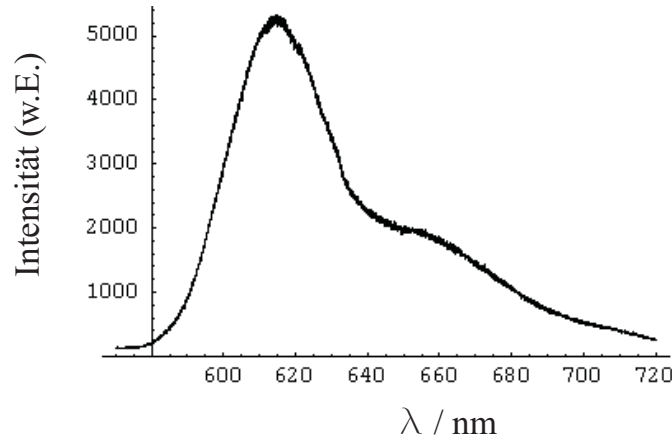


Abbildung 2.5: *Das Fluoreszenzspektrum der dotierten Mikrokugeln.*

2.2 Gesamtaufbau

Abb. 2.6 zeigt den Aufbau des Experiments schematisch. Kernstück ist ein invertiertes Ölimmersionsobjektiv (Nikon) mit einer hohen numerischen Apertur ($N.A. = 1,4$). Das Objektiv ist auf einen Piezohalter montiert und ist so in Richtung der optischen Achse beweglich. Über dem Objektiv befindet sich das Deckglas, auf dem die Probenpartikel, meist gelöst in einem Wassertropfen, aufgebracht werden. Das Deckglas liegt auf einem Halter, der an einem Verschiebetisch angebracht ist, so dass er in alle drei Raumrichtungen bewegt werden kann. Über dem Deckglas befinden sich zur Beleuchtung der Probe eine Weißlichtlampe und eine Halterung für eine Glasfaser, über die Licht von einem Argon-Ionen-Laser zur Anregung der Probe eingestrahlt werden kann. In der Halterung ist am Faserende eine “Gradient-Index”-Linse (GRIN-Linse) angebracht, so dass das Licht kollimiert auf den Probentisch trifft.

Außerdem befindet sich über dem Deckglas ein Spiegel, der zur Untersuchung von Fluoreszenzeigenschaften in der Nähe von Oberflächen benutzt wird (siehe Abschnitt 3.2.4). Er ist an einem in drei Richtungen beweglichen Verschiebetisch befestigt und ist zusätzlich auf einen Piezo geklebt, so dass er entlang der optischen Achse mit einer Genauigkeit von einigen zehn Nanometern verfahren werden kann. Da es sich als sehr schwierig herausstellte, einen ebenen Spiegel bis auf Abstände von unter einem Mikrometer an das Deck-

The diagram illustrates the experimental setup for studying the photonic band structure of photonic crystals. The setup includes the following components and their connections:

- Laser Sources:**
 - Pump-Laser** and **Ti:Sa-Laser** are connected to a **Dichroitischer Spiegel (umklappbar)**.
 - Ar-Ionen-Laser** is connected to **Strahlteiler 2**.
- Beam Path and Control:**
 - Strahlteiler 2** directs light from the Ar-Ionen-Laser to **Faser 2** and the **Dichroitischer Spiegel**.
 - The **Dichroitischer Spiegel** directs light from the Pump-Laser and Ti:Sa-Laser to **Strahlteiler 1**.
 - Strahlteiler 1** directs light to a **Strahlaufweitung** (beam expander) and **Faser 1**.
 - Faser 1** is connected to a **Faserhalter mit GRIN-Linse**.
- Sample and Detection:**
 - The **Faserhalter mit GRIN-Linse** is connected to a **z-Piezo-objektivhalter**.
 - The **z-Piezo-objektivhalter** holds an **Objektiv** (objective) focused on a **Deckglas mit Probe auf x-y-z Verschiebetisch** (sample on an x-y-z stage).
 - The **Deckglas mit Probe** is mounted on an **x-y-z Verschiebetisch**, which is controlled by **x-y-Motoren**.
 - Light from the sample is collected by the objective and passes through **Blende 1** (aperture) and **Blende 2** (aperture) to a **Klappspiegel** (flip mirror).
 - The **Klappspiegel** directs light to a **Spektrometer** and a **CCD-Kamera**.
- Additional Components:**
 - A **Taschenlampe** (flashlight) is used for illumination.
 - A **Spiegel** (mirror) is used to direct light from the fiber holder to the sample.
 - Strahlsteuerung** (beam steering) is indicated for the light path between the objective and the sample.

15

Das Licht der Wellenlänge 790 nm für die optische Pinzette stammt aus einem Dauerstrich-Titan-Saphir-Ringlaser (Coherent). Um ein gutes Strahlprofil zu gewährleisten, wird es über eine Single-Mode-Faser in den Aufbau eingekoppelt. Über ein Teleskop wird der Laserstrahl aufgeweitet. Danach passiert er ein weiteres Teleskop, das aus zwei gleichen Linsen besteht, also keine weitere Änderung des Strahldurchmessers bewirkt. Eine der Linsen kann aber über zwei durch Schrittmotoren angetriebene Mikrometerschrauben in der Ebene senkrecht zur Strahlrichtung bewegt werden. Der Laserstrahl wird vom Objektiv auf die sich auf dem Deckglas befindende Probe fokussiert. Durch Verfahren der Linse lässt sich dann der Fokus und damit gegebenenfalls auch ein im Fokus gefangener Partikel verschieben.

Nach Hereinklappen des dichroitischen Spiegels kann auf demselben Weg wie das Licht des Titan-Saphir-Lasers auch Licht von einem Argon-Ionen-Laser (Spectra Physics) der Wellenlängen 514 nm oder 488 nm auf den Proben-tisch gelenkt werden. Dadurch wird eine weitere Möglichkeit zur Anregung der Fluoreszenz der Mikrokugeln realisiert.

Die Detektion erfolgt ebenfalls durch das Ölimmersionsobjektiv. Das detektierte Licht passiert beide Linsen zur Strahlsteuerung auf umgekehrtem Weg. Wird Blende 1 zwischen diesen beiden Linsen ausreichend verengt, bildet man konfokal ab.

Hinter Strahlteiler 1 passiert das zu detektierende Licht Blende 2 und mehrere Filter, die dazu dienen, das Anregungslicht herauszufiltern. Schließlich kann das Fluoreszenzlicht mit einer CCD-Kamera (Hamamatsu) oder nach Herausklappen des Klappspiegels mit einem Spektrometer (Acton Research) analysiert werden.

Kapitel 3

Experimente und Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die durchgeführten Experimente beschrieben und theoretische Ergebnisse sowie Messergebnisse dargestellt, und es wird ein Ausblick auf weiterführende Versuche am verwendeten experimentellen Aufbau gegeben. Abschnitt 3.1 beschäftigt sich mit den Möglichkeiten, die die optische Pinzette zur Manipulation von Mikropartikeln bietet, und mit der Frage, wie genau die optische Falle die Position der Partikel festlegt. In Abschnitt 3.2 werden die Effekte, die bei Fluoreszenz in der Nähe von Oberflächen auftreten können, theoretisch behandelt, erwartete Intensitätsänderungen für den hier verwendeten Aufbau berechnet und die Messergebnisse für die Modifikation der Emission dargestellt. Abschnitt 3.3 enthält einen Ausblick darauf, wie man im vorhandenen Aufbau die optische Pinzette zur Positionierung der untersuchten Partikel in den Fluoreszenzuntersuchungen verwenden kann.

3.1 Einfang und Manipulation von Partikeln

3.1.1 Einfang und gezielte Anordnung der Mikrokugeln

Mit der optischen Pinzette war es möglich, Kugeln von 20 nm bis zu 10 μm Durchmesser zu fangen. Wie erwartet [Wri93] waren dabei die Fangkräfte für die Kugeln von einigen Mikrometern Durchmesser größer als für die nur einige zehn Nanometer großen. Außerdem ist die Fangeffizienz umso höher, je näher am Deckglas man sich befindet. Dies ist auf die sphärische Aber-

ration des Objektivs zurückzuführen [Fel95]. Einen erheblichen Einfluss auf die Güte der Pinzette hat die Justage des Aufbaus. Bei Dejustierungen, insbesondere im Linsensystem, geht die Fangeffizienz erheblich zurück bzw. ist überhaupt kein stabiles Fangen der Kugeln mehr möglich. Entscheidendes Kriterium hierfür ist die Größe des Fokus. Außerdem bewirken auch Bauteile, die das Modenprofil verschlechtern, einen schwächeren Einfang. So führte der Einbau eines dichroitischen Spiegels an Stelle des Strahlteilers 1 (siehe Abb. 2.6) zu einem sehr schlechten Strahlprofil und zu schwächeren Fangeffizienzen als mit dem Strahlteiler.

Mit der optischen Pinzette können Partikel nicht nur gefangen, sondern auch gezielt auf einem Substrat angeordnet werden. Das war ein Ziel der Experimente. Problematisch hierbei ist, dass sich die Kugeln, damit man sie einfangen kann, in Lösung befinden; die Adhäsionskräfte zwischen den Partikeln und dem Deckglas reichen dann aber in der Regel nicht aus, um ein Ablösen nach dem Ablegen auf dem Deckglas zu verhindern. Deshalb bewegen sich die Partikel meist auf Grund von Strömungen im Lösungsmittel und ihrer eigenen Brownschen Bewegung von ihrem Bestimmungsort weg. Dies geschieht vor allem gegen Ende des Verdunstungsvorgangs, wenn es wegen der Oberflächenkräfte in der Flüssigkeit zu starken Strömungen kommt. Während Versuche mit anderen Lösungsmitteln als Wasser, wie Methanol und Ethanol, die geringere Oberflächenkräfte besitzen, nicht erfolgreich waren, gelang es, die Anziehungskräfte zwischen den Kugeln und zwischen Kugeln und Deckglas zu verstärken. Dies geschah, wie in [Xu01] beschrieben, durch das Zugabe von NaCl in Konzentrationen zwischen 0,5 mol/l und 1 mol/l. Abb. 3.1 zeigt Anordnungen von Kugeln mit 1 μm Durchmesser.

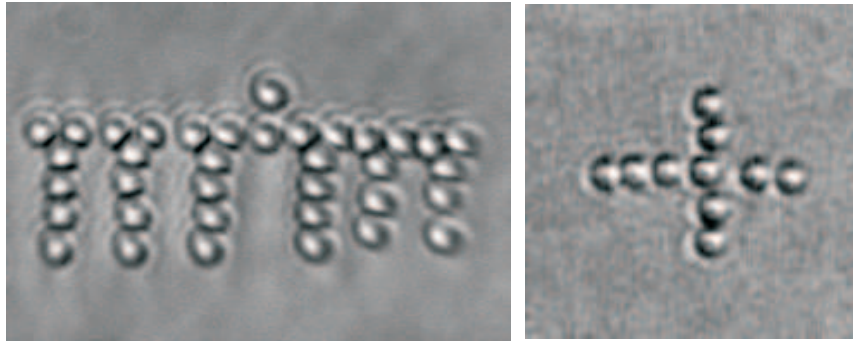


Abbildung 3.1: *Anordnungen aus Kugeln von 1 μm Durchmesser.*

3.1.2 Fallenpotential und Brownsche Bewegung

Eine wichtige Frage ist nun, wie genau die Position der gefangenen Partikel durch die optische Falle festgelegt wird. Nimmt man an, dass sich das Potential der optischen Falle in der Umgebung um das Minimum parabolisch nähern lässt, so gilt nach dem Gleichverteilungssatz für Verschiebungen x des Teilchens aus dem Potentialzentrum bei $x = 0$

$$\frac{1}{2}k_x\langle x^2 \rangle = \frac{1}{2}k_B T. \quad (3.1)$$

Dabei ist k_x die “Federkonstante” für die rückstellende Kraft, $\langle \dots \rangle$ bezeichnet das zeitliche Mittel, k_B die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur. Im Fall eines parabolischen Potentials ist die Boltzmannverteilung für die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsverteilung eine Gaußverteilung:

$$\rho(x) \propto e^{-U(x)/k_B T} = e^{-k_x x^2/2k_B T} = e^{-x^2/2\sigma^2}. \quad (3.2)$$

Wegen $\langle x \rangle = 0$ gilt hier $\sigma^2 = \langle x^2 \rangle$. Für die Breite der Gaußverteilung ergibt sich also

$$2\sigma = 2\sqrt{\frac{k_B T}{k_x}}. \quad (3.3)$$

Man erwartet einen linearen Zusammenhang zwischen der Federkonstanten k_x und der Laserleistung P [Bec02, Joy05]. Damit ist

$$\sigma^2 \propto \frac{1}{P}. \quad (3.4)$$

Für verschiedene Laserleistungen wurde das Bild einer eingefangenen Kugel von 500 nm Durchmesser aufgezeichnet. Will man erreichen, dass dieses Bild wirklich eine Mittelung über die Ortsfluktuationen des Teilchens darstellt, muss man lange genug belichten, um von Korrelationen in der Position der Partikel unabhängig zu sein. Wie aus der statistischen Physik bekannt (z.B. [Rei85]) berechnet sich die Autokorrelationsfunktion der Teilchenposition in diesem Fall zu

$$\langle x(t)x(t+\tau) \rangle = \frac{k_B T}{k_x} e^{-|\tau|/\tau_0}, \quad (3.5)$$

wobei sich für die Autokorrelationszeit $\tau_0 = \gamma/k_x$ ergibt. Dabei ist γ der Stokes’sche Reibungskoeffizient. Für eine Kugel von 1 μm Durchmesser in

Wasser mit Brechungsindex $n = 1,33$ und Viskosität $\eta \approx 10^{-3} \text{ kg m}^{-1}\text{s}^{-1}$ und mit typischen Werten für die Laserleistung ($P \approx 10 \text{ mW}$) ergeben sich Korrelationszeiten von $\tau_0 = 1 \dots 3 \text{ ms}$ [Bec02]. Im Versuch wurde über 500 ms belichtet.

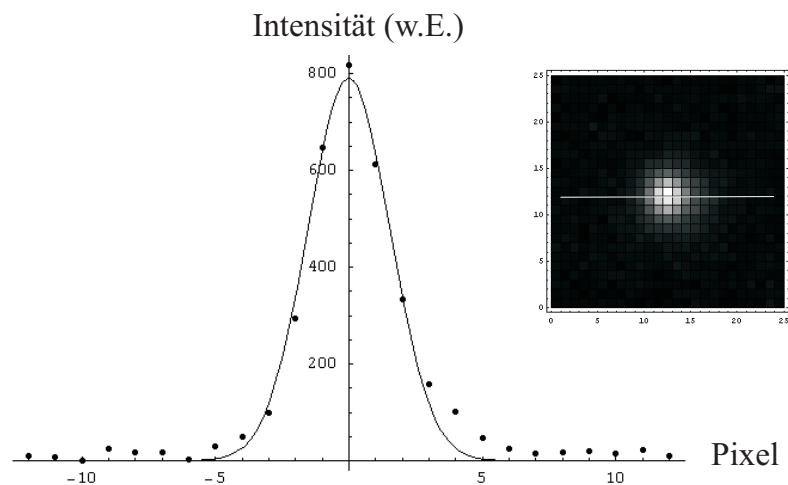


Abbildung 3.2: *Querschnitt durch eines der von der Kamera aufgezeichneten Intensitätsprofile mit angepasstem Gaußprofil.*

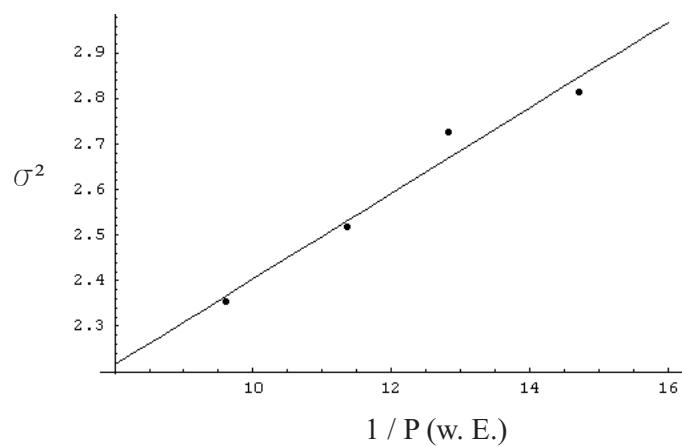


Abbildung 3.3: *Ortsvarianz in Abhängigkeit von $1/P$.*

Abb. 3.2 zeigt den Querschnitt durch eines der von der Kamera aufgezeichneten Intensitätsprofile. Daraus wird durch Anpassen einer Gaußfunktion σ ermittelt. Das Abweichen der Messpunkte von der Gaußkurve an den Rändern ist auf die parabolische Näherung des Fallenpotentials zurückzuführen. Abb. 3.3 zeigt σ^2 in Abhängigkeit von $1/P$ für verschiedene Laserleistungen und bestätigt den linearen Zusammenhang.

Die Brownsche Bewegung der Partikel spielt eine Rolle, wenn man diese mit einer optischen Pinzette genau positionieren will, etwa wie es für optische Anwendungen interessant ist, genauer als die verwendeten Wellenlängen. Man muss dann gewährleisten, dass die Bewegung, die das Partikel im Fallenpotential ausführt, hinreichend klein ist.

3.2 Fluoreszenzuntersuchungen

3.2.1 Änderung der spontanen Emission in der Nähe von Oberflächen

Die spontane Emission eines optisch aktiven Partikels ändert sich in der Nähe von Oberflächen. Einen guten Überblick über die beobachteten Phänomene findet man in [Bar98]. Die Wahrscheinlichkeit für spontane Emission eines Photons durch Übergang des Emitters von einem angeregten Zustand in den Grundzustand berechnet sich aus dem Produkt der Besetzungswahrscheinlichkeit für das angeregte Niveau und der Übergangsrate. Die Rate ist gegeben durch Fermis Goldene Regel [Fer32]:

$$\Gamma_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{if}|^2 \rho(\nu_{if}). \quad (3.6)$$

Dabei ist $M_{if} = \langle f|V|i \rangle$ das Übergangsmatrixelement zwischen Anfangszustand $|i \rangle$ und Endzustand $|f \rangle$. $\rho(\nu_{if})$ ist die Modendichte des elektromagnetischen Feldes bei der Übergangsfrequenz ν_{if} . Das bedeutet, dass sich die Emissionsrate verändern lässt, indem man die Modendichte in der Umgebung des Emitters verändert. Ein wichtiges Beispiel hierfür ist die verstärkte Emission eines sich in einer Kavität befindenden Emitters in die Moden der Kavität, der sog. Purcell-Effekt [Pur46].

In [Mil94] findet man Gleichung (3.6) für die spontane Emissionsrate beim Übergang von Zustand $|i\rangle$ nach Zustand $|f\rangle$ mit der zugehörigen Kreisfrequenz ω_0 in der Form

$$\Gamma_{if}(\vec{r}) = \frac{2\pi^2\omega_0^2}{\hbar} \sum_{\alpha} \frac{1}{\omega_{\alpha}} |\vec{A}_{\alpha}(\vec{r})\vec{d}_{if}|^2 \delta(\omega_{\alpha} - \omega_0). \quad (3.7)$$

Dabei ist die Summe über α die Summe über alle Moden, \vec{A}_{α} das Vektorpotential des zur Mode α gehörenden elektromagnetischen Feldes und \vec{d}_{if} das Übergangsdipolmoment.

Setzt man für den Fall eines ebenen Spiegels bei $\vec{r} = 0$ senkrecht zur z -Achse in (3.7) das entsprechende Vektorpotential \vec{A} ein [Mil94], so erhält man für die Übergangsrate

$$\begin{aligned} \Gamma_{if}(\vec{r}) &= \frac{4\pi^2\omega_0^2}{\hbar} \frac{2}{V} \sum_{\vec{k}} \frac{1}{\omega_k} \left(|(\hat{k}_{\parallel} \times \hat{z}) \cdot \vec{d}_{\parallel}|^2 \sin^2 k_z z + \frac{k_{\parallel}^2}{k^2} |\vec{d}_{\perp}|^2 \cos^2 k_z z \right. \\ &\quad \left. + \frac{k_z^2}{k^2} |\hat{k}_{\parallel} \cdot \vec{d}_{\parallel}|^2 \sin^2 k_z z \right) \delta(\omega_k - \omega_0). \end{aligned} \quad (3.8)$$

Dabei bezeichnet \hat{v} den Einheitsvektor in Richtung \vec{v} , und \vec{d}_{\parallel} bzw. \vec{d}_{\perp} die Anteile des Dipolmoments \vec{d}_{if} parallel bzw. senkrecht zum Spiegel.

Um die Übergangsraten zu berechnen, betrachtet man die Anteile für \vec{d}_{\perp} und \vec{d}_{\parallel} getrennt und geht von der Summe $\sum_{\vec{k}}$ zum Integral $V/(8\pi^3) \int_{-\infty}^{\infty} d^3k$ über. Man erhält dann für den Anteil der Rate Γ_{if} aus \vec{d}_{\perp}

$$\Gamma_{if}^{\perp}(z) = \frac{4\pi^2\omega_0^2}{\hbar} \frac{2}{V} \frac{c}{\omega_0^3} |\vec{d}_{\perp}|^2 \frac{V}{8\pi^3} \int_{-\infty}^{\infty} dk_z \int_{-\infty}^{\infty} d^2k_{\parallel} k_{\parallel}^2 \cos^2 k_z z \cdot \delta(\sqrt{k_{\parallel}^2 + k_z^2} - k_0). \quad (3.9)$$

Nach Übergang zu Zylinderkoordinaten und Umformung der δ -Funktion gemäß der Formel

$$\delta(f(x)) = \sum_i \frac{\delta(x - x_i)}{f'(x_i)}, \quad (3.10)$$

bei der über alle Nullstellen x_i von $f(x)$ summiert wird, erhält man für $\Gamma_{if}^\perp(z)$ und durch analoge Rechnung auch für $\Gamma_{if}^\parallel(z)$

$$\Gamma_{if}^\perp(z) = \Gamma_{if}^0 \frac{3}{2k_0^3} \int_{-k_0}^{k_0} dk_z (k_0^2 - k_z^2) \cos^2 k_z z, \quad (3.11)$$

$$\Gamma_{if}^\parallel(z) = \Gamma_{if}^0 \frac{3}{4k_0^3} \int_{-k_0}^{k_0} dk_z (k_0^2 + k_z^2) \sin^2 k_z z. \quad (3.12)$$

$\Gamma_{if}^0 = (4d_{if}^2 k_0^3)/(3\hbar)$ ist hierbei die Emissionsrate im freien Raum, die dem Einstein-A-Koeffizienten entspricht.

Gesamtraten und Lebensdauer

Führt man die Integration in (3.11) und (3.12) aus, so erhält man für die Gesamtraten integriert über alle Emissionsrichtungen

$$\Gamma_{if}^\perp(z) = 3\Gamma_{if}^0 \left(\frac{1}{3} - \frac{\cos 2k_0 z}{(2k_0 z)^2} + \frac{\sin 2k_0 z}{(2k_0 z)^3} \right) \quad (3.13)$$

$$\Gamma_{if}^\parallel(z) = \frac{3}{2}\Gamma_{if}^0 \left(\frac{2}{3} - \frac{\sin 2k_0 z}{2k_0 z} - \frac{\cos 2k_0 z}{(2k_0 z)^2} + \frac{\sin 2k_0 z}{(2k_0 z)^3} \right). \quad (3.14)$$

Mittelt man die Übergangsrate für den Fall, dass alle Orientierungen des Dipols gleich wahrscheinlich sind, so erhält man

$$\begin{aligned} \Gamma_{if}(z) &= \frac{1}{3}\Gamma_{if}^\perp(z) + \frac{2}{3}\Gamma_{if}^\parallel(z) \\ &= \Gamma_{if}^0 \left(1 - \frac{\sin 2k_0 z}{2k_0 z} - \frac{2 \cos 2k_0 z}{(2k_0 z)^2} + \frac{2 \sin 2k_0 z}{(2k_0 z)^3} \right). \end{aligned} \quad (3.15)$$

Abb. 3.4 zeigt den Verlauf von Γ_{if}^\perp , Γ_{if}^\parallel und Γ_{if} in Abhängigkeit vom Abstand z zum Spiegel für die Emissionswellenlänge $\lambda = 605$ nm.

Die Lebensdauer τ eines angeregten Zustands ist der Kehrwert der Summe aller Raten, der strahlenden Raten Γ und der nichtstrahlenden Raten Γ_{ns} :

$$\tau(z) = \frac{1}{\Gamma(z) + \Gamma_{ns}(z)}. \quad (3.16)$$

Erste Messungen des Einflusses eines Spiegels auf die Lebensdauer angeregter Zustände stammen von Drexhage und anderen [Dre70]. Abb. 3.5 zeigt eine

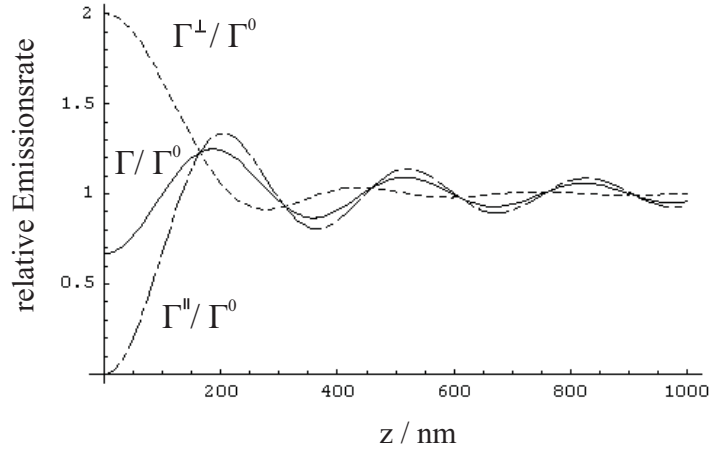


Abbildung 3.4: *Emissionsraten in Abhängigkeit vom Abstand z zum Spiegel.*

neuere Messung der Lebensdauer von Eu^{3+} -Ionen in der Nähe eines Silberspiegels [Amo97]. Man sieht deutlich die erwarteten Oszillationen in der Lebensdauer, die umso schwächer werden, je weiter weg vom Spiegel die Ionen sich befinden. Bei Entfernungen der Ionen zum Spiegel kleiner als 30 nm geht die Lebensdauer sehr schnell gegen Null. Dieser Effekt wird im Gegensatz zu den Oszillationen nicht von (3.4) beschrieben. Der Grund dafür ist, dass die Überlegungen, die zum Ausdruck (3.15) für $\Gamma_{if}(z)$ führen, sich nur auf Änderungen der strahlenden Rate beziehen und keine nichtstrahlenden Übergänge berücksichtigen. In diesem Experiment koppelt bei so kleinen Entfernungen das Dipolfeld des Emitters an Oberflächenplasmonen im Spiegel, d.h. es werden die nichtstrahlende Übergänge verstärkt und so nach (3.16) die Lebensdauer verkleinert.

Emissionscharakteristik

Für die Berechnung der Rate in bestimmte Richtungen muss man die Integrationsgrenzen in (3.11) und (3.12) so wählen, dass man nur über Vektoren \vec{k} integriert, die zur Abstrahlung in den betrachteten Raumwinkel beitragen. Bezeichnet man die Winkel zur z -Achse, d.h. zur Spiegelsenkrechten, mit θ_1 und θ_2 (wobei $\theta_1 < \theta_2$ sein soll), so gilt für die Raten der Emission in den

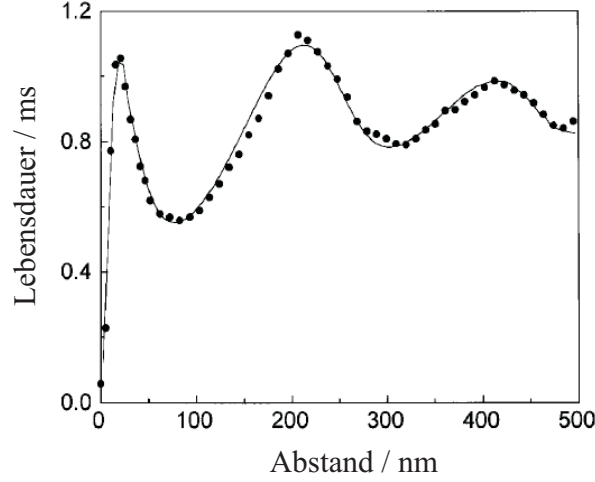


Abbildung 3.5: Lebensdauer von Eu^{3+} -Ionen in Abhängigkeit vom Abstand z der Ionen zum Silberspiegel, aus [Amo97].

Bereich zwischen θ_1 und θ_2

$$\begin{aligned} \Gamma_{if}^{\perp}(z, \theta_1, \theta_2) &= \Gamma_{if}^{0, \theta_1, \theta_2} \frac{3}{2k_0^3} \left(\int_{-k_0 \cos \theta_1}^{-k_0 \cos \theta_2} dk_z (k_0^2 - k_z^2) \cos^2 k_z z \right. \\ &\quad \left. + \int_{k_0 \cos \theta_2}^{k_0 \cos \theta_1} dk_z (k_0^2 - k_z^2) \cos^2 k_z z \right), \end{aligned} \quad (3.17)$$

$$\begin{aligned} \Gamma_{if}^{\parallel}(z, \theta_1, \theta_2) &= \Gamma_{if}^{0, \theta_1, \theta_2} \frac{3}{4k_0^3} \left(\int_{-k_0 \cos \theta_1}^{-k_0 \cos \theta_2} dk_z (k_0^2 + k_z^2) \sin^2 k_z z \right. \\ &\quad \left. + \int_{k_0 \cos \theta_2}^{k_0 \cos \theta_1} dk_z (k_0^2 + k_z^2) \sin^2 k_z z \right). \end{aligned} \quad (3.18)$$

Dabei ist $\Gamma_{if}^{0, \theta_1, \theta_2} = \Gamma_{if}^0 / (\cos \theta_1 - \cos \theta_2)$ die Emissionsrate in den betrachteten Raumwinkelbereich in Abwesenheit des Spiegels.

Die Mittelung für beliebig orientierte Dipole erfolgt wie in (3.15) als

$$\Gamma_{if}(z, \theta_1, \theta_2) = \frac{1}{3} \Gamma_{if}^{\perp}(z, \theta_1, \theta_2) + \frac{2}{3} \Gamma_{if}^{\parallel}(z, \theta_1, \theta_2). \quad (3.19)$$

Für kleine $d\theta = \theta_2 - \theta_1$ erhält man die winkelabhängige Emissionsrate

$$\Gamma_{if}(z, \theta) = \Gamma_{if}(z, \theta - \frac{d\theta}{2}, \theta + \frac{d\theta}{2}). \quad (3.20)$$

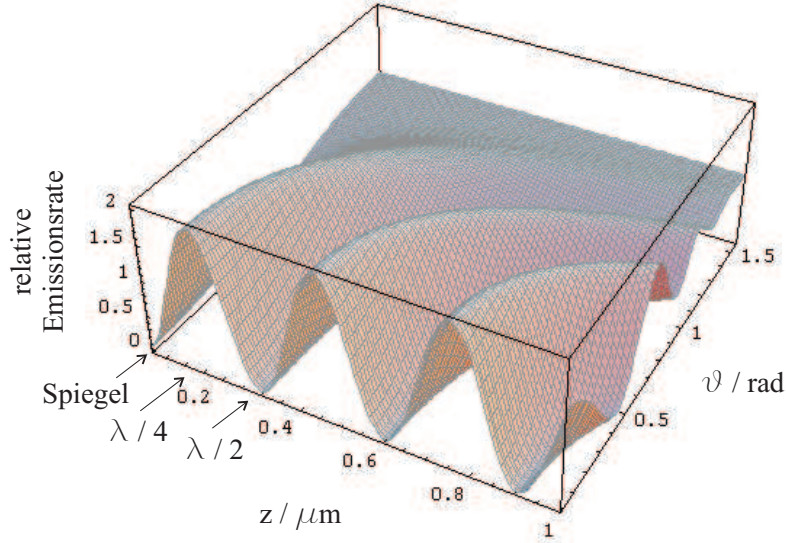


Abbildung 3.6: Die winkelabhängige relative Emissionsrate $\Gamma_{if}(z, \theta)/\Gamma_{if}^{0, \theta}$ für einen Emittor bei der Wellenlänge $\lambda = 605 \text{ nm}$ in Abhängigkeit vom Abstand z des Emittors zum Spiegel.

Abb. 3.6 zeigt die Emissionsrate $\Gamma_{if}(z, \theta)$ für einen Emittor bei $\lambda = 605 \text{ nm}$ in Abhängigkeit von Abstand z zum Spiegel und vom Mittelpunkt θ des Winkelbereichs $[\theta - d\theta/2, \theta + d\theta/2]$, in den emittiert wird. Dabei wurde $d\theta = 1^\circ$ gewählt.

In Abb. 3.7 sieht man $\Gamma_{if}(z, \theta)$ für verschiedene feste Abstände z zum Spiegel in Abhängigkeit von θ in Polarkoordinaten. Der Einheitskreis stellt hier die Emissionsrate in Abwesenheit des Spiegels dar. Die Raten senkrecht zum Spiegel werden je nach Position auf der z -Achse um bis zu das Doppelte verstärkt bzw. bis auf Null abgeschwächt. Die Raten in Richtung parallel zum Spiegel ändern sich hingegen nicht. Für Abstände z des Emittors zum Spiegel größer als die Kohärenzlänge der emittierten Strahlung erwartet man jedoch keine Änderung der Emissionsraten dieser Art mehr, sondern nur noch die Verdoppelung aller Anteile von Γ_{if}^0 parallel zur z -Achse durch die Reflexion des in Richtung $-z$ emittierten Lichts am Spiegel.

Um zu berechnen, wie groß die Änderung der in einen bestimmten Raumwinkel emittierten Intensität ist, muss man die nach (3.17) - (3.19) berechnete

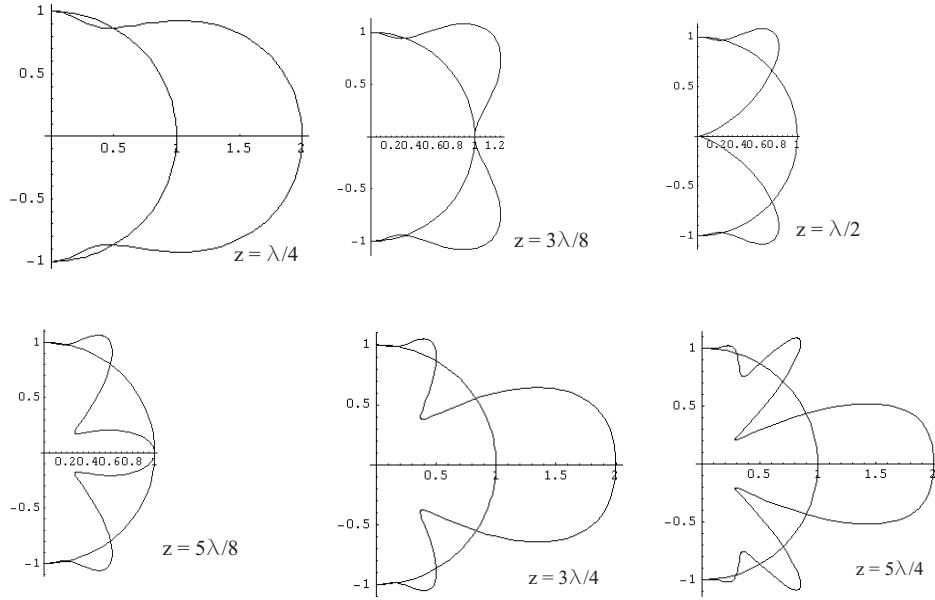


Abbildung 3.7: Darstellung von $\Gamma_{if}(z, \theta)/\Gamma_{if}^{0, \theta}$ für verschiedene Abstände z des Emitters zum Spiegel in Polarkoordinaten. Der Einheitskreis stellt die Emissionscharakteristik ohne Spiegel dar.

Emissionsrate mit der Besetzungswahrscheinlichkeit für das angeregte Niveau multiplizieren. Die Besetzungswahrscheinlichkeit hängt von der Anregungsrate und der Quanteneffizienz für die Emission und ändert sich damit auch in Anwesenheit eines Spiegels (siehe dazu Abschnitt 3.2.3).

3.2.2 Effekte durch Interferenzen des Anregungslichts

Abb. 3.8 zeigt die Anordnung im Experiment schematisch. Die Mikrokugel hat einen Durchmesser von 190 nm und liegt fest im Fokus des Objektivs. Die Fluoreszenzanregung erfolgt durch das Objektiv mit Licht der Wellenlänge 514 nm. Der Spiegel, der wie schon in Abschnitt 2.2 beschrieben kugelförmig ist, kann hier auf Grund des Radiusunterschiedes zwischen Spiegel und Mikrokugel von etwa drei Größenordnungen als eben angenommen werden. Der Abstand zwischen Spiegel und Kugel wird verändert, indem man den Spiegel mit Hilfe eines Piezos entlang der optischen Achse verfährt.

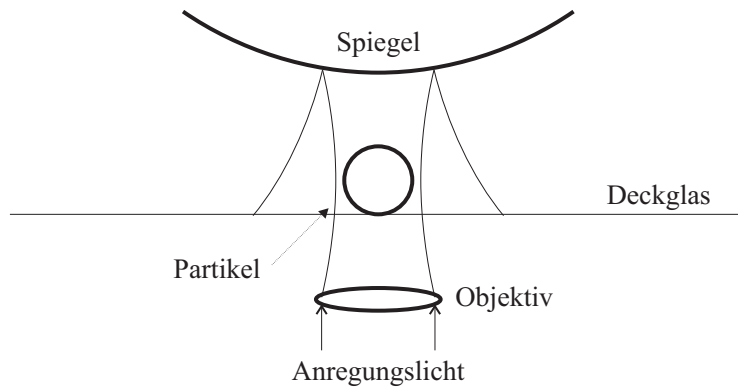


Abbildung 3.8: *Spiegel, Mikrokugel, Objektiv und Anregungslicht.*

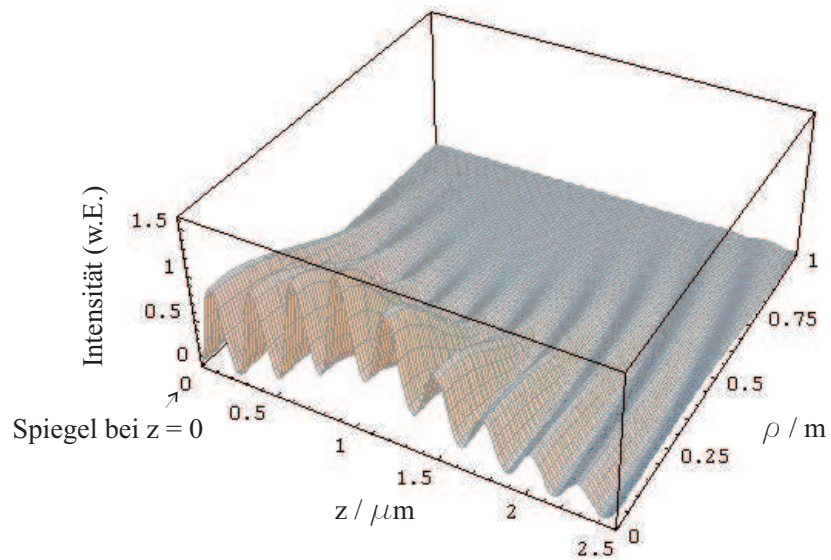


Abbildung 3.9: *Die Intensitätsverteilung eines Gaußbündels der Wellenlänge $\lambda = 514 \text{ nm}$, das an einem ebenen Spiegel bei $z = 0$ reflektiert wird. Die Position der Strahltaile liegt $1 \mu\text{m}$ vor dem Spiegel. $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ bezeichnet den Abstand von der optischen Achse.*

In dieser Anordnung erzeugt das Anregungslicht vor dem Spiegel eine stehende Welle. Untersucht man das von der Kugel emittierte Fluoreszenzlicht, so erwartet man also nicht nur eine Intensitätsänderung in Abhängigkeit vom Abstand der Kugel zum Spiegel auf Grund der in Abschnitt 3.2.1 beschriebenen Effekte, sondern auch wegen der unterschiedlichen Anregungsintensität, je nachdem, ob sich die Kugel in einem Knoten oder in einem Bauch der stehenden Welle des Anregungslichts befindet. Abb. 3.9 zeigt die Intensitätsverteilung eines an einem perfekten ebenen Spiegel bei $z = 0$ reflektierten Gaußbündels mit Strahltaile $w_0 = 250$ nm 1 μ m vor dem Spiegel und einer Wellenlänge von $\lambda = 514$ nm.

Um zu ermitteln, wie groß die Intensitätsänderungen im Fluoreszenzlicht wegen der unterschiedlichen Anregungsintensität je nach Lage der Kugel im Interferenzmuster des Anregungslichts ist, muss man die Intensität des Anregungslichts über das Kugelvolumen integrieren. Im Experiment ist der Spiegel entlang der optischen Achse beweglich, während die Kugel auf dem Deckglas fest im Fokus des Objektivs liegt (vgl. Abb. 3.8). Das bedeutet, dass die Intensitätsverteilung des Anregungslichts für jede Kugelposition z neu berechnet werden muss, da sich der Abstand der Strahltaile zum Spiegel mit dem Abstand der Kugel zum Spiegel ändert.

Abb. 3.10 zeigt die über das Kugelvolumen integrierte Intensität für verschiedene Größen w_0 der Strahltaile des Gaußbündels in Abhängigkeit vom Abstand z des Kugelmittelpunktes zum Spiegel. Die Rechnung wurde für einen Kugeldurchmesser von $d = 190$ nm und Kugelmittelpunkte auf der optischen Achse, d.h. bei $\rho = 0$, durchgeführt.

Dieselben Rechnungen wurden auch für verschiedene Kugeldurchmesser d bei einer festen Fokusgröße von $w_0 = 250$ nm durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.11 dargestellt. Bei einem Kugeldurchmesser von 500 nm erreicht man nur noch einen Kontrast von unter 10%. Für die Kugel mit Durchmesser 190 nm liegt der Kontrast dagegen schon bei etwa 50%. Verwendet man Kugeln mit 20 nm Durchmesser, so wird zwar der Kontrast noch um einige 10 Prozentpunkte besser, allerdings wird die insgesamt emittierte Leistung mit der Zahl der Farbstoffmoleküle, also mit dem Volumen der Kugel, kleiner. Dieser Effekt ist in Abb. 3.11 nicht zu sehen, da dort jeweils auf die mittlere Intensität normiert ist. Im Experiment wurden als Kompromiss aus gutem Kontrast und gut detektierbarer Intensität die 190 nm-Kugeln verwendet.

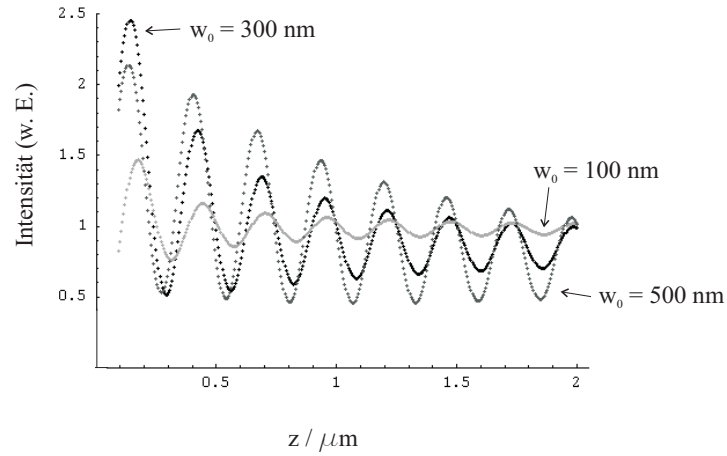


Abbildung 3.10: Über das Kugelvolumen integrierte Intensität des Anregungslichts in Abhängigkeit vom Abstand z des Kugelmittelpunkts vom Spiegel für verschiedene Strahltaillen w_0 für einen Kugeldurchmesser von $d = 190 \text{ nm}$.

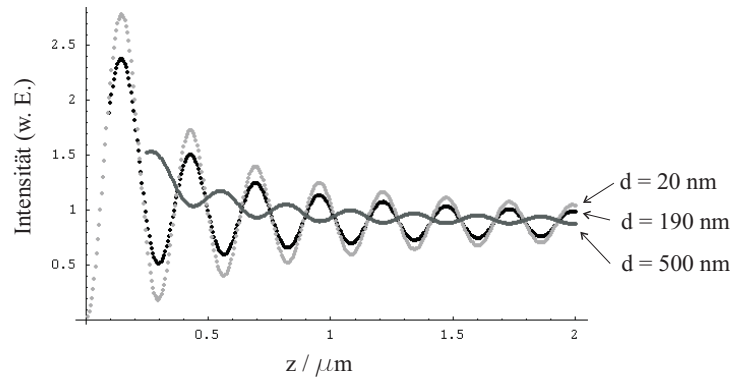


Abbildung 3.11: Über das Kugelvolumen integrierte Intensität des Anregungslichts in Abhängigkeit vom Abstand z des Kugelmittelpunkts vom Spiegel für verschiedene Kugeldurchmesser d für eine Strahltaille von $w_0 = 250 \text{ nm}$.

3.2.3 Überlagerung von Interferenzeffekten des Anregungslichts und der Änderung der spontanen Emission

Es soll nun betrachtet werden, wie sich in der oben beschriebenen Versuchsanordnung (siehe Abb. 3.8) die Effekte durch Interferenzen des Anregungslichts und die Änderung der spontanen Emission überlagern. Für die relativen Änderungen der in den Raumbereich bis zu einem Winkel θ mit der optischen Achse emittierten Intensität $E_S(z, \theta)$ gilt:

$$\frac{E_S(z, \theta)}{E_0(\theta)} = \frac{\Gamma_S(z, \theta)}{\Gamma_0(\theta)} \cdot \frac{q_S(z)}{q_0} \cdot \frac{A_S(z)}{A_0}. \quad (3.21)$$

Dabei bezeichnet der Index 0 Größen in Abwesenheit eines Spiegels und der Index S Größen mit Spiegel im Abstand z zum Emitter, A ist die Anregungsintensität und q die Quanteneffizienz. $\Gamma_S(z, \theta)$ bezeichnet hier im Gegensatz zu $\Gamma_{if}(z, \theta)$ in Abschnitt 3.2.1 nicht die Emissionsrate in Richtung $\theta \pm d\theta$, sondern die Rate in den Raumbereich, der vom Kegel, der mit der z -Achse einen Winkel von θ bildet, eingeschlossen wird (siehe Abb. 3.12). Ebenso bezeichnen $E_S(z, \theta)$, $E_0(\theta)$ und $\Gamma_0(\theta)$ Intensitäten bzw. Raten in diesen Raumbereich.

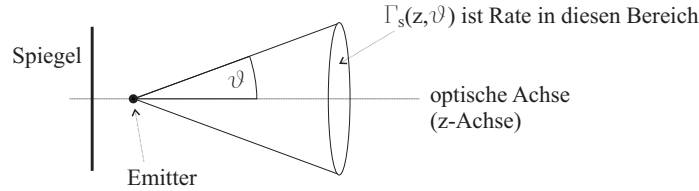


Abbildung 3.12: Zur Definition von $\Gamma_S(z, \theta)$.

Die Quanteneffizienz ist definiert als Quotient der strahlenden Rate Γ durch die Summe aller Raten, der strahlenden Rate Γ und der nichtstrahlenden Rate Γ^{ns} :

$$q = \frac{\Gamma}{\Gamma + \Gamma^{ns}}. \quad (3.22)$$

Hier wird nun angenommen, dass sich die nichtstrahlende Rate nicht durch die Anwesenheit des Spiegels ändert, d.h. $\Gamma_0^{ns} = \Gamma_S^{ns} = \Gamma^{ns}$. Aus (3.22) ergibt

sich dann für den Fall ohne Spiegel

$$\Gamma^{ns} = \frac{1 - q_0}{q_0} \Gamma_0. \quad (3.23)$$

Die Emissionsrate ist ohne Spiegel in alle Richtungen dieselbe, für die Emissionsrate in den betrachteten Winkelbereich ohne Spiegel $\Gamma_0(\theta)$ gilt also:

$$\Gamma_0(\theta) = \frac{2\pi(1 - \cos \theta)}{4\pi} \cdot \Gamma_0 = \frac{1}{2}(1 - \cos \theta) \cdot \Gamma_0. \quad (3.24)$$

Der Faktor $1/2 \cdot (1 - \cos \theta)$ wird im Folgenden mit $n(\theta)$ bezeichnet. Damit und mit (3.23) folgt aus (3.21):

$$\frac{E_S(z, \theta)}{E_0(\theta)} = \frac{1}{n(\theta)} \cdot \frac{\Gamma_S(z, \theta)}{q_0 \Gamma_S(z) + (1 - q_0) \Gamma_0} \cdot \frac{A_S(z)}{A_0}. \quad (3.25)$$

Dabei bezeichnet $\Gamma_S(z)$ die Rate für die Emission in den gesamten Raum mit Spiegel. Für eine Quanteneffizienz von 100%, d.h. $q_0 = 1$, gilt also:

$$\frac{E_S(z, \theta)}{E_0(\theta)} = \frac{1}{n(\theta)} \cdot \frac{\Gamma_S(z, \theta)}{\Gamma_S(z)} \cdot \frac{A_S(z)}{A_0}. \quad (3.26)$$

Im Folgenden wird für alle Rechnungen die Wellenlänge des Anregungslichts $\lambda_a = 514$ nm und die emittierte Wellenlänge $\lambda_e = 605$ nm gesetzt, da dies den Gegebenheiten im Experiment entspricht.

Abb. 3.13(a) zeigt die relative Anregungsintensität $A_S(z)/A_0$ in Abhängigkeit vom Abstand z zum Spiegel. Dabei liegt die Strahtaille des Gaußprofils jeweils ebenfalls im Abstand z zum Spiegel. In Abb. 3.13(b) sieht man die relative Emissionsrate $\Gamma_S(z, \theta)/(n(\theta) \cdot \Gamma_S(z))$ in den Raumwinkelbereich, der mit der z -Achse einen Winkel von 30° einschließt.

Abb. 3.13(c) zeigt das Produkt aus $A_S(z)/A_0$ und $\Gamma_S(z, \theta)/(n(\theta) \cdot \Gamma_S(z))$ für $\theta = 30^\circ$ in Abhängigkeit zum Abstand z zum Spiegel sowie dieses Produkt für eine Kugel vom Durchmesser $d = 190$ nm über das Kugelvolumen gemittelt. Die räumliche Ausdehnung der Kugel bewirkt eine Abschwächung der Oszillationen, aber ändert qualitativ nichts am Intensitätsverlauf (vgl. auch Abb. 3.11).

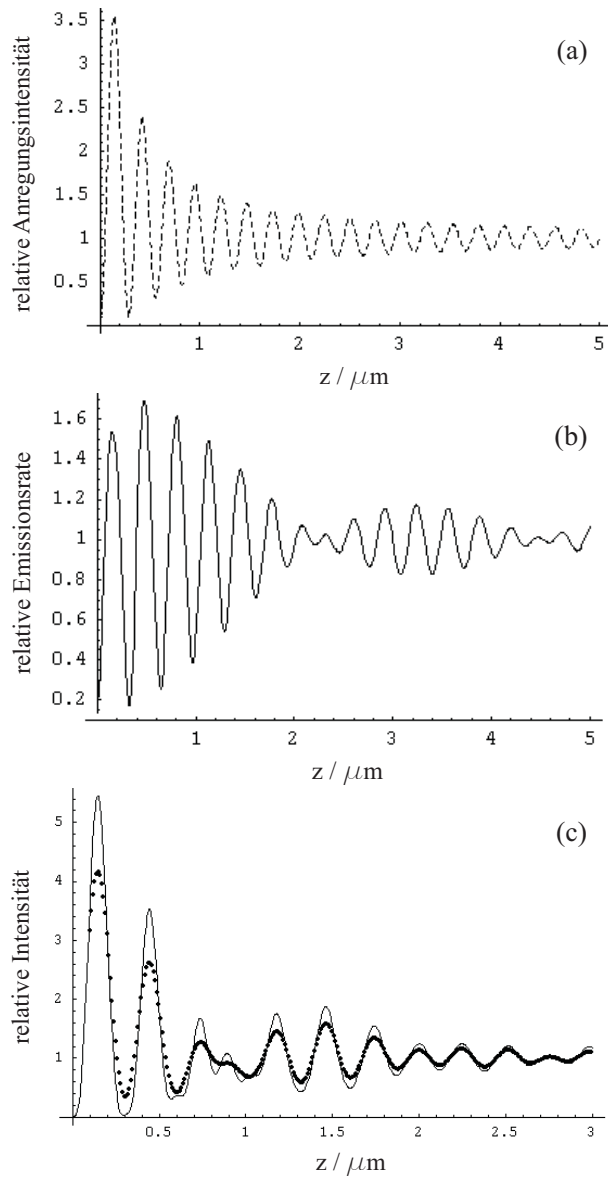


Abbildung 3.13: (a) Relative Anregungsintensität $A_S(z)/A_0$, (b) relative Emissionsrate für $\theta = 30^\circ$, beides in Abhängigkeit vom Abstand z des im Emitters zum Spiegel. (c) Produkt aus relativer Anregungsintensität $A_S(z)/A_0$ und relativer Emissionsrate $\Gamma_S(z, \theta)/(n(\theta) \cdot \Gamma_S(z))$ für $\theta = 30^\circ$ (durchgezogen) und dieses Produkt gemittelt über das Volumen einer Kugel mit Durchmesser $d = 190 \text{ nm}$ (Punkte).

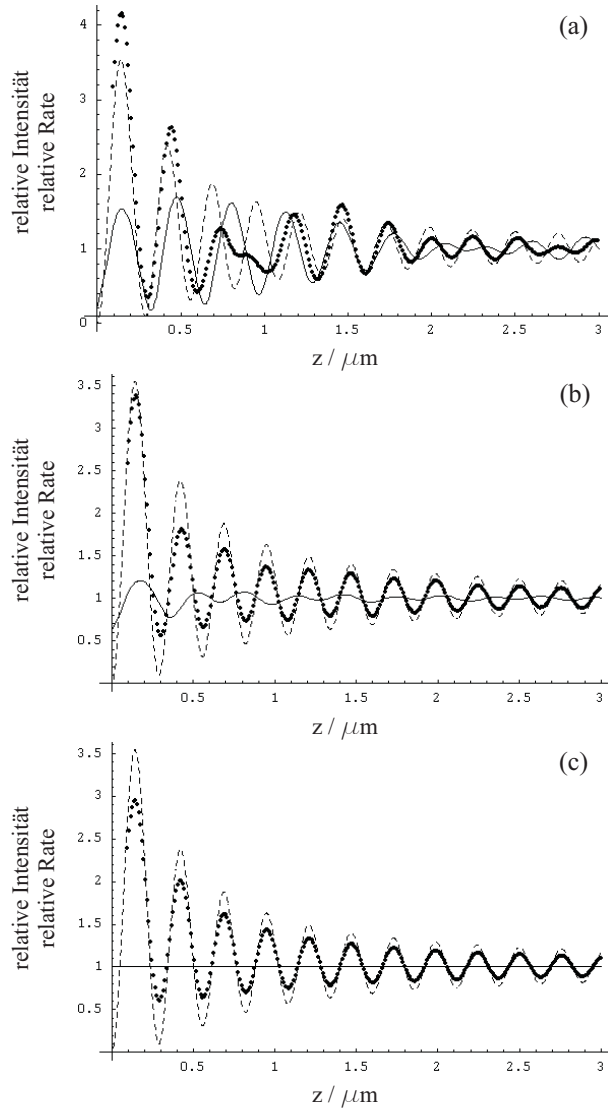


Abbildung 3.14: Relative Anregungsintensität $A_S(z)/A_0$ (gestrichelt), relative Emissionsrate $\Gamma_S(z, \theta)/(n(\theta) \cdot \Gamma_S(z))$ (durchgezogen) und über Kugelvolumen gemittelttes Produkt aus beiden (Punkte) für $\theta = 30^\circ$ (a), $\theta = 60^\circ$ (b) und $\theta = 90^\circ$ (c).

Abb. 3.14(a), Abb. 3.14(b) und Abb. 3.14(c) zeigen die relative Anregungsintensität, die relative Änderung der winkelabhängigen Emissionsrate und das über das Volumen einer 190 nm-Kugel gemittelte Produkt aus beiden für Bereiche mit Winkeln von $\theta = 30^\circ$, $\theta = 60^\circ$ und $\theta = 90^\circ$. Insgesamt lässt sich feststellen, dass der Effekt durch die Änderung der spontanen Emission umso kleiner wird, je größer der Winkelbereich ist, über den man integriert. Da die Änderung der Anregungsintensität nicht winkelabhängig ist, heißt das, dass der Einfluss der Änderung der spontanen Emission mit größerem Integrationswinkel abnimmt. Bei $\theta = 90^\circ$ ändert sich die relative Emissionsrate erwartungsgemäß nicht mehr mit dem Abstand zum Spiegel, da sich durch die Integration über den gesamten Halbraum vor dem Spiegel sämtliche Änderungen in der Emissionscharakteristik herausmitteln. Die einzige in diesem Fall bleibende Modulation ist die, die durch die Interferenz des Anregungslichts hervorgerufen wird.

Das über das Kugelvolumen gemittelte Produkt aus relativer Anregungsintensität $A_S(z)/A_0$ und relativer Emissionsrate $\Gamma_S(z, \theta)/(n(\theta) \cdot \Gamma_S(z))$ entspricht nach (3.26) für eine Quanteneffizienz von $q_0 = 1$ der relativen Änderung der emittierten Intensität $E_S(z, \theta)/E_0(\theta)$. Für Quanteneffizienzen $q_0 < 1$ sind die relativen Emissionsintensitäten $E_S(z, \theta)/E_0(\theta)$ dem gegenüber modifiziert (vgl. (3.25)), so verschwindet in diesem Fall z.B. der Einfluss der spontanen Emission bei $\theta = 90^\circ$ nicht mehr völlig.

Für kleine Winkelbereiche $\theta < 45^\circ$ in Richtung senkrecht zum Spiegel ist der Einfluss der Quanteneffizienz auf die Änderung der emittierten Intensität gering. Abb. 3.15 zeigt die Änderung der spontanen Emission für Quanteneffizienzen von $q_0 = 1$ bzw. $q_0 = 0,1$ (die Änderungen in der Anregungsintensität sind hierbei nicht berücksichtigt, da sie nicht von der Quanteneffizienz abhängen). Eine sichtbare Änderung tritt in diesem Fall nur für Abstände z des Emitters zum Spiegel von $z < 1 \mu\text{m}$ auf, und auch in diesem Bereich beträgt sie weniger als 20%.

Der Einfluss der Quanteneffizienz wird jedoch erheblich größer, wenn man parallel zum Spiegel unter ähnlichen Winkeln (d.h. Winkeln kleiner als 45°) detektiert. Dazu findet sich eine weitergehende Diskussion in Abschnitt 3.3.

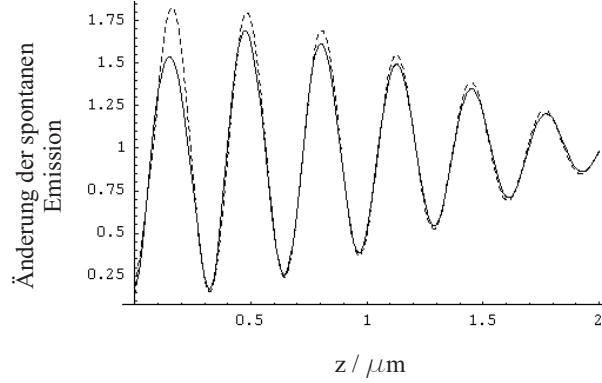


Abbildung 3.15: *Relative Änderung der spontanen Emission $1/n(\theta) \cdot \Gamma_S(z, \theta)/(q_0\Gamma_S(z) + (1 - q_0)\Gamma_0)$ für Quanteneffizienzen von $q_0 = 1$ (durchgezogen) und $q_0 = 0,1$ (gestrichelt) bei einem Detektionswinkel von $\theta = 30^\circ$ in Abhängigkeit vom Abstand z des Emitters zum Spiegel.*

3.2.4 Messung der Intensitätsänderung der Emission

Abb. 2.6 zeigt den auch für die Fluoreszenzexperimente verwendeten Gesamtaufbau und Abb. 3.16 die Konfiguration auf dem Probentisch. Die dotierte Mikrokugel (siehe Abschnitt 2.1.3) hat einen Durchmesser von 190 nm. Sie liegt auf dem Deckglas über dem Ölimmersionsobjektiv. Die Fluoreszenzanregung erfolgt durch das Objektiv mit dem Licht des Argon-Ionen-Lasers bei der Wellenlänge $\lambda_a = 514$ nm. Als Spiegel wird, wie schon in Abschnitt 2.2 beschrieben, eine Edelmessingkugel von etwa einem halben Millimeter Durchmesser verwendet, die mit Hilfe eines Piezos in Richtung der optischen Achse mit einer Genauigkeit von einigen 10 nm verfahren werden kann. Diese Anordnung wurde gewählt, um durch die feste Lage der Kugel auf dem Deckglas Effekte auf Grund einer unkontrollierten Bewegung dieser, wie z.B. ihrer Brownschen Bewegung im Fallenpotential (siehe Abschnitt 3.1.2), zunächst zu vermeiden. Ziel ist aber, Fluoreszenzuntersuchungen an im Fokus der optischen Pinzette gefangenen Partikeln durchzuführen und auch den Abstand der Partikel zum Spiegel über die Verschiebung der Partikel mit Hilfe der optischen Pinzette zu kontrollieren (siehe Abschnitt 3.3).

Abb. 3.17 zeigt Messergebnisse für die Intensität des Fluoreszenzlichts in Abhängigkeit vom Abstand z des Spiegels zur Mikrokugel. Der Abstand wurde zu Beginn der Messung dadurch bestimmt, dass der Fokus der optischen

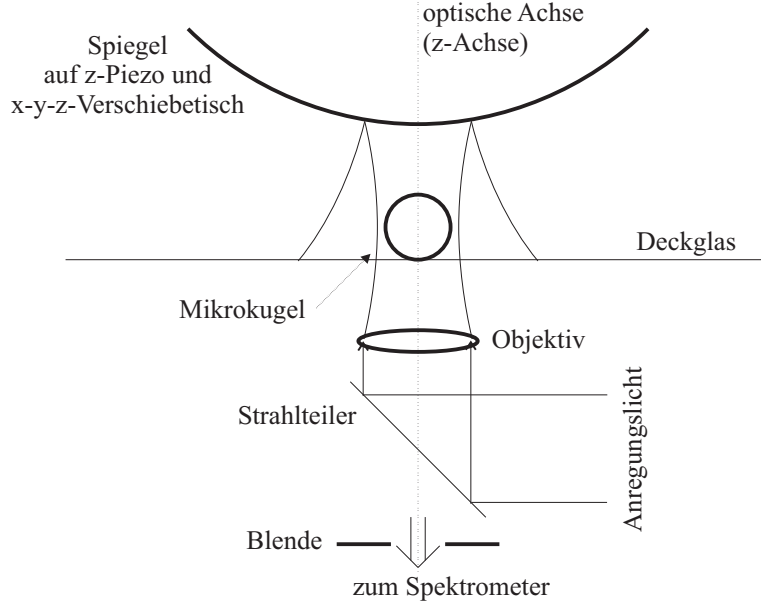


Abbildung 3.16: Die Anordnung von Spiegel, Mikrokugel und Objektiv im Experiment.

Pinzette mit Hilfe des Piezos am Objektiv (vgl. Abb. 2.6) nacheinander auf das Deckglas und auf die Spiegeloberfläche scharf gestellt wurde; der Verfahrensweg des Objektivs entspricht dann dem Abstand des Spiegels zum Deckglas. Die Ungenauigkeit dabei lässt sich abschätzen aus dem Auflösungsvermögen entlang der z -Achse. Nach [Wil03] lässt sich diese abschätzen als

$$\Delta z \approx 2 \frac{n\lambda}{N.A.^2}. \quad (3.27)$$

Für $n = 1,5$ (Immersionsöl), $\lambda = 790 \text{ nm}$ und $N.A. = 1,4$ ergibt sich $\Delta z = 1,2 \text{ }\mu\text{m}$.

Der Winkel, bis zu dem von der Mikrokugel emittiertes Licht noch vom Objektiv der numerischen Apertur $N.A. = 1,4$ aufgesammelt wird, ergibt sich mit dem Brechungsindex $n = 1,5$ des Immersionsöls nach (2.10) zu 69° . Durch Verkleinern einer im Detektionsweg eingebrachten Blende (vgl. Abb. 3.16) lässt sich dieser Winkel reduzieren. Im Experiment wurde die Blende soweit geschlossen, dass nur noch Licht bis zu einem Winkel von 30° mit der optischen Achse aufgesammelt wurde. Das geschah deshalb, weil die durch

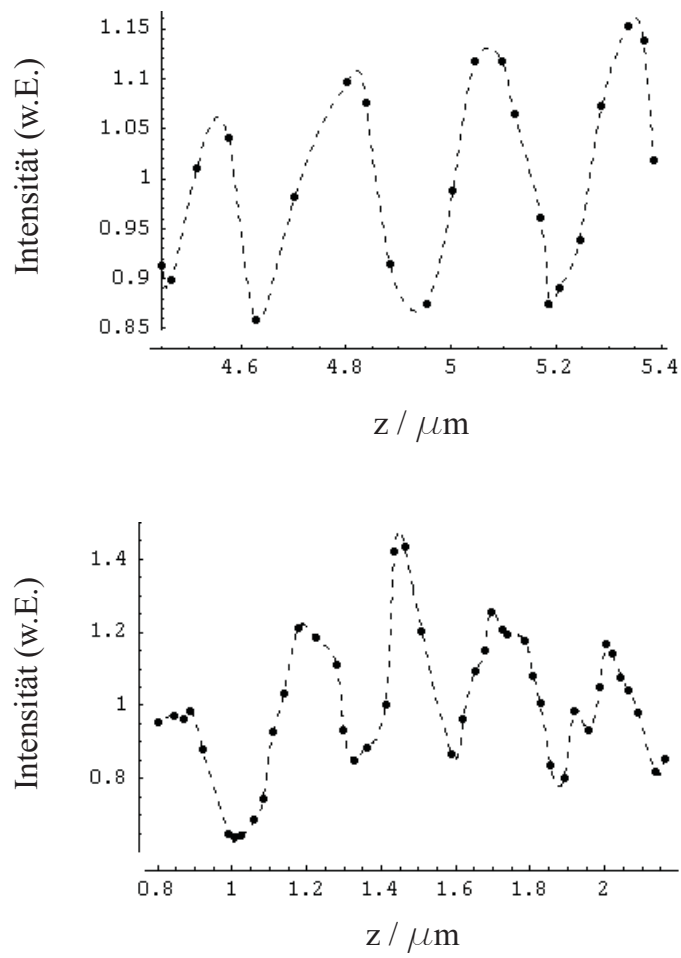


Abbildung 3.17: Zwei Messungen der emittierten Intensität in Abhängigkeit vom Abstand z der Mikrokugel zum Spiegel.

die Änderung der spontanen Emission hervorgerufene Intensitätsänderung umso geringer wird, je größer der detektierte Raumwinkelbereich ist (siehe Abschnitt 3.2.3).

Abb. 3.18 zeigt die Messergebnisse aus Abb. 3.17 zusammen mit den Ergebnissen einer Rechnung für $d = 190 \text{ nm}$, $\theta = 30^\circ$ und $q_0 = 0,7$. Dabei wurden die Ergebnisse zur Anpassung an die berechneten Werte um -260 nm bzw. $+500 \text{ nm}$ auf der z -Achse verschoben. Dies ist durch die nach (3.27) gegebenen Ungenauigkeit in der Messung des Abstands des Spiegel zur Mikrokugel gerechtfertigt.

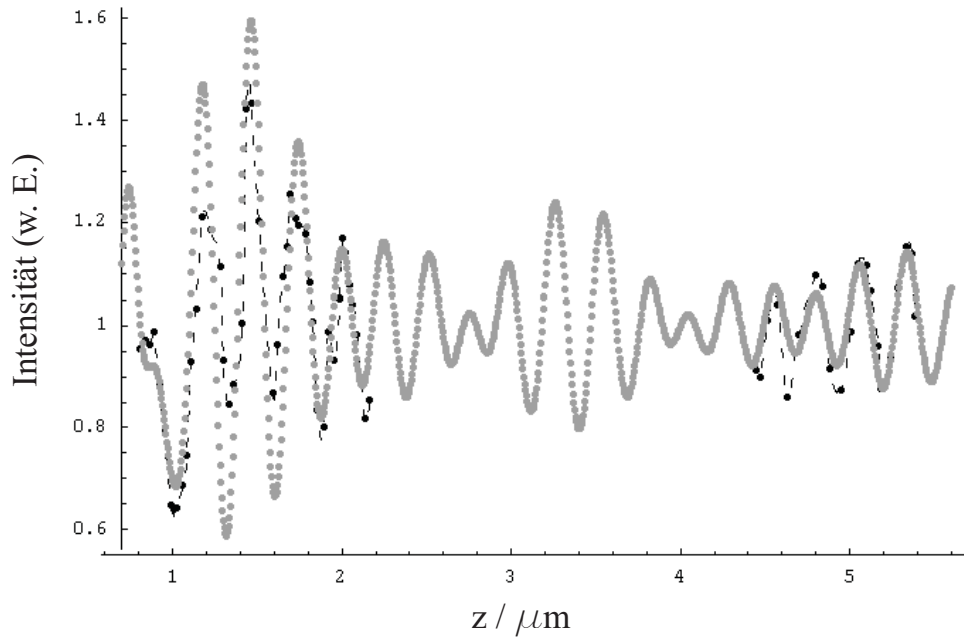


Abbildung 3.18: *Messungen zusammen mit den berechneten Werten für $d = 190 \text{ nm}$, $\theta = 30^\circ$ und $q_0 = 0,7$.*

3.3 Vorüberlegung zu weiterführenden Experimenten

Es wurde gezeigt, dass man den hier verwendeten Aufbau vielfältig einsetzen kann. Zum einen bietet die optische Pinzette die Möglichkeit, Partikel der Größenordnung von 10 nm bis hin zu 10 μm einzufangen und auf einem Substrat anzuordnen bzw. an einer bestimmten Position im Detektionsvolumen zu halten. Zum anderen wurde gezeigt, dass sich auch quantenelektrodynamische Effekte der Änderung der Fluoreszenzeigenschaften in der Nähe von Oberflächen mit dem Aufbau nachweisen lassen.

Naheliegender ist nun, beide Experimente miteinander zu kombinieren. Abb. 3.19 zeigt eine mögliche Versuchsanordnung hierfür. Die wesentliche Änderung zu dem in Abb. 3.16 gezeigten Aufbau besteht darin, dass das untersuchte Partikel nicht mehr ortsfest auf dem Deckglas liegt, sondern sich im Fokus der optischen Pinzette befindet, und so gezielt positioniert werden kann. Da der Fokus der optischen Pinzette in der Ebene senkrecht zur optischen Achse etwa um einen Faktor 3 kleiner ist als in Richtung der optischen Achse (vgl. (2.9) und (3.27)) und es für die Fluoreszenzexperimente darauf ankommt, das Partikel genauer als die Wellenlänge des emittierten Lichts zu positionieren, ist es vorzuziehen, den Spiegel in diesem Fall parallel und nicht wie in dem in Abschnitt 3.2.4 beschriebenen Aufbau senkrecht zur optischen Achse anordnen. Das hat auch zur Folge, dass keine Interferenzen des Anregungslichts durch Reflexion am Spiegel mehr auftreten.

Bei Detektion durch das Objektiv ist zu bedenken, dass sich die Emissionsrate nur in Richtung senkrecht zum Spiegel erhöht, die Rate in Richtung parallel zum Spiegel ändert sich hingegen nicht (vgl. Abb. 3.7). Allerdings wird durch die Anwesenheit des Spiegels auch die Besetzungswahrscheinlichkeit für das angeregte Niveau modifiziert.

Wegen $A_S(z) = A_0$ ergibt sich in diesem Fall aus Gleichung (3.21) bzw. (3.25)

$$\frac{E_S(z, \theta)}{E_0(\theta)} = \frac{\Gamma_S(z, \theta)}{\Gamma_0(\theta)} \cdot \frac{q_S(z)}{q_0} = \frac{1}{n(\theta)} \cdot \frac{\Gamma_S(z, \theta)}{q_0 \Gamma_S(z) + (1 - q_0) \Gamma_0}. \quad (3.28)$$

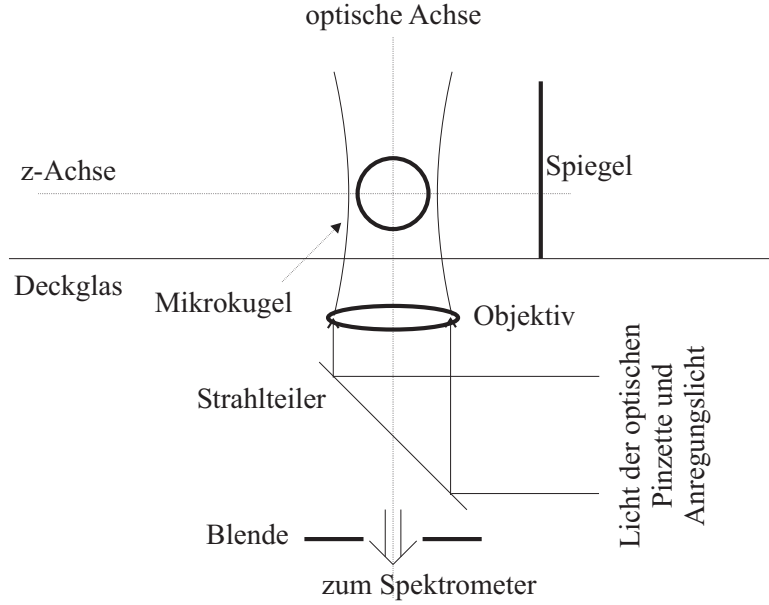


Abbildung 3.19: Die Anordnung für das Fluoreszenzexperiment mit optischer Pinzette.

Dabei bezeichnet $\Gamma_S(z, \theta)$ weiterhin die Emissionsrate in den Kegel mit Öffnungswinkel θ zur Achse senkrecht zum Spiegel (vgl. Abb. 3.12).

Auf Grund der fehlenden Zylindersymmetrie in Richtung parallel zum Spiegel ist es kompliziert, die Ratenänderung in diese Richtung zu berechnen. Der Effekt lässt sich aber nach (3.28) abschätzen als

$$\frac{E_S(z, \phi)}{E_0(\phi)} = \frac{1}{n(\theta_2) - n(\theta_1)} \cdot \frac{\Gamma_S(z, \theta_2) - \Gamma_S(z, \theta_1)}{q_0 \Gamma_S(z) + (1 - q_0) \Gamma_0}, \quad (3.29)$$

wobei $\phi = \theta_2 - \theta_1$ den Winkel bezeichnet, unter dem das Licht parallel zum Spiegel aufgesammelt wird.

Abb. 3.20 zeigt die Änderung der spontanen Emission in diesem Raumbe- reich für einen Öffnungswinkel $\phi = 60^\circ$, d.h. mit derselben numerischen Apertur wie sie einem halben Öffnungswinkel $\theta = 30^\circ$ in den Abschnitten 3.2.3 und 3.2.4 entspricht. Im Vergleich zum Fall mit Detektion senkrecht zum Spiegel hat hier die Quanteneffizienz einen deutlich größeren Einfluss auf die Änderung der spontanen Emission (vgl. Abb. 3.15). Außerdem wird

hier die Modulation mit größeren Quanteneffizienzen größer, im Fall senkrechter Detektion ist dies umgekehrt.

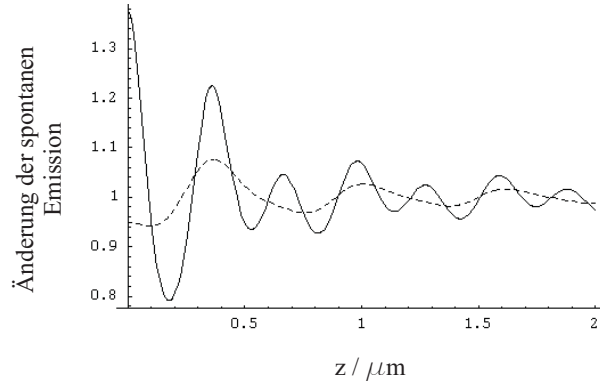


Abbildung 3.20: *Relative Änderung der spontanen Emission $1/(n(\theta_2)-n(\theta_1)) \cdot \Gamma_S(z, \phi)/(q_0\Gamma_S(z) + (1 - q_0)\Gamma_0)$ für Quanteneffizienzen von $q_0 = 1$ (durchgezogen) und $q_0 = 0,1$ (gestrichelt) bei Detektion parallel zum Spiegel unter einem Winkel von $\phi = \theta_2 - \theta_1 = 60^\circ$ in Abhängigkeit vom Abstand z des Emitters zum Spiegel.*

Kapitel 4

Ausblick

In Abschnitt 3.3 wurde gezeigt, wie die Änderung der spontanen Emission eines nanoskopischen Partikels in der Nähe von Oberflächen beobachtet werden kann. Gleichzeitig ermöglicht die optische Pinzette die gezielte Manipulation solcher Partikel. Somit kann man einen relativ einfachen und flexiblen Aufbau zur Detektion quantenelektrodynamischer Effekte erreichen. Ein nächster Schritt wäre nun, die Zahl der Emitter auf einem gefangenen Partikel zu reduzieren, bis hin zu einzelnen Emitttern (Abb. 4.1(a)). Eine Option hierfür wäre die Verwendung von Diamant-Defektstrukturen (Abb. 4.1(b)), die ähnliche Emissionseigenschaften wie Quantenpunkte aufweisen [Jel01].

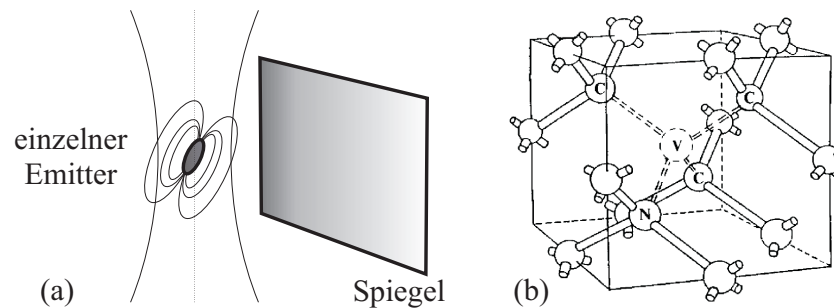


Abbildung 4.1: (a) Von der optische Pinzette gefangener einzelner Emitter vor dem Spiegel. (b) Struktur eines N-V Zentrums in Diamant (aus [Jel01]).

Die Verwendung einer optischer Pinzette in der Nähe eines Spiegels ist außerdem ein erster Schritt, ähnliche Experimente in einer beliebig strukturierten

dielektrischen Umgebung durchzuführen. Von Interesse wären hier Umgebungen wie z.B. optische Resonatoren oder photonische Kristalle [Bus04]. Kennt man die Auswirkung dieser Umgebung auf die Emissionseigenschaften des gefangenen Partikels genau, so lassen sich das Absorptions- und Emissionsverhalten des Partikels dahingehend beeinflussen, dass man z.B. höhere Nachweisschwellen erreicht. Vorstellbar wäre, dies bis zur gezielten Absorption und Emission einzelner Photonen voranzutreiben. Von besonderem Interesse wären hier auch Untersuchungen biophysikalischer Fragestellungen in Systemen, die Licht absorbieren bzw. emittieren. Eine Modifikation der Eigenschaften einzelner optisch aktiver Makromoleküle durch quantenelektrodynamische Effekte ist eine naheliegende Zielsetzung. Erste Voruntersuchungen wurden an Chlorophyll *a* durchgeführt (siehe Abb. 4.2).

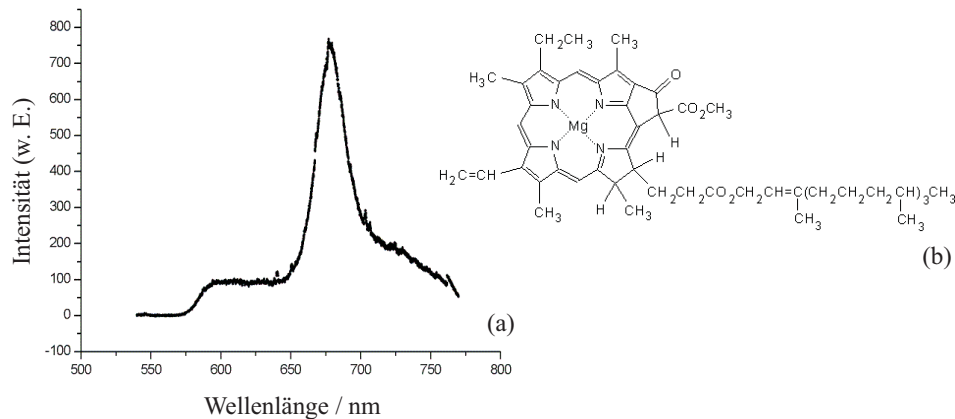


Abbildung 4.2: (a) Spektrum von mit der optischen Pinzette eingefangenen Partikeln, die Chlorophyll *a* enthalten. (b) Struktur von Chlorophyll *a*.

In Abschnitt 3.2.3 und am Ende von Abschnitt 3.3 wird auch der Einfluss der Quanteneffizienz auf die Emissionsänderung untersucht. Da die Änderung der spontanen Emission von der Quanteneffizienz des Partikels abhängig ist, könnte die kontrollierte Änderung der spontanen Emission dazu verwendet werden, die Quanteneffizienz von Emitttern, die sonst eine experimentell schwer zugängliche Größe ist, zu ermitteln. Von Buchler und anderen [Buc05] wurden mit einer Nahfeldsonde schon Messungen der Quanteneffizienz anhand von Lebensdauermessungen für die Plasmonenschwingungen eines Goldnanopartikels durchgeführt (Abb. 4.3).

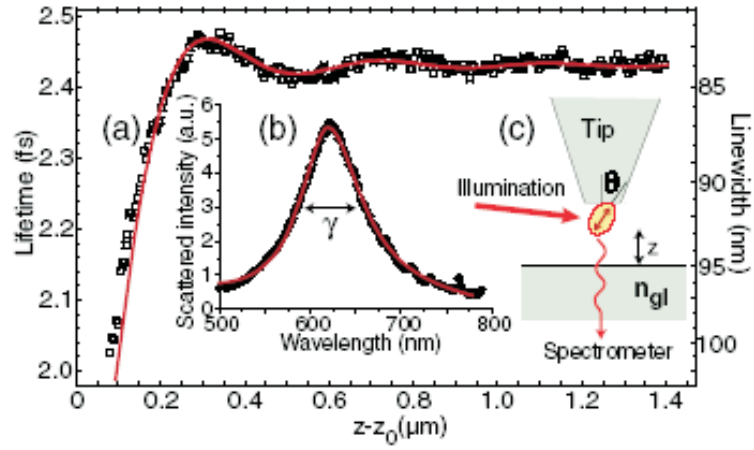


Abbildung 4.3: Bestimmung der Quanteneffizienz q über Lebensdauermessungen: (a) Messpunkte, durch Anpassen der theoretischen Kurve wird q bestimmt, (b) Plasmonenspektrum, (c) Messaufbau, aus [Buc05].

Literaturverzeichnis

- [Amo97] R. Amos, W. Barnes, *Modification of spontaneous emission rate of Eu^{3+} ions close to a thin metal mirror*, Physical Review B **55**, 7249-7254 (1997)
- [Ash70] A. Ashkin, *Acceleration and trapping of particles by radiation pressure*, Physical Review Letters **24**, 156-159 (1970)
- [Ash86] A. Ashkin, J. Dziedzic, J. Bjorkholm, S. Chu, *Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles*, Optics Letters **11**, 288-290 (1986)
- [Ash87] A. Ashkin, J. Dziedzic, T. Yamane, *Optical trapping and manipulation of single cells using infrared laser beams*, Nature **330**, 769-771 (1987)
- [Ash92] A. Ashkin, *Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime*, Biophysical Journal **61**, 569-582 (1992)
- [Bar89] J. Barton, D. Alexander, S. Schaub, *Theoretical determination of net radiation force and torque for a spherical particle illuminated by a focused laser beam*, Journal of Applied Physics **66**, 4594-4602 (1989)
- [Bar98] W. Barnes, *Fluorescence near interfaces: the role of photonic mode density*, Journal of Modern Optics **45**, 661-699 (1998)
- [Bec02] J. Bechhoefer, S. Wilson, *Faster, cheaper, safer optical tweezers for the undergraduate laboratory*, American Journal of Physics **70**, 393-400 (2002)

- [Buc05] B. Buchler, T. Kalkbrenner, C. Hettich, V. Sandoghdar, *Measuring the quantum efficiency of single radiating dipoles using a scanning mirror*, Physical Review Letters **95**, 063003 (2005)
- [Bus04] K. Busch, S. Lölkes, R. Wehrspohn, H. Föll (Hrsg.), *Photonic crystals*, Wiley-VCH, Weinheim, 2004
- [Coh05] A. Cohen, W. Moerner, *Method for trapping and manipulating nanoscale objects in solution*, Applied Physics Letters **86**, 093109 (2005)
- [Dre70] K. Drexhage, *Influence of a dielectric interface on fluorescence decay time*, Journal of Luminescence **1-2**, 693-701 (1970)
- [Esc01] J. Eschner, C. Raab, F. Schmidt-Kaler, R. Blatt, *Light interference from single atoms and their mirror images*, Nature **413**, 495-498 (2001)
- [Fel95] H. Felgner, O. Müller, M. Schliwa, *Calibration of light forces in optical tweezers*, Applied Optics **34**, 977-982 (1995)
- [Fer32] E. Fermi, *Quantum theory of radiation*, Reviews of Modern Physics **4**, 87-132 (1932)
- [Ghi94] L. Ghislain, N. Switz, W. Webb, *Measurement of small forces using an optical trap*, Review of Scientific Instruments **65**, 2762-2768 (1994)
- [Gri03] D. Grier, *A revolution in optical manipulation*, Nature **424**, 810-816 (2003)
- [Gut01] G. Guthöhrlein, M. Keller, K. Hayasaka, W. Lange, H. Walther, *A single ion as a nanoscopic probe of an optical field*, Nature **414**, 49-51 (2001)
- [Har96] Y. Harada, T. Asakura, *Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime*, Optics Communications **124**, 529-541 (1996)
- [Hec01] E. Hecht, *Optik*, Oldenbourg, München, 2001

- [Jel01] F. Jelezko, C. Tietz, A. Gruber, I. Popa, A. Nizovtsev, S. Kilin, J. Wrachtrup, *Spectroscopy of single N-V centers in diamond*, Single Molecules **2**, 255-260 (2001)
- [Joy05] J. Joykuty, V. Mathur, V. Venkataraman, V. Natarajan *Direct measurement of the oscillation frequency in an optical-tweezers trap by parametric excitation*, Physical Review Letters **95**, 193902 (2005)
- [Ker69] M. Kerker, *The scattering of light and other electromagnetic radiation*, Academic Press, New York, 1969
- [Mil94] P. Milonni, *The quantum vacuum*, Academic Press, San Diego, 1994
- [Min57] M. Minsky, *Microscopy apparatus*, U.S. Patent 301467 (1957)
- [Mül03] F. Müller, *Detektion und Manipulation nanoskopischer Partikel mittels Nahfeld- und Fluoreszenzmikroskopie*, Diplomarbeit, 2003
- [Pur46] E. Purcell, *Spontaneous emission probabilities at radio frequencies*, Physical Review **69**, 681 (1946)
- [Ray96] Lord Rayleigh, *On the theory of optical images with special reference to the microscope*, Philosophical Magazine **5**, 167 (1896)
- [Rei85] F. Reif, *Statistische Physik und Theorie der Wärme*, de Gruyter, Berlin, 1985
- [Sim92] A. Simon, A. Libehaber, *Escape and sychronization of a Brownian particle*, Physical Review Letters **68**, 3375-3378 (1992)
- [Son02] G. Soni, F. Hameed, T. Roopa, G. Shivanshankar, *Development of an optical tweezer combined with micromanipulation for DNA and protein nanobioscience*, Current Science **83**, 1464-1470 (2002)
- [Tho92] R. Thompson, G. Rempe, H. Kimble, *Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity*, Physical Review Letters **68**, 11321135 (1992)
- [Wal98] H. Walther, *Quantum optics of a single atom*, Physica Scripta **T76**, 138-146 (1998)

- [Wil03] S. Wilhelm, B. Gröbler, M. Gluch, H. Heinz, *Die konfokale Laser Scanning Mikroskopie*, Carl Zeiss Jena GmbH, 2003
- [Wri93] W. Wright, G. Sonek, M. Berns, *Radiation trapping forces on microspheres with optical tweezers*, Applied Physics Letters **63**, 715-717 (1993)
- [Xu01] S. Xu, Y. Li, L. Lou, H. Chen, Z. Sun, *Steady patterns of micro-particles formed by optical tweezers*, Japanese Journal of Applied Physics **41**, 166-168 (2001)

Danksagung

Zuerst möchte ich mich bei Prof. Oliver Benson für die Ermöglichung und die gute Betreuung dieser Diplomarbeit bedanken. Er hatte stets Zeit für alle Fragen und Probleme.

Besonderer Dank gilt Michael Barth für seine große Unterstützung. Ohne die Diskussionen mit ihm, seinen Rat und seine Korrekturvorschläge wäre diese Arbeit nicht in dieser Form möglich gewesen.

Besonderer Dank gilt auch Stefan Schietinger, dessen kreative Ideen den Aufbau oft entscheidende Schritte voran gebracht haben.

Die Lösung vieler technischen Probleme wäre sehr viel schwieriger gewesen ohne Klaus Palis, der immer mit Rat und Tat zur Seite stand.

Danken möchte ich Franz Boczianowski für den guten Start und Andrea Mazzei, Matthias Scholz und Dr. Thomas Aichele dafür, dass sie stets ein offenes Ohr für Fragen aller Art hatten.

Meinen Mit-DiplomandInnen Alexander Senger, Björn Lauritzen, Hanna Krauter, Hans-Jürgen Kraus und Sven Ramelow gebührt Dank für die angenehme Büroatmosphäre und die strikte Einhaltung der Kaffeepausezeiten. Außerdem danke ich Alex auch für die geduldige Hilfe bei diversen Mathematica-Problemen.

Vielen Dank auch an Daniela Vallentin für schnelles und noch dazu oft erheiterndes Korrektur lesen.

Erklärung

Hiermit bestätige ich, Gesine Steudle, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und ohne unerlaubte Hilfe angefertigt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Berlin, den 15.12.2005

Ich bin damit einverstanden, dass diese Arbeit zur Einsichtnahme in der Bibliothek ausgelegt wird.

Berlin, den 15.12.2005