

Przemysław Markowicz

Pułapkowanie klastrów sodowych w polu  
elektrycznym

Praca doktorska  
wykonana pod kierunkiem  
dr hab. Krystyny Kolwas

w

Instytucie Fizyki  
Polskiej Akademii Nauk  
w Warszawie

27 września 1999

Dr hab. Krystynie Kolwas  
serdecznie dziękuję  
za opiekę promotorską.

Prof. Maciejowi Kolwasowi  
dziękuję za współpracę oraz  
cenne krytyczne uwagi.

Źonie Annie  
za wsparcie i cierpliwość -  
dziękuję.

# Spis treści

<b>Wprowadzenie</b>	<b>3</b>
<b>1 Wstęp</b>	<b>5</b>
1.1 Własności fizyczne klasterów. . . . .	6
1.2 Metody wytwarzania klasterów metalicznych. . . . .	7
1.3 Metoda optyczna wytwarzania klasterów sodowych użyta w tej pracy. . . . .	8
<b>2 Własności rozpraszające klasterów sodowych indukowanych optycznie.</b>	<b>11</b>
2.1 Opis rozpraszania światła na klasterach sodowych w ramach teorii Mie. . . . .	11
2.2 Kierunki polaryzacji światła w przeprowadzonych doświadczeniach. . . . .	12
2.3 Wyznaczenie współczynnika tłumienia gazu elektronowego w dużych klasterach sodowych. . . . .	13
2.3.1 Opis doświadczenia. . . . .	15
2.3.2 Metoda wyznaczania oraz wynik pomiaru współczynnika tłumienia $\gamma$ . . . . .	16
<b>3 Zmiana koncentracji klasterów sodowych w trakcie ewolucji.</b>	<b>22</b>
3.1 Opis układu służącego do pomiaru koncentracji klasterów oraz rejestracji światła na nich rozpraszanego. . . . .	22
3.2 Pomiar rozpraszania światła wykonane przy użyciu kamery CCD. . . . .	23
3.3 Zmiany koncentracji klasterów w czasie. . . . .	24
<b>4 Koncentracja ładunków w ośrodku, w którym powstają klaster.</b>	<b>28</b>
4.1 Opis układu pomiarowego. . . . .	28
4.2 Wyznaczenie koncentracji ładunków swobodnych w plazmie generowanej wiązką lasera $\text{Ar}^+$ . . . . .	29
<b>5 Matematyczno-fizyczne podstawy pułapkowania klasterów sodowych w pułapce kwadrupolowej.</b>	<b>33</b>
5.1 Rodzaje elektrycznych pułapek kwadrupolowych . . . . .	33
5.2 Zastosowanie dwuwymiarowej pułapki kwadrupolowej do pułapkowania klasterów sodowych. . . . .	35
5.2.1 Wyznaczenie współczynnika lepkości ośrodka i siły lepkości działającej na poruszający się klaster. . . . .	36
5.2.2 Rozwiązanie równań ruchu klastera w pułapce z uwzględnieniem siły lepkości ośrodka - obszary stabilności tych rozwiązań. . . . .	37
5.3 Wpływ jonizacji ośrodka na pułapkowanie klasterów sodowych. . . . .	40
<b>6 Budowa i opis zmodyfikowanej pułapki kwadrupolowej</b>	<b>42</b>
6.1 Charakterystyka wiązki laserowej. . . . .	43
6.2 Charakterystyka plazmy powstającej w obszarze pułapkowania klasterów. . . . .	44
6.3 Siły działające na spułapkowany klaster sodowy. . . . .	48
<b>7 Własności spułapkowanych klasterów sodowych.</b>	<b>54</b>
7.1 Ruch pojedynczego klastera sodowego wewnątrz zmodyfikowanej pułapki kwadrupolowej. . . . .	54
7.2 Szacowanie promienia spułpkanego klastera. . . . .	56

7.3	Efektywny potencjał pułapkujący. . . . .	57
7.4	Dwa klaster w pułapce. . . . .	61
7.4.1	Wyznaczenie potencjału w jakim poruszały się klaster. . . . .	62
7.4.2	Określenie ładunku klasterów . . . . .	64
7.4.3	Wpływ ładunku klasterów na ich deformację. . . . .	68
7.5	Natężenie światła rozpraszane na grupie spułapkowanych klasterów sodowych	70
7.5.1	Zmiana liczby spułapkowanych klasterów w czasie. . . . .	71
7.5.2	Zmiana natężenia światła rozpraszane na spułapkowanych klasterach. . . . .	72
<b>8</b>	<b>Wnioski</b>	<b>77</b>
	<b>Literatura</b>	<b>77</b>

## Streszczenie

Celem niniejszej pracy było spulapkowanie pojedynczych klastrów sodowych. Zaprezentowana została w niej nowa metoda pulapkowania metalicznych klastrów w środowisku plazmowym oraz przedstawione zostały pierwsze wyniki badań własności spulapkowanych klastrów sodowych.

Wykonywane w naszym zespole badania rosnących w czasie klastrów w chmurze koncentrowały się głównie wokół ich własności optycznych. W celu ich dobrego opisania niezbędne było wyznaczenie współczynnika tłumienia gazu elektronów swobodnych w klastrach oraz koncentracji klastrów w chmurze. Z przeprowadzonych eksperymentów wynikało też, że środowisko, w którym powstają klasterki jest zjonizowane. Koncentracja ładunków w wiązce lasera argonowego indukującego klasterki, jak się okazało, ma bardzo duży wpływ na proces pulapkowania klastrów. Dlatego też przed przystąpieniem do właściwego tematu pracy opisano kilka doświadczeń nad klastrami w chmurze. Ich celem było:

- oszacowanie współczynnika tłumienia gazu elektronów swobodnych w modelu Drudego funkcji dielektrycznej w dużych klastrach sodowych,
- wyznaczenie koncentracji klastrów sodowych w trakcie i po zakończeniu ewolucji chmury klastrów,
- oszacowanie koncentracji ładunków w wiązce laserowej po zakończeniu ewolucji klastrów.

Wyznaczenie współczynnika tłumienia gazu elektronów swobodnych pozwala na obliczenie współczynnika załamania klastrów sodowych, od którego zależą własności rozpraszające klastrów. Do jego wyznaczenia wykorzystano pełną teorię Mie wraz z jej rozbudowaną stroną matematyczną.

Wykonując pomiary elektryczne oraz stosując do obserwacji klastrów mikroskop z kamerą CCD udowodniono, że klasterki rosną w środowisku zjonizowanym. Wykorzystując wielkość, zwaną długością ekranowania Debye'a, oszacowano koncentrację ładunków w wiązce laserowej, a zliczając klasterki w czasie ewolucji pokazano, że ich koncentracja maleje eksponencjalnie. Stwierdzono też, że na końcu ewolucji koncentracja klastrów ustala się i zależy od warunków termodynamicznych, przy jakich przeprowadzony był pomiar.

Opracowana w naszym zespole metoda wytwarzania klastrów jest unikatowa i pozwala na uzyskanie dużej ich koncentracji. Występuje jednak pewien niewielki rozrzut długości promienia klastrów. Utrudnia on dokładne pomiary własności optycznych pojedynczych klastrów. Dlatego niezbędne stało się spulapkowanie niewielkiej, dobrze określonej, ich ilości. Zastosowanie klasycznej pulapki kwadrupolowej nie przyniosło spodziewanego spulapkowania klastrów ze względu na fakt, że środowisko w którym rosły klasterki, było zjonizowane i należy je traktować raczej jak zimną plazmę, niż dielektryk.

Opracowano więc nową metodę pułapkowania klasterów. Użycie zmodyfikowanego filtra kwadрупolowego umożliwiło utrzymanie klasterów aż do 50 minut w rejonie pułapkowania.

Ilościowy opis sił działających na spułapkowany klaster okazał się zbyt skomplikowany. Wyznaczono więc efektywny potencjał, w jakim znajdował się spułapkowany klaster, analizując jego położenia w pułapce, a śledząc ruch pułapkowanego klastera wyznaczono jego promień.

Konsekwencją faktu, iż klasterzy są naładowane ładunkiem jednoimiennym, jest ich wzajemne odpychanie się. Wykorzystano układ dwóch spułapkowanych klasterów do określenia ich ładunku w momencie, gdy jeden z klasterów opuszczał rejon pułapkowania.

Przeprowadzono też wstępne pomiary rozpraszania światła na spułapkowanych klasterach oraz próbę wyjaśnienia zjawiska depolaryzacji światła na tych obiektach. Badania optyczne klasterów przeprowadzone były z użyciem wiązek laserowych o długościach: 488nm pochodzącej z lasera argonowego oraz 632.8nm z lasera helowo-neonowego.

W doświadczeniach nad klasterami w chmurze ich promień końcowy wynosił ok. 150 nm i wynikał z analizy światła na nich rozproszonego, dokonanej przy pomocy teorii rozpraszania Mie i modelu Drudego funkcji dielektrycznej. W doświadczeniach nad pojedynczymi klasterami w pułapce, gdzie skupiono się na dwóch najprostszych i najbardziej interesujących układach, tzn. jednym oraz dwóch spułapkowanych klasterach, dynamika ich wzrostu oraz uzyskiwane promienie były inne. Oszacowana długość promienia klastera w momencie pułapkowania wynosiła ok. 500 nm.

## 1. Wstęp

Dziedzina fizyki zajmująca się powstawaniem i badaniem własności klastrów przeżywa w ostatnich latach gwałtowny rozwój. Ogólnie można zdefiniować klastery jako stabilny obiekt składający się z pewnej liczby atomów lub cząsteczek. Klaster jest obiektem pośrednim, jeśli chodzi o wielkość, między atomami i rozciągniętymi fragmentami materii. Fizycy często twierdzą, że trzy atomy wystarczą już do stworzenia klastru, natomiast mol danej substancji to już za dużo, by można było mówić o klastrze. Dla potrzeb niniejszej pracy zdefiniujemy klastery jako cząstkę zbudowaną z  $N$  atomów lub cząsteczek, gdzie  $2 < N < 10^{10}$ . Definicja ta pokrywa szerokie spektrum wielkości. Przykładami takich właśnie obiektów mogą być koloidy, mikrokryształy czy kropelki mgły.

Klaster nie stanowi piątego stanu skupienia materii, jak się to czasem podaje. W rzeczywistości posiadają one pewne cechy pośrednie między stanem stałym, ciekłym i gazowym, które w większości przypadków silnie zależą od rozmiaru. Możemy wymienić dwa rodzaje efektów związanych z rozmiarami klastrów. Są to tzw. efekty wewnętrzne i zewnętrzne. Efekty wewnętrzne związane są ze zmianą własności materiałowych w objętości i na powierzchni klastru, a efekty zewnętrzne są zależnymi od rozmiaru odpowiedziami klastru na zewnętrzne pola lub siły.

Dziedzina fizyki zajmująca się klastrami ma długą tradycję. Jako jej prekursorów możemy wymienić tu naukę zajmującą się:

1. Koloidami (Faraday, Oswald, Mie).
2. Cienkimi warstwami (Mayer, Yamaguchi).
3. Centrami barwnymi (Seitz).

Lata badań w tych właśnie dziedzinach sprawiły, że dopatrzone zostały pewne wspólne cechy materiałów, którymi się zajmowano. Tak właśnie powstała dziedzina nauki zajmująca się klastrami.

Szczególnie interesujące dla naukowców badających klaster, są odpowiedzi na pytania:

a) z ilu atomów musi składać się klastery danego pierwiastka, by dalszy jego wzrost nie zmieniał jego właściwości, tzn. zachowywał się on jak makroskopowa próbka materii, której właściwości nie zależą od rozmiaru;

b) jak zmieniają się poszczególne własności klastrów, tj. energia wiązania, struktura pasmowa, przekrój czynny na rozpraszanie, współczynnik załamania światła, itd. wraz z ich wzrostem.

Te i inne pytania stały się przyczyną wielu eksperymentów mających na celu zbadanie własności tych bardzo ciekawych obiektów.

### 1.1. Własności fizyczne klasterów.

Jedną z typowych własności klasterów składających się z kilku do kilkuset atomów jest występowanie określonych ich rozmiarów z dużo większą częstotliwością od pozostałych. Występuje ona dla metali, jak i niemetali. Liczba atomów, z których składają się klaster, które pojawiają się częściej, dla różnych pierwiastków może być różna. W przypadku ksenonu [1] maksima występują dla liczby atomów  $N=13, 19, 25, 71, 87$  i  $147$ . Są to tzw. liczby magiczne, które w tym przypadku są wyrazem zapełniania geometrycznych powłok atomowych. Dla  $N=19$  następuje dodanie dodatkowej pentagonalnej piramidy do  $N=13$ . Pozostałe gazy szlachetne tworzą klaster w podobny sposób. Ogólnie można powiedzieć, że w przypadku niemetali, oscylacje częstości występowania klasterów o różnych rozmiarach można wyjaśnić geometryczną budową układu atomów. W przypadku metali wyjaśnienie tego efektu wymaga rozpatrzenia skwantowanego ruchu elektronów walencyjnych w objętości klastera. Np. sól zbudowany jest z ujemnie naładowanych elektronów i dodatnich jonów. Elektrony walencyjne poruszają się swobodnie w metalu, a jony zajmują ustalone pozycje. W przypadku małych klastrów sodowych, składających się z kilkunastu atomów, elektron w nim poruszający się pomiędzy kolejnymi zderzeniami może go obiegać kilkakrotnie. Można więc w tej sytuacji rozpatrywać ruch swobodnych elektronów w sferycznym klastrze jako ruch fermionów w potencjale średniego pola o symetrii sferycznej. Dla większych klasterów z dość dobrym przybliżeniem stosuje się tzw. wzór Woodsa-Saxona opisujący potencjał w jądrach atomowych. Po rozwiązaniu równania Schrodingera z takim potencjałem uzyskamy w każdym stanie o liczbie kwantowej  $l$  orbitalnego momentu pędu  $l(2l+1)$  elektronów. Jest to konsekwencją zasady Pauliego. Dopatrzyć się tu możemy więc ściślejszej analogii do elektronów w atomie. Klaster złożony z atomów sodu ma więc strukturę powłokową, a energia oddzielenia atomu od klastera zależy od stopnia zapełnienia powłok elektronowych. Klaster, który zawiera liczbę atomów, a więc i elektronów, odpowiadającą zamkniętym powłokom elektronowym będą występowały częściej, gdyż są bardziej trwałe. Szczególnie trwałe będą więc klaster składające się z  $8, 20, 40$  itd. atomów. Z powodu występowania struktury powłokowej klasterów wszystkich metali alkalicznych przyjęto nazywać je quasi-atomami.

Klaster składający się z tysięcy, a nawet milionów i więcej, atomów stanowią również ciekawe obiekty do badań. Trudno tutaj rozważać strukturę powłokową tak „dużych” cząstek. Niemniej jednak zaobserwowano występowanie wielu ciekawych zjawisk w takich obiektach. Wiele z tych zjawisk ludzie wykorzystywali od setek lat. Przypomnijmy choćby wytwarzanie różnokolorowych witraży. Polega ono na zatapianiu w szkle drobin metalowych o różnych wielkościach, składających się z różnych materiałów, w zależności od zabarwienia jakie chcemy uzyskać. Wykorzystuje się tu zjawisko zależności rozpraszania



światła o danej długości fali elektromagnetycznej od promienia obiektu rozpraszającego.

W ostatnich latach badane są również właściwości elektryczne klasterów. Badania te wykonuje się z myślą o zastosowaniu klasterów w mikroelektronice. Szczególnie ważne jest przewodnictwo elektryczne. Okazuje się bowiem, że np. przewężenia, czyli jak można by powiedzieć dwuwymiarowe klasterzy, powstałe podczas rozciągania kawałków metali, mają zupełnie inne przewodnictwo elektryczne niż reszta metalu.

## 1.2. Metody wytwarzania klasterów metalicznych.

Obecnie znanych jest szereg metod wytwarzania klasterów metalicznych. Poniżej scharakteryzowane zostały najczęściej stosowane z nich.

1. Metoda dysz ponadźwiękowych [2][3]. Polega ona na wyrzucaniu mieszaniny par metalu oraz gazu szlachetnego do próżni poprzez małą dyszę. Powstaje w ten sposób naddźwiękowa wiązka molekularna. W próżni następuje adiabatyczne rozprężanie mieszaniny, co prowadzi do jej ochłodzenia. Pary metalu w niskiej temperaturze stają się przesycone i zaczynają z nich powstawać klasterzy. Metoda ta używana jest w celu otrzymania strumienia o dużej koncentracji klasterów. Rozkład prędkości klasterów jest wąski. Zawierają one do kilkuset atomów, a nawet, w odpowiednich warunkach, kilka tysięcy atomów. Temperatura klasterów nie jest dobrze określona. Metoda ta jest charakterystyczna dla metali o niskiej temperaturze wrzenia.
2. Agregacja gazowa [4]. Jest ona szczególnie wydajna w produkcji dużych klasterów ( $N < 10000$ ). Jej idea polega na wpuszczaniu par metalu do strumienia gazu szlachetnego o niskiej temperaturze. Dzięki temu para staje się przesycona i zaczynają powstawać klasterzy. Rozkład wielkości klasterów zależy od gęstości par metalu, prędkości strumienia gazu oraz rozmiarów elementów, z jakich składa się źródło klasterów. Koncentracja klasterów jest mniejsza niż w przypadku metod dyszowych. Przy użyciu tej metody można otrzymywać klasterzy metali o niskiej lub średniej temperaturze wrzenia ( $< 2000\text{K}$ ). Wytworzone klasterzy osiągną niską temperaturę ( $< 100\text{K}$ ).
3. Odparowanie laserowe [5]. Pary metalu użytego do produkcji klasterów wytwarzane są w wyniku ablacji laserowej. Następnie otwierany jest zawór i wpuszczany jest hel o niskiej temperaturze. Chłodzi on pary metalu powodując, jak w poprzedniej metodzie, powstawanie klasterów. W metodzie tej wytwarzane są klasterzy z szerokiego przedziału wielkości od kilku do kilkuset atomów w klasterze. Jest to impulsowe źródło klasterów. Średnia koncentracja klasterów w strumieniu jest

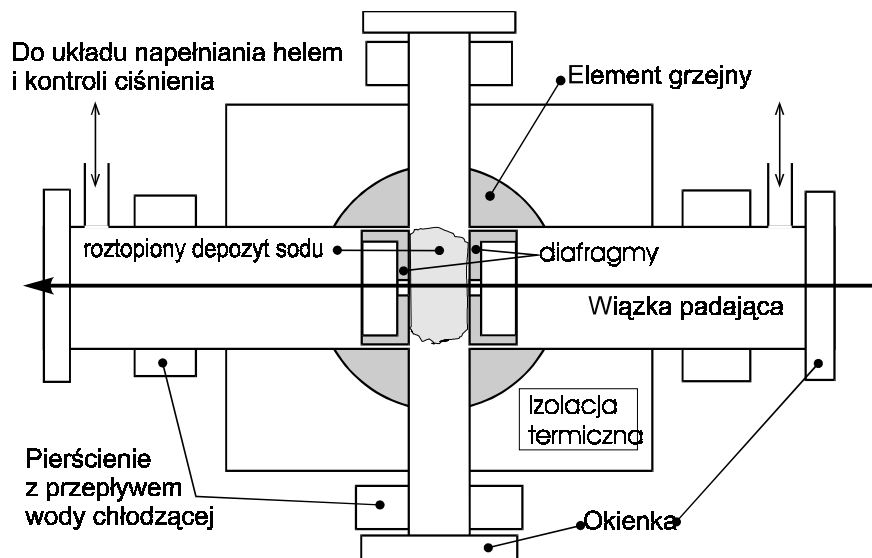
mniejsza niż w metodzie z dyszą ponaddzwiękową, chociaż w impulsie jest ona o wiele większa. W zasadzie, metoda ta jest używana do produkcji klasterów metalicznych neutralnych, ujemnie oraz dodatnio naładowanych. Nie ma w niej warunku na temperaturę wrzenia metalu. Temperatura klasterów jest równa lub mniejsza od temperatury ich źródła.

4. Metoda PACIS (pulsed-arc cluster-ion source) [6]. Jest ona nieco podobna do odparowania laserowego. Do wytwarzania pary metalu wykorzystywana jest jednak nie wiązka laserowa, lecz wyładowanie elektryczne. W jego rezultacie otrzymuje się zjonizowaną wiązkę klasterów. Przy zachowaniu odpowiednich warunków temperatura klasterów w wiązce może być bardzo niska. Metoda ta jest znacznie mniej kosztowna niż poprzednia, gdyż nie wymaga ona użycia lasera.
5. Metoda jonowa [7]. Jest ona wykorzystywana głównie do produkcji ciągłej wiązki pojedynczo zjonizowanych małych klasterów metalicznych. Wiązka klasterów powstaje w wyniku bombardowania powierzchni metalu jonami gazów szlachetnych. Ich energia kinetyczna wynosi od 10 do 20keV. Powstające klasterki mają wysoką temperaturę, która maleje w wyniku parowania powierzchni klastera. Metoda ta pozwala na wytwarzanie klasterów większości znanych metali. Proces powstawania klasterów nie jest jeszcze w pełni zrozumiany.

### **1.3. Metoda optyczna wytwarzania klasterów sodowych użyta w tej pracy.**

Wśród wielu metod wytwarzania klasterów jest oryginalna metoda opracowana w naszym zespole, pozwalająca na wytwarzaniu klasterów o rozmiarach promienia dochodzących nawet do kilkuset nanometrów [8],[9]. Schemat komórki do wytwarzania klasterów pokazano na rysunku 1.1.

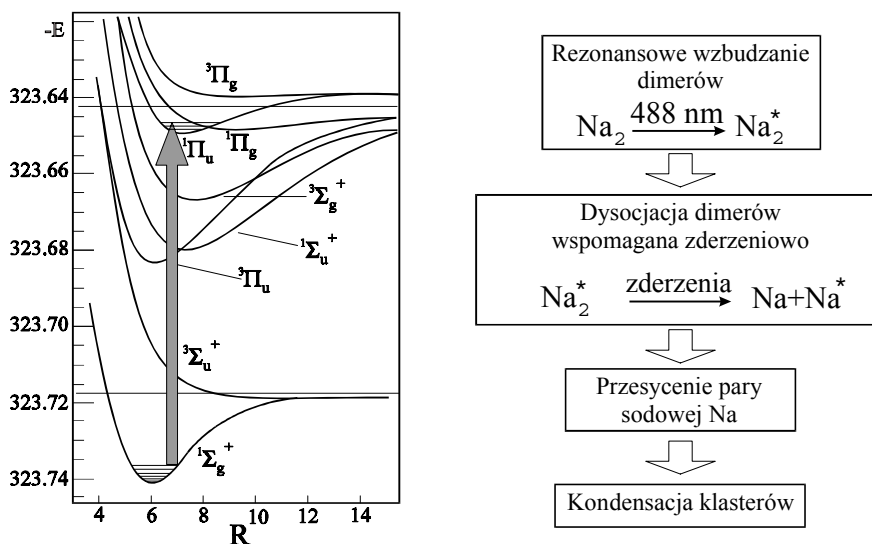
W krzyżowej komórce ze stali kwasoodpornej znajduje się hel pod stałym ciśnieniem z przedziału od 300Tr do 700Tr oraz nasycone pary sodu. Temperatura komórki jest ustalana i stabilizowana. Źródłem par sodowych jest depozyt metalicznego sodu, który w zastosowanych temperaturach o wartościach z przedziału od 600K do 800K topi się i paruje. Po odpowiednio długim czasie między parami sodu oraz sodem metalicznym ustala się równowaga termodynamiczna i pary stają się nasycone. Koncentracja par sodu, a dokładnie koncentracja atomów Na oraz cząsteczek sodu  $\text{Na}_2$  w ośrodku, zależy od jego temperatury [10]. Włączając w sposób nagły światło lasera  $\text{Ar}^+$ , pracującego na niebieskiej linii 488nm, rozpoczynamy proces tworzenia się i ewolucji klasterów. Światło o tej długości wzbudza cząsteczki sodu  $\text{Na}_2$ , które to w wyniku zderzeń z atomami helu ulegają dysocjacji, czyli powstają dwa atomy sodu. W obszarze wiązki laserowej znajduje się więc



Rysunek 1.1: Komórka w przekroju - widok z góry.

nadmiarowa ilość atomowych par sodu, czyli występuje przesylenie par atomowych.

Innym efektem oddziaływania wiązki laserowej z cząsteczkami sodowymi jest ich dwufotonowa jonizacja [11]. W ten sposób produkowana jest plazma. Zjonizowane cząsteczki sodu mogą być jądrami kondensacji, wokół których rośnie klaster. Na rysunku 1.2 pokazane zostały schematycznie procesy związane z powstawaniem klastrów.



Rysunek 1.2: Mechanizm prowadzący do kondensacji klastrów.

W chwili początkowej, tuż po włączeniu lasera, widać zieloną fluorescencję wzbudzonych cząsteczek sodowych, a następnie zaczyna pojawiać się niebieska mgła. Po chwili

niebieski kolor staje się dominujący, by następnie skupić się w niebiesko błyszczące, oddzielone od siebie pod mikroskopem, obiekty. W końcowym etapie ewolucji obiekty są bardzo wyraźnie widoczne, a ich ilość maleje, aż do ustalenia się średniej, stałej koncentracji zależnej od takich parametrów, jak temperatura komórki, ciśnienie gazu buforującego i moc wiązki lasera indukującego. Niebieska mgła, a następnie elastycznie rozpraszające światło lasera obiekty, to właśnie klaster sódowe.

Proces wzrostu, trwający od kilku do kilkudziesięciu sekund, nazywamy ewolucją klasterów. Podczas ewolucji rozmiary i koncentracja klasterów zmieniają się w czasie, osiągając wartości zależne od warunków termodynamicznych. Koncentracja klasterów maleje w trakcie ewolucji, a odpowiedzialna jest za to ich dyfuzja do obszarów poza wiązką laserową [12].

Zastosowana technika otrzymywania klasterów umożliwia pracę z obiektami rosnącymi w czasie, od rozmiarów cząsteczkowych do wielkości makroskopowych kropeł o rozmiarach rzędu setek nanometrów. Daje to możliwość obserwacji obiektów w znacznie większym zakresie rozmiarów w porównaniu z poprzednio wspomnianymi metodami.

## 2. Własności rozpraszające klasterów sodowych indukowanych optycznie.

### 2.1. Opis rozpraszania światła na klasterach sodowych w ramach teorii Mie.

Własności optyczne sferycznych cząstek metalowych po raz pierwszy zostały opisane w pełnej formie przez Gustawa Mie na początku tego wieku [13]. Teoria Mie jest do dziś wykorzystywana przez fizyków. Przy jej pomocy opisywane jest również oddziaływanie pola elektromagnetycznego z klasterami.

Teoria Mie opisuje rozpraszanie pola elektromagnetycznego na kulistym obiekcie zbudowanym z określonego materiału, który uwzględnia się w teorii poprzez współczynnik załamania. Pole elektromagnetyczne, które jest rozwiązaniem równań Maxwella we współrzędnych biegunowych, wyrażone jest w postaci nieskończonego szeregu fal parcjalnych. W praktyce, w przypadku cząstek o rozmiarach mniejszych od długości światła rozpraszanego, w obliczeniach wystarczy uwzględnić kilka pierwszych fal parcjalnych.

Natężenia światła o polaryzacji liniowej prostopadłej i równoległej do płaszczyzny obserwacji rozproszone na obiekcie kulistym, teoria Mie zapisuje w postaci:

$$I_{\parallel}(R, \lambda) = I_0 \left[ \frac{\lambda}{2\pi r} \left| \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^l \left( {}^e B_l(R) P_l^{(1)'}(\cos \Theta) \sin \Theta - {}^m B_l(R) \frac{P_l^{(1)}(\cos \Theta)}{\sin \Theta} \right) \right| \right]^2, \quad (2.1)$$

$$I_{\perp}(R, \lambda) = I_0 \left[ \frac{\lambda}{2\pi r} \left| \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^l \left( {}^e B_l(R) \frac{P_l^{(1)}(\cos \Theta)}{\sin \Theta} - {}^m B_l(R) P_l^{(1)'}(\cos \Theta) \sin \Theta \right) \right| \right]^2, \quad (2.2)$$

gdzie:

$I_0$  - natężenie światła padającego na kulkę,

$I_{\perp}$  - natężenie światła rozproszonego, prostopadle spolaryzowanego do płaszczyzny obserwacji, przy wiązce padającej również spolaryzowanej prostopadłe;

$I_{\parallel}$  - natężenie światła rozproszonego równoległe spolaryzowanego do płaszczyzny obserwacji, przy wiązce padającej również spolaryzowanej równoległe do płaszczyzny obserwacji;

$l$  - oznacza rząd fal parcjalnych,

${}^e B_l(R)$  oraz  ${}^m B_l(R)$  opisują odpowiednio tzw. mod TM oraz TE [13],

$\Theta$  - kąt obserwacji,

$R$  - promień kulki,

$r$  - odległość detektora od obiektu rozpraszającego.

Przytoczone wzory na wyliczanie zależności  $I_{\perp}(R, \lambda)$  oraz  $I_{\parallel}(R, \lambda)$  pokazują, jak zmienia się rozpraszanie światła na pojedynczym klasterze w funkcji promienia i długości fali rozpraszanej. W naszym przypadku mamy do czynienia z rozpraszaniem światła na wielu takich obiektach. Jeśli ich koncentracja jest na tyle mała, że światło nie ulega powtórny rozproszeniom oraz jeśli żadna cząstka nie znajduje się w cieniu innej [14], to całkowite

natężenie światła rozproszonego jest sumą natężeń światła pochodzących od wszystkich  $N$  klasterów.

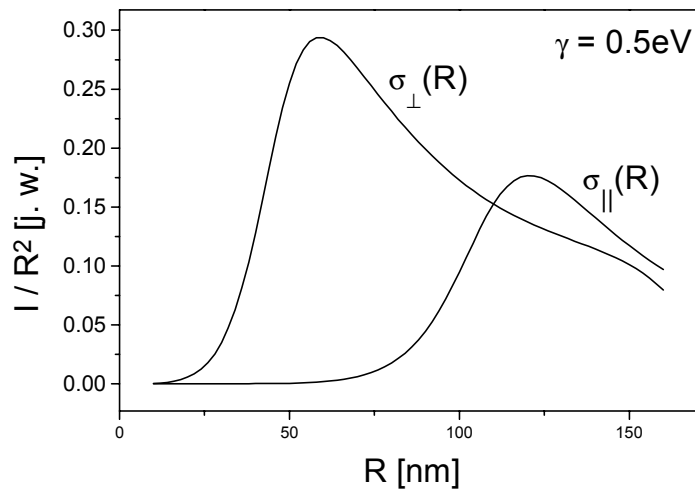
Oznaczmy przez:

$$\begin{aligned}\sigma_{\perp} &= \frac{I_{\perp}}{4\pi R^2} \\ \sigma_{\parallel} &= \frac{I_{\parallel}}{4\pi R^2}\end{aligned}\quad (2.3)$$

natężenia światła rozpraszane przez jednostkę powierzchni klastera o promieniu  $R$ , odpowiadające odpowiednio  $I_{\perp}$  i  $I_{\parallel}$  (patrz rysunek 2.1). Wówczas wzory na natężenie rozpraszanego światła przez  $N$  klasterów na wspomnianych polaryzacjach możemy zapisać w następujących postaciach:

$$\begin{aligned}i_{\perp} &= N \cdot 4\pi R^2 \cdot \sigma_{\perp} \\ i_{\parallel} &= N \cdot 4\pi R^2 \cdot \sigma_{\parallel}\end{aligned}\quad (2.4)$$

Oczywiście taka postać wzorów zawiera założenie, że wszystkie klasterki mają taki sam promień  $R$ .



Rysunek 2.1: Natężenia światła  $\sigma_{\perp}$  oraz  $\sigma_{\parallel}$  rozpraszane przez jednostkę powierzchni w funkcji promienia policzone zgodnie z teorią Mie dla światła o długości  $\lambda = 488\text{nm}$  dla  $\gamma = 0.5\text{eV}$  i  $\omega_p = 5.6\text{eV}$ .

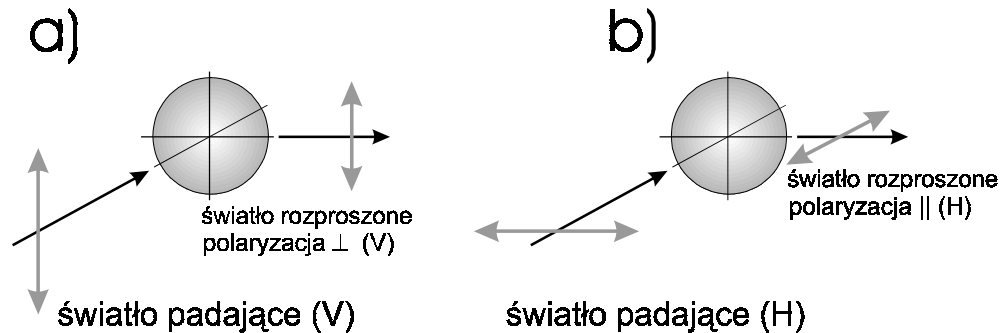
## 2.2. Kierunki polaryzacji światła w przeprowadzonych doświadczeniach.

W niniejszej pracy przyjęto następujące oznaczenia kierunków polaryzacji światła, określone ustawieniem rotatora polaryzacji ustalającego kierunek polaryzacji światła padającego (rozpraszanego) bądź analizatora ustalającego kierunek polaryzacji światła obserwowanego:

- H - ustawienie poziome, kierunek polaryzacji światła równoległy ( $\parallel$ ) względem płaszczyzny obserwacji (rysunek 2.2a),
- V - ustawienie pionowe, kierunek polaryzacji prostopadły ( $\perp$ ) do płaszczyzny obserwacji (rysunek 2.2b).

Światło rozpraszane obserwowano było pod kątem  $90^\circ$  do kierunku wiązki padającej. Oznaczenia pomiarów zależnych od polaryzacji uwarunkowane są ustawieniami polaryzacji wiązki padającej i polaryzacji światła obserwowanego (analyzera przed szczeliną wejściową monochromatora lub przed kamerą). Przyjmijmy, że:

- $I_{VV}$  oraz  $I_{HH}$  to natężenia światła obserwowanego na polaryzacjach głównych; polaryzacje główne  $VV$  oraz  $HH$  oznaczają jednakową polaryzację wiązki padającej i światła obserwowanego (rysunek 2.2);
- $I_{HV}$  oraz  $I_{VH}$  to natężenia światła obserwowanego na polaryzacjach krzyżowych; polaryzacje krzyżowe oznaczają sytuację, kiedy analyzer wyznacza kierunek polaryzacji obrócony o  $90^\circ$  względem kierunku polaryzacji wiązki padającej, np.  $HV$  oznacza poziomą polaryzację wiązki padającej oraz pionową polaryzację światła obserwowanego;



Rysunek 2.2: Definicje kierunków polaryzacji światła.

W przeprowadzonych pomiarach płaszczyzną obserwacji była płaszczyzna pozioma.

### 2.3. Wyznaczenie współczynnika tłumienia gazu elektronowego w dużych klas- terach sodowych.

Teoria Mie, przy pomocy której opisuje się rozpraszanie światła na obiektach kulistych zakłada, że funkcja dielektryczna ośrodka rozpraszającego jest znana i stanowi jej parametr wejściowy. Można ją wyznaczyć eksperymentalnie bądź modelować. Ze względu na bardzo dużą koncentrację elektronów swobodnych w metalach, osiągającą wartość rzędu  $10^{27} \frac{1}{m^3}$ , ich oddziaływanie ze światłem stanowi dominujący mechanizm sprzężenia promieniowania elektromagnetycznego z metalem i determinuje jego własności optyczne.

Dlatego też przytaczany w literaturze model funkcji dielektrycznej metalu jest w rzeczywistości modelem funkcji dielektrycznej elektronów swobodnych i najczęściej jest to tzw. funkcja Drudego. W modelu tym traktuje się elektrony klasycznie, przypisując

im masę efektywną „ $m$ ”, zamiast masy elektronu swobodnego i zakłada się, że procesy dyssypacji energii elektronu można opisać jednym, niezależnym od energii parametrem „ $\gamma$ ”, zwanym współczynnikiem tłumienia, będącym miarą prędkości tłumienia ruchu elektronów.

Funkcja dielektryczna Drudego zapisywana jest w postaci [15]:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma}, \quad (2.5)$$

gdzie:

$\omega_p = [\frac{Ne^2}{m\varepsilon_0}]^{\frac{1}{2}}$  - częstość plazmowa,

$\gamma$  - współczynnik tłumienia ruchu elektronów,

$\omega$  - częstość fali padającej,

$N$  - koncentracja elektronów swobodnych,

$e$  - ładunek elektronu,

$m$  - masa efektywna elektronu,

$\varepsilon_0$  - przenikalność dielektryczna próżni.

Ze wszystkich metali sód jest jednym z najlepszych kandydatów do opisywania jego przenikalności dielektrycznej przy pomocy modelu Drudego. Współczynniki tłumienia policzone dla sodu w bryle w temperaturach 77K i 273K w modelu Drudego wynoszą odpowiednio 0.024 eV i 0.13 eV<sup>1</sup> [16].

Funkcja dielektryczna Drudego zastosowana do klastrów nie uwzględnia faktu, że ich właściwości mogą zależeć od ich rozmiaru i mogą znacznie różnić się od tych, jakie ma metal w bryle. Znana jest zależność współczynnika tłumienia  $\gamma$  dla małych klastrów postaci [17][18]:

$$\gamma(R) = \gamma_0 + \frac{a}{R}, \quad (2.6)$$

gdzie  $R$  jest promieniem klastra,  $a = Av_F$  jest stałą,  $\gamma_0$  niezależną od rozmiaru częścią  $\gamma(R)$ ,  $v_F$  prędkością Fermiego elektronów przewodnictwa,  $A$  stałą proporcjonalności rzędu jednośc. Współczynnik tłumienia  $\gamma$  jest związany z rozpraszaniem elektronów. W przypadku obiektów metalowych o małych rozmiarach, mniejszych niż średnia droga swobodna elektronów przewodnictwa metalu, w rozpraszaniu elektronów zaczyna dominować rozpraszanie na powierzchni obiektów. Dlatego też dla takich obiektów wraz z maleniem ich promienia powinna rosnąć wartość współczynnika tłumienia.

W przypadku sodu średnia droga swobodna elektronów przewodnictwa wynosi  $\delta = 34\text{nm}$  [19]. Należy się więc spodziewać stałej wartości współczynnika tłumienia ruchu elektronów przewodnictwa dla klastrów sodowych o promieniach większych od kilkudziesięciu nanometrów.

Jak do tej pory jedyne znane nam publikowane dane eksperymentalne, dotyczące pomiaru współczynnika tłumienia ruchu elektronów  $\gamma$ , pochodzą z pomiarów przekroju czynnego na fotoabsorpcję na jeden elektron dla bardzo małych klastrów składających się z 14 do 48 atomów [20] oraz z 49 do 60 atomów [21]. W przypadku małych klastrów

---

<sup>1</sup>W niniejszej pracy wszystkie wartości współczynnika tłumienia  $\gamma$  oraz częstości  $\omega$  wyrażono w elektronowoltach, tzn. podano odpowiadające im energie. Jednocześnie skrócono zapis  $\hbar\gamma$  i  $\hbar\omega$  do postaci  $\gamma$  i  $\omega$ .



( $R \ll \lambda$ ) całkowity przekrój czynny na fotoabsorpcję światła wynikający z teorii Mie przyjmuje postać krzywej Lorentza z zależną od promienia szerokością [22]:

$$\sigma(\omega, R) = \sigma_0 \frac{[\omega\gamma(R)]^2}{(\omega^2 - \omega_M^2)^2 + [\omega\gamma(R)]^2} \quad (2.7)$$

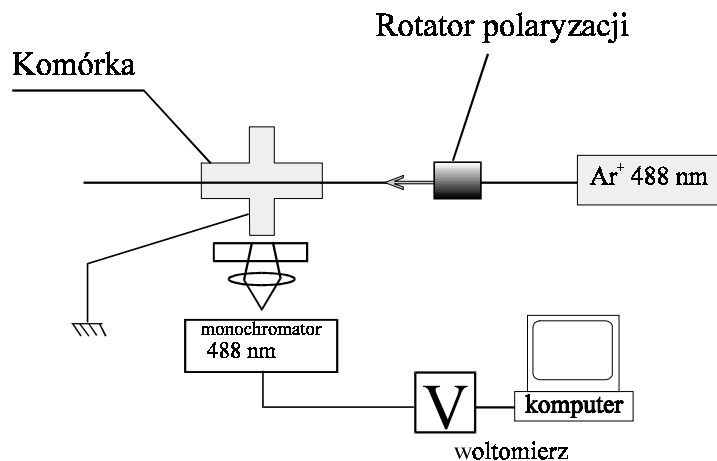
gdzie:  $\sigma_0$  maksymalna amplituda,  $\omega_M = \frac{\omega_p}{\sqrt{3}}$  jest częstotliwością tzw. rezonansu Mie,  $\omega_p$  jest częstotliwością plazmową metalu.

Szerokość połówkowa rezonansu fotoabsorpcyjnego, a więc i współczynnik tłumienia  $\gamma$ , zmierzonego dla klasterów sferycznych składających się od 14 do 49 atomów zmienia się od  $0.28eV$  do  $0.54eV$ . Rośnie więc, a nie maleje, w tym przedziale rozmiarów, jak można by się było spodziewać ze wzoru (2.6). Szerokość połówkowa zmierzonego przekroju czynnego dla klasterów składających się od 49 do 59 atomów zmniejsza się od  $0.63eV$  do  $0.44eV$ .

Niezależnie od tego, czy klaster jest duży, czy mały w porównaniu z długością fali, parametrem zewnętrznym, niezbędnym do opisu światła rozpraszanego przez klaster przy pomocy teorii Mie, jest funkcja dielektryczna klastera. W przypadku funkcji typu Drudego (2.5) jej znajomość sprowadza się w zasadzie do znajomości współczynnika tłumienia ruchu elektronów  $\gamma$ , o ile przyjmijmy, że częstotliwość plazmowa  $\omega_p$  jest dana. Przyjmijmy, że  $\omega_p$ , a w zasadzie energia jej odpowiadająca, w przypadku otrzymywanych przez nas klasterów sodowych jest stała, niezależna od promienia i jest równa  $\omega_p = 5.6eV$ . Zakładamy więc, że wynosi tyle co dla sodu w bryle [15].

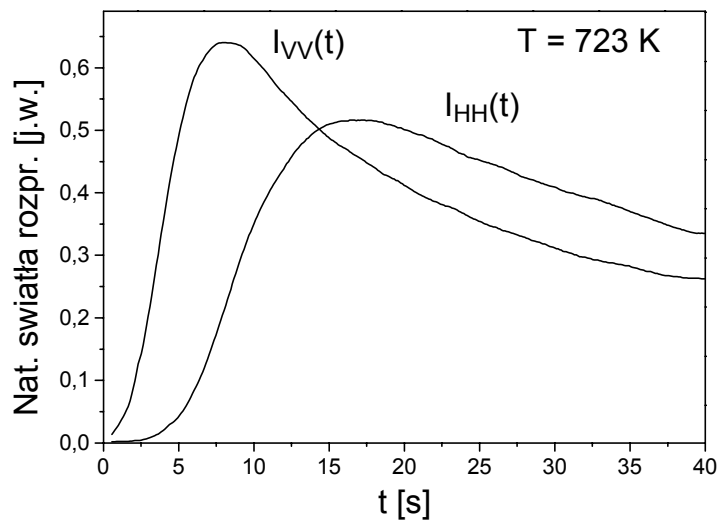
### 2.3.1. Opis doświadczenia.

Zajmiemy się teraz opisem eksperymentu nad wyznaczeniem współczynnika tłumienia gazu elektronowego w dużych klasterach sodowych, korzystając ze zmian właściwości rozpraszających klasterów sodowych w funkcji promienia. W tym celu niezbędny jest pomiar natężeń światła rozpraszanego  $I_{VV}(t)$  oraz  $I_{HH}(t)$ . Układ doświadczalny, przy użyciu którego wykonywane były pomiary, pokazany został na rysunku 2.3.



Rysunek 2.3: Schemat układu eksperymentalnego.

Wiązka lasera  $\text{Ar}^+$  o długości 488nm jest odpowiedzialna za powstawanie klasterów. W chwili  $t=0$  zostaje ona odsłonięta i rozpoczyna się ewolucja klasterów. Rosną one, aż do momentu osiągnięcia stabilnego promienia i koncentracji. W tym czasie światło rozproszone o długości 488nm rejestrowane jest pod kątem  $90^\circ$  na dwóch polaryzacjach głównych przy użyciu monochromatora. Dokładne pomiary czułości monochromatora na polaryzację pionową i poziomą światła wykazały, że sygnał  $I_{VV}$  jest 1.36 razy osłabiany w stosunku do  $I_{HH}$ . Niezbędne stało się więc przeskalowanie uzyskanych sygnałów optycznych w celu dalszej ich analizy. Pomiary prowadzone były dla wiązki lasera argonowego o mocy  $P = 0.2\text{W}$  dla temperatur z przedziału 723-770K. Przykład uzyskanych danych eksperymentalnych pokazany został na rysunku 2.4.



Rysunek 2.4: Natężenie światła rozpraszane prostopadle  $I_{VV}(t)$  i równoległe  $I_{HH}(t)$  do płaszczyzny obserwacji w temperaturze  $T=723\text{K}$ .

Zależności  $I_{VV}(t)$  oraz  $I_{HH}(t)$  rejestrowane były w kolejnych cyklach pomiarowych. Wobec tego początkowe warunki doświadczalne w skutek fluktuacji mogły różnić się nieco. Ewolucja klasterów mogła więc przebiegać nieco inaczej. Dlatego też, jednocześnie z rozpraszaniem pod kątem  $90^\circ$ , mierzony był sygnał rozpraszania do przodu. Powtarzalność sygnałów rozpraszania do przodu gwarantowała, że ewolucje klasterów w obu przypadkach były takie same.

### 2.3.2. Metoda wyznaczania oraz wynik pomiaru współczynnika tłumienia $\gamma$ .

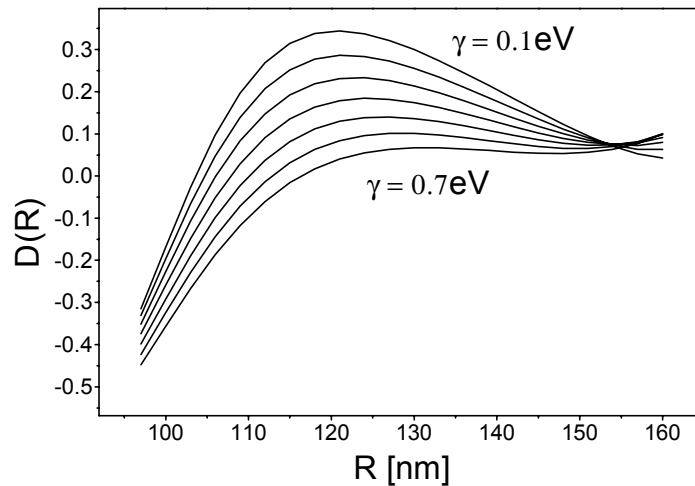
Natężenia światła rozpraszane przez pojedynczy klaster w tzw. polu dalekim, zgodnie z teorią Mie, dane są wzorami (2.1) i (2.2).  $I_{||}(R, \lambda)$  oraz  $I_{\perp}(R, \lambda)$  są natężeniami liniowo spolaryzowanego światła rozpraszane przez pojedynczy klaster w kierunku równoległym i prostopadłym do płaszczyzny obserwacji. Przy założeniu  $\gamma=0$  eV, dla  $I_{\perp}(R, 488\text{nm})$  pierwsze maksimum rozpraszania występuje dla klastera o promieniu  $R_1=55$  nm, a dla  $I_{||}(R, 488\text{nm})$  dla klastera o promieniu  $R_2=119$  nm. Maksima te są konsekwencją odpowied-

nio rozpraszania światła na dipolu elektrycznym i sumie rozpraszania na dipolu magnetycznym i kwadrupolu elektrycznym [23]. Dopiero dla odpowiednio dużych promieni uwidacznia się wkład wyższych multipoli do natężenia światła rozpraszanego pod kątem prostym.

Wielkość promieni odpowiadających poszczególnym maksimumom ulega zmianie stosownie do wartości  $\gamma$ . Ogólnie można powiedzieć, że  $R_1$  i  $R_2$  rosną ze wzrostem  $\gamma$  i tak dla  $\gamma=10\text{eV}$   $R_1=116$  nm, a  $R_2=162$  nm. Wartość samych maksimumów zmniejsza się ze wzrostem  $\gamma$ . Dla  $\gamma$  z przedziału 0 eV - 1 eV wartości  $R_1$  i  $R_2$  zmieniają się nieznacznie ( $\gamma=1$  eV,  $R_1=67$  nm,  $R_2=122$  nm).

Obliczenia numeryczne dotyczące rozważanych natężeń ograniczamy do pierwszych czterech multipoli, tzn.  $l=1,2,3,4$ . Uwzględnienie większej ilości multipoli w obliczeniach wnosi niewielki wkład do otrzymanych krzywych, dla zakresu rozmiarów klasterów obserwowanych w omawianym doświadczeniu. Nie robimy przy tym żadnych założeń upraszczających związanych z wzajemną relacją promienia klastera do długości fali rozpraszanej. Zakładamy, że badane klasterzy znajdują się w ośrodku, którego funkcja dielektryczna da się przybliżyć dostatecznie dobrze funkcją dielektryczną próżni.

Problem, jaki napotyka się porównując rzeczywiste przebiegi czasowe (rysunek 2.4) z teoretycznymi (rysunek 2.1) wynika z faktu, że w teorii rozważa się rozpraszanie światła na pojedynczym klasterze, a w przebiegach doświadczalnych mamy również informację o ilości klasterów rozpraszających światło  $N(t)$  (patrz wzór 2.4).  $N(t)$  może również wpływać na położenie maksimumów rozpraszania. Należałoby więc w jakiś sposób uniezależnić się od ilości klasterów  $N$ .



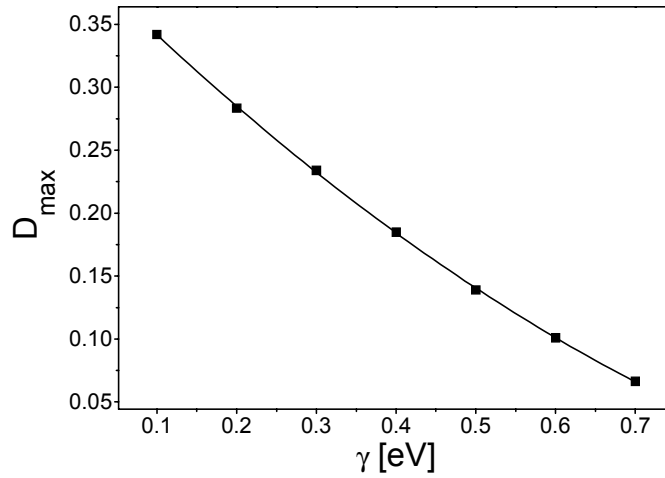
Rysunek 2.5: Zależność stopnia polaryzacji  $D(R)$  wyliczonego z teorii Mie od promienia klastera  $R$  dla różnych wartości współczynnika tłumienia  $\gamma$ . Wartości  $\gamma$  wynoszą odpowiednio 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 oraz 0.7 eV.

Wprowadźmy wielkość zwaną stopniem polaryzacji światła rozpraszanego zdefiniowaną następująco:

$$D(R) = \frac{I_{\parallel}(R) - I_{\perp}(R)}{I_{\parallel}(R) + I_{\perp}(R)}. \quad (2.8)$$

Stopień polaryzacji  $D(R)$  silnie zależy od promienia klastra, tak jak pokazano to na rysunku 2.5.  $D(R)$  jest także funkcją współczynnika tłumienia  $\gamma$ .

Stopień polaryzacji  $D(R)$  wykazuje największą czułość na parametr  $\gamma$  w maksimum zależności  $D(R)$ . Oznaczmy ją przez  $D_{\max}$ . Zależność  $D_{\max}$  od parametru  $\gamma$  pokazana została na rysunku 2.6.



Rysunek 2.6: Zależność stopnia polaryzacji  $D_{\max}(R)$  od parametru  $\gamma$  obliczona przy użyciu teorii Mie.

Jak zostało pokazane w [24] dyspersja promienia klastra jest mała w porównaniu ze średnią jego wartością. Możemy więc opisać wielkość  $N(t)$  klastrów w danej chwili czasowej przy pomocy średniego promienia  $R(t)$ . Mamy więc:

$$\begin{aligned} I_{VV}(t) &\propto N(t) \cdot I_{\perp}(R(t)), \\ I_{HH}(t) &\propto N(t) \cdot I_{\parallel}(R(t)). \end{aligned} \quad (2.9)$$

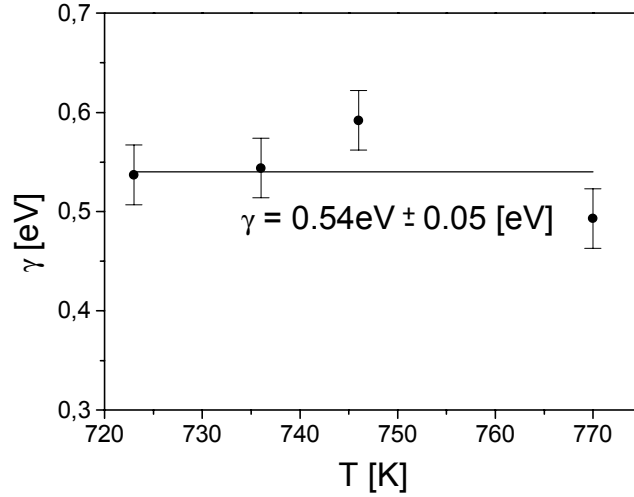
Eksperymentalnie uzyskane natężenia rozpraszanego światła  $I_{VV}(t)$  oraz  $I_{HH}(t)$  zależą więc od ilości klastrów rozpraszających światło oraz od natężenia światła rozproszonego na pojedynczym klastrze.

$$D^{\text{exp}}(t) = \frac{I_{HH}(t) - I_{VV}(t)}{I_{HH}(t) + I_{VV}(t)}. \quad (2.10)$$

Zgodnie z (2.9) możemy zapisać:

$$D^{\text{exp}}(t) = \frac{I_{\parallel}(R(t)) - I_{\perp}(R(t))}{I_{\parallel}(R(t)) + I_{\perp}(R(t))}. \quad (2.11)$$

Zmierzony w doświadczeniu stopień polaryzacji jest więc niezależny od ilości klasterów  $N$  i jest funkcją czasu  $t$ . Jego wartość w maksimum  $D_{\text{max}}^{\text{exp}}(t)$  możemy porównać z uzyskanym z teorii Mie stopniem polaryzacji  $D_{\text{max}}(R)$ . Szukając parametrów, przy których spełnione jest równanie  $D_{\text{max}}(R_m) = D_{\text{max}}^{\text{exp}}(t_m)$  znajdziemy  $\gamma$ , promień  $R_m$  i czas  $t_m$ , przy którym  $R = R_m$ . Procedura ta powtórzona została dla czterech zestawów danych z zakresu temperatur między 723K a 770K. Uzyskane w ten sposób wartości współczynnika tłumienia  $\gamma$  nie wykazują zależności temperaturowej w badanym przedziale temperatur i dają wartość średnią  $\gamma=0.54$  eV z dyspersją  $\pm 0.05$  eV dla klasterów z promieniem  $R_m = 120\text{nm} \pm 5\text{nm}$  rysunek 2.7.

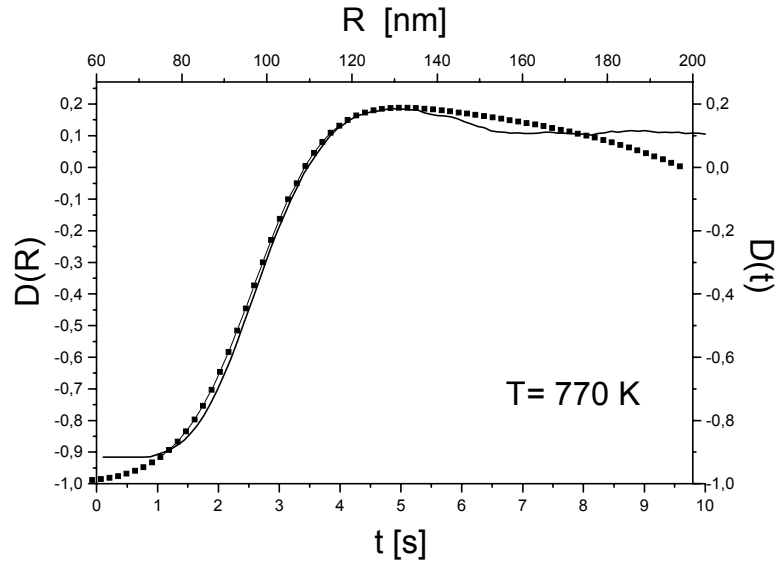


Rysunek 2.7: Wyznaczone eksperymentalnie wartości współczynnika tłumienia  $\gamma$  dla czterech różnych temperatur.

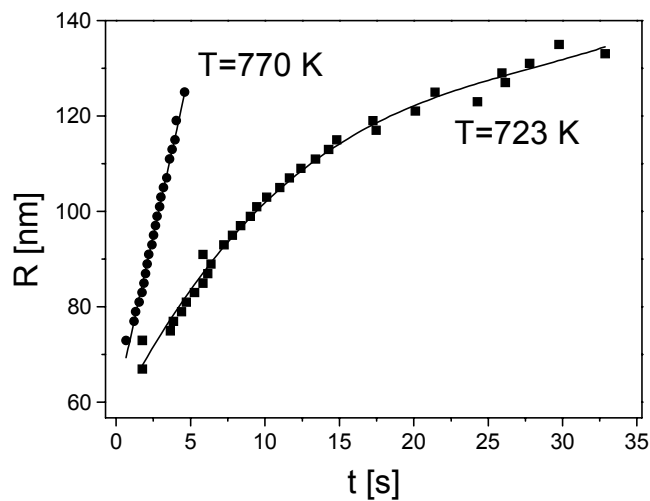
Można dalej spróbować oszacować dynamikę wzrostu klasterów, tzn. zależność  $R(t)$  dopasowując stopień polaryzacji  $D(R)$  (równanie 2.8), ze współczynnikiem tłumienia  $\gamma$  określonym eksperymentalnie, do zależnego od czasu eksperymentalnego stopnia polaryzacji  $D^{\text{exp}}(t)$ . Na rysunku 2.8 zostało pokazane takie właśnie dopasowanie dla temperatury  $T=770\text{K}$ .

Dopasowanie to zostało zrobione przy założeniu, że funkcja dielektryczna, niezależnie od promienia, zawiera współczynnik tłumienia  $\gamma=0.54$  eV. Ponieważ, jak to już zostało wspomniane wcześniej, średnia droga swobodna elektronów przewodnictwa dla sodu wynosi  $\delta = 34\text{nm}$ , to założenie to jest uzasadnione dla klasterów o promieniu większym od  $\delta$ . Dwa przykłady zależności  $R(t)$  pokazane są na rysunku 2.9.

Zależność  $R(t)$  jest liniowa w temperaturze 770K w badanym przedziale wielkości klasterów. Dla niższych temperatur (patrz rysunek 2.9) klasterzy rosną wolniej, aż do osiągnięcia stabilnych rozmiarów w końcu procesu ewolucji.



Rysunek 2.8: Dopasowanie stopnia polaryzacji  $D(R)$  policzonego w funkcji promienia  $R$  klasterów (teoria Mie,  $\gamma=0.52$  eV) do eksperymentalnie wyznaczonego stopnia polaryzacji  $D^{\text{exp}}(t)$  mierzonego w funkcji czasu.



Rysunek 2.9: Zależność średniego promienia klasterów  $R$  od czasu  $t$  dla temperatur  $T=723\text{K}$  (kropki) oraz  $T=770\text{K}$  (kwadraty).

Podana powyżej metoda szacowania współczynnika tłumienia ruchu elektronów  $\gamma$  pozwala nam obliczyć, ile wynosi on w punkcie odpowiadającym maksimum stopnia polaryzacji  $D_{\text{max}}$ . Okazuje się, że dla przeprowadzonych pomiarów współczynnik  $\gamma$  jest niezależny od temperatury. Znając  $\gamma$  można dalej próbować znaleźć dynamikę wzrostu klasterów, czyli zależność promienia  $R(t)$  od czasu ewolucji. Tak więc potrafimy opisać

własności optyczne klasterów, tzn. wyznaczyć  $\gamma$  i na tej podstawie szacować, jak zmienia się średni promień w czasie. Nie mamy natomiast informacji o koncentracji klasterów w obszarze oświetlanym przez wiązkę laserową. Jej wyznaczeniu poświęcony jest następny rozdział.

### 3. Zmiana koncentracji klasterów sodowych w trakcie ewolucji.

Przeprowadzone dotychczas badania [12][25] dotyczące ewolucji i własności klasterów opierały się głównie na pomiarach zmian natężenia rozpraszanego światła laserowego na klasterach, przy użyciu monochromatora wyposażonego w fotopowielacz. Dane uzyskane tą metodą nosły więc informację o ilości i własnościach rozpraszających klasterów z całego badanego obszaru. W celu lepszego opisanie własności optycznych klasterów niezbędne stało się kontrolowanie koncentracji klasterów w czasie ewolucji. Nie można jednak bezpośrednio oszacować ich ilości z zarejestrowanych przy pomocy monochromatora sygnałów rozproszeniowych  $I_{VV}(t)$  oraz  $I_{HH}(t)$ . W pracy [25] pokazane zostało, jak zmienia się względna koncentracja klasterów w czasie ewolucji. Z sygnałów  $I_{VV}(t)$  oraz  $I_{HH}(t)$  zmierzonych dla różnych długości fal światła rozpraszanego, poprzez dopasowywanie do nich krzywych wynikających z teorii Mie, uzyskano tę właśnie koncentrację. Jak pokazują zamieszczone w pracy [25] wyniki, względna koncentracja klasterów w czasie ewolucji maleje.

Niezbędne stało się jednak wypracowanie metody pomiarowej pozwalającej jednocześnie oszacować bezwzględną ilość klasterów rozpraszających światło. Jednocześnie metoda ta powinna umożliwiać pomiar natężeń światła rozpraszanego  $I_{VV}(t)$  i  $I_{HH}(t)$ .

#### 3.1. Opis układu służącego do pomiaru koncentracji klasterów oraz rejestracji światła na nich rozpraszanego.

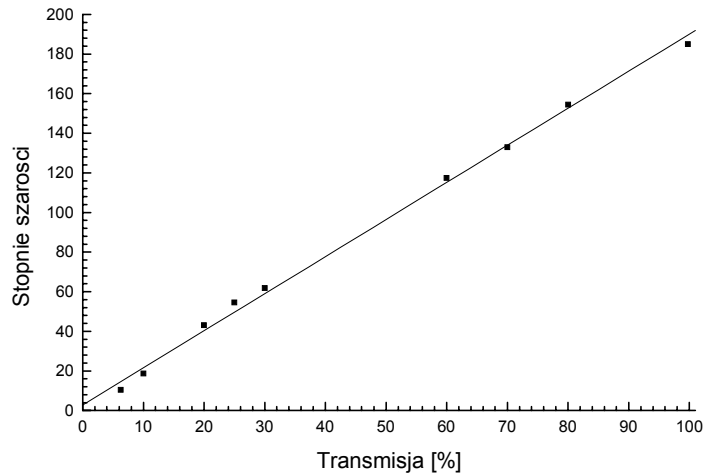
Do bezpośredniego pomiaru koncentracji klasterów rozpraszających światło i rejestracji natężenia światła na nich rozpraszanego używaliśmy zestawu mikroskopowego zintegrowanego z kamerą CCD-4230P firmy Bishke oraz systemu „MultiScan” służącego do rejestracji i obróbki obrazów. Układ ten umożliwiał oglądanie małych obiektów z odległości ok. 10cm, co było ważne, ponieważ ramię komórki, przez które zliczane były klaster, miało długość 8cm. Obecność par sodowych w temperaturze kilkuset stopni uniemożliwiała umieszczenie soczewek mikroskopu wewnątrz komórki.

Rozdzielczość układu służącego do pomiaru koncentracji klasterów przekraczała 100 linii/mm. Rejestrowano obrazy o rozmiarach 491 x 370 pikseli w 256 stopniach szarości. Głębina ostrości wynosiła ok. 1mm. Rzeczywista powierzchnia rejestrowanego obrazu miała 0.2 mm<sup>2</sup>. Powiększenie mikroskopu wynosiło 100x.

Przy użyciu kamery rejestrowane były więc klaster z objętości 0.2 mm<sup>3</sup>. Objętość ta stanowiła niewielki wycinek przestrzeni z jakiej było rejestrowane natężenie rozpraszanego światła przy użyciu monochromatora. Zwiększenie objętości, w której liczone były klaster, poprzez zmniejszenie powiększenia mikroskopu powodowało, iż na ekranie monitora było ich zbyt dużo, co zmniejszało czytelność obrazu. Na podstawie zliczonej ilości klasterów w obserwowanej objętości wnioskowaliśmy o koncentracji klasterów w wiązce lasera indukującego.

W pomiarach wykonanych przy użyciu monochromatora sygnał optyczny rejestrowany był fotopowielaczem. W omawianym doświadczeniu elementem światłoczułym była matryca CCD kamery zintegrowanej z mikroskopem. Należało sprawdzić, czy pracowała ona w obszarze liniowym. Na rysunku 3.1 pokazana została charakterystyka natężeniowa elementu CCD.





Rysunek 3.1: Charakterystyka elementu CCD.

Charakterystykę tą wykonano w następujący sposób: światło o długości 488 nm pochodzące z lasera argonowego równomiernie oświetlało ekran, który oglądany był kamerą CCD. Następnie między obiektyw kamery a ekran wkładane były filtry szare o różnej transmisji i zapisywane były obrazy rejestrowane przez kamerę. Dalej liczona była średnia jasność pikseli na zarejestrowanych obrazach. Na osi odciętych pokazana jest procentowa ilość światła jaką transmitowały filtry szare, a na osi rzędnych średnia jasność piksela na obrazie. Maksymalna jasność piksela wynosiła  $255^2$ .

Rysunek 3.1 pokazuje, że w przedziale od 6 do 200 stopni szarości element CCD z dobrym przybliżeniem pracował w obszarze liniowym. Dokładniejsze pomiary wykazały, że przedział ten można poszerzyć do 230 stopni szarości. Dlatego też w eksperymentach, w których mierzone było natężenie światła rozpraszanego na klastrach, zapewniono by rejestrowane w jednostkach względnych to natężenie było z przedziału 6 - 230 stopni szarości.

Sprawdzona została również czułość układu rejestrującego na kierunek polaryzacji światła. Z pomiarów wynikało jednoznacznie, że na oba rejestrowane kierunki polaryzacji światła  $H$  i  $V$  o długości 488nm układ z dokładnością do 0.5% był jednakowo czuły. Podobne rezultaty uzyskano dla światła o długości 632nm.

### 3.2. Pomiary rozpraszania światła wykonane przy użyciu kamery CCD.

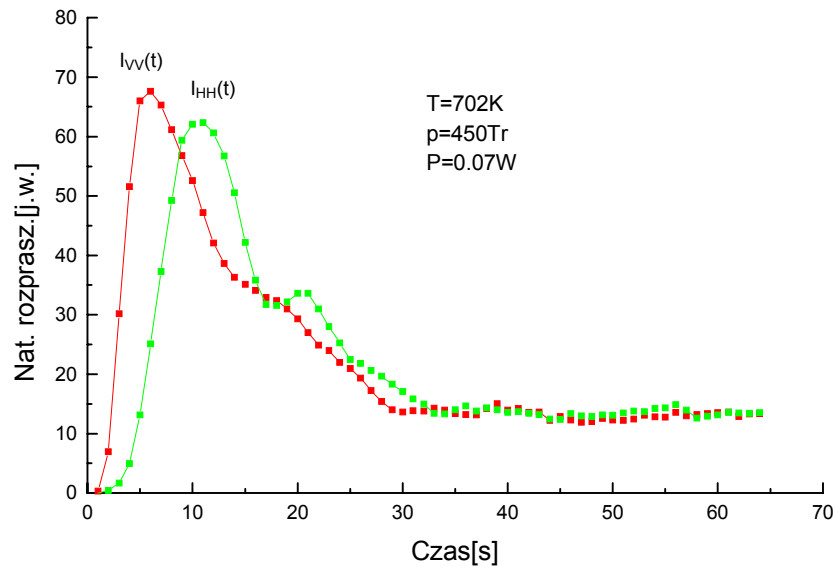
Wcześniejsze pomiary natężenia  $I_{VV}(t)$  i  $I_{HH}(t)$  światła rozpraszanego na chmurze klastrów pod kątem  $90^\circ$  w stosunku do kierunku wiązki padającej wykonywane były przy użyciu monochromatora z fotopowielaczem. Dlatego też na początek postanowiliśmy sprawdzić, jak wyglądają podobne pomiary wykonane przy użyciu kamery CCD.

Przy pomocy systemu MultiScan rejestrowane były obrazy z obszaru, w którym znaj-

---

<sup>2</sup>Wartość jasności pikseli na obrazach podawana jest w tzw. stopniach szarości. Są to jednostki względne.

dowały się klasterzy, w równych odstępach czasu wynoszących 1s, począwszy od momentu włączenia wiązki laserowej. Następnie liczona była suma jasności wszystkich pikseli na kolejnych obrazach. Powinna ona być proporcjonalna do natężenia światła rozpraszanego przez klasterzy w momencie zapisywania obrazu. W celu uniknięcia operowania dużymi liczbami, uzyskana w wyniku sumowania całkowita jasność obrazu dzielona była przez ilość pikseli na obrazie. Uzyskano w ten sposób średnią jasność pikseli na obrazie. Następnie wartości średniego poziomu jasności pikseli na obrazach nanoszone były na wykres, którego osią odciętych była oś czasu, tzn. chwile czasowe, w których rejestrowane były kolejne obrazy. Uzyskane po połączeniu punktów krzywe obrazują, jak zmienia się natężenie światła rozpraszanego przez klasterzy. Na rysunku 3.2 pokazane zostały przykładowo krzywe, obrazujące zmianę średniej jasności pikseli na obrazach zapisanych podczas ewolucji klasterów w temperaturze  $T=702\text{K}$  dla mocy wiązki laserowej  $P=0.07\text{W}$ . Ciśnienie gazu buforującego wynosiło 450 Tr.



Rysunek 3.2: Średnia jasność pikseli na obrazach wykonanych podczas ewolucji klasterów.

Sygnały rozproszeniowe uzyskane przy użyciu kamery CCD (rysunek 3.2) oraz monochromatora z fotopowielaczem (rysunek 2.4) mają podobny kształt. Oznaczamy je również odpowiednio  $I_{VV}(t)$  oraz  $I_{HH}(t)$ .

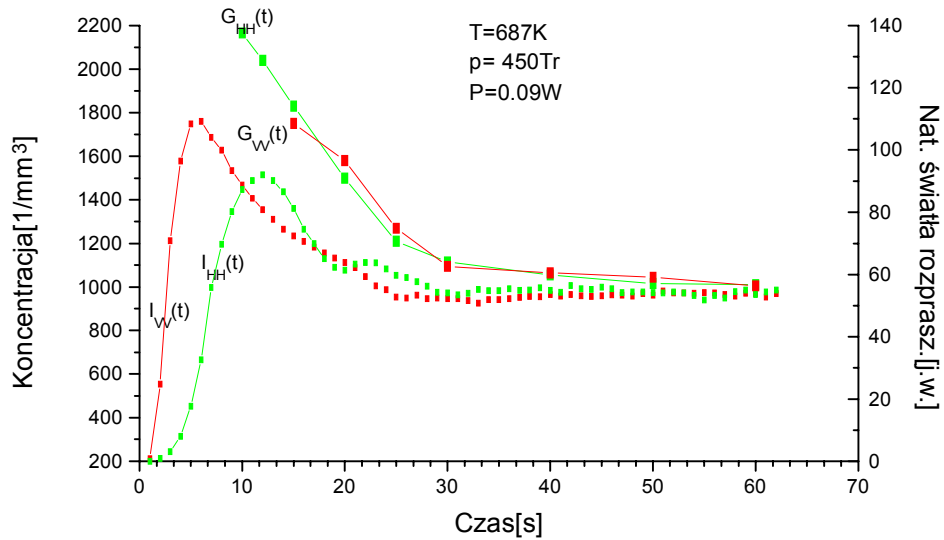
### 3.3. Zmiany koncentracji klasterów w czasie.

Wykonane zostały dwa pomiary koncentracji klasterów oraz światła na nich rozproszonego w temperaturze 702K dla mocy wiązki laserowej  $P=0.07\text{W}$  oraz w temperaturze 687K dla mocy wiązki laserowej  $P=0.09\text{W}$ . W obu przypadkach ciśnienie gazu buforującego było równe 450 Tr. Obrazy z obszaru, w którym powstawały klasterzy, zapisywane były co 1s.

W sposób zaprezentowany w poprzednim rozdziale wyznaczono krzywe  $I_{VV}(t)$  oraz  $I_{HH}(t)$  obrazujące, jak zmienia się natężenie światła rozpraszanego przez klasterzy w obu

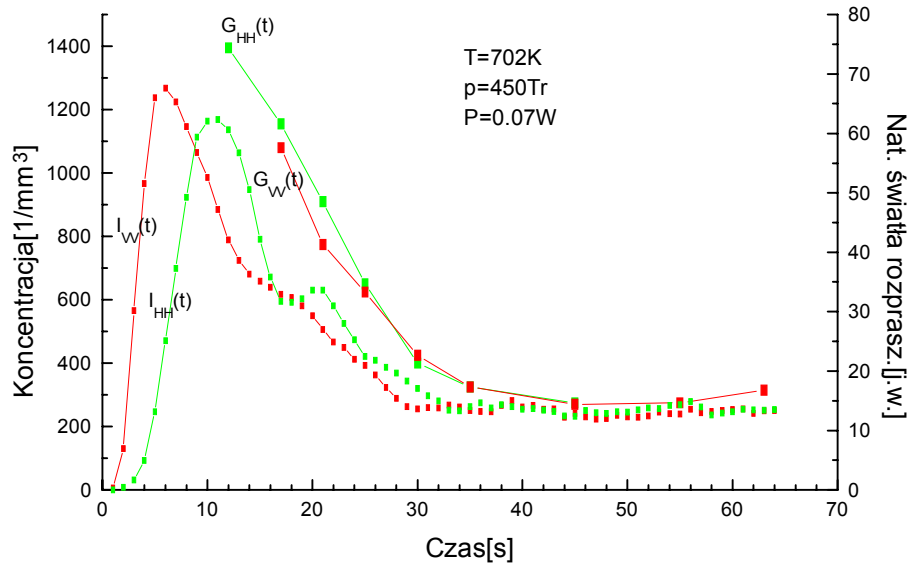
pomiarach (rysunki 3.3 i 3.4).

Następnie zliczana była ilość klasterów na zarejestrowanych obrazach dla wspomnianych już mocy wiązki laserowej oraz temperatur. Wykonano wiele zliczeń zmieniając wielokrotnie stosowane algorytmy automatycznego liczenia obiektów na obrazach. Po szeregu takich prób zdecydowaliśmy się na ręczne liczenie klasterów poprzedzone kilkoma filtrowaniami numerycznymi. W trakcie ewolucji klasterów zmieniają się parametry rejestrowanych obrazów, tj. poziom jasności tła czy natężenie światła rozpraszane przez jeden klaster. Uniemożliwia to dobre, jednoznaczne dla wszystkich obrazów zdefiniowanie obiektu, jakim jest klaster. Na rysunkach 3.3 i 3.4 zaprezentowane są zmiany ilości (koncentracji) klasterów w czasie ewolucji w temperaturach  $T=687\text{K}$  i  $702\text{K}$  dla dwóch mocy wiązek laserowych odpowiednio równych  $P=0.09\text{W}$  i  $P=0.07\text{W}$ . Zliczaliśmy ilość klasterów (świecących obiektów) kolejno na zarejestrowanych obrazach, a następnie korzystając z faktu, że warstwa, z której klasterzy mogły być rozróżniane miała grubość ok.  $1\text{mm}$ , przeliczaliśmy ilość na koncentrację.



Rysunek 3.3: Koncentracja klasterów w funkcji czasu  $G_{VV}(t)$  widziana na polaryzacji  $VV$  oraz  $G_{HH}(t)$  widziana na polaryzacji  $HH$  w temperaturze  $T=687\text{K}$ .

Na rysunkach 3.3 i 3.4 obok krzywych obrazujących otrzymane zmiany koncentracji klasterów w czasie umieszczono krzywe, pokazujące rozpraszane przez klasterzy światło na obu polaryzacjach  $VV$  i  $HH$ . Z wykresów widać wyraźnie, że zmiany ilościowe klasterów mogą mieć wpływ na całkowite natężenie światła rejestrowane z danego obszaru na obu polaryzacjach. Jak było zapostulowane w rozdziale 2.3.2 wzór (2.9), całkowite natężenie rozpraszane światła z danego obszaru zależy od ilości klasterów rozpraszających światło oraz od natężenia światła rozpraszane na pojedynczym klasterze. W przeprowadzonych doświadczeniach klasterzy były widoczne (rozdzielalne) dopiero od pewnego momentu ewolucji (promienia). Krzywe rozpraszania  $I_{VV}(t)$  osiągają swoje maksimum nieco



Rysunek 3.4: Koncentracja klasterów w funkcji czasu  $G_{VV}(t)$  widziana na polaryzacji  $VV$  oraz  $G_{HH}(t)$  widziana na polaryzacji  $HH$  w temperaturze  $T=702K$ .

wcześniej. Uniemożliwia to np. wyznaczenie, jak zmienia się rozpraszanie światła, w pobliżu tego maksimum, na jednym klasterze zgodnie ze wzorem (2.9) i porównanie otrzymanego eksperymentalnie rezultatu z krzywymi uzyskiwanymi zgodnie z teorią Mie.

Na rysunku 3.3 klasterzy są widoczne od dziesiątej sekundy ewolucji, a na rysunku 3.4 od dwunastej. Wcześniej zdolność rozdzielcza układu uniemożliwiała rozróżnianie klasterów przy tak dużej ich koncentracji. Nieco wcześniej widać też klasterzy w świetle spolaryzowanym poziomo niż pionowo. W tym zakresie promieni klasterzy prawdopodobnie silniej rozpraszają światło spolaryzowane poziomo (patrz rysunek 2.1), stąd lepiej można je rozróżnić. Na początku zliczania ilość klasterów liczona na obu polaryzacjach światła nieco się różni ( $G_{VV}(t)$  i  $G_{HH}(t)$  na rysunkach 3.3 i 3.4). Spowodowane jest to błędem oceny ilości zliczanych klasterów oraz faktem, że sygnały rozproszeniowe na obu polaryzacjach światła rejestrowane były w dwóch różnych cyklach pomiarowych.

Od ok. 25-tej sekundy klasterzy były bardzo dobrze widoczne na obrazach. Umożliwiało to dokładne ich zliczanie. Na wcześniejszych obrazach z powodu dużej ich koncentracji oraz słabszego sygnału rozproszeniowego z pojedynczych klasterów (wzór 2.1 i 2.2), ich rozróżnialność była znacznie gorsza. Dlatego też błąd na początku zliczania był największy i wynosił około  $\pm 4\%$ . Na końcu zliczania natomiast wynosił  $\pm 1\%$

Parametry takie jak temperatura ośrodka, ciśnienia helu i moc wiązki indukującej określają warunki ewolucji klasterów. Temperatura jest parametrem bezpośrednio oddziałującym na gęstość pary sodowej i gęstość ciekłego sodu. Ostatecznie temperatura wewnątrz komórki wpływa na szybkość wzrostu, wielkość i koncentrację klasterów. Z analizy przeprowadzonej w pracach [9][12][25] wynika, że wyższa temperatura przyspiesza proces wzrostu i zwiększa osiągnięte koncentracje klasterów. Podobne tendencje występują

dla wyższych mocy wiązki laserowej.

Z przeprowadzonego eksperymentu widać wyraźnie, że koncentracja klasterów w obu przypadkach maleje, aż do osiągnięcia stałego poziomu, tzn. do momentu, kiedy klasterki osiągną określoną wielkość promienia średniego, zależną od warunków termodynamicznych [12]. Przyczyną zmniejszania się koncentracji klasterów w trakcie ewolucji jest ich dyfuzja z przestrzeni, w której powstają do obszaru poza wiązką indukującą [12]. W pomiarze przedstawionym na rysunku 3.3 koncentracja klasterów maleje, począwszy od 10 sekundy, od  $2165 \frac{\text{sztuk}}{\text{mm}^3}$  do wartości  $1010 \frac{\text{sztuk}}{\text{mm}^3}$  na końcu ewolucji. Maleje więc ponad dwukrotnie. W pomiarze przedstawionym na rysunku 3.4 koncentracja klasterów maleje, począwszy od 12 sekundy, od  $1395 \frac{\text{sztuk}}{\text{mm}^3}$  do wartości  $275 \frac{\text{sztuk}}{\text{mm}^3}$  na końcu ewolucji, czyli maleje pięciokrotnie. Różnice między koncentracją klasterów na końcu ewolucji w obu przypadkach wynikają głównie z faktu, iż w pierwszym i drugim przypadku klasterki liczone były w różnych miejscach w wiązce laserowej, w których powstawały klasterki. Mimo, iż rysunek 3.3 przedstawia zmiany koncentracji klasterów podczas ewolucji w temperaturze  $T=687\text{K}$ , tzn. niższej niż na rysunku 3.4 wynoszącej  $T=702\text{K}$ , to koncentracja w pierwszym przypadku jest znacznie większa niż w drugim. Na koncentrację klasterów ma wpływ moc wiązki laserowej [12]. Na rysunku 3.3 wynosi ona  $P=0.09\text{W}$  i jest ona nieco wyższa niż na rysunku 3.4, gdzie  $P=0.07\text{W}$ . Różnica mocy wiązek laserowych nie jest jednak tak znaczna, by powodować tak duże różnice w koncentracji [12]. W obszarze, w którym przeprowadzony był pierwszy pomiar, dyfuzja klasterów poza obszar wiązki laserowej była prawdopodobnie znacznie mniejsza, stąd i większa koncentracja klasterów.

Przeprowadzone pomiary wykazują, że w celu dokładnego zbadania własności optycznych klasterów należy kontrolować ich ilość. Pomiar koncentracji klasterów podczas ewolucji wykazał, że może być ona różna w różnych miejscach wiązki laserowej, w której powstają klasterki. Samo liczenie jest procesem żmudnym i wymagającym wiele cierpliwości, gdyż trzeba zliczać duże ilości obiektów na wielu obrazach. Automatyzacja tego procesu nie daje pożądanego efektu. Dlatego rozwiązaniem, jakie nasuwa się w celu zbadania własności optycznych klasterów sodowych jest ich spulapkowanie i rejestracja sygnałów optycznych, np.  $I_{VV}(t)$  i  $I_{HH}(t)$  pochodzących od konkretnej, dobrze określonej liczby klasterów.

## 4. Koncentracja ładunków w ośrodku, w którym powstają klasterki.

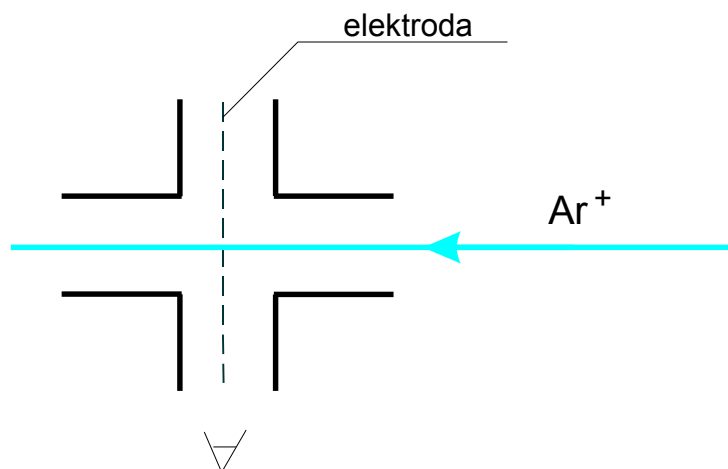
Zanim opisane zostaną eksperymenty z pułapkowaniem klasterów stanowiące główny temat tej pracy, oszacujemy koncentrację ładunków elektrycznych w wiązce lasera argonowego  $\text{Ar}^+$ , indukującego klasterki sodowe. Jak okaże się w następnych rozdziałach pracy, obecność swobodnych ładunków elektrycznych w ośrodku ma bardzo duży wpływ na pułapkowanie klasterów sodowych.

Przyjmijmy, że plazmą będziemy nazywać zjonizowany gaz będący kwazineutralną mieszaniną swobodnych elektronów, jonów dodatnich i ujemnych. Oznacza to, że liczba ładunków dodatnich i ujemnych układu jest taka sama.

Środowisko, w którym powstają klasterki, jest częściowo zjonizowane w wyniku dwufotonowej jonizacji dimerów sodowych [11][26]. Możemy je więc nazwać plazmą. Jej własności, które zależą głównie od koncentracji ładunków swobodnych, mogą mieć wpływ na proces wzrostu i pułapkowania klasterów.

### 4.1. Opis układu pomiarowego.

Klasterki powstają w wiązce laserowej, dlatego też interesowała nas szczególnie koncentracja ładunków właśnie w wiązce. W celu wyznaczenia tej koncentracji posłużono się układem doświadczalnym przedstawionym schematycznie na rysunku 4.1.



Rysunek 4.1: Schemat układu doświadczalnego.

W komórce typu heat-pipe, w której przeprowadzane były dotychczasowe eksperymenty z rozpraszaniem światła na klasterkach, prostopadle do wiązki lasera generującego klasterki, umieszczona została izolowana elektroda wolframowa o przekroju  $\phi = 0.15\text{mm}$ . Takie ustawienie elektrody jest korzystniejsze w porównaniu z sytuacją, kiedy elektroda umieszczona jest wzdłuż wiązki laserowej [26]. Wówczas obszar, w którym klasterki oddziałują z polem wytworzonym przez elektrodę zawężony jest do niewielkiego fragmentu wiązki laserowej, w której są one generowane.

Elektroda przecina wiązkę lasera  $\text{Ar}^+$  w środku jej średnicy. Praca wyjścia elektronu z wolframu wynosi  $W = 4.5 \text{ eV}$ . Odpowiada ona długości fali świetlnej niezbędnej do wybięcia elektronu  $\lambda = 275 \text{ nm}$ . Nie występuje więc zjawisko fotoemisji elektronów z powierzchni elektrody oświetlanej wiązką lasera  $\text{Ar}^+$  (488nm).

Obszar wokół elektrody obserwowany był kamerą CCD podobnie, jak miało to miejsce w przypadku szacowania ilości klasterów (patrz poprzedni rozdział).

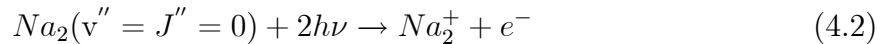
#### 4.2. Wyznaczenie koncentracji ładunków swobodnych w plazmie generowanej wiązką lasera $\text{Ar}^+$ .

Zgodnie z [11] po włączeniu wiązki laserowej w komórce, w której przeprowadzany był eksperyment, powstawały jony  $\text{Na}_2^+$  oraz elektrony w wyniku dwufotonowej jonizacji dimerów sodowych. Należy też spodziewać się w układzie zjonizowanych atomów sodu  $\text{Na}^+$ . Mogą one powstawać jako efekt trójfotonowej jonizacji lub w wyniku zderzeń zgodnie ze schematem :



Jonizacja trójfotonowa jest o wiele mniej prawdopodobna niż jonizacja dwufotonowa. Prawdopodobieństwo jonizacji atomów sodu w wyniku zderzeń ze zjonizowanymi cząsteczkami sodu powinno być również mniej prawdopodobne niż dwufotonowa jonizacja cząsteczek sodowych, ponieważ jest to efekt wielociałowy, w którym najpierw musi dojść do jonizacji dimerów sodowych. Dlatego też w ośrodku powinno być o wiele więcej zjonizowanych cząsteczek niż atomów sodu.

Minimalna energia dwóch fotonów potrzebna do jonizacji cząsteczki sodowej:



wynosi  $4.90 \pm 0.01 \text{ eV}$  [11]. Energia dwóch kwantów światła o długości  $\lambda = 488 \text{ nm}$  wynosi  $5.08 \text{ eV}$ . Po włączeniu wiązki laserowej mamy więc w układzie plazmę składającą się głównie z jonów  $\text{Na}_2^+$  i elektronów. Gdyby cały nadmiar energii dwóch kwantów potrzebnej do jonizacji przejmował elektron w postaci energii kinetycznej, to wówczas jego temperatura wynosiłaby około  $T_e = 2 * 10^3 \text{ K}$ .

Zjawiskiem konkurencyjnym do jonizacji jest rakombinacja jonów dodatnich z elektronami. Występuje ona cały czas w plazmie. Ze względu jednak na fakt, że w obecności wiązki laserowej w wyniku dwufotonowej jonizacji cząsteczek sodowych cały czas dostarczane są do ośrodka jony dodatnie oraz elektrony, to ustala się w nim pewna średnia koncentracja ładunków swobodnych. Powinna ona zależeć m.in. od temperatury ośrodka.

Jony dodatnie, ze względu na duże ciśnienie gazu buforującego wynoszące ok.  $300 \text{ Tr}$ , powinny być w równowadze termicznej z cząstkami obojętnymi. Temperatura elektronów ze względu na duże ciśnienie też szybko będzie wyrównywała się z otoczeniem. Średnia ich temperatura może jednak być nieco wyższa od temperatury otoczenia ponieważ przy zderzeniach z pozostałymi cząstkami oddają one znacznie mniej energii niż jony dodatnie.

Temperatura komórki zmienia się w omawianym doświadczeniu od  $630 \text{ K}$  do  $715 \text{ K}$  a moc wiązki laserowej  $P = 0.1 \text{ W}$ . Przyjmijmy, że temperatura elektronów jest równa temperaturze otoczenia czyli temperaturze komórki. Mamy więc plazmę, która jest w równowadze termicznej z pozostałymi cząstkami w ośrodku.

Jeżeli w plazmie umieścimy izolowaną elektrodę, to na styku plazmy z elektrodą powstanie pewna warstwa graniczna, która ma inne właściwości niż plazma w pozostałej części

wiązki laserowej. Na skutek bezładnego ruchu jonów uderzających w elektrodę powstaje pewna gęstość prądu, która dla rozkładu maxwellowskiego prędkości, w momencie włożenia elektrody wynosi [27]:

$$J = \frac{e * n_e * v_{sr}}{4}, \quad (4.3)$$

gdzie:

$e$  - ładunek elementarny,

$n_e$  - koncentracja jonów dodatnich lub elektronów,

$v_{sr}$  - prędkość średnia jonów lub elektronów.

Wstawiając prędkość średnią jonów lub elektronów otrzymujemy odpowiednio prąd jonowy bądź elektronowy. Prędkość średnia elektronów jest dużo większa niż jonów dodatnich, dlatego też elektroda ładuje się ujemnie (w temperaturze 700K prędkość średnia elektronów jest ponad 200 razy większa niż jonów  $\text{Na}_2^+$ ) do takiego potencjału, że będzie on odpychał elektrony. Występująca różnica potencjałów między plazmą a elektrodą powoduje, że wewnątrz warstwy granicznej neutralność plazmy nie jest zachowana. Grubość warstwy granicznej wokół elektrody wynika z energii bezładnego ruchu termicznego i jest równa długości ekranowania Debye'a [27]:

$$D_{Deb} = \left( \frac{\varepsilon_0 * k * T}{e^2 * n_e} \right)^{\frac{1}{2}} = 69 * \left( \frac{T}{n_e} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (4.4)$$

gdzie:

$\varepsilon_0$  - stała dielektryczna próżni,

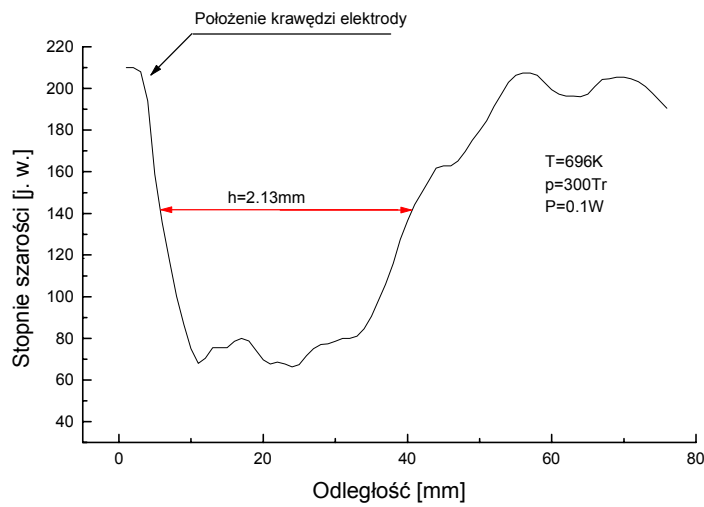
$k$  - stała Boltzmanna,

$T$  - temperatura.

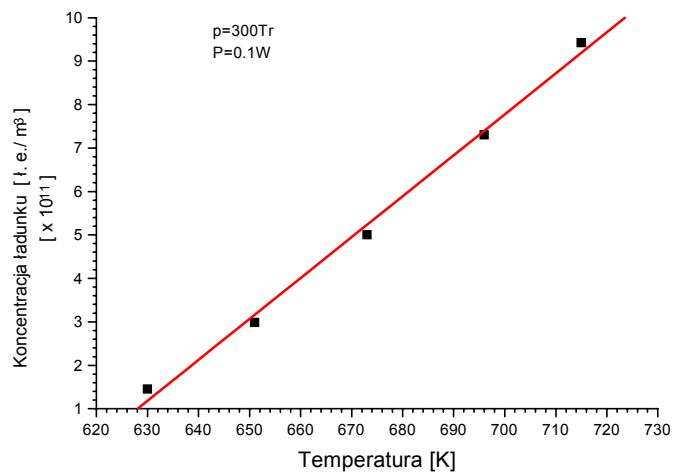
Obserwując fragment wiązki laserowej przy elektrodzie zauważyliśmy, że klasterki widoczne są wzdłuż całego obserwowanego fragmentu, z wyjątkiem pewnego zależnego od temperatury obszaru wokół elektrody. Przytoczone wcześniej rozważania pokazują, że elektroda powoduje zaburzenie plazmy tylko w obszarze wokół niej o promieniu  $D_{Deb}$  równym długości ekranowania Debye'a. W pozostałej części wiązki laserowej parametry plazmy powinny pozostawać takie same, jak w przypadku, gdyby w ośrodku nie było elektrody. Nie ma więc powodu by umieszczenie elektrody miało wpływ na znajdujące się tam klasterki. Ma natomiast wpływ na klasterki znajdujące się w warstwie granicznej, ponieważ nastąpiło tam zaburzenie plazmy. Na rysunku 4.2 pokazane zostało przykładowe natężenie światła rozpraszanego przez klasterki przy elektrodzie wzdłuż wiązki laserowej.

W obszarze przy elektrodzie natężenie rozpraszanego światła jest małe w porównaniu z dalszym fragmentem wiązki laserowej. Dopiero dostatecznie daleko od elektrody widać silne rozpraszanie światła, co oznacza, że jest tam dużo klasterków. W obszarze przy elektrodzie prawdopodobnie parametry plazmy nie sprzyjają powstawaniu klasterków. Pomiar grubości warstwy, w której rozpraszanie światła jest niewielkie zgodnie ze wzorem (4.4) pozwala nam oszacować koncentrację ładunków w wiązce. Nie istnieje jednak ostra granica między obszarem, gdzie nie ma klasterków i tam, gdzie one są. Dlatego mierzymy odległość „h” od elektrody do miejsca, w którym natężenie rozpraszanego światła jest równe połowie maksymalnego i dalej zakładamy, że h jest równe długości Debye'a  $D_{Deb}$ . Odległości te zostały wyznaczone dla następujących temperatur:  $T=630\text{K}$ ,  $T=651\text{K}$ ,  $T=673\text{K}$ ,  $T=196\text{K}$ ,  $T=715\text{K}$  i wynosiły odpowiednio  $D_{Deb}=4.54\text{mm}$ ,  $D_{Deb}=3.22\text{mm}$ ,  $D_{Deb}=2.53\text{mm}$ ,  $D_{Deb}=2.13\text{mm}$ ,  $D_{Deb}=1.9\text{mm}$ .





Rysunek 4.2: Natężenie światła rozpraszane przez klaster przy elektrodzie wzdłuż wiązki laserowej w temperaturze  $T=696\text{K}$ .



Rysunek 4.3: Zależność koncentracji elektronów w plazmie od temperatury  $T$  (l. e. - oznacza ładunek elementarny).

Po przekształceniu wzoru (4.4) do postaci:

$$n_e = T * \left(\frac{69}{D_{Deb}}\right)^2, \quad (4.5)$$

a następnie podstawieniu odpowiednich temperatur  $T$  oraz odpowiadających im odległości  $D_{Deb}$  otrzymujemy szukane koncentracje ładunków (rysunek 4.3).

Wyraźnie widać, że ze wzrostem temperatury koncentracja ładunków w plazmie po zakończeniu ewolucji klastrów rośnie od  $1.5 * 10^{11} \frac{\text{lad. element.}}{\text{m}^3}$  dla temperatury  $T=630\text{K}$ , do  $9.4 * 10^{11} \frac{\text{lad. element.}}{\text{m}^3}$  dla temperatury  $T=715\text{K}$ . W badanym przedziale temperatur dla mocy wiązki laserowej  $P=0.1\text{W}$ , dostatecznie dobrze można opisać koncentrację ładunków empirycznym wzorem:

$$n_e = 0.094 * 10^{11} * T - 58.154. \quad (4.6)$$

Krzywa koncentracji ładunków w plazmie w funkcji temperatury  $T$  pokazana na rysunku 4.3 wynika z założenia, że elektrony posiadają temperaturę równą temperaturze otoczenia. Dlatego też należałoby stwierdzić, że średnia temperatura elektronów jest nie mniejsza niż temperatura gazu buforującego i nie większa niż temperatura wynikająca z procesu jonizacji zachodzącego według schematu (4.2). Rzeczywista koncentracja elektronów w plazmie, generowanej wiązką lasera  $\text{Ar}^+$  w danej temperaturze, może być więc większa niż ta wynikająca z przeprowadzonych wyliczeń. Jak to zostało już powiedziane wcześniej, różnica nie powinna być jednak duża, ze względu na duże ciśnienie gazu buforującego, które powoduje szybką termalizację elektronów.

Na koniec należy jeszcze dodać, że jeżeli plazma jako całość jest obojętna, to koncentracja elektronów musi być równa sumie koncentracji zjonizowanych cząsteczek sodu  $\text{Na}_2^+$  oraz dodatniego<sup>3</sup> ładunku elektrycznego zgromadzonego na klastrach. Dlatego też jeśli przyjmiemy, że koncentracja elektronów w wiązce laserowej w poszczególnych temperaturach z przedziału od 630K do 715K jest taka, jak przedstawiona na rysunku 4.3, to wówczas tę koncentrację należy traktować jako maksymalną koncentrację zjonizowanych cząsteczek sodu  $\text{Na}_2^+$  w wiązce laserowej po zakończeniu ewolucji klastrów.

---

<sup>3</sup>Jak wykazał eksperyment, który będzie wspomniany w dalszej części pracy, klasterzy są dodatnio naładowane.

## 5. Matematyczno-fizyczne podstawy pułapkowania klastrów sodowych w pułapce kwadrupolowej.

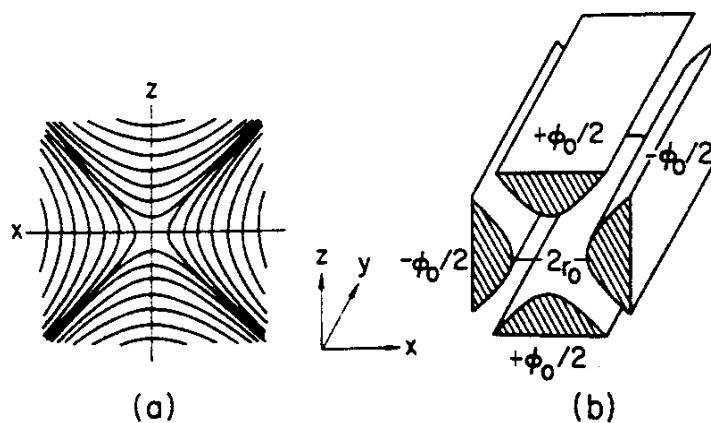
Optyczna metoda produkcji klastrów sodowych prezentowana w niniejszej pracy charakteryzuje się tym, że powstające klasterki osiągają dużą koncentrację dochodzącą nawet do kilku tysięcy klastrów w  $1 \text{ mm}^3$  (patrz rysunki 3.3 i 3.4). Szczególnie duża jest ona w pierwszych momentach ewolucji [25]. Po zakończeniu ewolucji koncentracja klastrów wynosi od kilkudziesięciu do kilkuset w  $1 \text{ mm}^3$ . Kontrola ilości klastrów rozpraszających światło jest, jak wykazano to w rozdziale 3.3, bardzo pracochłonna. Dodatkowo klasterki mają pewien rozrzut wielkości promienia [12][25]. Wprawdzie nie jest on duży i możliwe jest operowanie promieniem średnim klastrów, co umożliwia, np. określenie współczynnika tłumienia  $\gamma$  elektronów swobodnych w klastrach (patrz rozdział 2.3), ale wprowadza pewien błąd w obliczeniach.

W celu dalszego badania i opisu właściwości optycznych pojedynczych klastrów sodowych postanowiliśmy odseparować jeden lub niewielką kontrolowaną grupę klastrów, tzn. zbudować pułapkę do pułapkowania klastrów.

### 5.1. Rodzaje elektrycznych pułapek kwadrupolowych

Najbardziej znaną i szeroko stosowaną metodą pułapkowania cząstek posiadających ładunek elektryczny, jest technika Paula [28][29][30][31]. Umożliwia ona obserwację odizolowanych naładowanych cząstek przez długi okres czasu.

Na początku lat 50-tych Wolfgang Paul zbudował pierwszą elektryczną pułapkę kwadrupolową, nazwaną później od jego nazwiska pułapką Paula. Obecnie znanych jest wiele odmian pułapek kwadrupolowych. Można podzielić je na pułapki dwu- oraz trójwymiarowe [28].



Rysunek 5.1: a) Linie ekwipotencjalne pola kwadrupolowego; b) Schemat dwuwymiarowej pułapki kwadrupolowej.

Dwuwymiarowa pułapka kwadрупolowa, zwana też filtrem kwadрупolowym, przedstawiona została na rysunku rys. 5.1. Umożliwia ona pułapkowanie naładowanych cząstek w dwu wymiarach. Na rysunku 5.1 jest to płaszczyzna XY. Wzdłuż osi Z cząstka może poruszać się swobodnie. Między pary elektrod przykładane jest napięcie stałe  $U$  oraz napięcie zmienne  $V$  z częstotliwością  $\omega$ :

$$\Phi_0 = 2 * (U + V \cos \omega t). \quad (5.1)$$

Potencjał elektrod wynosi więc  $\pm \frac{\Phi_0}{2}$ , a natężenie pola elektrycznego wewnątrz pułapki dane jest wzorami:

$$\begin{aligned} E_x &= \frac{\Phi_0}{r_0^2} x, \\ E_y &= \frac{\Phi_0}{r_0^2} y. \end{aligned} \quad (5.2)$$

Równania ruchu naładowanej cząstki w takiej pułapce dadzą się zapisać następująco:

$$\begin{aligned} m \cdot \ddot{x} + \frac{2Q}{r_0^2} [U + V \cdot \cos(\omega t)] \cdot x &= 0, \\ m \cdot \ddot{y} - \frac{2Q}{r_0^2} [U + V \cdot \cos(\omega t)] \cdot y &= 0, \end{aligned} \quad (5.3)$$

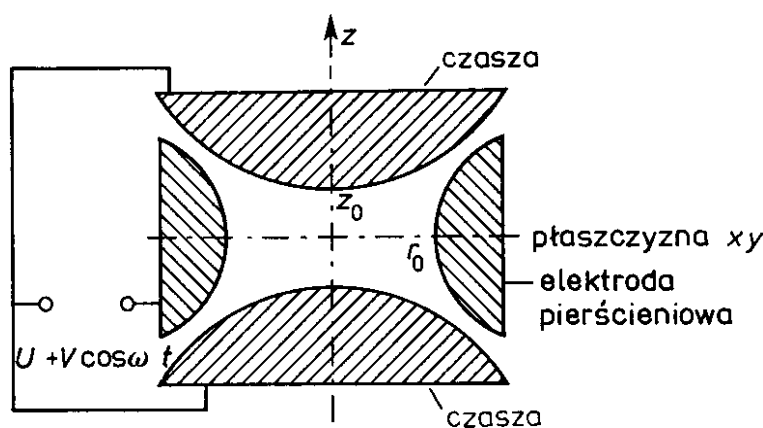
gdzie:

$Q$  - ładunek pułapkowanej cząstki,

$m$  - masa pułapkowanej cząstki,

$r_0$  - połowa odległości między elektrodami.

Równania (5.3) są równaniami ruchu naładowanej cząstki w dwuwymiarowym potencjale kwadрупolowym w próżni, tzn. bez tłumienia.



Rysunek 5.2: Schemat elektrycznej pułapki kwadрупolowej.

Innym typem elektrycznej pułapki kwadrupolowej jest pułapka umożliwiająca łapanie cząstek w trzech wymiarach. Utworzona ona jest [28][31] z elektrody pierścieniowej o powierzchni hiperbolicznej i dwóch hiperbolicznych czasz, stanowiących drugą elektrodę. Między elektrody przyłożone jest napięcie  $\Phi_0$  równanie (5.1). Układ ma symetrię cylindryczną (patrz rysunek 5.2) wokół osi  $z$ , a odległość  $2z_0$  między obydwoma czaszami jest tak wybrana, że promień  $r_0$  elektrody pierścieniowej wynosi  $r_0 = z_0\sqrt{2}$ .

Potencjał elektryczny  $\Phi$  wewnątrz pułapki jest wtedy równy:

$$\Phi = \frac{\Phi_0}{2r_0^2}(r^2 - 2z^2), \quad (5.4)$$

gdzie  $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ .

Równania ruchu dla cząstki o masie  $m$  i ładunku  $Q$  można zapisać w postaci:

$$\begin{aligned} \frac{d^2x}{dt^2} - \frac{2Q}{r_0^2}[U + V \cos(\omega t)] \cdot x &= 0, \\ \frac{d^2y}{dt^2} - \frac{2Q}{r_0^2}[U + V \cos(\omega t)] \cdot y &= 0, \\ \frac{d^2z}{dt^2} + \frac{4Q}{r_0^2}[U + V \cos(\omega t)] \cdot z &= 0. \end{aligned} \quad (5.5)$$

Podobnie jak w przypadku pułapki dwuwymiarowej, równania (5.5) są równaniami ruchu naładowanej cząstki w potencjale kwadrupolowym w próżni (nie występuje siła tłumiąca ruch tej cząstki). Ze względu na symetrię cylindryczną układu obowiązuje analogiczne równanie dla składowych  $x$  i  $y$  w równaniach (5.5). Dla składowej  $z$  w drugim członie równania pojawia się znak przeciwny w porównaniu z równaniami dla składowych  $x$  i  $y$ . Dalej można rozważać obszary stabilności takiego układu trzech równań oraz parametry początkowe cząstki, które umożliwiają jej spuławkowanie [28][29][31]. Ogólnie można powiedzieć, że naładowane cząstki, które wpadną do pułapki z zewnątrz, nie mogą się w niej zatrzymać. Tylko cząstki naładowane wyprodukowane wewnątrz pułapki można w niej uwięzić [31].

## 5.2. Zastosowanie dwuwymiarowej pułapki kwadrupolowej do puławkowania klasterów sodowych.

Wydawałoby się, że najlepiej do spuławkowania niewielkiej liczby klasterów sodowych, a następnie do przeprowadzania na niej eksperymentów optycznych, nadaje się puławka trójwymiarowa pokazana na rysunku 5.2. Umożliwia ona uwięzienie cząstek naładowanych w trzech wymiarach. Puławka taka zastosowana do puławkowania klasterów posiada jednak kilka niekorzystnych cech. Po pierwsze, stanowi ona prawie zamkniętą bryłę i dyfuzja par sodowych niezbędnych do powstawania i ewolucji klasterów jest ograniczona. Po drugie, by obserwować klaster i dokonywać pomiaru światła rozproszonego na nich, niezbędne jest umieszczenie soczewki w bliskiej odległości od jednej z elektrod, tzn. wewnątrz komórki pomiarowej. W obecności par sodowych powstaje na niej warstwa zwierciadlana uniemożliwiająca transmisję światła. Po trzecie, w miejscach, gdzie odległość między elektrodami jest minimalna, na skutek tego, że środowisko jest zjonizowane, występują wyładowania elektryczne, co zakłóca drastycznie pracę takiej komórki.

Cechy te sprawiają, że zastosowanie takiej pułapki staje się niecelowe. Dlatego też zdecydowaliśmy się zbudować dwuwymiarową elektryczną pułapkę kwadrupolową, której schemat pokazany jest na rysunku 5.1, i zbadać jej działanie w naszych warunkach.

Na początek zajmiemy się kontynuacją opisu ruchu cząstki naładowanej w takiej pułapce. Jak już było zaznaczone wyżej, równania (5.3) są równaniami ruchu naładowanej cząstki w dwuwymiarowym potencjale kwadrupolowym w próżni. W naszej komórce ciśnienie gazu buforującego wynosiło  $p=640\text{Tr}$  (w przypadku eksperymentów związanych z pułapkowaniem klastrów). Nie możemy więc zaniedbać wpływu ośrodka, w którym znajdują się klaster, na ich ruch, w przeciwieństwie do pułapkowania cząstek w próżni [28][31]. Ruch klastrów w pułapce jest tłumiony, ponieważ m.in. otaczający je gaz (hel) posiada pewną lepkość.

### 5.2.1. Wyznaczenie współczynnika lepkości ośrodka i siły lepkości działającej na poruszający się klastery.

Określenie wartości współczynnika lepkości gazu w stosunku do rozważanego klastru o promieniu  $R$  wymaga rozstrzygnięcia, czy hel otaczający klaster stanowi ośrodek lepki, molekularny czy pośredni. W tym celu należy porównać średnią drogę swobodną atomów helu  $\lambda_{He}$  z rozmiarami poruszającego się obiektu. Kryterium warunków lepkich zachodzi, gdy  $\lambda_{He} \ll 2R$ , natomiast kryterium warunków molekularnych, gdy  $\lambda_{He} \gg 2R$  [32]. Średnią drogę swobodną oszacujemy na podstawie wzoru (5.6) [32], gdzie  $d$  jest średnicą atomu helu równą około  $2\text{\AA}$ ,  $p$  i  $T$  oznaczają w tym przypadku ciśnienie oraz temperaturę helu :

$$\lambda_{He} = \frac{kT}{\sqrt{2}\pi d^2 p}. \quad (5.6)$$

Podstawiając odpowiednie wartości  $p = 640 \text{ Tr}$  oraz  $T = 632 \text{ K}$  otrzymujemy, iż średnia droga swobodna atomów helu wynosi około  $570 \text{ nm}$  i jest porównywalna z rozmiarami klastrów w końcowej fazie ewolucji  $2R \simeq 250 \div 300 \text{ nm}$  [25]. Klaster tej wielkości odczuwają więc otaczający hel jako ośrodek typu pośredniego. Konsekwencją tego faktu jest zależność współczynnika lepkości od ciśnienia, tym silniejsza im bardziej warunki zbliżają się do molekularnych, gdzie przechodzi w zależność proporcjonalną. Wyznaczenie współczynnika lepkości w obszarze pośrednim jest zawsze problematyczne. Ograniczymy się jedynie do stwierdzenia, że jest on na pewno nie większy niż w warunkach lepkich, kiedy wyraża się zależnością (5.7) [32][33]:

$$\eta = \frac{1}{\pi d^2} \sqrt{M_{He} \frac{kT}{\pi N_A}}, \quad (5.7)$$

gdzie:  $\eta$  - współczynnik lepkości,  $M_{He}$  - masa molowa helu,  $k$  - stała Boltzmana,  $N_A$  - liczba Avogadro. Po wykonaniu obliczeń dla rozważanego przypadku otrzymujemy  $\eta = 3 \cdot 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ .

Załóżmy dalej, że siła lepkości działająca na poruszający się klastery jest postaci

$$F = D_u \cdot v, \quad (5.8)$$

gdzie  $v$  oznacza prędkość klastru. Współczynnik tłumienia  $D_u$  ruchu cząstki w gazie buforującym związany jest ze współczynnikiem lepkości  $\eta$  poprzez równanie:

$$D_u = 6\pi\eta R, \quad (5.9)$$

gdzie  $R$  oznacza promień klastera. Podstawiając  $\eta = 3 \cdot 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{s}$  i  $R = 1.2 \cdot 10^{-7} \text{ m}$  otrzymujemy, że dla klastera o takim promieniu stała tłumienia wynosi  $D_{tl} = 6.8 \cdot 10^{-11} \frac{\text{kg}}{\text{s}}$ .

W rozdziale 4.2 zostało wykazane, że ośrodek w którym znajdują się klaster jest zjonizowany. Może więc występować dodatkowa siła tłumiąca ruch naładowanego klastera, a pochodząca od znajdujących się w ośrodku jonów  $\text{Na}_2^+$  i elektronów. Jony dodatnie są głównie odpowiedzialne za tę dodatkową siłę tłumiącą ze względu na ich większy pęd. Eksperymenty związane z pułapkowaniem klasterów wykonywane były w większości w temperaturze  $T=632\text{K}$  i pod ciśnieniem  $640\text{Tr}$  (jest to ciśnienie helu). Załóżmy, że w tej temperaturze koncentracja jonów  $\text{Na}_2^+$  była rzędu  $10^{11} \frac{1}{\text{m}^3}$  (patrz rozdział 4.2). Koncentracja atomów helu natomiast jest rzędu  $10^{25} \frac{1}{\text{m}^3}$ . Różnica między koncentracją zjonizowanych cząsteczek sodu i helu wynosi więc 14 rzędów. Dlatego też wydaje się, że siła tłumiąca ruch klasterów pochodzi głównie od atomów helu.

Dodatkowo, jak zostało to pokazane w następnych rozdziałach tej pracy, klaster pułapkowane są poniżej wiązki laserowej. Koncentracja zjonizowanych cząsteczek sodowych jest tam mniejsza niż w wiązce laserowej.

Dodatkowa siła tłumiąca ruch klastera, a pochodząca od plazmy, może więc nieznacznie zwiększać całkowitą siłę tłumiącą, działającą na poruszający się klaster.

### 5.2.2. Rozwiązanie równań ruchu klastera w pułapce z uwzględnieniem siły lepkości ośrodka - obszary stabilności tych rozwiązań.

Założymy teraz, że indukowane światłem laserowym klaster zachowują się jak naładowane cząstki w klasycznej dwuwymiarowej pułapce kwadrupolowej, tzn. nie rozważamy wpływu plazmy znajdującej się w ośrodku na ruch klastera. Jak już było wspomniane, na poruszający się klaster w pułapce działa, m.in. siła lepkości ośrodka, proporcjonalna do jego prędkości. Równania ruchu (5.3) w obecności tej siły można zapisać następująco:

$$\begin{aligned} m \cdot \ddot{x} + D_{tl} \cdot \dot{x} + \frac{2 \cdot Q}{r_0^2} [U + V \cdot \cos(\omega t)] \cdot x &= 0, \\ m \cdot \ddot{y} + D_{tl} \cdot \dot{y} - \frac{2 \cdot Q}{r_0^2} [U + V \cdot \cos(\omega t)] \cdot y &= 0, \end{aligned} \quad (5.10)$$

gdzie  $r_0$  oznacza promień elektrody,  $Q$  i  $m$  odpowiednio ładunek i masę klastera.

Taki układ równań da się zapisać w postaci (patrz [34]):

$$\frac{d^2 u}{d\tau^2} + 2\kappa \cdot \frac{du}{d\tau} + [a + 2q_u \cos(2\tau)] \cdot u = 0, \quad (5.11)$$

gdzie  $u$  oznacza  $x$  albo  $y$  a bezwymiarowe zmienne  $\tau$ ,  $\kappa$ ,  $a_u$  oraz  $q_u$  zdefiniowane są następująco:

$$\begin{aligned} \tau &= \frac{\omega t}{2}, \\ \kappa &= \frac{D_{tl}}{m\omega}, \\ a &= a_x = a_y = \frac{8QU}{m\omega^2 r_0^2}, \\ q_u &= q_x = -q_y = \frac{4QV}{m\omega^2 r_0^2}. \end{aligned} \quad (5.12)$$

Podstawiając:

$$u = w_u \cdot \exp(-\kappa\tau), \quad (5.13)$$

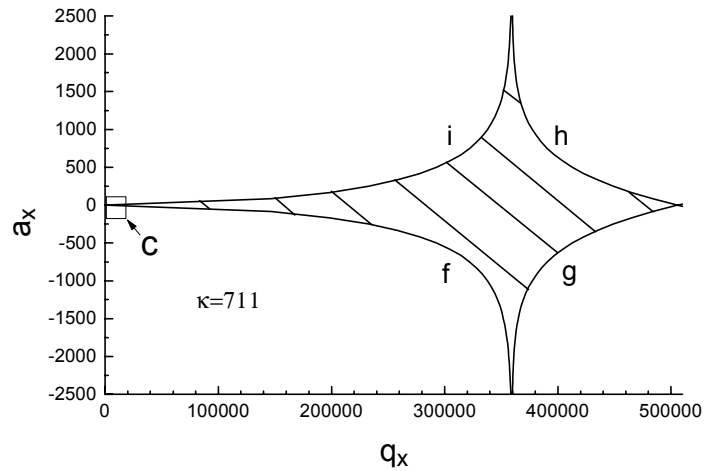
równanie (5.11) redukuje się do tzw. równania Mathieu ([34], [35]) dla zmiennej  $w_u$ , gdzie  $A = a - \kappa^2$ :

$$\frac{d^2 w_u}{d\tau^2} + [A + 2q_u \cos(2\tau)] \cdot w_u = 0. \quad (5.14)$$

Istnieją dwa typy rozwiązań równania (5.14) (zobacz np. [35]):

1. Stabilne rozwiązanie odpowiadające oscylacjom cząstki w płaszczyźnie  $x-y$  z ograniczoną amplitudą.
2. Niestabilne rozwiązanie odpowiadające oscylacjom cząstki w płaszczyźnie  $x-y$  z eksponencjalnie rosnącą amplitudą.

Szczegółowa analiza równań Mathieu [34] pokazuje, że stabilność rozwiązań zależy od dwóch parametrów  $a$  i  $q$ , a nie zależy od parametrów początkowych ruchu cząstki, takich jak jej prędkość. Stabilność rozwiązań równań Mathieu rozważa się często rysując tzw. diagram stabilności w płaszczyźnie  $a - q$ , który dzieli tę płaszczyznę na regiony: stabilne i niestabilne.

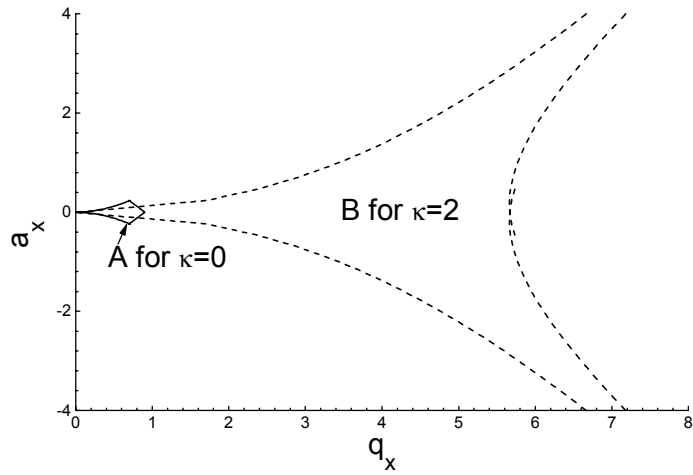


Rysunek 5.3: Podstawowy obszar stabilności.

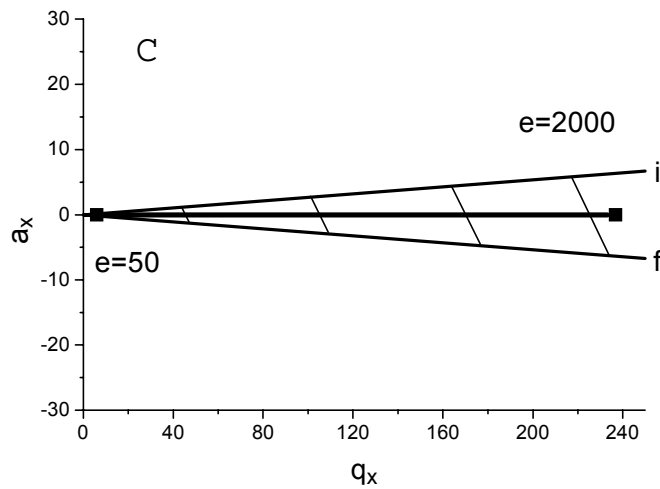
W początkowych eksperymentach z pułapkowaniem klasterów (dokładniej opisane one są w dalszej części pracy) częstotliwość prądu zmiennego wynosiła  $\omega = 1.319 \cdot 10^4 \frac{1}{s}$ . Załóżmy, że spulapkowany został klaster o promieniu  $R = 120$  nm. Wyznaczając masę  $m^4$  na podstawie znajomości promienia  $R$  cząstki oraz znając  $\omega$ , można wyliczyć  $\kappa$ , które w tym konkretnym przypadku wynosi  $\kappa = 711$ . Odpowiadający tej wartości  $\kappa$  podstawowy obszar stabilności rozwiązania równań (5.14) pokazany został na rysunku 5.3.

<sup>4</sup>W pracy przyjęto masę właściwą sodu  $980 \frac{kg}{m^3}$  [36].





Rysunek 5.4: Podstawowe obszary stabilności: "A" dla  $\kappa = 0$  (stała tłumienia  $D_{II}$  jest równa 0) i "B" dla  $\kappa = 2$ .



Rysunek 5.5: Powiększenie obszaru C z rysunku 5.3. Szacowane wartości parametrów  $a$  i  $q$  leżą na czarnej grubej linii.

Diagram stabilności w płaszczyźnie  $a$ - $q$  jest powiększony oraz przesunięty w porównaniu z przypadkiem, kiedy siła lepkości działająca na poruszający się klaster jest zaniedbywalna. Rysunek 5.4 pokazuje wpływ tłumienia na diagram stabilności (patrz np. [34]). Zwiększenie obszaru stabilności występuje dzięki obecności siły lepkości.

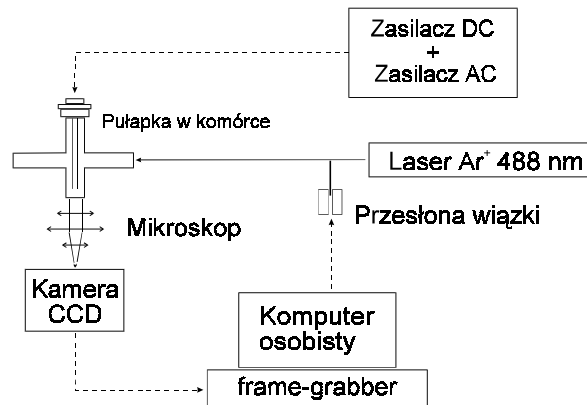
W celu pułapkowania klasterów o szerokim spektrum masy i ładunku zdecydowaliśmy się nie podłączać do elektrod napięcia stałego  $U$ . W tym przypadku  $a=0$  i nasze punkty leżą

na osi  $q$ . Z wyliczeń przedstawionych w [26] wynikało, że klasterzy mogą posiadać ładunek  $Q$  od kilkudziesięciu do kilkuset ładunków elementarnych. Załóżmy, że zawiera się on w przedziale od 50 do 2000 ładunków elementarnych. Oszacowanie wartości parametru  $q$ , odpowiadającego parametrom pułapkowania dla  $V = 233V$ , daje nam wartość  $q$  z przedziału od 5.92 do 236.83 (patrz rysunek 5.5).

Tak więc dla założonego promienia i ładunku klastera szacowane wartości parametrów  $a$  i  $q$  znajdują się wewnątrz obszaru stabilności na diagramie stabilności. Gdyby siła tłumiąca ruch klastera była nieco większa, co zostało zasygnalizowane w rozdziale 5.2.1, to wówczas diagram stabilności w płaszczyźnie  $a$ - $q$  byłby powiększony oraz przesunięty w prawo w porównaniu z tym na rysunku 5.3, ale wartości parametrów  $a$  i  $q$  nadal znajdowałyby się wewnątrz obszaru stabilności. Klasterzy mają więc szansę na pułapkowanie.

### 5.3. Wpływ jonizacji ośrodka na pułapkowanie klasterów sodowych.

Pierwsze próby z pułapkowaniem klasterów sodowych w klasycznym filtrze kwadrupolowym wykazały, że nie spełnia on swojego zadania. Jeśli nawet udało się przez kilkanaście sekund utrzymać w pułapce klasterzy, to zjawisko to było niepowtarzalne. Schemat układu doświadczalnego przedstawiony został na rysunku 5.6



Rysunek 5.6: Schemat układu doświadczalnego.

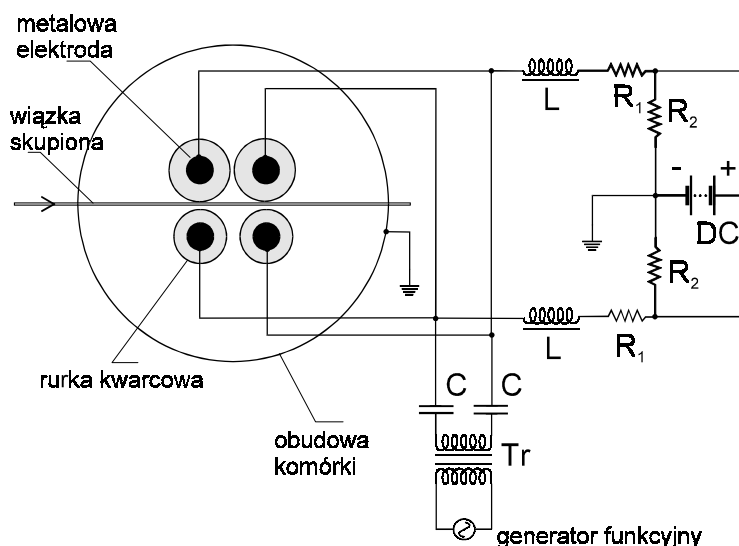
Przyczyną takiego zachowania się klasterów w pułapce jest fakt, że znajdują się one w środowisku zjonizowanym, o czym była mowa w poprzednim paragrafie. Rozpatrywany w poprzednim rozdziale proces pułapkowania naładowanego klastera odbywał się przy założeniu, że znajduje się on w środowisku dielektrycznym, które uwzględnia się w równaniach ruchu (5.10) poprzez dodanie do nich członu związanego z tłumieniem.

Indukowane światłem laserowym klasterzy sodowe znajdują się w otoczeniu helu, pod ciśnieniem  $p = 640\text{Tr}$  w temperaturze  $T$  z przedziału  $600\text{K} < T < 700\text{K}$ . W tak wysokiej temperaturze sód intensywnie paruje. Wewnątrz komórki mamy też atomy oraz cząsteczki

sodu  $Na_2$ . Korzystając z [10] można wyznaczyć koncentrację dimerów sodowych w temperaturze  $T = 632K$ , w której wykonanych było większość eksperymentów związanych z pułapkowaniem klasterów. Wynosi ona  $N_{Na_2} = 2.67 * 10^{19} \frac{1}{m^3}$ . Część dimerów sodowych ulega jonizacji w procesie dwustopniowym [11] powodując, że ośrodek należałoby rozpatrywać raczej jako zimną plazmę, niż jako gaz neutralny (patrz rozdział 4.2). Korzystając z rysunku 4.3 możemy oszacować, że koncentracja ładunków w wiązce laserowej po zakończeniu ewolucji klasterów w temperaturze  $T = 632K$  jest rzędu  $10^{11} \frac{1}{m^3}$  (dla mocy wiązki laserowej  $P=0.1W$ ). Występowanie takiej koncentracji ładunków w obszarze wiązki laserowej może powodować pojawienie się dodatkowych sił działających na pułapkowany klaster, a pochodzących, np. od rozkładu gęstości ładunków w obszarze pułapkowania.

## 6. Budowa i opis zmodyfikowanej pułapki kwadrupolowej

Po wielu próbach związanych z pułapkowaniem klastrów sodowych w pułapce przedstawionej schematycznie na rysunku 6.1 udało się spułapkować klaster w taki sposób, że możliwe było wykonywanie na nich eksperymentów związanych z rozpraszaniem światła.



Rysunek 6.1: Schemat pułapki służącej do łapania klastrów sodowych.

Pułapka zbudowana jest z czterech rurek metalowych, tworzących elektrody, o promieniu 1 mm każda. Odległość między ich środkami wynosi 5 mm. Do elektrod podłączone jest napięcie stałe  $U$  z zasilacza prądu stałego oraz zmienne o amplitudzie  $V$  z generatora funkcyjnego (napięcie sinusoidalne). Napięcie stałe przyłożone jest między wszystkie cztery elektrody a obudowę komórki w ten sposób, by elektrody znajdowały się na potencjale dodatnim względem obudowy. Napięcie zmienne przyłożone jest między pary elektrod, tak jak pokazano to na rysunku 6.1.

Jak już zostało to wcześniej pokazane, klaster znajduje się w ośrodku zjonizowanym. W celu zabezpieczenia elektrod filtru przed przepływem prądu między nimi, spowodowanym obecnością w ośrodku ładunków elektrycznych (elektrony, zjonizowane dimery sodowe, klaster), umieszczono je w kwarcowych rurkach, których średnice zewnętrzne wynosiły odpowiednio: górnych - 5mm, a dolnych 3.1mm.

Wewnątrz komórki doświadczalnej występowała konwekcja, która była zjawiskiem utrudniającym pułapkowanie klastrów. Obserwacja ruchu generowanych światłem laserowym klastrów sodowych pokazała, że prądy konwekcyjne występowały również w obszarze między elektrodami i skierowane były do góry. Dlatego też, aby zredukować to zjawisko, na dwie górne elektrody nałożono rurki kwarcowe o większej średnicy zewnętrznej.

Dodatkowo w celu spułapkowania klastrów należało skupić wiązkę lasera argonowego i umieścić ją bliżej górnych elektrod.

Modyfikacja klasycznej pułapki kwadrupolowej polega więc na umieszczeniu jej elektrod w rurkach kwarcowych, przyłożeniu napięcia stałego między elektrody a obudowę

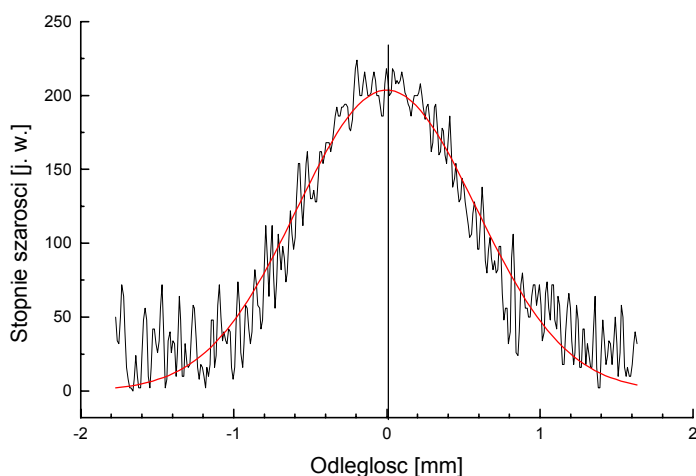
komórki (rysunek 6.1) oraz dodatkowo skupieniu wiązki lasera argonowego i umieszczeniu jej bliżej górnych elektrod.

Po włączeniu światła laserowego w obszarze skupionej wiązki laserowej powstają klasterki sodowe. Poprzez odpowiednie przyłożenie napięć: stałego  $U$  i zmiennego  $V$  z częstotliwością kołową  $\omega$ , można spulapkować od kilku do kilkunastu klasterów.

### 6.1. Charakterystyka wiązki laserowej.

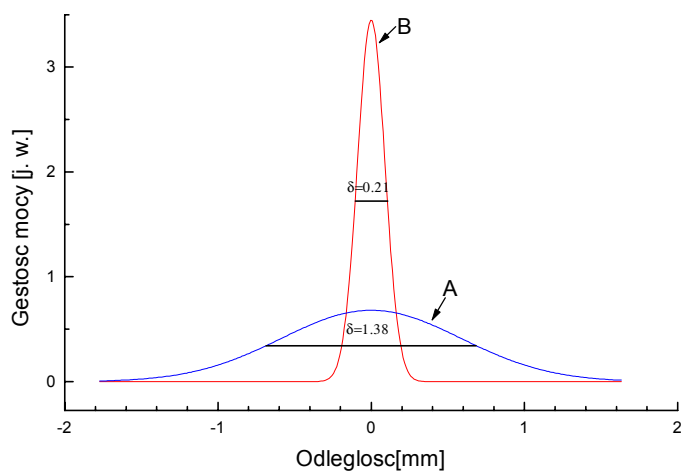
Koncentracja ładunków swobodnych w plazmie, która powstaje w wyniku dwufotonowej jonizacji dimerów sodowych, zależy od temperatury ośrodka oraz od parametrów wiązki laserowej, takich jak: jej moc  $P$ , długość fali wiązki laserowej oraz szerokość połówkowa wiązki. Do pułapkowania używana była wiązka lasera argonowego  $\text{Ar}^+$  pracującego na linii laserowej o długości 488nm, skupiona przy użyciu obiektywu Apo-Geminar 9/450 firmy Carl Zeiss Jena.

Z teorii dotyczącej soczewek sferycznych [37] wynika, że realizują one w swojej płaszczyźnie ogniskowej dwuwymiarową transformatę Fouriera rozkładu natężenia światła wiązki padającej. Jeżeli kształt padającej wiązki laserowej jest gaussowski, to wówczas, po jej zogniskowaniu, w ognisku również otrzymamy gaussowski rozkład natężenia światła. Wynika to z faktu, iż transformata Fouriera funkcji Gaussa jest funkcją Gaussa. Mamy więc w obszarze pułapkowania gaussowską wiązkę, ale o innej szerokości połówkowej i innej amplitudzie niż wiązka skupiana. Pomiar  $\delta$  szerokości wiązek laserowych wykonany został przy użyciu kamery CCD. W rezultacie pomiarów kamerą CCD uzyskano krzywe, jak na rysunku 6.2.



Rysunek 6.2: Przekrój wiązki laserowej  $\text{Ar}^+$  nieskupionej oraz dopasowany do niego kształt funkcji Gaussa.

Na rysunku 6.2 pokazana została krzywa obrazująca zmierzone natężenie światła w przekroju wiązki laserowej nieskupionej wraz z dopasowaną do niej funkcją Gaussa. Wyraźnie widać, że krzywa dopasowywana dobrze odzwierciedla kształt krzywej obrazującej rozkład



Rysunek 6.3: Krzywe odpowiadające wiązce nieskupionej A i skupionej B wraz z zaznaczonymi szerokościami połówkowymi. Dla uproszczenia przyjąłem, że powierzchnia pod krzywą „A” równa jest 1.

natężenia w przekroju wiązki laserowej. Pomiar szerokości połówkowej wiązki laserowej przy użyciu kamery CCD daje wyniki zgodne z tymi, które uzyskano wcześniej przy użyciu metody „z przesuwającym otworem”. Pomiarzy mocy wiązki laserowej przed i za obiektywem pokazują, że w wyniku odbicia i rozproszenia światła na kolejnych soczewkach wchodzących w skład obiektywu, 22.5% mocy jest traconej. Oznacza to, że transmisja obiektywu w tym przypadku wynosi 77.5%, czyli pole pod krzywą odpowiadającą wiązce skupionej stanowić powinno 77.5% pola pod krzywą odpowiadającą wiązce nieskupionej. Na rysunku 6.3 pokazane zostały krzywe odpowiadające wiązce nieskupionej A i skupionej B wraz z zaznaczonymi szerokościami połówkowymi.

Skupienie wiązki laserowej doprowadziło co prawda do zwiększenia gęstości mocy wiązki laserowej w najbliższym otoczeniu jej osi, ale jednocześnie w odległości powyżej 0.16 mm od osi gęstość mocy zmalała, co można odczytać z rysunku. Oznacza to modyfikację rozkładu jonów  $Na_2^+$ , powstałych w wyniku dwufotonowej jonizacji dimerów sodowych w obszarze, gdzie pułapkowane są klastera, w porównaniu z sytuacją, gdy wiązka laserowa nie była skupiana.

Szerokość połówkowa wiązki laserowej w miejscu, gdzie pułapkowane były klastera wynosiła  $\delta = 1.38mm$ , a po zogniskowaniu  $\delta = 0.21mm$ .

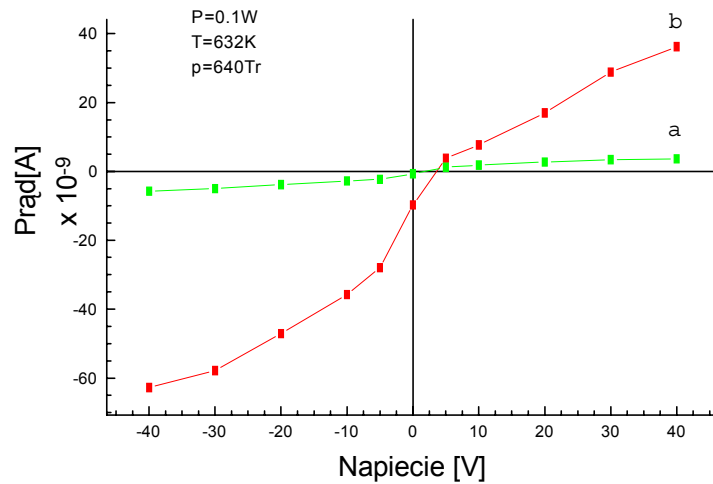
## 6.2. Charakterystyka plazmy powstającej w obszarze pułapkowania klasterów.

W rozdziale 4 oszacowana została koncentracja ładunków w plazmie generowanej wiązką lasera argonowego o długości fali  $\lambda = 488nm$  i mocy  $P=0.1W$ , w przedziale temperatur  $630 K < T < 715 K$ . Nie była to jednak wiązka skupiona, czyli taka, jaka jest konieczna do pułapkowania klasterów. Metoda zaprezentowana w tamtym rozdziale nie nadaje się do oceny koncentracji ładunków w przypadku generowania plazmy wiązką skupioną, gdyż elektroda rozprasza w tym przypadku bardzo silnie światło laserowe (duża gęstość mocy),

co uniemożliwia dobrą obserwację obszaru wokół elektrody.

Dlatego też postanowiliśmy wyznaczyć koncentrację ładunków w plazmie znajdującej się w obszarze między elektrodami filtru kwadrupolowego, w środku skupionej wiązki laserowej, przy użyciu sondy. Dokonując w układzie, przedstawionym na rysunku 6.1, pomiaru charakterystyk prądowo-napięciowych oszacowaliśmy koncentrację ładunków. Z układu doświadczalnego wyjęty został filtr kwadrupolowy, a w jego miejsce włożono elektrodę wolframową, osłoniętą rurką wykonaną z pyrexu, zatopioną na końcu w taki sposób, by na zewnątrz wystawał nieosłonięty drut wolframowy. Długość nieosłoniętej części drutu wynosiła  $l = 6.5mm$ , a średnica  $p = 0.15mm$ . Następnie dokonywane były pomiary napięć i prądów przy użyciu multimetru 2410 1100V SourceMeter firmy Keithley. Dane rejestrowane były przy użyciu komputera z wykorzystaniem karty GPIB.

Na rysunku 6.4 pokazane zostały charakterystyki prądowo-napięciowe wykonane dla zogniskowanej oraz niezogniskowanej wiązki laserowej.

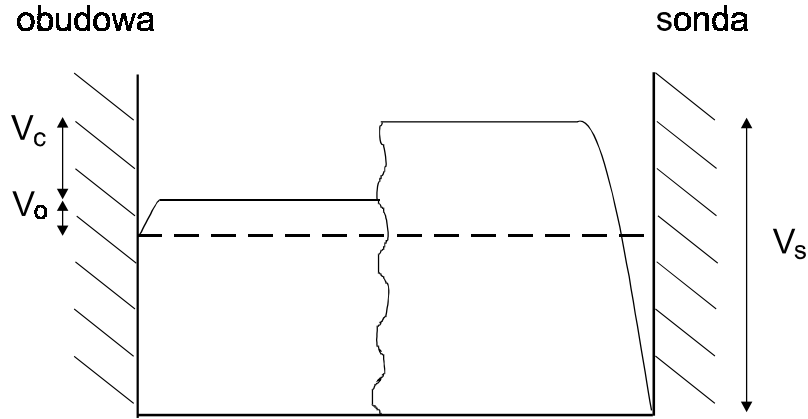


Rysunek 6.4: Charakterystyki prądowo-napięciowe plazmy w przypadku, gdy wiązka laserowa była niezogniskowana - krzywa „a” oraz zogniskowana - krzywa „b”.

Przykładane było napięcie z przedziału (-40V , +40V) między elektrodę wolframową, umieszczoną w obu przypadkach w środku wiązki laserowej, a uziemioną obudowę komórki. Mierzono natomiast prąd, jaki płynął, aby wymusić taką różnicę potencjałów.

Po włączeniu wiązki laserowej ( $P=0.1W$ ) generowana jest plazma. W przekroju poprzecznym komórki posiada ona potencjał zależny od koncentracji ładunków. Jak już zostało powiedziane w rozdziale 4, prędkość średnia elektronów jest większa od prędkości średniej jonów dodatnich. W rezultacie do sondy dociera początkowo, z bezpośrednio otaczającego ją obszaru, więcej elektronów niż ładunków dodatnich. Dlatego też potencjał sondy ustala się na poziomie niższym niż potencjał plazmy [38]. Różnica potencjałów między sondą a plazmą oznaczona została przez  $V_s$  (rysunek 6.5).

Jony  $Na_2^+$ , naładowane dodatnio klastery oraz elektrony w wyniku dyfuzji docierają też do ścianek komórki. Ich koncentracja tuż przy nich jest mniejsza od tej, jaka była wewnątrz wiązki laserowej. Mniejszy zatem jest też spadek potencjału  $V_o$  na granicy



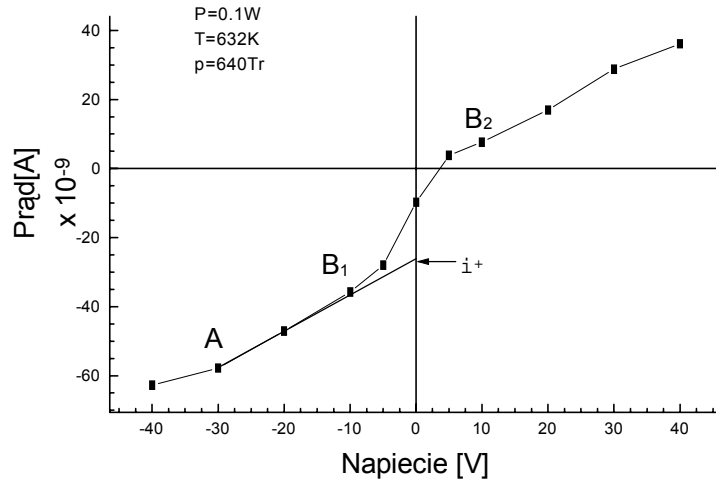
Rysunek 6.5: Rysunek obrazujący charakter rozkładu potencjałów w komórce z sondą.

plazma - obudowa komórki.  $V_c$  oznacza różnicę potencjałów plazmowych między obszarami, w których znajdowała się sonda i obudowa komórki. Wymuszenie zerowego napięcia między obudową komórki a sondą powodowało, że przez obwód zewnętrzny popłynął prąd w kierunku sondy. Jak widać na rysunku 6.4, wartość prądu zależy od tego, czy wiązka jest zogniskowana, czy też nie. Gęstość mocy wiązki laserowej w środku jej przekroju poprzecznego, czyli tam gdzie znajdowała się sonda, była 5 razy większa dla wiązki zogniskowanej (rysunek 6.3). Prąd jaki płynie przez obwód zewnętrzny, gdy napięcie między obudową a sondą równe było zero, jest ponad 14 razy większy w przypadku wiązki skupionej.

Jonizacja dwustopniowa jest zjawiskiem zależnym od kwadratu gęstości mocy wiązki laserowej. Czyli, w wyniku jonizacji dwustopniowej ilość aktów jonizacji powinna wzrosnąć 25 razy dla wiązki skupionej w porównaniu z sytuacją, gdy wiązka nie jest skupiona. Koncentracja jonów w plazmie nie wzrosła jednak 25 razy, z powodu dyfuzji ładunków swobodnych do obszarów poza wiązką laserową.

Z charakterystyk prądowo-napięciowych pokazanych na rysunku 6.4 widać zależność między prądem, jaki płynie przez obwód zewnętrzny, a gęstością mocy wiązki laserowej. Wykorzystując je można oszacować ile razy wzrosła koncentracja ładunków w wiązce skupionej, w porównaniu z sytuacją, gdy wiązka nie była skupiona. Zgodnie z teorią pomiaru parametrów plazmy, przy użyciu sond podwójnych [38][39] (drugą sondą jest obudowa komórki), w obszarze  $B_1B_2$  na rysunku 6.6 widać zależność prądu elektronowego od napięcia. Odcinek  $AB_1$  krzywej na rysunku 6.6 słabo zależy od napięcia zewnętrznego i odpowiada sytuacji, gdy potencjał sondy umieszczonej w komórce jest na tyle niższy względem potencjału plazmy, że elektrony do niej nie docierają. Obserwowany prąd  $i^+$  pochodzi praktycznie od jonów dodatnich i dodatnio naładowanych klasterów. Jest on proporcjonalny do ich koncentracji [38][39]. Można go wyznaczyć dla napięcia zewnętrznego  $V=0$  rysując styczną do odcinka  $AB_1$ , tak jak pokazano to na rysunku 6.6. Jest to prąd, jaki płynie do elektrody w przypadku, gdy wiązka jest zogniskowana. Wynosi on  $i1^+ = -26.36 * 10^{-9} A$ . Postępując w podobny sposób możemy wyznaczyć prąd  $i^+$  dla niezogniskowanej wiązki. W tym drugim przypadku wynosi on  $i2^+ = -1.78 * 10^{-9} A$ . Skupienie wiązki powoduje więc 14.8-krotne zwiększenie prądu  $i^+$ , a więc tyle samo razy różnie koncentracja ładunków dodatnich. Podobnie jest z koncentracją elektronów, jeżeli





Rysunek 6.6: Wyznaczanie wartości prądu  $i^+$  w przypadku, gdy wiązka jest zogniskowana.

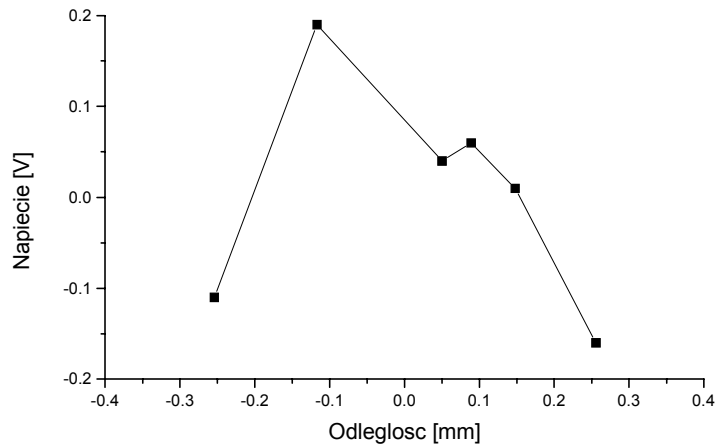
całkowity ładunek jest w układzie zachowany. Korzystając z rysunku 4.3 możemy wyznaczyć koncentrację ładunków dodatnich dla wiązki niezogniskowanej, która dla  $T=632K$  wynosi  $N_{2^+} = 1.5 * 10^{11} \frac{1}{m^3}$ . Mnożąc ją przez 14.8 otrzymujemy dla wiązki zogniskowanej wartość koncentracji ładunków, w jej środku:  $N_{2^+} = 2.2 * 10^{12} \frac{1}{m^3}$ .

Podana tutaj szacowana wartość koncentracji ładunków w środku wiązki laserowej oparta jest o pomiar odległości Debye'a (patrz rozdział 4.1) oraz szacowania wartości prądu  $i^+$  płynącego do sondy. W tym drugim przypadku błąd pomiaru wynika z trudności dobrego określenia punktu oznaczonego na rysunku 6.6 jako B<sub>1</sub>, a co za tym idzie z wykreślenia stycznej do tej części charakterystyki prądowo-napięciowej. Może on wynosić nawet 20%. Jeśli chodzi o szacowanie promienia Debye'a to występuje trudność w znalezieniu ostrej granicy między obszarem, gdzie klastery są i gdzie ich nie ma. Dlatego też podane koncentracje mają jedynie wartość szacunkową. Pokazują one, że w przypadku zogniskowania wiązki laserowej koncentracja elektronów w jej środku rośnie ok. 14-krotnie.

Wykorzystując ten sam układ wykonano również pomiary napięć, jakie należy przyłożyć między sondę a obudowę komórki, by przez układ pomiarowy nie płynął prąd. Napięcia mierzone były w funkcji odległości elektrody od środka skupionej wiązki laserowej (rysunek 6.7).

Przeprowadzone pomiary napięć pokazują, że w przekroju wiązki występuje pewien rozkład gęstości ładunków, zatem i rozkład potencjału plazmy. Kształt krzywej na rysunku 6.7 wydaje się zależeć od kształtu gęstości mocy wiązki laserowej, rysunek 6.3. Krzywe nie będą jednak skalowały się ze względu na fakt, iż po pierwsze, jonizacja dwustopniowa jest proporcjonalna do kwadratu gęstości mocy, a po drugie, w wyniku dyfuzji jonów kształt rozkładu potencjału, czy gęstości ładunków wewnątrz wiązki, będzie „spłaszczany” [12]. Jednocześnie należy pamiętać, że samo umieszczenie sondy wewnątrz wiązki częściowo zmienia rozkład koncentracji jonów i elektronów w wyniku oddziaływania z nimi.

Dotychczasowe dane pokazują, że wewnątrz skupionej wiązki laserowej koncentracja ładunków swobodnych wzrasta ok. 14-krotnie w porównaniu z sytuacją, gdy wiązka



Rysunek 6.7: Pomiar napięć, jakie należy przyłożyć między sondę a obudowę komórki, by przez układ pomiarowy nie płynął prąd, w różnych miejscach skupionej wiązki laserowej. Na osi odciętych pokazana jest odległość od środka wiązki laserowej.

nie jest skupiana. Dodatkowo wewnątrz skupionej wiązki laserowej występuje rozkład gęstości ładunków, a więc i potencjału plazmy. Nie udało się, przy użyciu wyżej wspomnianego układu, dokonać takich samych pomiarów napięć, jakie pokazano na rysunku 6.7 w przypadku, gdy wiązka nie była skupiona (pomiar były poniżej dokładności pomiarowej przyrządu). Fakt ten sugeruje, iż gęstość ładunków w skupionej wiązce laserowej jest na tyle duża, że jej rozkład może wpływać na ruch klastrów sodowych w komórce.

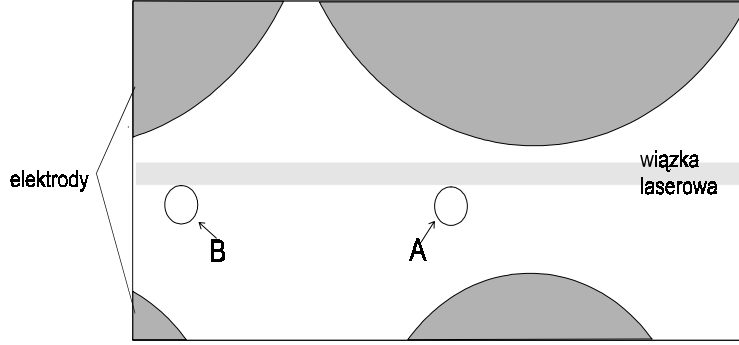
### 6.3. Siły działające na spuławkowany klaster sodowy.

Z przeprowadzonych eksperymentów wynika, że w układzie przedstawionym schematycznie na rysunku 6.1 możliwe jest spuławkowanie klastrów sodowych.

W klasycznej pułapce kwadrupolowej pojedyncza cząstka spuławkowana jest w środku obszaru między elektrodami. Wynika to z kształtu potencjału, w jakim się znajduje. W naszym przypadku z przeprowadzonych doświadczeń wynika, że naładowany klaster sodowy porusza się w potencjale, który ma dwa minima, zaznaczone na rysunku 6.8, jako obszary A i B symetryczne względem pionowej osi pułapki. Klaster spuławkowane były właśnie w tych obszarach. W doświadczeniach z puławkowaniem klastrów skupiliśmy się na jednym z tych obszarów, tzn. zaznaczonym na rysunku 6.8 literą A. Należy jednak podkreślić, że klaster spuławkowane również były w obszarze B.

Rozpatrzmy siły, jakie działają na klaster znajdujący się wewnątrz naszej pułapki. Jedną z nich jest oczywiście oczywiście siła pochodząca od zmiennego napięcia przyłożonego między pary elektrod (patrz rysunek 6.1 oraz rozdział 5.1). Oznaczmy ją przez  $F_{AC}$ . Spróbujmy teraz oszacować jej wartość.

Z obserwacji wynikało, że spuławkowane klaster rozpraszały światło na polaryzacjach  $I_{VV}$  oraz  $I_{HH}$  znacznie intensywniej, niż przeciętne klaster w chmurze po zakończeniu ewolucji w eksperymencie opisanym w rozdziale 2.3.1. Dlatego też zgodnie z teorią Mie



Rysunek 6.8: Rejony pułapkowania klastrów w zmodyfikowanym filtrze kwadrupolowym (A, B).

powinny posiadać one większy promień, niż średni promień klastrów w chmurze po zakończeniu ewolucji. Jeden z takich spulapkowanych klastrów, jak pokazują szacunki, które zostaną zaprezentowane w rozdziale 7.2, miał promień równy ok. 500nm. Przyjmijmy, że nasz spulapkowany klaster ma taki właśnie promień. Niech będzie on naładowany ładunkiem o wartości, np. 50 ładunków elementarnych, tzn.  $Q=8 \cdot 10^{-18} \text{C}$  (patrz rozdział 5.2.2). Pseudopotencjał, w jakim znajduje się spulapkowana cząstka w klasycznym filtrze kwadrupolowym, można wyrazić w postaci [28]:

$$\Phi = W * \frac{r^2}{r_0^2}, \quad (6.1)$$

gdzie:  $r^2 = x^2 + y^2$ ,  $W = \frac{q}{16}V$ ,  $V$  jest amplitudą prądu zmiennego przyłożonego między elektrody, a  $r_0$  promieniem elektrody. Parametr  $q$  natomiast podobnie, jak we wzorach (5.12), wyraża się następująco:

$$q = \frac{4QV}{m\omega^2 r_0^2}. \quad (6.2)$$

Korzystając z pseudopotencjału możemy obliczyć siłę, jaka działa na spulapkowaną cząstkę:

$$F_{AC} = \frac{-V^2 Q^2}{4mr_0^4 \omega^2} * r. \quad (6.3)$$

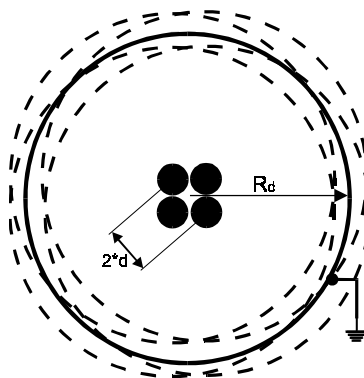
Z doświadczeń z pułapkowaniem klastrów wynikało, że na początku pułapkowania  $x \simeq y \simeq 10^{-3} \text{m}$  (dla obszaru A na rysunku 6.8; układ współrzędnych związany jest z pułapką jak na rysunku 5.1 a),  $V = 233 \text{V}$  oraz  $\omega = 1.319 * 10^4 \frac{1}{\text{s}}$ . Obliczając masę  $m$  na podstawie znajomości promienia klastra i podstawiając odpowiednie wartości do wzoru (6.3) otrzymujemy  $F_{AC} = 1.38 * 10^{-14} \text{N}$ . Siła  $F_{AC}$  działa oczywiście w kierunku środka obszaru między elektrodami.

Następna siła jest związana z obecnością jonów swobodnych w ośrodku. Jak to zostało omówione w rozdziale 4, elektrody zanurzone w plazmie są ujemnie naładowane względem niej. Z obserwacji wynika, że dodatnio naładowane klaster, które powstały wewnątrz wiązki laserowej, ale na zewnątrz kwadrupola, są wciągane do obszaru między elektrodami, a następnie dyfundują głównie wzdłuż elektrod, tak jak to widać na rysunku 6.9.



Rysunek 6.9: Wciąganie klasterów do obszaru między elektrodami, gdy do elektrod nie jest podłączone napięcie.

Oznaczmy siłę, która jest odpowiedzialna za wciąganie klasterów do środka obszaru między elektrodami, spowodowaną ich ujemnym względem plazmy potencjałem, przez  $F_D$ . W celu zredukowania tego efektu przykładamy dodatnie napięcie między wszystkie elektrody a obudowę komórki, która jest jednocześnie uziemiona (patrz rysunek 6.1). Napięciu temu odpowiada siła  $F_{DC}$ . Oszacujemy ją, traktując naszą pułapkę jak układ czterech przesuniętych względem siebie kondensatorów cylindrycznych, których elektrody wewnętrzne mają promień równy promieniowi elektrod kwadrupola  $r_0$ , a elektrody zewnętrzne mają promień  $R_d = 1.5 \cdot 10^{-2} \text{m}$ , równy promieniowi ramienia komórki. Środki elektrod kondensatorów znajdują się w odległości  $d = 3.5 \cdot 10^{-3} \text{m}$  od środka układu, tak jak pokazano to na rysunku 6.10. Jeżeli elektroda zewnętrzna ma odpowiednio duży



Rysunek 6.10: Schemat układu kondensatorów.

promień w porównaniu z elektrodą wewnętrzną, to wówczas można przyjąć, że wszystkie kondensatory mają wspólną elektrodę zewnętrzną o promieniu  $R_d$ .

Korzystając ze wzoru na natężenie pola elektrycznego w odległości  $r$  ( $r_0 < r < R_d$ ) od środka kondensatora cylindrycznego:

$$E(r) = \frac{U}{r \cdot \ln \frac{R_d}{r_0}}, \quad (6.4)$$

możemy wyznaczyć wartość natężenia pola elektrycznego w dowolnym punkcie o współrzędnych  $(x, y)$  wewnątrz naszego układu. Po wykorzystaniu przyjętych założeń i oznaczeń mamy:

$$\begin{aligned} E_x &= \frac{U}{x \cdot \ln \frac{R_d}{r_0}} \cdot \left[ \frac{x-d}{(d-x)^2 + y^2} + \frac{x}{x^2 + (d-y)^2} + \frac{x+d}{(x+d)^2 + y^2} + \frac{x}{x^2 + (d+y)^2} \right], \\ E_y &= \frac{U}{y \cdot \ln \frac{R_d}{r_0}} \cdot \left[ \frac{y}{(d-x)^2 + y^2} + \frac{y-d}{x^2 + (d-y)^2} + \frac{y}{(x+d)^2 + y^2} + \frac{y+d}{x^2 + (d+y)^2} \right], \\ E &= \sqrt{E_x^2 + E_y^2}. \end{aligned} \quad (6.5)$$

Siła działająca na klaster ma więc wartość  $F_{DC} = E \cdot Q = 3.25 \cdot 10^{-14} \text{N}$ .

Jak już zostało wspomniane wcześniej, dodatkowymi warunkami, które są konieczne, by spałkować klaster to:

- a) zogniskowanie wiązki laserowej,
- b) umieszczenie wiązki laserowej niecentralnie względem elektrod, tzn. bliżej górnych elektrod, tak jak to zostało pokazane na rysunku 6.8.

Gęstość plazmy w pobliżu górnych elektrod jest większa. Są one więc naładowane [27][38] bardziej ujemnie niż dolne i dlatego klaster jest przez nie przyciągany siłą  $F_{up}$ . Równowagę ją siła  $F_{down}$  pochodząca od dodatniego potencjału plazmy wewnątrz skupionej wiązki laserowej. Rozkład gęstości mocy wiązki laserowej pokazany został na rysunku 6.3. W procesie dwufotonowym jonizowane są cząsteczki sodowe. Prawdopodobieństwo jonizacji jest proporcjonalne do kwadratu gęstości mocy wiązki laserowej. W obszarze wiązki występuje więc plazma o różnej gęstości. Elektrony opuszczają obszar wiązki szybciej niż jony  $Na_2^+$ , ponieważ mają większą prędkość średnią. Konsekwencją tego jest dodatni rozkład potencjału wewnątrz wiązki. Załóżmy, że potencjał plazmy w wiązce laserowej zmienia się, tak jak napięcie pokazane na rysunku 6.7, które występuje między sondą przesuwaną wzdłuż przekroju poprzecznego wiązki, a obudową komórki. Wówczas natężenie pola elektrycznego może osiągać wartość  $E = 3 \cdot 10^3 \frac{\text{V}}{\text{m}}$ . Przy wcześniejszym założeniu, że ładunek klastera wynosi  $Q = 8 \cdot 10^{-18} \text{C}$ , otrzymujemy:

$$F_{down} = E \cdot Q = 2.4 \cdot 10^{-14} \text{N}.$$

Stwierdzona doświadczalnie konieczność ogniskowania wiązki laserowej wskazuje na możliwość pojawienia się dodatkowych sił optycznych, które również mogą mieć znaczenie w uzyskaniu równowagi wszystkich sił (minimum potencjału). Metalowe kulki są wypychane ze zogniskowanej wiązki laserowej (choć niektóre artykuły sugerują, że istnieje możliwość pułapkowania metalowych drobin wewnątrz zogniskowanej wiązki laserowej [40][41]). Prosta optyka geometryczna pokazuje, że metalowy klaster doświadcza siły optycznej poprzez bezpośredni przekaz pędu [42].

Promienie klasterów są rzędu setek nanometrów ( $\lambda \sim R$ ), dlatego też do opisu ich oddziaływania ze światłem powinna być użyta teoria Mie. Jeśli klaster znajduje się w wiązce laserowej z poprzecznym gradientem natężenia pola, to wówczas rozprasza on światło niesymetrycznie i całowita siła optyczna, działająca na niego, ma składową  $F_R$ , prostopadłą do wektora Poyntinga. Siła ta zwana jest siłą gradientową i jest równa [43][44]:

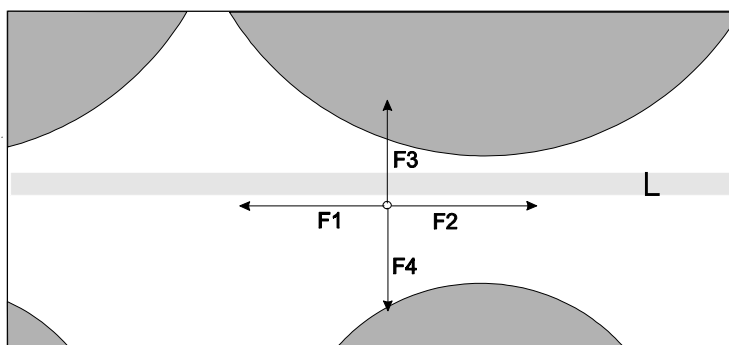
$$\mathbf{F}_R = (\mathbf{P} * \nabla)\mathbf{E} \quad (6.6)$$

gdzie:

$\mathbf{P}$  - wektor polaryzacji,

$\mathbf{E}$  - wektor pola elektrycznego.

Inną siłą związaną z obecnością wiązki laserowej jest siła  $F_R$  pochodząca od grzania [40]. Wypycha ona cząstki z osi wiązki laserowej. Temperatura tuż przy osi wiązki jest wyższa niż w jej rejonie peryferyjnym, a gradient temperatury wyrzuca cząstkę na zewnątrz. Siła ta, zwana siłą radiometryczną, jest zwykle większa niż siły gradientowe [45]. Działa ona tylko w obszarze wiązki laserowej.



Rysunek 6.11: Siły działające na spuląpkowany klaster sodowy w zmodyfikowanym filtrze kwadrupolowym  $F_1 = F_{AC} + F_D$ ,  $F_2 = F_{DC}$ ,  $F_3 = F_{up}$  oraz  $F_4 = F_{down} + F_R + F_H + F_{GV}$ .

Ponieważ obszary, w których pułąpkowane są klaster, rozmieszczone są symetrycznie względem osi pionowej pułapki (rysunek 6.8), dlatego wydaje się, że ciśnienie światła można pominąć.

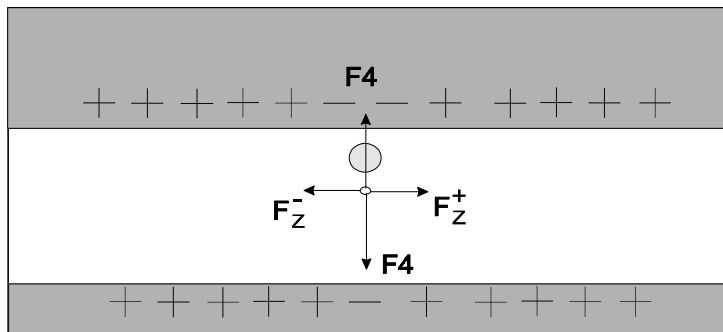
Siłą działającą na spuląpkowany klaster jest również siła grawitacyjna, skierowana do środka Ziemi. Dla sferycznych klasterów o promieniu  $R=500\text{nm}$  przy założeniu, że gęstość sodu w klasterach jest taka sama, jak dla sodu w bryle, wynosi ona  $F_{GV} = 5 * 10^{-15}\text{N}$ .

Równowaga sił  $\mathbf{F}_{up}$ ,  $\mathbf{F}_{down}$ ,  $\mathbf{F}_R$ ,  $\mathbf{F}_H$ ,  $\mathbf{F}_D$ ,  $\mathbf{F}_{DC}$ , razem z siłą  $\mathbf{F}_{AC}$ , związaną ze zmiennym napięciem AC podłączonym między pary elektrod, umożliwia pułąpkowanie klasterów w płaszczyźnie X-Y (rysunek 6.11).

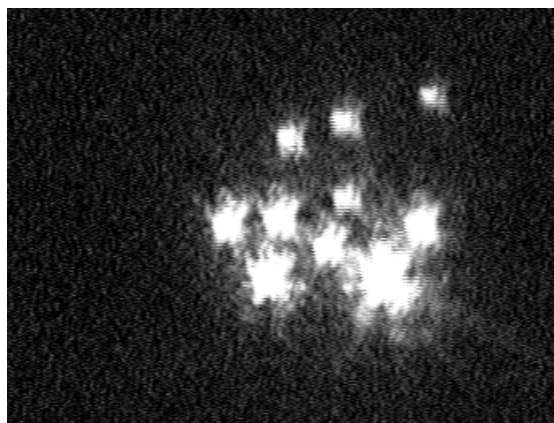
Przytoczone obliczenia wartości sił  $F_{AC}$ ,  $F_{DC}$  i  $F_{down}$ , dla założonego promienia i ładunku klastera, mają charakter szacunkowy. Pokazują one, że siły te są rzędu  $10^{-14}\text{N}$ . W obliczeniach nie uwzględniono jednak wpływu plazmy na siły  $F_{AC}$  oraz  $F_{DC}$ , jak również faktu, że elektrody umieszczone są w rurkach kwarcowych.

Jak już było wspomniane, przy omawianiu rodzajów pułapek kwadrupolowych, zwykły filtr kwadrupolowy pułąpkuje naładowane cząstki w dwóch wymiarach. Jednakże z przeprowadzonych eksperymentów wynika jednoznacznie, że w pułapce pokazanej na rysunku 6.1, klaster pułąpkowane są również wzdłuż osi kwadrupola (oś Z), czyli jest to pułapka trójwymiarowa. Pułąpkowanie wzdłuż osi Z może być rozumiane jako efekt skończonych rozmiarów wiązki laserowej i generowania przez nią plazmy. W kierunku Z fragmenty elektrod, które są bliżej wiązki laserowej są bardziej ujemnie naładowane niż te, które znajdują się dalej od wiązki laserowej. Dodatnio naładowane klaster są trzymane siłami

elektrostatycznymi, pochodzącymi od rozkładu ładunku na elektrodach, albo bardziej precyzyjnie, od rozkładu ładunku na rurkach kwarcowych otaczających elektrody, tak jak pokazane to zostało na rysunku 6.12. Przykład dziesięciu spułapkowanych klasterów pokazany został na rysunku 6.13.



Rysunek 6.12: Pułapkowanie klasterów wzdłuż osi kwadrupola. Siły  $F_Z^+$  oraz  $F_Z^-$  pochodzą od rozkładu ładunku na elektrodach wzdłuż osi Z.



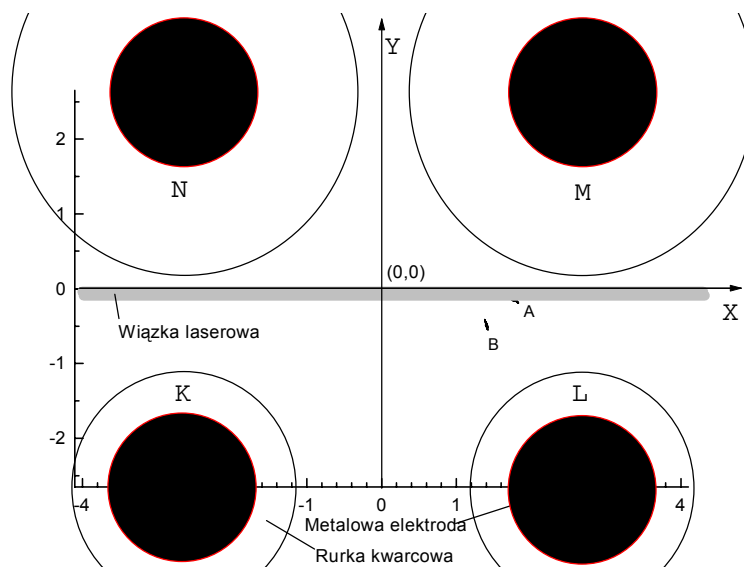
Rysunek 6.13: Przykład dziesięciu spułapkowanych klasterów. Zdjęcie wykonane jest dla  $U=150V$ ,  $V=233V$  dla  $\omega = 13190 \frac{1}{s}$ . Moc wiązki laserowej wynosiła  $P=0.1W$ .

## 7. Własności spułapkowanych klastrów sodowych.

### 7.1. Ruch pojedynczego klastru sodowego wewnątrz zmodyfikowanej pułapki kwadrupolowej.

Dokładny opis zachowania się spułapkowanego klastru sodowego, poprzez określenie sił na niego działających (patrz poprzedni rozdział), jest zagadnieniem bardzo trudnym. W zasadzie można zrobić to tylko jakościowo. Dlatego też postanowiono podejść do zagadnienia inaczej. Badając ruch pojedynczego klastru w momencie pułapkowania wyznaczono jego promień, a analizując położenia spułapkowanego klastru, wyznaczono potencjał, w którym się znajdował.

Przyjmijmy, że obecnie układ współrzędnych XY będzie związany z pułapką w sposób pokazany na rysunku 7.1. Środek układu współrzędnych znajduje się na przecięciu linii łączących środki metalowych elektrod K i M oraz L i N. Na tym samym rysunku pokazano też położenia spułapkowanego klastru w płaszczyźnie XY.

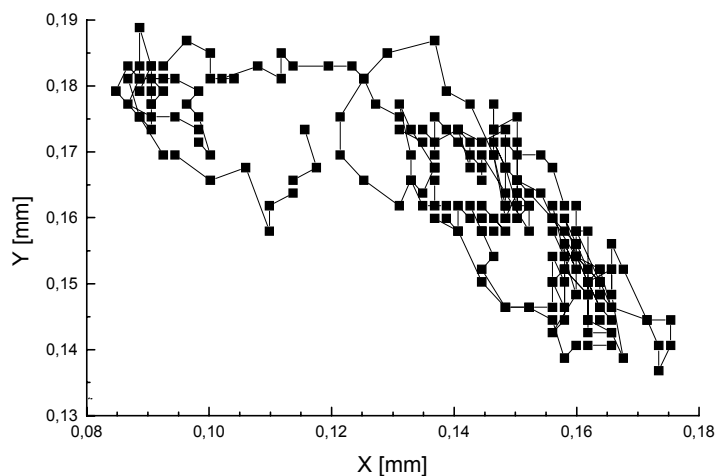


Rysunek 7.1: Położenia pojedynczego spułapkowanego klastru w płaszczyźnie XY. A - moment pułapkowania klastru; B - po 16 minutach od momentu pułapkowania klastru. Obszary A i B odpowiadają ruchowi klastru przez 42s.

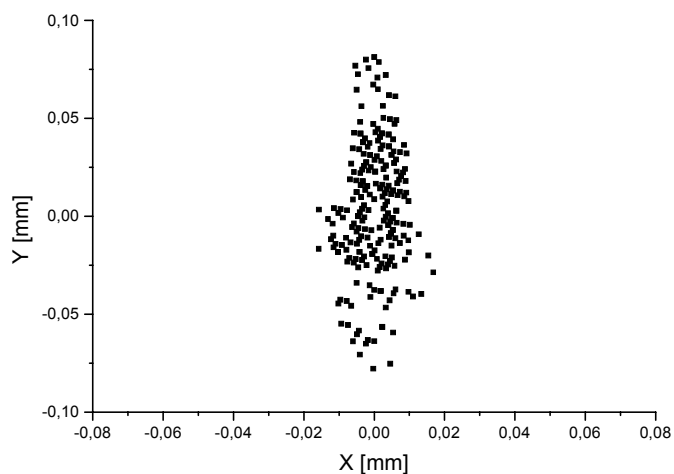
Pomiar przeprowadzono w temperaturze  $T = 632\text{K}$ , przy ciśnieniu gazu buforującego  $p=640\text{Tr}$ , dla mocy wiązki laserowej  $P=0.30\text{W}$ . Napięcia stałe i zmienne, przy jakich spułapkowano klaster, wynosiły odpowiednio:  $U = 150\text{V}$ ,  $V = 233\text{V}$ , a częstotliwość prądu zmiennego:  $\omega = 4207\frac{1}{s}$ . Klaster przebywał w pułapce przez 17 min. W czasie rejestracji ruchu klastru (obszar A czy B) zapisywano sekwencję 256 obrazów.

Ruch, jaki wykonywał klaster w płaszczyźnie XY, na początku pułapkowania oraz położenia klastru po 16 minutach od chwili pułapkowania, przedstawione zostały na rysunkach 7.2 i 7.3.





Rysunek 7.2: Ruch, jaki wykonywał klaster w płaszczyźnie XY na początku pułapkowania.



Rysunek 7.3: Położenia klastera w płaszczyźnie XY po 16 minutach od chwili spuławkowania.

Na rysunku 7.3 dokonano obrotu układu współrzędnych wokół osi OZ o  $17^\circ$ . Przyczyna tej transformacji zostanie omówiona w dalszej części pracy. Dodatkowo dokonano też translacji układu współrzędnych tak, by wyznaczony w rozdziale 7.3, efektywny potencjał działający na klaster miał minimum w punkcie  $(0,0)$ .

## 7.2. Szacowanie promienia pułapkowanego klastra.

W przypadku klasycznej pułapki kwadrupolowej równania ruchu spułapkowanej cząstki w obecności siły lepkości mają postać (5.11). Rozważmy teraz ruch klastra w zmodyfikowanej pułapce kwadrupolowej. Ogólnie można powiedzieć, że porusza się on pod wpływem stochastycznej siły  $F_{st}$  spowodowanej chaotycznymi, nieskompensowanymi uderzeniami cząsteczek ośrodka w jego powierzchnię, oraz dodatkowo pod wpływem siły zewnętrznej  $F$ . Siła ta jest wypadkową siłą pochodzącą od pułapki, a jej składowe zostały omówione w rozdziale 6.3. W rezultacie działania siły  $F_{st}$  klastery uzyskuje pewną średnią energię kinetyczną. Ruchowi klastra przeciwdziała siła tarcia. Załóżmy, że jest ona proporcjonalna do jego prędkości. Równanie ruchu klastra w rzucie, np. na oś OX, przyjmuje wówczas postać [46][47]:

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -D_{tl} \frac{dx}{dt} + F_{st} + F(x), \quad (7.1)$$

gdzie:

$m$  - masa klastra,

$D_{tl}$  - współczynnik tłumienia,

$F_{st}$  - przypadkowa siła stochastyczna,

$F(x)$  - siła zewnętrzna działająca na klastery.

Jeżeli siła zewnętrzna jest mała, tzn. potencjał zewnętrzny, w którym porusza się klastery jest dostatecznie płaski, wówczas równanie ruchu przyjmie postać:

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -D_{tl} \frac{dx}{dt} + F_{st}. \quad (7.2)$$

Jest to równanie Langevina. Formalnie rozwiązanie tego równania może być zapisane jako:

$$v(t) = v(0) * \exp\left[-\frac{D_{tl} * t}{m}\right] + \frac{1}{m} * \int_0^t \exp\left[-\frac{t - \tau}{m} * D_{tl}\right] * F_{st}(\tau) d\tau, \quad (7.3)$$

gdzie:

$$v(t) = \frac{dx}{dt}.$$

Całka znajdująca się po prawej stronie równania (7.3) jest całką stochastyczną, a rozwiązanie jest zmienną losową. Jeśli założymy dodatkowo, że każde przesunięcie cząstki jest niezależne od pozostałych, czyli jest jednakowo prawdopodobne we wszystkich kierunkach, oraz że  $F_{st}$  podlega rozkładowi Gaussa i znika w uśrednieniu po odpowiednio długim czasie, to wówczas ruch klastra ma charakter ruchu Browna.

Łatwo można pokazać, że dla takiego ruchu [46][47]:

$$\langle x^2 \rangle = \frac{2kTt}{D_{tl}} = \frac{kTt}{3\pi\eta * R}, \quad (7.4)$$

gdzie:

$\langle x^2 \rangle$  - średni kwadrat przesunięcia klastra,

$k$  - stała Boltzmanna,

$T$  - temperatura bezwzględna,

$t$  - odstęp czasu pomiędzy kolejnymi pomiarami położenia klastra,

$\eta$  - współczynnik lepkości ośrodka oszacowany w rozdziale 5.2.1.  
Oczywiście (równanie (5.9)):

$$D_{tl} = 6\pi\eta R. \quad (7.5)$$

Równanie (7.4) jest tzw. równaniem Einsteina [46] wiążącym średni kwadrat przesunięcia  $\langle x^2 \rangle$  cząstki kulistej w czasie  $t$  z jej promieniem  $R$ .

Odstęp czasu  $t$  w równaniu (7.4) powinien być dodatkowo duży w porównaniu z czasem relaksacji prędkości  $\tau_0$ , który jest równy [46]:

$$\tau_0 = \frac{m}{D_{tl}} = \frac{m}{6\pi\eta R}. \quad (7.6)$$

Jeśli założymy, że klaster porusza się w ośrodku o temperaturze  $T=632\text{K}$  dzięki ruchom Browna to, korzystając z powyższych rozważań, możemy oszacować jego promień. W rozważaniach tych zajmowaliśmy się równaniami ruchu klastra w kierunku osi OX. Dokładnie takie same rozważania można przeprowadzić dla składowej ruchu klastra w dowolnym kierunku, np. w kierunku osi OY i otrzymane wyrażenie na wartość średniego przesunięcia klastra w tym kierunku będzie takie samo, jak w kierunku osi OX. W eksperymencie rejestrowane były przesunięcia klastra przy użyciu kamery CCD w dwóch wymiarach. Dlatego też równanie (7.4), po zamianie „ $x$ ” na „ $l$ ”, gdzie „ $l$ ” oznacza odległość w płaszczyźnie XY ( $l^2=x^2+y^2$ ), możemy przekształcić do następującej postaci:

$$R = \frac{2 * kTt}{3\pi\eta * \langle l^2 \rangle}. \quad (7.7)$$

Założenie o niewielkim wpływie potencjału zewnętrznego działającego na klaster wydaje się być najlepiej spełnione w początkowych momentach jego pułapkowania. Wtedy to w zasadzie „istnieje tylko podejrzenie”, że może on zostać spułapkowany. Świadczy o tym, m.in. trajektoria ruchu klastra pokazana na rysunku 7.2, tzn. jej przypadkowość. W doświadczeniu rejestrowane było położenie klastra co  $t = \frac{42}{256}$  s. Współczynnik lepkości wynosił  $\eta = 3 * 10^{-5}\text{Pa}\cdot\text{s}$  (rozdział 5.2.1), a wyznaczone z eksperymentu  $\langle l^2 \rangle = 1.98 * 10^{-11}\text{m}^2$ . Podstawiając te wartości do wzoru (7.7) uzyskujemy  $R=512$  nm.

Dla klastra o takim promieniu  $\tau_0 \sim 10^{-6}$ , czyli rzeczywiście jest małe w porównaniu z czasem  $t$ .

Pokazana metoda szacowania promienia klastra na początku jego pułapkowania jest obciążona pewnym błędem, ponieważ pominięty w niej został potencjał zewnętrzny działający na klaster. Jego ruch był jednak zbliżony do ruchu klastrów, które nie były pułapkowane i poruszały się tylko dzięki ruchom Browna. Oznacza to, że siły pochodzące od kwadrupola miały niewielki wpływ na zachowanie klastra. Dlatego też zaprezentowana metoda może służyć do wstępnego szacowania promienia klastra w momencie jego pułapkowania. W tym przypadku pułapkowany klaster miał ok. 512 nm. Poczynione założenie w zasadzie sprowadza się do stwierdzenia, iż potencjał zewnętrzny, w którym porusza się klaster, jest dostatecznie płaski, tak że nie wpływał on znacznie na ruchy Browna. Można go zatem pominąć.

### 7.3. Efektywny potencjał pułapkujący.

Przyjmijmy, że pochodzące od zmodyfikowanego kwadrupola siły działające na spułapkowany klaster można opisać przy użyciu pewnego potencjału.

W czasie wykonywania eksperymentu klaster znajdował się w środowisku o temperaturze  $T=632\text{K}$ . Oznacza to, zgodnie z zasadą ekwipartycji energii, że średnia energia jego ruchu postępowego w dwóch wymiarach wynosiła:

$$\frac{1}{2}m \langle v^2 \rangle = k * T, \quad (7.8)$$

gdzie:

$\langle \rangle$  - oznacza wartość średnią,

$m$  - masa klastra,

$v$  - prędkość w płaszczyźnie XY.

Dzięki tej energii klaster porusza się w potencjale zewnętrznym w sposób chaotyczny .

Jeżeli dalej rozważać będziemy niewielkie wychylenia klastra z położenia równowagi, to wówczas efektywny potencjał, w którym pozostaje spuląpkowany klaster, powinien dać się przybliżyć potencjałem harmonicznym, tak jak ma to miejsce w przypadku zwykłego kwadrupola [28].

Ogólnie potencjał taki jest formą kwadratową dodatnio określonych wychyleń z położenia równowagi [48]:

$$V(x_1, x_2, x_3) = \sum_{i,j=1}^3 a_{ij}x_ix_j, \quad (7.9)$$

gdzie:

$$x_1 = x, x_2 = y, x_3 = z;$$

Formę taką można zawsze zdiagonalizować, tj. przedstawić w postaci sumy kwadratów wychyleń w innych odpowiednio dobranych zmiennych, będących liniowymi kombinacjami poprzednich zmiennych. Technicznie problem sprowadza się do zapisania potencjału w układzie osi głównych. Stąd też dokonano wcześniej obrotu układu współrzędnych (rysunek 7.3). Wówczas:

$$V(x', y', z') = \alpha_x(x')^2 + \alpha_y(y')^2 + \alpha_z(z')^2, \quad (7.10)$$

gdzie  $x', y', z'$  oznaczają współrzędne cząstki w nowym układzie. Oznaczmy dalej współrzędne w nowym układzie przez  $x, y, z$  oraz niech:

$$\begin{aligned} V_x &= \alpha_x \cdot (x)^2, \\ V_y &= \alpha_y \cdot (y)^2, \\ V_z &= \alpha_z \cdot (z)^2. \end{aligned} \quad (7.11)$$

Prawdopodobieństwo znalezienia klastra w danym punkcie w płaszczyźnie XY można związać z energią potencjalną, jaką posiada klaster w pułapce w tej płaszczyźnie, stosując rozkład Boltzmanna [46] (wzór 7.12).

$$P(x, y) = A * \exp\left[\frac{-V(x, y)}{k * T}\right], \quad (7.12)$$

gdzie:

$P(x, y)$  - prawdopodobieństwo znalezienia klastra w danym punkcie w płaszczyźnie XY,

$V(x, y) = \alpha_x \cdot (x)^2 + \alpha_y \cdot (y)^2$ - energia potencjalna klastra w płaszczyźnie XY ,  
 $A$  - pewna stała ,  
 $T$  - temperatura bezwzględna.

Po przekształceniu równania (7.12) otrzymujemy równanie opisujące kształt dwuwymiarowego potencjału (7.13) :

$$V(x, y) \sim -kT \ln[P(x, y)]. \quad (7.13)$$

W opisanym w rozdziale 7.1 eksperymencie z pojedynczym spułapkowanym klastrzem (16-ta minuta pułapkowania) w jednej sekwencji zapisywanych było 256 obrazów. Na każdym z nich lokalizowane było położenie klastra, a następnie zapisywane jego współrzędne. Ponieważ uzyskuje się w ten sposób tylko 256 punktów, to trudno, z takiej ilości danych, dobrze aproksymować potencjał w dwóch wymiarach. Jednocześnie, jak wskazywały pomiary optyczne, które przytoczone zostaną w dalszej części pracy, klaster rośnie w czasie przebywania w pułapce oraz prawdopodobnie zmieniał się ich ładunek. Dlatego też dłuższa rejestracja jednej sekwencji nie miała większego sensu, ze względu na możliwość zmian potencjału, w którym znajdował się klaster, ponieważ, m.in od masy klastra zależy pseudopotencjał  $\Phi$  (wzór 6.1) związany ze zmiennym napięciem  $V$  przykładanym do elektrod kwadrupola. W omawianym doświadczeniu, przy tych parametrach, w jakich było ono wykonywane, można przyjąć, że przez 42s na klaster działa pewien stały (uśredniony) potencjał. Świadczył o tym charakter ruchu klastra. Ponieważ, jak już wspomniano, z 256 punktów trudno odtworzyć dwuwymiarowy potencjał, wobec tego postanowiono odtworzyć przekrój tego potencjału wzdłuż osi OX i OY, tzn. znaleźć  $V_x$  i  $V_y$ . Zbadano, jakie jest prawdopodobieństwo, że klaster ma swoją współrzędną „x” oraz „y” w kolejnych przedziałach, o szerokości odpowiednio 0.005 mm oraz 0.025 mm, a następnie podstawiono do wzoru (7.13) (zobacz [49]). Wyznaczono w ten sposób przekroje potencjału (w nowym układzie współrzędnych), jaki działa na klaster, wzdłuż osi OX i OY, po 16 minutach pułapkowania (rysunek 7.3). Na rysunkach 7.4 oraz 7.5 pokazane są uzyskane w ten sposób przekroje potencjału odpowiadające rysunkowi 7.3.

Ponieważ potencjał harmoniczny ma postać:

$$U_d = \frac{1}{2} \alpha_d * d^2, \quad (7.14)$$

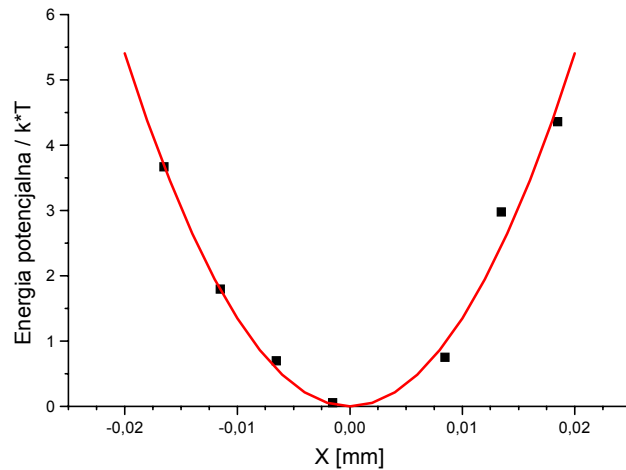
gdzie:  $d$  - oznacza  $x$  lub  $y$ ,  $U$  - potencjał, a  $\alpha$  - jest stałą sprężystości to:

$$\alpha_d = 2 * k * T * a_d, \quad (7.15)$$

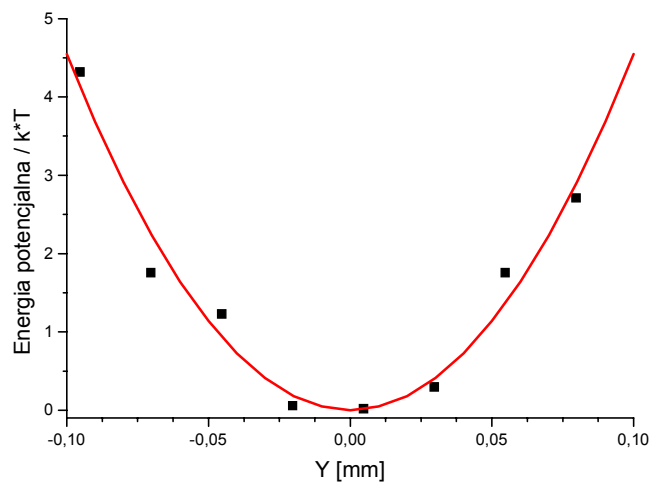
gdzie:  $a_d$  - oznacza współczynnik przy  $d^2$  wynikający z dopasowania krzywych (patrz rysunek 7.4 oraz rysunek 7.5),  $k$  - stałą Boltzmanna,  $T$  - temperaturę.

Podstawiając wartości  $a_x = 1.352 \cdot 10^{10}$  oraz  $a_y = 4.553 \cdot 10^8$  do wzoru (7.14) otrzymujemy stałe sprężystości równe odpowiednio:  $\alpha_x = 2.358 * 10^{-10} \frac{N}{m}$  oraz  $\alpha_y = 7.942 * 10^{-12} \frac{N}{m}$ .

Z przeprowadzonych rozważań widać więc, że mimo, iż opis sił działających na klaster jest bardzo skomplikowany, to można oszacować efektywny potencjał, w jakim porusza się klaster. Wyliczone współczynniki sprężystości w kierunku osi OX i OY, w przeciwieństwie do klasycznego kwadrupola [50], są różne. Współczynnik sprężystości  $\alpha_x$  jest około 30 razy większy niż  $\alpha_y$ . Jest to konsekwencją złamania symetrii układu, jaki tworzy kwadrupol, poprzez wprowadzenie wiązki laserowej.



Rysunek 7.4: Przekrój potencjału działającego na klastery sodowy po 16 minutach pułapkowania wzdłuż osi OX (ciemne punkty) wraz z dopasowaną krzywą typu  $y=a \cdot x^2$ ; „a” w tym przypadku wynosi  $a=1.352 \cdot 10^{10}$ .



Rysunek 7.5: Przekrój potencjału działającego na klastery sodowy po 16 minutach pułapkowania wzdłuż osi OY (ciemne punkty) wraz z dopasowaną krzywą typu  $y=a \cdot x^2$ ; „a” w tym przypadku wynosi  $a=4.553 \cdot 10^8$ .

Na koniec tego rozdziału wyznaczmy jeszcze częstość własną  $f_0$  ruchu klastera w takim potencjale. Załóżmy, że klastery miały promień  $R=500\text{nm}$  (rozdział poprzedni). Znając gęstość sodu możemy obliczyć jego masę  $m$ . W tym przypadku wynosi ona  $m = 4.97 \cdot 10^{-16}\text{kg}$ .

Ponieważ:

$$f_0 = 2\pi\sqrt{\frac{\alpha_d}{m}}, \quad (7.16)$$

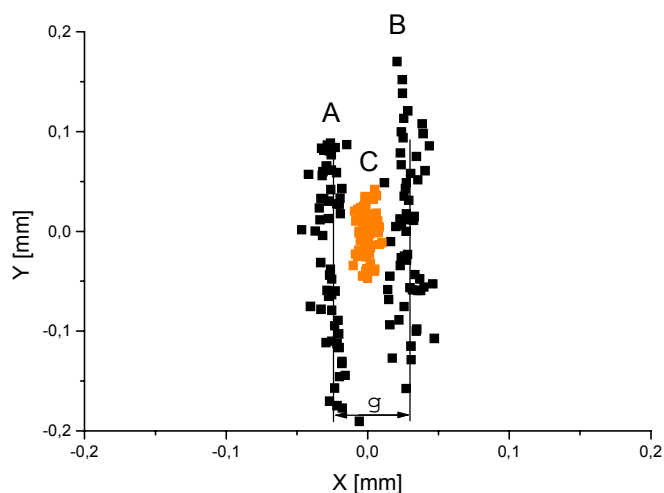
to otrzymamy, że częstość własna w kierunku osi OX wynosi -  $f_{X0} = 4325\text{Hz}$ , a w kierunku osi OY  $f_{Y0} = 793.7\text{Hz}$ . Oczywiście są to wielkości szacunkowe, gdyż wynikają one z założenia dotyczącego promienia klastra. Promień, który założono, posiadały klaster w momencie spulapkowania, a potencjał wyznaczony został dopiero po 16 minutach. Ponieważ, jak wskazują eksperymenty zaprezentowane w dalszej części pracy, klaster rosną w czasie spulapkowania, to zgodnie ze wzorem (7.16) wyliczone częstości własne należy traktować jako maksymalne. Pokazują one jednak, jakiego rzędu częstości własnych należy spodziewać się w takim potencjale.

#### 7.4. Dwa klaster w pułapce.

Jednym z parametrów dotyczących spulapkowanego klastra sodowego w zmodyfikowanej pułapce kwadrupolowej jest jego ładunek. Eksperymenty, w których obserwowany był ruch klastrów w wytworzonym w komórce stałym polu elektrycznym wykazały, że klaster są dodatnio naładowane. Obecność plazmy w komórce, po włączeniu indukującej wiązki laserowej o długości fali  $\lambda = 488 \text{ nm}$ , jak również złożoność samej metody spulapkowania, uniemożliwiają szacowanie ładunku, a w zasadzie stosunku ładunku do masy, w sposób w jaki się to robi, gdy do spulapkowania używa się klasycznej pułapki kwadrupolowej. Dlatego też zaproponowano inny sposób oszacowania ładunku klastra. Wykorzystano do tego celu układ dwóch spulapkowanych klastrów. W warunkach, w jakich przeprowadzane były wcześniejsze doświadczenia z spulapkowaniem klastrów, tzn. w temperaturze  $T = 632\text{K}$ , przy ciśnieniu gazu buforującego  $p=640\text{Tr}$  i mocy wiązki laserowej  $P=0.30\text{W}$ , spulapkowano dwa klaster. Napięcia stałe i zmienne, przy jakich je spulapkowano, wynosiły odpowiednio:  $U = 150\text{V}$ ,  $V = 233\text{V}$ , a częstotliwość prądu zmiennego  $\omega = 4207\frac{1}{s}$ . Czas spulapkowania wynosił  $t=41 \text{ minut}$ .

Po 18 minutach 55 sekundach jeden z klastrów opuścił obszar pułapkowania. Na rysunku 7.6 pokazane zostały położenia dwóch klastrów przez ostatnie 10 sekund, przed wypadnięciem jednego z nich, oraz położenia pozostałego klastra, przez pierwsze 11 sekund samotnego przebywania w pułapce. W czasie tych 21 sekund zarejestrowanych zostało 128 obrazów, rejestrujących położenia klastrów w równych odstępach czasowych. By można było zapisać potencjał, w jakim znajdował się klaster, w postaci przedstawionej wzorem (7.10), dokonano obrotu układu współrzędnych (rysunek 7.1) o  $7^\circ$  względem osi kwadrupola (patrz rozdział 7.3.1). Położenia klastrów na rysunku 7.6 pokazane zostały w nowym układzie współrzędnych.

Spulapkowane jednocześnie dwa klaster utrzymywane były w potencjale wytwarzanym przez pułapkę. Ponieważ posiadały one ładunek tego samego znaku, wobec tego odpychały się siłą kulombowską, tak że w kierunku OX średnia odległość między nimi wynosiła „g”. Odległość ta zależała ona od ładunku, jaki posiadały klaster oraz od efektywnego potencjału, w jakim się znajdowały. Wypadnięcie klastra A spowodowało, że klaster B zmienił swoje położenie w pułapce.



Rysunek 7.6: Położenia dwóch spułapkowanych klasterów przez ostatnie 10 sekund przed wypadnięciem klastera A oraz położenia klastera B przez 11 sekund po wypadnięciu klastera A - obszar C.

#### 7.4.1. Wyznaczenie potencjału w jakim poruszały się klaster.

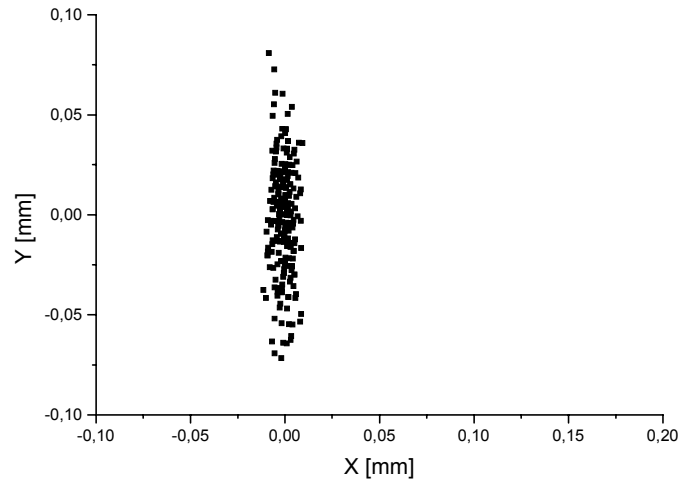
W rozdziale 7.3 wyznaczony został potencjał efektywny działający na klaster po 16 minutach od chwili spułapkowania. Może on zależeć od parametrów, przy jakich był spułapkowany klaster, ale również np. od masy klastera, ponieważ od niej zależy, m.in. pseudopotencjał  $\Phi$  (wzór (6.1)) związany ze zmiennym napięciem  $V$ , przykładanym do elektrod kwadrupola. Dlatego też w przypadku układu dwóch spułapkowanych klasterów potencjał, w jakim one znajdowały się, mógł być inny, niż wyznaczony w rozdziale 7.3.

W celu wyznaczenia tego potencjału dokonano zapisu 256 położzeń klastera B przez 43 pierwsze sekundy po ucieczce klastera A. Pokazane one zostały na rysunku 7.7.

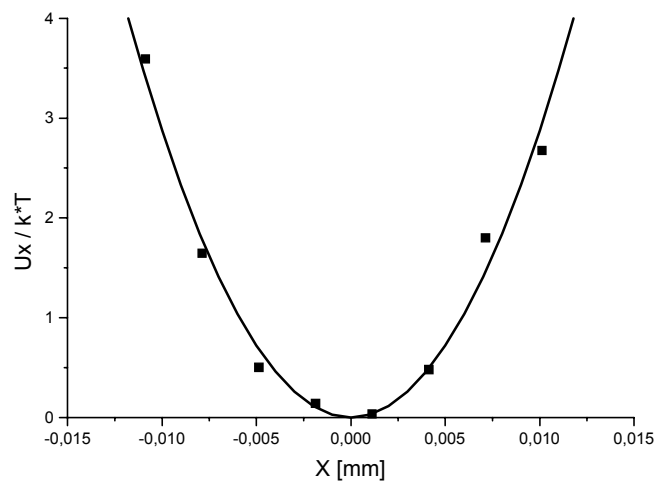
Postępując podobnie jak w rozdziale 7.3 można wyznaczyć prawdopodobieństwa tego, że współrzędne „x” oraz „y” klastera znajdują się w kolejnych przedziałach o szerokościach odpowiednio równych 0.003 mm i 0.02 mm. Długości przedziałów, podobnie jak w rozdziale 7.3, zostały tak dobrane, by z jednej strony mieć maksymalną ich liczbę, a z drugiej strony, by nie było ich za dużo, bo całkowita liczba wszystkich położzeń klastera w kolejnych przedziałach czasowych wynosiła 256. Następnie po wyznaczeniu prawdopodobieństwa przebywania klastera w odpowiednich przedziałach w kierunku osi OX oraz OY, korzystając ze wzoru (7.13), obliczono przekroje efektywnego potencjału działającego na spułapkowany klaster w kierunku tych osi. Na rysunkach 7.8 oraz 7.9 pokazane zostały te przekroje wraz z dopasowanymi do nich krzywymi potencjału harmonicznego.

Przekroje potencjału zostały przedstawione w ten sposób, że ich minima wynoszą „0”. Oś rzędnych, która jest osią symetrii potencjałów, obrazuje ile razy potencjał, który działa na klaster, jest większy od ich energii termicznej  $kT$ .





Rysunek 7.7: Położenia klastera B przez pierwsze 43 sekundy po wypadnięciu klastera A.



Rysunek 7.8: Przekrój potencjału działającego na klaster w kierunku osi OX, tuż po wypadnięciu drugiego klastera.

Po dopasowaniu do punktów pokazanych na rysunkach 7.8 oraz 7.9 krzywych postaci:

$$U_d = \frac{1}{2} \alpha_d * d^2, \quad (7.17)$$

gdzie:

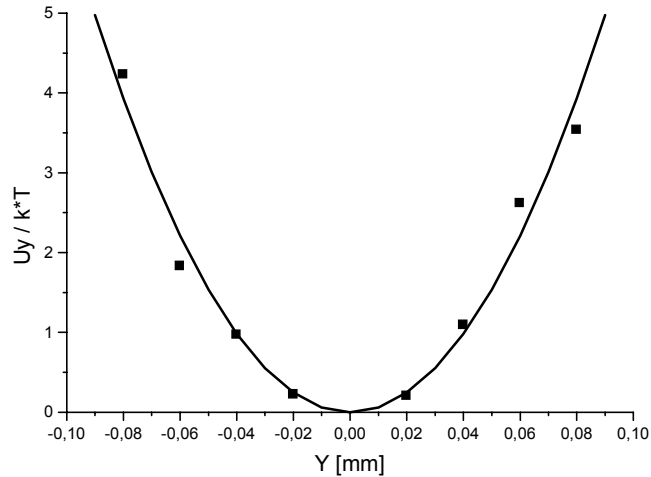
$d$  - oznacza  $x$  albo  $y$ ,

$U_d$  - składowa potencjału,

$\alpha_d$  - składowa współczynnika sprężystości.

otrzymujemy  $\alpha_x = 5.019 * 10^{-10} \frac{N}{m}$  oraz  $\alpha_y = 1.070 * 10^{-11} \frac{N}{m}$ .

Współczynnik sprężystości w kierunku osi OX jest około 47 razy większy niż w kierunku osi OY, podobnie jak to miało miejsce w rozdziale 7.4. Dlatego też łatwiej klasterowi poruszać się w kierunku osi OY (patrz rysunek 7.7).

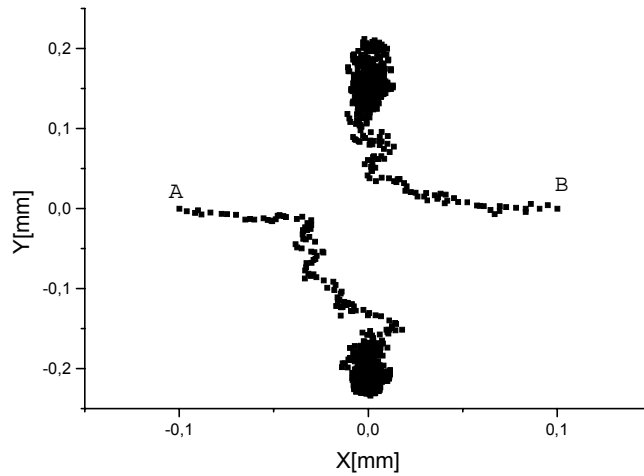


Rysunek 7.9: Przekrój potencjału działającego na klaster w kierunku osi OY, tuż po wypadnięciu drugiego klastera.

#### 7.4.2. Określenie ładunku klasterów

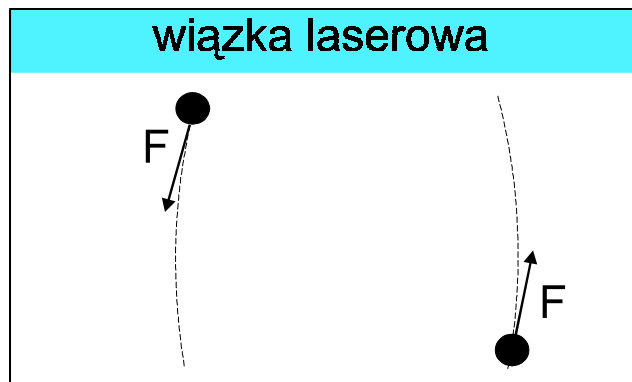
Zajmijmy się teraz układem dwóch klasterów tuż przed wypadnięciem jednego z nich z obszaru pułapkowania. Na rysunku 7.6 widać wyraźnie, że ich trajektorie są oddalone od siebie średnio o  $g = 55.4 * 10^{-6}m$  wzdłuż osi OX. Z symulacji komputerowych, przeprowadzonych przy użyciu metody Monte-Carlo wynika, że przy zadanych stałych sprężystości wyliczonych przez nas, konfiguracja dwóch naładowanych klasterów powinna wyglądać tak, jak przedstawiono to na rysunku 7.10 [51]. Temperatura układu wynosiła  $T=632K$ .

Różnice między konfiguracją uzyskaną w wyniku symulacji komputerowych, a rzeczywistą konfiguracją otrzymaną z doświadczenia (rysunek 7.6), wynikają prawdopodobnie z faktu, że potencjał w kierunku osi OY możemy traktować jako harmoniczny tylko do momentu, gdy klaster znajduje się dostatecznie daleko od wiązki laserowej. Jeśli zbliży się on odpowiednio blisko do wiązki laserowej, to wówczas rośnie gwałtownie siła działająca na niego. Głównie pochodzi ona od grzania i rozkładu swobodnych jonów dodatnich wewnątrz wiązki laserowej. Doznaje on więc silnego przyspieszenia w kierunku przeciwnym niż poruszał się do tej pory (na zewnątrz wiązki laserowej). Jednocześnie drugi klaster sprzężony jest z nim siłą kulombowską. Przeprowadzone obserwacje wykazują, że oba klastera poruszają się w przeciwnym kierunku, tzn. jeśli jeden znajduje się blisko wiązki



Rysunek 7.10: Symulacja, wykonana metodą Monte-Carlo, obrazująca zachowanie się dwóch klasterów naładowanych ładunkiem  $Q=1000$  ł. e., w potencjale dwuwymiarowym ze współczynnikami sprężystości równymi  $\alpha_x = 5.019 \cdot 10^{-10} \frac{N}{m}$  oraz  $\alpha_y = 1.07 \cdot 10^{-11} \frac{N}{m}$ . A i B oznaczają położenia początkowe klasterów.

(maksymalnie wysoko na rysunku 7.6), to drugi jest maksymalnie od niej oddalony. W rezultacie powstaje coś w rodzaju wahadła torsyjnego pokazanego na rysunku 7.11.



Rysunek 7.11: Rysunek obrazujący ruch dwóch klasterów w potencjale pułapki.

Gdyby nie było trudnej do oszacowania stałej sprężystości  $\alpha_z$  w kierunku osi OZ, oraz wartość  $\alpha_x$  byłaby zbliżona do  $\alpha_y$  to wówczas trajektorie ruchu klasterów byłyby „zaokrąglone”, tak jak na rysunku 7.11. Mający miejsce ruch oscylacyjny wzdłuż osi kwadrupola ze stałą sprężystości  $\alpha_z$ , powoduje prawdopodobnie, że trajektorie cząstek są do siebie równoległe tak, jak pokazano to na rysunku 7.6.

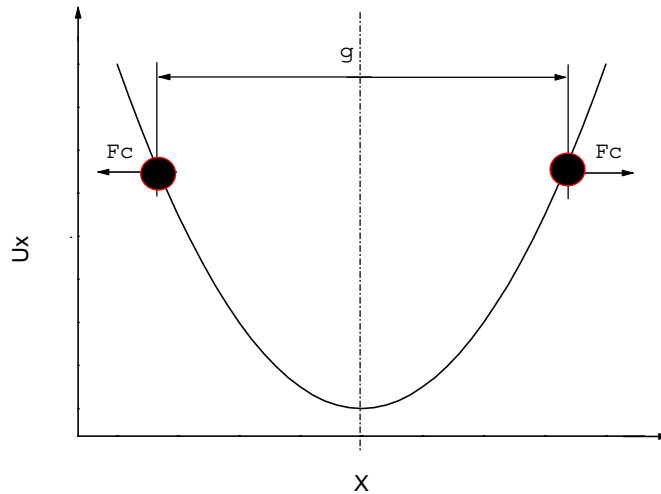
Jeśli założymy, że przekrój potencjału w kierunku osi OX, działający na dwa klaster, jest taki sam jak na jeden, tzn.  $\alpha_x = 5.019 \cdot 10^{-10} \frac{N}{m}$  oraz, że odległość między obszarami

A i B na rysunku 7.6 jest spowodowana odpychaniem kulombowskim, to wówczas możemy napisać:

$$\frac{1}{4\pi\epsilon_0} * \frac{Q^2}{g^2} = \alpha_x * \frac{g}{2} + \alpha_x * \frac{g}{2}, \quad (7.18)$$

gdzie:  $\epsilon_0$  - przenikalność dielektryczna próżni,  $Q$  - ładunek klastra.

Siła kulombowskiego odpychania działająca na dwa naładowane jednoimiennie klasterki jest równoważona przez siłę związaną z efektywnym potencjałem pułapki (patrz rysunek 7.12). Dodatkowo założone też zostało, że klasterki mają jednakowy ładunek.



Rysunek 7.12: Rysunek poglądowy obrazujący ustawienie się dwóch odpychających się siłą kulombowską  $F_c$  klastrów sodowych umieszczonych w potencjale  $U_x$ .

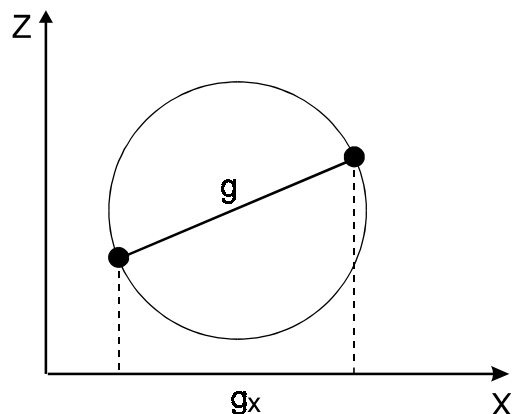
Ze wzoru (7.18) łatwo możemy wyznaczyć ładunek jednego klastra:

$$Q = \sqrt{4\pi\epsilon_0 * \alpha_x * g^3}. \quad (7.19)$$

Podstawiając  $g = 55.4 * 10^{-6}m$  do wzoru (7.19) otrzymujemy  $Q = 9.58 * 10^{-17}C$ . Jeżeli oznaczymy przez  $Z$  liczbę ładunków elementarnych tak, by:

$$Q = Z * 1.6 * 10^{-19}C \quad (7.20)$$

to klasterek posiada ładunek równy  $Z=599$  ładunków elementarnych. Ponieważ tak, jak to było już wspomniane wcześniej, nie znamy  $\alpha_z$ , gdyż z kamery otrzymujemy obraz płaski, a w eksperymencie nie możemy ustawić kamery tak, by obserwować ruch klastra w kierunku osi OZ, to wartość  $Q = 599$  ładunków elementarnych należy traktować jako minimalny ładunek, jaki posiada klasterek w momencie, gdy z pułapki ucieka drugi klasterek. Można to wytłumaczyć następująco. Załóżmy, że  $\alpha_z = \alpha_x$ . Wówczas układ dwóch klastrów może ustawić się w tym dwuwymiarowym symetrycznym potencjale  $U_{XZ}$ , tak jak na rysunku 7.13.



Rysunek 7.13: Rysunek pokazujący dlaczego obliczony ładunek klastra należy uważać za minimalny.

Przy użyciu kamery można zarejestrować tylko rzut  $g$  na oś  $OX$ , czyli  $g_x$ . Podstawiając tę wartość do wzoru (7.19), otrzymujemy wartość ładunku klastra, która jest mniejsza od rzeczywistej.

W przeprowadzonym doświadczeniu udało się zarejestrować moment, w którym klasterzy ustawiły się prawdopodobnie „naprzeciw siebie” w kierunku osi  $OX$ , tak jak przedstawiono to schematycznie na rysunku 7.12. Był to punkt równowagi nietrwałej. Przebywały one w takiej konfiguracji przez kilka sekund. Odległość między nimi wynosiła  $g_1 = 78.3 \cdot 10^{-6} \text{m}$ . Podstawiając tę wartość do wzoru (7.19) otrzymujemy wartość ładunku  $Q = 1006$  ładunków elementarnych. Jeśli przyjmiemy, że w tej konfiguracji odcinek łączący klasterzy miał tylko składową „ $x$ ” („ $y$ ” - wynosiła 0, natomiast składowa „ $z$ ” też prawdopodobnie była bliska zera), to wyliczony ładunek powinien być zbliżony do rzeczywistego ładunku, jaki posiadały klasterzy. Należy dodać, że klasterzy miały zbliżone współrzędne w kierunku osi  $OZ$ , gdyż ich obrazy były jednakowo „ostre”, tzn. znajdowały się one w obszarze głębi ostrości. Powiększenie mikroskopu było 100-krotne. Trudno jednak w tym przypadku określić rzeczywistą głębi ostrości, gdyż w skład układu optycznego wchodził również obiektyw kamery. Przeprowadzone wcześniejsze doświadczenia pokazywały jednak, że niewielkie ruchy klastrów powodowały opuszczanie przez nie obszaru głębi ostrości.

Przedstawiona tutaj metoda oceny ładunku, jaki posiadają klasterzy, pozwala na oszacowanie tego ładunku dla układu dwóch klastrów w momencie, kiedy jeden z nich opuszcza pułapkę. Pozwala ona więc określić ładunek klastra tylko w danym momencie pułapkowania. Niemniej jednak jest to metoda, która pozwala szacować bezpośrednio z danych eksperymentalnych wartość ładunku, jaki posiadają klasterzy.

Analizując układ dwóch klastrów (rysunek 7.6), wyraźnie widać też, że położenia każdego z nich pokrywają większą powierzchnię niż w przypadku, gdy w pułapce pozostaje jeden klaster. Efekt jest taki, jakby układ dwóch klastrów posiadał wyższą temperaturę niż jeden klaster, gdy pozostanie sam. Nie ma w tym nic dziwnego, gdyż układ dwóch klastrów jest analogiczny do cząsteczki dwuatomowej i może np. „pobierać” energię od zmiennego pola elektrycznego, przykładanego do elektrod kwadrupola.

### 7.4.3. Wpływ ładunku klasterów na ich deformację.

Historia deformacji i rozpadu naładowanych klasterów metalicznych sięga korzeniami 1882 roku, kiedy to Reyleigh badał stabilność naładowanych kropeł metalu [52]. Jako pierwszy zwrócił on uwagę na fakt, że małe krople metalu są tworzone dzięki napięciu powierzchniowemu i mogą ulegać rozpadowi, kiedy są naładowane. Zakładając elipsoidalną deformację sferycznych kropeł, znalazł on uniwersalną zależność między promieniem, przy jakim rozszczepiana jest kropla, a ładunkiem jaki posiada. Stosując tę teorię do klasterów metalicznych otrzymujemy, że minimalna liczba atomów, z jakich może się składać stabilny klaster (nie ulegający rozpadowi), powinna być proporcjonalna do kwadratu ładunku, jaki on posiada.

Całkowita energia kropli metalu o promieniu  $R$  i ładunku  $Q$  jest sumą energii powierzchniowej

$$E_S = 4\pi R^2 \sigma \quad (7.21)$$

i energii kulombowskiej

$$E_C = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{Z^2 \cdot e^2}{2R}, \quad (7.22)$$

gdzie  $\sigma$  jest napięciem powierzchniowym,  $e$  jest ładunkiem elementarnym, a  $Z$  ilością ładunków elementarnych ( $Q = Z \cdot e$ ).

Analiza zjawiska rozszczepienia wymaga zastosowania, znanego z fizyki jądrowej, modelu kroplowego do kropeł cieczy. Okazuje się, że energia związana z powierzchnią jest minimalna dla kropli kulistej, a energia kulombowska jest dla niej maksymalna [53]. Stabilność kropli jest określona przez parametr proporcjonalny do  $Z^2/n$ , podobnie jak w teorii Reyleigha, gdzie  $n$  jest liczbą atomów, z których składa się kropla.

Kropla cieczy może być niestabilna nawet bez dostarczania energii z zewnątrz. Dla dostatecznie dużych wartości parametru  $Z^2/n$  kropla metalu ulega spontanicznemu rozszczepieniu. Wartość krytyczna tego parametru wynosi dla kropeł cieczy [53]:

$$\frac{Z^2}{n} = \frac{32\pi^2 \pi r_s^3 \epsilon_0 \sigma}{e^2}, \quad (7.23)$$

gdzie  $r_s$  promień komórki Wignera-Seitz'a. Dla sodu wartość parametru  $(Z^2/n)_{\text{kryt}}$  wynosi ok 1/6.

W przypadku dużych klasterów łatwiej jest operować jego promieniem  $R$ . Ponieważ:

$$R = n^{\frac{1}{3}} * r_s, \quad (7.24)$$

to wartość krytyczną parametru można zapisać:

$$\frac{Z^2}{R^{\frac{1}{3}}} = \frac{32\pi^2 \epsilon_0 \sigma}{e^2}. \quad (7.25)$$

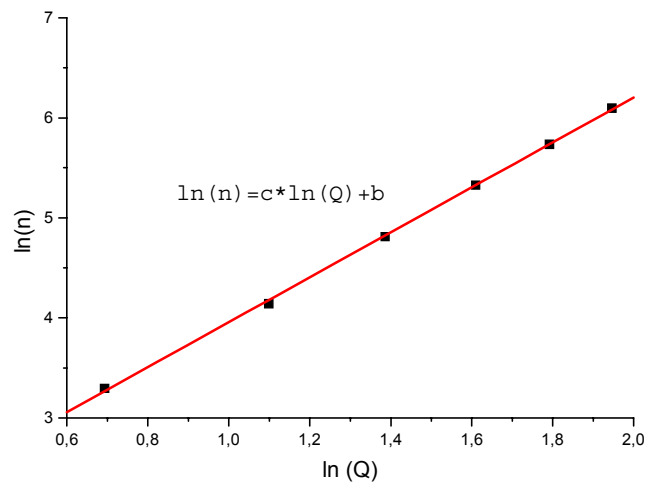
Wyznaczając ze wzoru (7.25)  $r(Z)$  oraz podstawiając  $Z = 1006$  ładunków elementarnych, otrzymujemy informację, że krytyczna wartość promienia, przy którym następuje rozszczepienie wynosi  $R_{\text{kryt.}} = 37$  nm. W obliczeniach przyjęto  $\sigma = 0.166 \frac{\text{N}}{\text{m}}$  [54].

W rozwijającej się w ciągu ostatnich kilkunastu lat dziedzinie klasterów wielokrotnie podejmowane było zagadnienie zależności krytycznej wielkości klastera, przy której pojawia się rozszczepienie, od rodzajów materiału, z jakiego jest zbudowany [4][55]. W

pracy [55] autorzy wyznaczają z danych eksperymentalnych krytyczną wielkość klasterów metali alkalicznych, tzn. klasterów zbudowanych z atomów litu, sodu, potasu, rubidu i cezu, posiadających ładunek z przedziału od dwóch do siedmiu ładunków elementarnych. Dane eksperymentalne [55], dla każdego pierwiastka budującego klaster, układają się na linii prostej w przestrzeni  $(\ln(Q), \ln(n))$ ; „ $Q$ ” - oznacza ładunek, jaki posiadają klaster a „ $n$ ” liczbę atomów, z których składają się klaster. Dopasowanie krzywej typu:

$$\ln(n) = c * \ln(Q) + b \quad (7.26)$$

daje nachylenie „ $c$ ” oraz przesunięcie „ $b$ ”. W przypadku sodu (patrz rysunek 7.14) wynoszą one  $c=2.247$  oraz  $b=1.709$ .



Rysunek 7.14: Zależność  $\ln(n)$  od  $\ln(Q)$  [55].

Wykorzystamy teraz przedstawione tutaj zależności i postaramy się wyznaczyć minimalny promień, jaki może mieć klaster, który zawiera 1006 ładunków elementarnych, opierając się na zależności (7.26). Oczywiście przytoczone tutaj dane eksperymentalne odnoszą się do klasterów małych. Zależności dla małych „kropelek” sodu ekstrapolujemy również na większe promienie, tak jak to jest w teorii Rayleigha, gdzie nie ma ograniczenia na promień kropli.

Wychodząc z relacji (7.24) możemy zapisać (7.26) jako zależność minimalnego promienia od ładunku:

$$R = r_s * [\exp[c * \ln(Q) + b]]^{\frac{1}{3}} \quad (7.27)$$

Wartość promienia komórki Wignera-Seitza dla sodu wynosi  $r_s = 2.08 * 10^{-10}m$  [16]. Podstawiając  $Z=1006$  do wzoru (7.27) otrzymano, że klaster posiadający taki ładunek nie może mieć promienia mniejszego niż  $R=65nm$ .

Otrzymaliśmy więc różne wartości promieni krytycznych, przy których następuje rozszczepienie kropli sodu w obu opisanych metodach ich wyliczania. Różnice w wyliczonych wartościach wynikają z faktu, iż w drugim przypadku zależności funkcyjne między ładunkiem,

jaki posiada klaster, a promieniem krytycznym, przy jakim ulega rozszczepieniu, zostały ekstrapolowane na obszar dużych promieni. Może to powodować znaczny błąd. Również wyliczoną wartość promienia krytycznego  $R=37\text{nm}$  trzeba traktować z pewną rezerwą. W tej metodzie własności materiału, z którego zbudowana jest kropla, uwzględnione są tylko w napięciu powierzchniowym, które może zależeć, np. od promienia.

Opierając się na rozważaniach z rozdziału 7.3 można stwierdzić, że spulapkowane klasterki sodowe mają promień znacznie większy niż obliczona z wykorzystaniem obu zaprezentowanych metod wartość promienia krytycznego, tzn.  $37\text{nm}$  i  $65\text{nm}$ . Dlatego też, można stwierdzić, że klaster o ładunku  $Z=1006$  l. e. może istnieć nie ulegając rozszczepieniu.

Należy jeszcze dodać, że całkowita energia klastera sodowego, tzn. energia kulombowska oraz energia powierzchniowa pochodząca od napięcia powierzchniowego sodu, dąży do uzyskania minimum, co może doprowadzić do deformacji klastera (zamiast kształtu sferycznego może być elipsoidą) lub drgań jego powierzchni [55]. Zjawiska te są zwykle stymulowane termicznie.

## 7.5. Natężenie światła rozpraszanego na grupie spulapkowanych klasterów sodowych

W temperaturze  $T = 632\text{K}$ , przy ciśnieniu gazu buforującego  $p=640\text{Tr}$ , dla mocy wiązki laserowej  $P=0.30\text{W}$ , spulapkowanych zostało 11 klasterów. Napięcia stałe i zmienne, przy jakich spulapkowano klasterki, wynosiły odpowiednio:  $U = 150\text{V}$ ,  $V = 233\text{V}$ , a częstotliwość prądu zmiennego  $\omega = 4207\frac{1}{s}$ . Czas pulapkowania wynosił  $t=51$  minut.

Przy użyciu opisanego wcześniej systemu MultiScan i magnetowidu zapisywane były obrazy z obszaru pulapkowania. Celem doświadczenia było uzyskanie obrazów pozwalających policzyć ilość spulapkowanych klasterów oraz wyznaczyć natężenie światła rozpraszanego przez pojedynczy klaster w różnych geometriach polaryzacyjnych, zdefiniowanych w rozdziale 2.2.

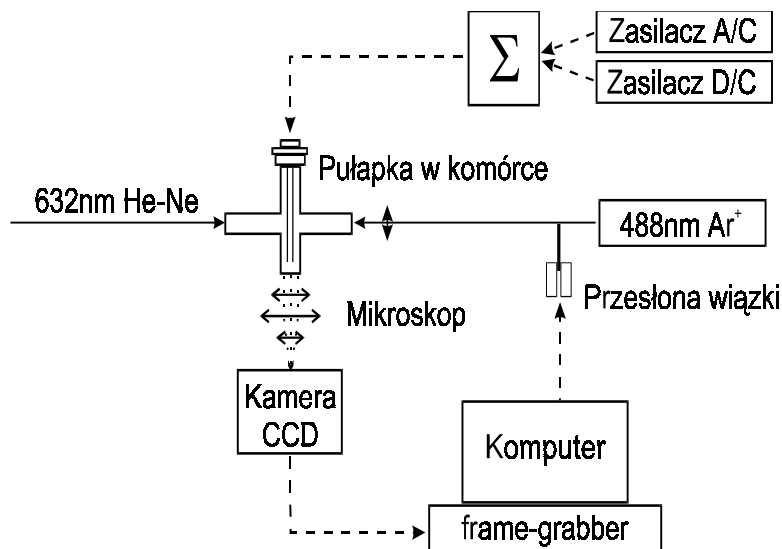
Wiązka lasera argonowego indukująca i pulapkująca klasterki była zogniskowana (patrz rysunek 6.3). Konieczna w pomiarach rozproszeniowych zmiana jej polaryzacji, przy użyciu rotatora płaszczyzny polaryzacji, wprowadzała zaburzenia ruchu klasterów w pulapce poprzez trudne do wyeliminowania zmiany położenia wiązki w przestrzeni w trakcie obracania rotatora.

Do badania efektów związanych z rozpraszaniem światła na klasterkach zdecydowano się użyć dodatkowej wiązki światła o długości  $632\text{nm}$ , której źródłem był laser He-Ne (rysunek 7.15). Niezogniskowana wiązka lasera He-Ne dobrze oświetlała obszar pulapkowania klasterów. Jej duża szerokość połówkowa  $\delta = 1.5\text{mm}$  zapewniała, że poruszające się klasterki (patrz np. rysunek 7.7) znajdowały się w obszarze o prawie stałej gęstości mocy, co umożliwiło porównywanie światła rozpraszanego przez klasterki na różnych polaryzacjach w czasie pulapkowania.

Fali elektromagnetycznej o długości  $632\text{nm}$  odpowiada energia  $E=1.96\text{eV}$ . Minimalna energia potrzebna do zjonizowania dimerów sodowych wynosi ok.  $4.9\text{eV}$ , atomów sodu  $5.14\text{eV}$ , a praca wyjścia elektronu dla sodu  $2.7\text{eV}$  [11][56]. Światło o zastosowanej długości fali nie powodowało więc dodatkowej jonizacji ani ośrodka, w jakim poruszały się klasterki, ani samych klasterów. Nie wpływało ono na proces pulapkowania klasterów i pozwalało badać samo zjawisko rozpraszania światła.

Przed mikroskopem (rysunek 7.15) umieszczony był filtr krawędziowy, oznaczony symbolem CC12. Filtr ten posiadał współczynnik transmisji poniżej 1% dla światła o długości





Rysunek 7.15: Schemat układu służącego do badania rozpraszania światła na spułapkowanych klastrach.

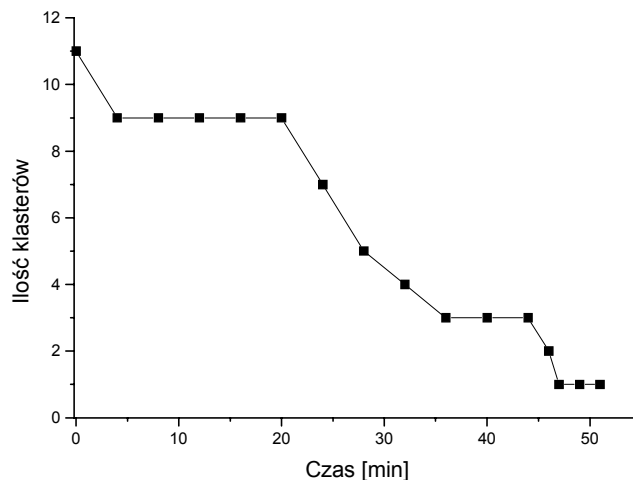
fali mniejszej niż 540nm, natomiast dla światła o długości fali większej niż 600nm współczynnik transmisji wynosił 95%. Filtr ten umożliwił wycięcie światła o długości 488 nm pochodzącego od lasera argonowego, niezbędnego do pułapkowania klastrów. Światło to było również rozpraszane na klastrach. Zasłonięcie wiązki lasera He-Ne w czasie pułapkowania klastrów powodowało, że sygnał rozproszeniowy nie odróżniał się od tła.

Kamera wraz z mikroskopem była, z dokładnością do 1%, jednakowo czuła na obie polaryzacje światła o długości 632 nm. Depolaryzacja na rotatorze płaszczyzny polaryzacji oraz okienkach komórki wynosiła poniżej 10%.

### 7.5.1. Zmiana liczby spułapkowanych klastrów w czasie.

Po zakończeniu eksperymentu, na zapisanych w kolejnych minutach obrazach, liczona była liczba spułapkowanych klastrów. Ilość klastrów w pułapce zmniejszała się, od początkowo spułapkowanych jedenastu klastrów do jednego klastra w końcowym etapie pułapkowania (rysunek 7.16).

W omawianym eksperymencie wszystkie parametry termodynamiczne układu oraz przykładane napięcia i częstotliwość prądu zmiennego były takie same, jak w poprzednim eksperymencie (oba eksperymenty wykonane były kolejno jeden po drugim). Czas, po którym drugi klaster opuścił obszar pułapkowania (patrz rozdział 7.4), wynosił 18min. 55s. Fakty te upoważniają nas do stwierdzenia, że w 20-tej minucie pułapkowania, w omawianym eksperymencie, klasterzy miały podobny ładunek, jak w poprzednim doświadczeniu, czyli wynosił on ok. 1000 ładunków elementarnych. Od tej właśnie minuty liczba spułapkowanych klastrów gwałtownie malała. Ponieważ klasterzy rosły (świadczą o tym m.in. krzywe rozpraszania pokazane w następnym rozdziale) od kilku atomów do około  $10^{10}$  atomów w klasterze (kilkaset nanometrów), to jednocześnie musiał zmieniać się (rosnąć) ich ładunek. Gdyby ładunek klastrów był stały, to małe klasterzy o promieniu mniejszym od promienia krytycznego musiałyby ulec rozszczepianiu (patrz poprzedni rozdział). W 20-tej minu-



Rysunek 7.16: Ilość spulapkowanych klastrów sodowych w czasie pułapkowania.

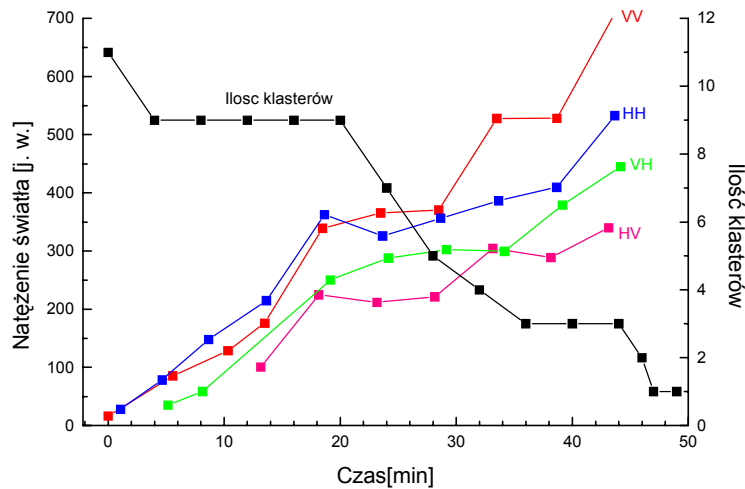
cie energia układu, jaki tworzą spulapkowane klaster, pochodząca od wzajemnego oddziaływania kulombowskiego, była prawdopodobnie na tyle duża w porównaniu z efektywnym potencjałem pochodzącym od pułapki, że kolejno zaczęły one opuszczać obszar pułapkowania, aż do momentu, gdy pozostał jeden klaster. Ten prawdopodobnie rósł dalej, aż był na tyle ciężki, że grawitacyjnie opuścił pułapkę.

### 7.5.2. Zmiana natężenia światła rozpraszanego na spulapkowanych klastrach.

W opisywanym eksperymencie, w trakcie przebywania klastrów w pułapce, zmieniany był kierunek polaryzacji wiązki rozpraszanej, jak i analizatora umieszczonego przed mikroskopem. Dzięki temu możliwe było zbadanie, jak zmieniały się natężenia światła rozpraszanego na klastrach na różnych polaryzacjach. Ponieważ ilość klastrów zmniejszała się, a jednocześnie poruszały się one w obszarze pułapkowania, to należało w sposób dynamiczny śledzić położenia klastrów oraz oceniać natężenie światła przez nie rozpraszanego. Przy użyciu, specjalnie w tym celu napisanego programu w języku Turbo Pascal wskazywany był klaster, którego całkowitą jasność liczył program (sumę jasności wszystkich pikseli w zarysie obiektu, jakim był klaster widziany na obrazie). Obraz zapisywany był w 256 odcieniach szarości, przy czym liczba 256 odpowiadała maksymalnej jasności piksela.

Średnio co 5 minut rejestrowane było rozproszenie światła na danej polaryzacji. W tym czasie rejestrowanych było 16 obrazów przez 8s. Następnie wybierany był na każdym obrazie klaster najlepiej rozpraszający światło i liczona była jego jasność. Z uzyskanych w ten sposób szesnastu liczb liczona była wartość średnia. W rezultacie szesnastu obrazom przyporządkowana zostawała jedna wartość obrazująca średnie rozproszenie światła z pojedynczego klastra, pod kątem  $90^\circ$  na danej polaryzacji, w danym momencie czasowym. Od uzyskanego w ten sposób natężenia rozpraszanego światła na danej polaryzacji odjęty został poziom tła. Rezultat takiego postępowania przedstawiony został na rysunku 7.17.

Na rysunku 7.17 wyraźnie widać, że wszystkie sygnały, tzn.  $I_{VV}$ ,  $I_{HH}$ ,  $I_{VH}$  oraz

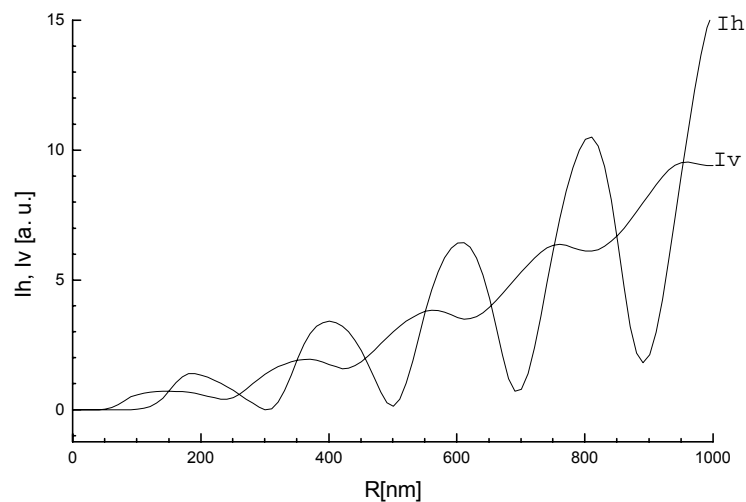


Rysunek 7.17: Natężenie światła rozpraszanego w czasie przez pojedynczy spuląpkowany klaster sodowy, na różnych polaryzacjach. Jednocześnie pokazano też, jak zmienia się ilość klastrów w czasie puląpkowania.

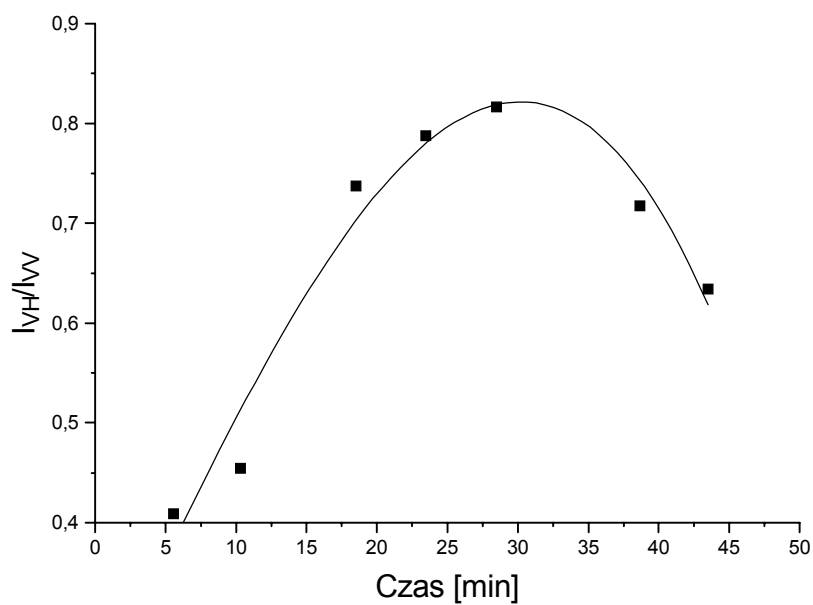
$I_{HV}$  rosną w czasie. Jednocześnie na uwagę zasługuje fakt, że sygnały na polaryzacjach krzyżowych stanowią ponad 50% sygnałów  $I_{VV}$  oraz  $I_{HH}$ . Teoria Mie [13], opisująca rozproszenie światła na obiektach kulistych, nie przewiduje istnienia polaryzacji krzyżowych, tzn.  $I_{VH}$  oraz  $I_{HV}$ . Ich pojawienie się świadczy o depolaryzacji światła na klastrach. Na rysunku 7.18 pokazane zostało, jak według teorii Mie zmienia się rozproszenie światła o długości 632nm na polaryzacji  $I_{VV}$  oraz  $I_{HH}$  wraz ze wzrostem promienia, aż do osiągnięcia przez metalowe sfery promienia  $R=1\mu m$ . Przyjęto, że funkcja dielektryczna jest funkcją Drudego ze stałą tłumienia  $\gamma = 0.54eV$  (patrz rozdział 2.3).

Krzywe te zdecydowanie różnią się od krzywych  $I_{VV}$  i  $I_{HH}$  pokazanych na rysunku 7.17. Porównując krzywą  $I_{HH}$  z rysunku 7.17 z krzywą  $I_{HH}$  z rysunku 7.18 wyraźnie widać, że w tym drugim przypadku występują znaczne oscylacje natężenia, których nie widać w danych doświadczalnych. Oczywiście w trakcie eksperymentu wykonano tylko 10 pomiarów rozproszenia światła na tej polaryzacji, co może być jedną z przyczyn braku wyraźnych oscylacji, tak jak to pokazuje teoria. Inną przyczyną jest sama procedura zbierania danych. Jednemu punktowi pomiarowemu odpowiada wartość średnia rozpraszania światła na klastrze z 16 obrazów. Metoda ta daje więc pewną wartość średnią rozproszenia. Ogólny charakter krzywych  $I_{VV}$  i  $I_{HH}$  doświadczalnych i teoretycznych jest jednak zgodny. Obliczone z teorii Mie krzywe rozpraszania w pierwszym przybliżeniu rosną proporcjonalnie do powierzchni sfery, czyli do kwadratu jej promienia. Jeśli założymy, że promień klastrera rośnie liniowo w czasie, to tę samą zależność da się zaobserwować dla krzywych doświadczalnych.

Duża wartość natężeń na polaryzacjach krzyżowych w porównaniu z sygnałami  $I_{VV}$  i  $I_{HH}$  oznacza dużą depolaryzację światła na klastrach. Jeśli oznaczymy jako depolaryzację stosunek, np.  $I_{VH}/I_{VV}$ , to jej wartość w czasie zmienia się jak na rysunku 7.19. Ma ona wyraźne maksimum w czasie około 30 minuty puląpkowania.



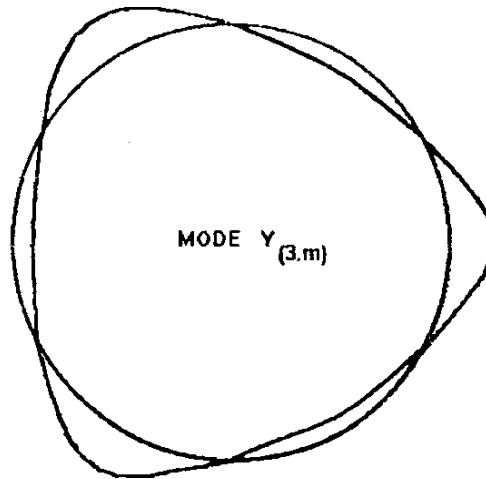
Rysunek 7.18: Natężenie światła o długości 632nm rozpraszane przez metalową sferę na polaryzacji Ih oraz Iv w zależności od promienia R.



Rysunek 7.19: Zmiana depolaryzacji światła w czasie pułapkowania klasterek.

Innym pytaniem jest pytanie o przyczynę depolaryzacji światła. Może nią być, np. niesferyczny kształt klastra [57][58], bądź drgania jego powierzchni [55][59].

W temperaturze 632K klaster sodowy powinien być kroplą cieczy. Dane eksperymentalne świadczą o tym, że są one naładowane ładunkiem elektrycznym. Z [55] i rozdziału 7.4.3 wiadomo, że klaster naładowany odpowiednio dużym ładunkiem może ulegać deformacjom. Załóżmy, że mamy klaster o ładunku  $Z=1000$  ładunków elementarnych (rozdział 7.4.2) i niech ma on promień  $R=500$  nm (patrz rozdział 7.2). Wówczas jego energia kulombowska, zgodnie z wzorem (7.22), wynosi  $E_C = 2.3 \cdot 10^{-16}$ J, natomiast energia powierzchniowa (patrz wzór 7.21)  $E_S = 5.53 \cdot 10^{-13}$ J. Energia związana z powierzchnią klastera jest więc około 2400 razy większa niż energia pochodząca od jego ładunku. Oznacza to, zgodnie z rozważaniami z punktu 7.4.3, że klaster powinien mieć kształt kulisty.



Rysunek 7.20: Przykład modu kapilarnego.

Inną przyczyną mogą być powstające na powierzchni fale kapilarne [59]. W naszym układzie wydaje się, że ich przyczyną mogłaby być tylko energia termiczna „ $k \cdot T$ ”, gdzie  $k$  oznacza stałą Boltzmanna. Zgodnie z [60] maksymalna względna amplituda takich fal, w przypadku gdyby energia termiczna zamieniona została na energię potencjalną modu  $l$ , wyraża się wzorem:

$$\beta_l = \sqrt{\frac{kT}{\sigma \cdot R^2 [2 + l(l + 1)]}}, \quad (7.28)$$

gdzie  $l$  oznacza mod fal kapilarnych,  $R$  promień klastera i  $\sigma$  napięcie powierzchniowe. Mody kapilarne oznaczają się przy użyciu funkcji kulistych  $Y_{(l,m)}$ . Przykład modu kapilarnego  $l=3$ ,  $m=0$  pokazany został na rysunku 7.20.

Zakładając jak poprzednio, że  $R=500$ nm i  $T=632$ K otrzymujemy, że względna amplituda drgań dla  $l = 2$  jest nie większa niż  $\beta_2 = 2.6 \cdot 10^{-4}$  długości promienia. Nie budzi to jednak zdziwienia, gdyż energia  $kT$  jest o ponad siedem rzędów wielkości mniejsza niż energia związana z napięciem powierzchniowym.

Tak mała amplituda drgań, mniejsza o ponad cztery rzędy wielkości od długości fali światła rozpraszane  $\lambda = 632$ nm, nie może oczywiście powodować depolaryzacji światła.

Przyczyną depolaryzacji światła, jak obecnie wydaje się nam, jest prawdopodobnie duży gradient gęstości cząsteczek sodowych w bezpośrednim otoczeniu klastera spowodowany

jego wzrostem. Może on mieć wpływ na zmianę współczynnika załamania światła w otoczeniu klastera. Dlatego też należałoby opisać teoretycznie rozpraszanie światła na klasterze przy pomocy teorii Mie, ale uwzględnić jednocześnie gradient współczynnika załamania ośrodka. Jest to już jednak odrębne zagadnienie.

## 8. Wnioski

1. Funkcja dielektryczna klasterów sodowych jest funkcją zespoloną. Korzystając z teorii Mie rozpraszania światła na obiektach kulistych oraz z modelu Drudego funkcji dielektrycznej można oszacować jej wartość. Wyznaczona wartość współczynnika tłumienia gazu elektronów swobodnych w dużych klasterach sodowych wynosi  $\gamma = 0.5\text{eV}$  i nie zależy od temperatury, w jakiej był przeprowadzany eksperyment.
2. Klaster sodowy powstają w środowisku zjonizowanym. Koncentracja ładunków swobodnych w wiązce lasera argonowego o długości 488nm po zakończeniu ewolucji klasterów jest rzędu  $10^{11} \div 10^{12} \frac{1}{\text{m}^3}$ . Rośnie ona liniowo w przedziale temperatur od 630K do 715K.
3. Bezpośredni optyczny pomiar koncentracji klasterów w chmurze można przeprowadzić dopiero od pewnego momentu ich ewolucji. Zmierzona ilość klasterów maleje eksponencjalnie. W końcowym etapie ewolucji koncentracja klasterów ustala się i wynosi około kilkaset sztuk na milimetr sześcienny.
4. Zaprezentowana metoda jest pierwszą znaną nam metodą pułapkowania klasterów metalicznych w środowisku plazmowym. Wykorzystując siły związane ze zmiennym i stałym polem elektrycznym przykładanym do elektrod oraz siły pochodzące od skupionej wiązki lasera argonowego i generowanej nią plazmy udało się utrzymać rosnące klaster nawet przez 50 minut. Metoda ta daje więc możliwość badania własności optycznych pojedynczych klasterów i może doprowadzić do zaobserwowania nowych ciekawych efektów.
5. Wykorzystując zaproponowany w niniejszej pracy zmodyfikowany filtr kwadrupolowy można spułapować od jednego do kilkunastu klasterów sodowych. Opis sił działających na spułapowany klaster jest bardzo skomplikowany. Trudno jest dokładnie wyliczyć wartości tych sił. Korzystając z ruchu nie spułapowanego klastera można jednak wyznaczyć jego promień, a z położeń spułapowanego klastera da się oszacować efektywny potencjał, w którym się on znajduje.
6. W trakcie pułapkowania grupy klasterów ich ilość maleje w czasie, a natężenie światła rozpraszanego na pojedynczym klasterze rośnie. Duże wartości  $I_{VH}$  i  $I_{HV}$  natężeń rozpraszanego światła w porównaniu z natężeniami  $I_{VV}$  i  $I_{HH}$  świadczą o tym, że spułapowane klaster depolaryzują światło.
7. Badając układ dwóch klasterów w momencie, kiedy jeden z nich opuszcza pułapkę, można oszacować ich ładunek. Wartość ładunku spułapowanego klastera znajduje się poniżej progu na jego rozszczepienie.

## Literatura

- [1] O. Echt, K. Sattler, and E. Recknagel. Phys. Rev. Lett. **47**, 1121 (1981).
- [2] O. F. Hagen. Z. Phys. D **20**, 425 (1991).
- [3] J. B. Anderson and J. B. Fenn. Phys. Fluids **8**, 780 (1985).
- [4] K. Sattler, J. Mühlbach, and E. Recknagel. Phys. Rev. Lett. **45**, 821 (1980).
- [5] V. E. Bondybey and J. H. English. J. Chem. Phys. **76**, 2165 (1982).
- [6] H. R. Siekmann, C. Luder, J. Machrmann, H. O. Lutz, and K. H. Meiwes-Broer. Z. Phys. D **20**, 417 (1991).
- [7] W. Begemann, S. Dreihöfer, Meiwes-Broer, and H. O. Lutz. Z. Phys. D **3**, 183 (1986).
- [8] K. Kolwas, M. Kolwas, and P. Zalicki. Phys. Lett. A **167**, 272 (1992).
- [9] K. Kolwas, M. Kolwas, and D. Jakubczyk. Appl. Phys. B **60**, 173–181 (1995).
- [10] A. N. Nesmieyanov. *Vapor Pressure of the Chemical Elements*. Elsevier, New York, (1963).
- [11] B. P. Mathur, E. W. Rothe, and G. P. Reck. J. Chem. Phys. **68** (1978).
- [12] D. Jakubczyk. *Badanie klasterów sodowych wywoływanych światłem*. PhD thesis, Instytut Fizyki PAN, (1997).
- [13] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, Oxford, (1975).
- [14] J. R. Meyer-Arendt. *Wstęp do optyki*. PWN, Warszawa, (1979).
- [15] C. Kittel. *Wstęp do fizyki ciała stałego*. PWN, Warszawa, (1974).
- [16] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Fizyka ciała stałego*. PWN, Warszawa, (1986).
- [17] U. Kreibig and L. Genzel. Surf. Sci. **167**, 678 (1985).
- [18] H. Hoewel, S. Fritz, A. Higler, and U. Kreibig. Phys. Rev. B **48**, 178 (1993).
- [19] U. Kreibig and M. Vollmer. *Optical Properties of Metal Clusters*. Springer, (1995).
- [20] J. Borggreen, P. Chowdhury, N. Kebaïli, and L. Lundsberg-Nielsen. Phys. Rev. B **48**, 17507 (1993).
- [21] P. Meibom, M. Ostegard, J. Borggreen, S. Bjornholm, and H. Rasmussen. Z. Phys. D **40**, 258 (1997).
- [22] C. Bréchnignac, P. Cahuzac, N. Kabaïli, J. Leynier, and A. Sarfati. Phys. Rev. Lett. **68**(26), 29 June (1992).
- [23] K. Kolwas, S. Demianiuk, and M. Kolwas. Appl. Phys. B **65**, 63 (1997).
- [24] D. Jakubczyk, M. Kolwas, and K. Kolwas. J. Phys. B **30**, 5567 (1997).



- [25] S. Demianiuk. *Badanie klasteró sodowych światłem laserowym*. PhD thesis, Instytut Fizyki PAN, (1999).
- [26] M. Synowiec. *Wpływ pola elektrostatycznego na klasterody sodowe indukowane światłem laserowym*. PhD thesis, Instytut Fizyki PAN, (1997).
- [27] A. Kordus. *Plazma*. Wydawnictwo Naukowo-Techniczne, Warszawa, (1985).
- [28] W. Paul. *Rev. Mod. Phys.* **62**, 531 (1990).
- [29] R. Wuerker, H. Shelton, and R. Langmuir. *J. of Appl. Phys.* **30**, 342 (1958).
- [30] H. Lüth. *Surfaces and Interfaces of Solids*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York London Paris Tokyo, (1).
- [31] W. Demtröder. *Spektroskopia laserowa*. Wydawnictwo Naukowe PWN, Warszawa, (1993).
- [32] J. Groszkowski. *Technika wysokiej próżni*. Wydawnictwo Naukowo-Techniczne, Warszawa, (1972).
- [33] R. D. Present. *Kinetic Theory of Gases*. McGraw-Hill, New York, (1958).
- [34] T. Hasegawa and K. Uehara. *Appl. Phys. B* **61**, 159 (1995).
- [35] N. W. McLachlan. *Theory and Application of Mathieu Functions*. Dover, New York, (1964).
- [36] J. Lipczyński, M. Okołowicz, and S. Olczak. *Tablice Matematyczne Fizyczne Chemiczne i Astronomiczne*. Wydawnictwo Szkolne i Pedagogiczne, Warszawa, (1974).
- [37] K. Gniadek. *Optyka fourierowska*. Warszawa, (1987).
- [38] E. O. Johnson and L. Malter. *Phys. Rev.* **80**, 58 (1950).
- [39] T. Stacewicz. *Jonizacja pary sodu pod wpływem promieniowania laserowego dostrojonego do przejścia 3S-3P*. PhD thesis, Instytut Fizyki Doświadczalnej UW, (1981).
- [40] S. Sato, Y. Harada, and Y. Waseda. *Optics Letters* **19**, 1807 (1994).
- [41] K. Svoboda and S. M. Block. *Optics Letters* **13**, 930 (1994).
- [42] K. Sasaki, M. Koshioka, H. Misawa, N. Kitamura, and H. Masuhara. *Appl. Phys. Lett.* **60**, 807 (1992).
- [43] A. Ashkin, J. Dziedzic, J. Bjorkholm, and S. Chu. *Optics Letters* **11**, 288 (1986).
- [44] P. Smith, A. Ashkin, and W. Tomlinson. *Optics Letters* **6**, 284 (1981).
- [45] A. Ashkin. *Phys. Rev. Lett.* **24**, 156 (1970).
- [46] A. I. Anselm. *Podstawy fizyki statystycznej i termodynamiki*. PWN, Warszawa, (1978).

- [47] D. W. Heermann. *Podstawy symulacji komputerowych w fizyce*. Wydawnictwo Naukowo-Techniczne, Warszawa, (1997).
- [48] *Encyklopedia fizyki*. PWN, Warszawa, (1973).
- [49] K. Sasaki, M. Tsukima, and H. Masuhara. *Appl. Phys. Lett.* **71**, 37 (1997).
- [50] G. Hars and Z. Tass. *J. of Appl. Phys.* **77**, 4245 (1995).
- [51] J. Mostowski and M. Gajda. *Acta Physica Polonica* **67**, 783 (1985).
- [52] L. Rayleigh. **14**, 185 (1982).
- [53] M. Kicińska-Habior. *Postępy Fizyki* **46**, 3 (1995).
- [54] J. Goldman. *J. of Nuclear Materials* **126**, 86 (1984).
- [55] U. Näher, S. Frank, N. Malinowski, U. Zimmermann, and T. Martin. *Z. Phys. D* **31**, 191 (1994).
- [56] N. D. Lang and W. Kohn. *Phys. Rev. B* **3**, 1215 (1971).
- [57] S. Asano and G. Yamamoto. *Applied Optics* **14**, 29 (1975).
- [58] S. Asano and M. Sato. *Applied Optics* **19**, 962 (1980).
- [59] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Fluid mechanics*. Pergamon Press, London - New York - Paris - Los Angeles, (1959).
- [60] V. M. Akulin, E. Borsella, and A. A. Nesterenko. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1231 (1994).