# Untersuchung Brownscher Partikel im Scherfluss durch Korrelationsanalysen unter Verwendung optischer Pinzetten

Dissertation

zur Erlangung des Grades des Doktors der Naturwissenschaften der Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät II - Physik und Mechatronik der Universität des Saarlandes

von

## Andreas Ziehl

Saarbrücken

2009



Tag des Kolloquiums: 14.12.2009

Dekan: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Christoph Becher

Mitglieder des Prüfungsausschusses:

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Christoph Becher

Gutachter: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Christian Wagner

Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Walter Zimmermann (Universität Bayreuth)

Akad. Mitarbeiter: Dr. –Ing. Andreas Tschöpe

#### Kurzzusammenfassung:

In dieser Arbeit wurden erstmals experimentell Kreuzkorrelationen zwischen fluktuierenden Brownschen Teilchen untersucht, die durch eine Scherströmung generiert wurden. Die Korrelationen wurden senkrecht und in Strömungsrichtung untersucht. Ein neues Experiment mit einer optischen Pinzette, bestehend aus zwei Lasern, wurde eigens aufgebaut um eine oder zwei Kugeln in jeweils einem harmonischen Potential zu halten. Gleichzeitig wurde deren Position mit einer Ortsauflösung unterhalb von 8nm detektiert. Die Detektion der Kugeln erfolgte mit einer Kamera bei einer zeitlichen Auflösung von 15kHz. Entgegen bisheriger Messungen in ruhendem Wasser, bei denen die räumliche Aufenthaltsverteilung isotrop waren, konnten an  $3\mu m$  Kugeln im Scherfluss, der durch eine spezielle Flusszelle generiert wurde, zeitirreversible mikrofluidische Korrelationen orthogonaler Bewegungsrichtungen in Strömungs- und Gradientenrichtung nachgewiesen werden. Zwei Kugeln, die einige Mikrometer voneinander entfernt sind, verspüren in der ruhenden Flüssigkeit aufgrund ihrer hydrodynamischen Wechselwirkung eine Antikorrelation entlang ihrer Verbindungslinie. Im linearen Scherfluss konnte die Korrelation orthogonaler Bewegungsrichtungen zweier Kugeln nachgewiesen werden. Der Verlauf der Korrelationsfunktion wies ein scherabhängiges Minimum auf und besaß eine zeitliche Asymmetrie.

#### Abstract:

Shear-induced cross-correlations between Brownian particle fluctuations perpendicular and along streamlines were investigated for the first time experimentally in a linear shear flow. A new two beam optical tweezers setup was designed to localize one or two particles, each in a harmonic potential, and to detect the positions of the particles as a function of time with a high spatial precision below 8nm. These positions were recorded via a high speed camera with 15kHz resolution. In contrast to measurements in quiescent water with isotropic position distributions, we found that in shear flow, generated in a special designed micro fluidic device, orthogonal movements of a  $3\mu m$  bead in streamand gradient- directions were correlated and the time reversal symmetry was broken. Again in a quiescent fluid, fluctuations of two particles, separated by a few microns, are known to be anti-correlated along their connecting vector due to hydrodynamic coupling. In linear shear flow, we found a coupling process that correlates the orthogonal directions of the two particles. The correlation exhibited a shear dependency minimum in time and again the time reversal symmetry was broken.

### Inhaltsverzeichnis

1 Ei	inleitung	9
2 B	rownsche Molekularbewegung	17
2.1	Stochastische Kraft	21
2.2	Harmonisches Potential	24
2.3	Aktiv getriebene Systeme	25
24	Scherfluss	0
2.4	Zucommonfoccung	20 20
2.5		20
3 H	ydrodynamische Wechselwirkung	29
3.1	Oseen-Tensor	30
3.2	Allgemeine Mobilitätsmatrix	33
3.3	Mobilitätsmatrix zweier Kugeln im ruhenden Medium	36
3.4	Bewegungsgleichung	37
3.5	Zusammenfassung	40
4 O	ptische Pinzette	41
4.1	Theoretische Beschreibung	44
4.1	1.1 Rayleigh-Regime	45
4.1	1.2 Mie-Regime	45
4.1	1.3 Geometrische Optik	46
4.2	Zusammenfassung	51
5 A	ufbau	53
5.1	Systemvibration	54
5.2	Komponenten	55
5.2	2.1 Mikroskop	57
5.2	2.2 Piezo-Aperturtisch	60
5.2	2.3 Piezo-Spiegel	61
5.2	2.4 Laser	62
5.2	2.5 Strahlaufweiter	63
5.2	2.6 Filter	64
5.2	2.7 Kamera	66
5.2	2.8 PSD	67

6

	5.3	LabVIEW	71
	5.3.	1 Korrelationsprogramm	72
:	5.4	Signale	73
	5.4.	1 Kamera	74
	5.4.: 	2 PSD	76
•	5.5	Zusammenfassung	79
6	Ka	librierungsmetnoden	81
	6.1	Thermische Energie	82
	6.2	Leistungsspektrum	84
	6.3	Autokorrelation	87
	6.4	Reibungskraft	90
	6.5	Korrekturen	93
	6.6	Typische Kalibrierungswerte	94
	6.7	Vergleich der Kalibrierungsmethoden	96
	6.8	Scherratenbestimmung	97
	6.9	Zusammenfassung	98
7	Mik	crofluidik	
	7.1	Gegenströmung	100
	7.2	Gerader Kanal	108
	7.3	Vergleich beider Mikrofluidiken	113
	7.4	Zusammenfassung	114
8	Ko	rrelationen	115
	8.1	Korrelationsfunktionen	116
	8.2	Messdurchführung	118
	8.3	Korrelationen im ruhenden Medium	120
	8.3.	1 Ein Teilchen	120
	8.3.	2 Zwei Teilchen	123
	8.4	Korrelationen im Scherfluss	135
	8.4. 8.4.	1 Ein Teilchen 2 Zwei Teilchen	138 141
	8.5	Ortspositionen	154

8.6	Diskussion der Ergebnisse	_158
8.7	Zusammenfassung	_160
9 R	esümee	161
10	Anhang	165
10.1	Korrelationsalgorithmus der Ortskoordinaten	_165
10.2	PIV Algorithmus in Matlab	_166
11	Literaturverzeichnis	169
12	Index	173
13	Danksagung	175

#### 1 Einleitung

Die hier vorgestellte Arbeit beschäftigt sich mit einem System, das der sogenannten Brownschen Molekularbewegung unterliegt. Es zeichnet sich dadurch aus, dass es auf mikroskopischer Skala zu finden ist und dass die Energie des Systems, die im Wesentlichen durch die Umgebungstemperatur bestimmt wird, zu einer im zeitlichen Mittel ungerichteten Relativbewegung des Systems bezüglich seiner Umgebung führt. Solche Systeme sind seit langem bekannt. Bereits im Jahre 1827 beschrieb der Botaniker Robert Brown (1773-1858) seine Beobachtungen über die zitternde Bewegung von Blütenpollen in Flüssigkeiten. Später fand er heraus, dass diese Bewegung auch an unbelebten Staubkörnern beobachtbar ist und somit keine aktive Bewegung von Organismen darstellt, die auf eine "Lebenskraft der Organismen" zurückzuführen wäre. Einzig die Winzigkeit der Objekte spielte eine Rolle für die Bewegung. Zu erklären ist dieser Sachverhalt mit der Wechselwirkung zwischen den Pollenkörnern und den umgebenden Lösungsmittelmolekülen. Diese Moleküle besitzen aufgrund ihrer thermischen Energie einen Impuls und stoßen auf sehr kurzer Zeitskala mit dem Pollenkorn zusammen. Obwohl im zeitlichen Mittel, also im thermodynamischen Gleichgewicht, der Nettoimpuls der Stöße verschwindet, ist auf endlichen Zeitintervallen auf Grund der Stochastik immer ein Nettoimpuls, und damit eine Kraft, auf die Kugel beobachtbar die für deren Bewegung verantwortlich ist.

Die Mobilität eines solchen Pollenkorns kann mit Hilfe eines Diffusionskoeffizienten beschrieben werden, ganz analog zu einer gerichteten Bewegung in einer Raumdimension aufgrund eines Konzentrationsgradienten, die man als Diffusion bezeichnet. Im Jahre 1905 konnte Albert Einstein (1879-1955) den fundamentalen Zusammenhang des Diffusionskoeffizienten mit Naturkonstanten wie der Boltzmann Konstanten  $3\mu m$  erklären. Demnach ist die Diffusion in einer Flüssigkeit von der Temperatur und der Viskosität der Lösung abhängig. Drei Jahre später erfolgte der experimentelle Nachweis durch Jean-Baptiste Perrin, der 1926 "für seine Arbeiten über die diskontinuierliche Struktur der Materie, besonders für seine Entdeckung des Sedimentationsgleichgewichts" den Nobelpreis erhielt. Seine Arbeiten waren damit ein Beleg für die Teilchennatur der Materie und damit für die Existenz der Atome. Das Gebiet der Brownschen Molekularbewegung scheint also demnach sowohl theoretisch als auch experimentell bereits recht gut erforscht zu sein [1, 2].

Betrachtet man jedoch ein Vielteilchensystem, bestehend aus mehreren Pollenkörnern oder Kugeln mit Schwerpunktabständen im Bereich ihrer Durchmesser, so stellt sich die Frage, ob sich diese Kugeln nicht alle aufgrund ihrer fluktuierenden Bewegung gegenseitig beeinflussen. Man kann sich vorstellen, dass eine Kugel, die die Brownsche Molekularbewegung erfährt, ein hydrodynamisches Geschwindigkeitsfeld in der Flüssigkeit generiert, denn bei ihrer eigenen Bewegung bewegt sich auch lokal die umgebende Flüssigkeit. Dieses so entstandene Geschwindigkeitsfeld breitet sich in der gesamten Flüssigkeit aus, wird von einer weiteren Kugel im System registriert und beeinflusst damit die Bewegung dieser zweiten Kugel. Vergleichbar ist dieser Sachverhalt mit einem Bild aus der makroskopischen Welt: generiert ein Schiff eine Bugwelle, also ein Geschwindigkeitsfeld in der Flüssigkeit, so kann ein zweites Schiff von dieser Welle ebenfalls beeinflusst, beispielsweise aufgeschaukelt werden.

Solche gegenseitigen Beeinflussungen können mathematisch mit sogenannten Korrelationsfunktionen ausgedrückt und durch Korrelationsmessungen nachgewiesen werden. Solche Funktionen zeigen zeitliche Abhängigkeiten von zwei Signalen auf und beschreiben deren Ähnlichkeit. Veröffentlichte Arbeiten zielten bis dato auf die Korrelationen in ruhenden Flüssigkeiten ab. Die Systeme befanden sich also im thermodynamischen Gleichgewicht und konnten durch die Einstein-Theorie beschrieben werden. So wurde in früheren Experimenten sowohl die Korrelation eines Teilchens mit sich selbst als auch die gegenseitigen Kopplungen und Korrelationen zweier Teilchen beobachtet und nachgewiesen. experimentelle Nachweis des zeitlichen Verhaltens Der erste der hydrodynamischen Kopplung zweier Kugeln in einer ruhenden Flüssigkeit gelang im Jahre 1999 durch Meiners und Quake [3, 4]. In ihrem Experiment wurden zwei Kugeln von einem Mikrometer Durchmesser mit Hilfe von zwei optischen Pinzetten auf Distanz gehalten. Dabei wurde der Kugelabstand zwischen zwei und  $15 \mu m$ variiert  $(1\mu m = 1.10^{-6} m)$ . Die ermittelten Kreuzkorrelationen entlang der

Verbindungslinie der Kugeln ergaben im zeitlichen Verlauf ein Minimum, deren Tiefe vom Kugelabstand abhängig war. Dies war der experimentelle Nachweis, dass Brownsche Objekte miteinander hydrodynamisch wechselwirken und einander beeinflussen. Es zeigte sich, dass die theoretischen Modelle die experimentellen Beobachtungen exakt beschreiben konnten [3]. Eine Anwendung dieses Experimentes folgte ein Jahr später in den ersten Zweipunkt-Mikrorheologie Messungen von Crocker [5]. Die herkömmliche Mikrorheologie erlaubt es mit Hilfe der Brownschen Bewegungen von Kugeln auf die lokale, komplexe Viskosität, also auf den Verlustanteil und den elastischen Anteil des umgebenden Mediums, zu schließen [6, 7]. Die Zweipunkt-Mikrorheologie hat gegenüber Einpunkt-Messungen den bedeutenden Vorteil, dass auch inhomogene Medien untersucht werden können. Allein aus den Bewegungen der beiden Teilchen werden die Informationen extrahiert. Dabei wird die Korrelation der beiden beobachteten Objekte analysiert und auf die komplexe Viskosität mit Verlust- und Elastizitäts-Modul geschlossen [8]. Mittlerweile können sogar die hydrodynamischen Wechselwirkungen von drei hintereinander angeordneten Kugeln beobachtet werden [9].

In neuerer Zeit ist die Untersuchung von aktiv getriebenen Systemen in der Physik immer mehr in den Fokus aktueller Forschung gerückt. Diese Systeme befinden sich nicht mehr im thermodynamischen Gleichgewicht, da es aufgrund externer Größen, wie zum Beispiel von außen wirkende Kräfte, aktiv angetrieben wird. Eine Analyse der Entropie im System kann beispielsweise darüber Auskunft geben, wie viel Energie das System aufnimmt [10, 11].

Bevor solch komplexe Systeme experimentell untersucht werden, stellt sich die Frage, welche Reaktion vom System erwartet wird, also beispielsweise welche Bewegungen die Brownschen Objekte ausführen und welches Zeitverhalten erwartet werden kann. Solch eine theoretische Untersuchung von Brownschen Kugeln in einem Schergradienten wurde in der Arbeitsgruppe von Professor Dr. Walter Zimmermann der Universität Bayreuth durchgeführt. Die in vorliegender Arbeit vorgestellte Theorie über die Fluktuationen und Korrelationen im Scherfluss hat daher ihren Ursprung in der Arbeit von Jochen Bammert aus der Arbeitsgruppe von Professor Dr. Walter Zimmermann. Das grundlegende Modellsystem wird nachfolgend dargelegt [12].

In der Theorie wurde ein System betrachtet, das aus einer oder zwei Kugeln bestand, die in einer Newtonschen Flüssigkeit eingebettet waren. Der externe Antrieb wurde durch ein Geschwindigkeitsfeld generiert, so dass die Kugeln einer zusätzlichen externen Reibungskraft, einer Stokes-Kraft, ausgesetzt waren. Dieses Feld, das durch einen linearen Scherfluss repräsentiert wurde, trieb das System also zusätzlich an. Für die theoretische Behandlung des Systems im Scherfluss allerdings davon ausgegangen, dass sich die fundamentalen wurde Fluktuationseigenschaften der stochastischen Kraft durch den externen Fluss geändert haben. Die Berechnungen fanden also nicht unter thermodynamischen Gleichgewichtsbedingungen statt. In wie weit dies gerechtfertigt war werden die hier vorgestellten Messungen zeigen. Weisen die experimentellen Ergebnisse große Abweichungen von den theoretischen Vorhersagen auf, SO könnte dies ein Anzeichen für veränderte Fluktuationseigenschaften des getriebenen Systems sein.

Die zusätzliche Kraft auf die Kugel durch das externe Geschwindigkeitsfeld wirkte in dem Modell nur in Strömungsrichtung. Das Feld war durch ein lineares Scherprofil gekennzeichnet. Der Gradient des Scherprofils lag in der y-Richtung, die Strömungsrichtung in der x-Richtung des Koordinatensystems der Kugel. Somit war das auf die Kugel wirkende Geschwindigkeitsfeld in x-Richtung abhängig von der y-Position. Aufgrund des positionsabhängigen Geschwindigkeitsfeldes waren die beiden Bewegungsrichtungen der Kugel nicht mehr per se unabhängig. In Kapitel 2 wird dieser Sachverhalt näher erläutert. Man spricht in diesem Fall davon, dass die Richtungen korreliert sind. In dieser Korrelation stecken wiederum die fundamentalen Größen der Brownschen Molekularbewegung und des Scherflusses.

Doch nicht nur die Korrelationen einer einzigen Kugel im Fluss konnten von Jochen Bammert vorhergesagt werden [12]. Theoretisch wurden auch die hydrodynamischen Wechselwirkungen zweier Kugeln im Scherfluss hergeleitet. Die Vorhersagen dieser Wechselwirkungen unter der Annahme des thermodynamischen Gleichgewichts sind im Kapitel 3 aufgeführt. Sie sollten sich im getriebenen System von den Wechselwirkungen im nicht getriebenen System wesentlich unterscheiden und es sollten zusätzliche, durch den Scherfluss induzierte Korrelationen beobachtbar sein.

Thema der hier vorliegenden Dissertation ist die experimentelle Untersuchung des Fluktuationsverhaltens von Mikroobjekten, die der Brownschen Molekularbewegung unterliegen. Dabei soll ein Schergradient im System herrschen, der die Bewegungen der Teilchen beeinflusst. Insbesondere sollen Teilchenkorrelationen beobachtet werden, die einen **Nachweis** der hydrodynamischen Wechselwirkung im getriebenen System darstellen. Neben den Einteilchenkorrelationen sollen auch die Korrelationsfunktionen zwischen zwei Kugeln analysiert werden.

Ein wesentlicher Teil dieses Projektes bestand in der Planung und Konzipierung des experimentellen Neuaufbaus sowie der Qualitätsoptimierung der erzielten Messdaten. Zu Beginn der Arbeit stellte sich zunächst die Frage, durch welche experimentelle Gestaltung die hydrodynamische Kopplung zweier, der Brownschen Bewegung unterliegenden Kugeln im Scherfluss nachgewiesen werden kann. Durch die kleinen Dimensionen der beobachteten Kugeln - die Brownsche Molekularbewegung ist kleinen Objekten nur bei im Mikrometerbereich beobachtbar – musste das Experiment mit einem Lichtmikroskop als Beobachtungswerkzeug verbunden werden. Mit Hilfe von Lasersystemen ist es zudem gleichzeitig möglich, die mikroskopischen Kugeln in der Strömung zu positionieren und eine zeitlich andauernde Beobachtung zu ermöglichen, ohne die Brownsche Molekularbewegung vollständig zu unterdrücken. Solche Lasersysteme werden als optische Fallen oder optische Pinzetten (engl. optical traps oder optical tweezers) bezeichnet und in Kapitel 4

Dieses Werkzeug dient genauer vorgestellt. im Mikrokosmos aus Forschungszwecken zur Manipulation von biologischen Zellen, Mikroorganismen oder, wie in vorliegendem Fall, zur Handhabung von Kugeln in der Größenordnung von einigen Mikrometern. Kombiniert man zwei Lasersysteme miteinander, so können auch zwei optische Fallen generiert werden, womit dann die hydrodynamische Wechselwirkung zweier Kugeln im umgebenden Medium untersucht werden kann [8]. Da die Zeitskalen für die Korrelationseffekte im Bereich von Millisekunden vorausgesagt wurden [13], wurde die Technik der optischen Pinzette in Kombination mit einer Hochgeschwindigkeitskamera zur Positionsaufnahme der Kugeln favorisiert. Alternativ wurden positionssensittive Detektoren (engl. Position Sensitive Detector, PSD) verwendet, wie sie in Kapitel 5 vorgestellt werden. Diese letzte Methode hat den Vorteil der hohen zeitlichen Auflösung jenseits von 100kHz und liefert damit eine Zeitauflösung, die mehr als ausreichend ist, um die Korrelationseffekte nachzuweisen. Im Ortsraum haben beide Methoden eine Auflösungsgenauigkeit von unter 8nm erreicht. Um zwei Kugeln mit den PSD's zu detektieren und unterscheiden zu können, wurden zwei verschiedene Wellenlängen benutzt, um die optischen Fallen zu generieren. Die Beleuchtung der beiden Kugeln, und damit die Signale auf den Detektoren, hatten dadurch unterschiedliche Farben. Diese beiden Farben oder Wellenlängen konnten mit Hilfe von optischen Filtern voneinander getrennt werden und ermöglichten damit die getrennte, unterscheidbare Aufnahme der Kugelpositionen in beiden optischen Fallen.

Zur Überprüfung der Genauigkeit des Experiments und zur Kontrolle der Auswerteroutinen wurden bereits veröffentlichte Korrelationseffekte in ruhenden experimentell überprüft. Dabei wurden hydrodynamische Flüssigkeiten Wechselwirkungen einer Kugel und Wechselwirkungen zwischen zwei Kugeln nachgewiesen, die sich in ruhendem demineralisiertem Wasser befanden. Die im Korrelationsfunktionen Experiment ermittelten bestätigten die bereits veröffentlichte Messungen [3].

Der wesentliche Unterschied des hier vorgestellten Systems zu bereits veröffentlichten Arbeiten besteht im externen Antrieb und der damit verbundenen Reibungskraft auf die untersuchten Kugeln durch einen externen Scherfluss. Die Generierung eines solchen Scherflusses erwies sich als nicht trivial. Es mussten einige Randbedingung beachtet werden, die aufgrund des Experimentes zwingend erforderlich waren. Zum einen wurde eine räumliche Ausdehnung der experimentellen Flusszelle benötigt, die mikroskopische Aufnahmen mit einem Mikroskop gestattete. Dabei mussten Vibrationen und zeitlich variierende Strömungen verhindert werden. Zum anderen ist die optische Pinzette nur bis zu gewissen Strömungsgeschwindigkeiten einsetzbar, die erfahrungsgemäß bei etwa  $50 \,\mu m/s$  lag. Die Lösung des Problems war das Design einer mikrofluidischen Flusszelle, in der eine Gegenströmung erzeugt wurde, wie in Kapitel 7 näher erläutert wird. Mikrofluidiken sind geometrisch geschickt angeordnete Kanäle in der Größenordnung von einigen Mikrometern bis hin zu einigen Millimetern. Sie haben in der Forschung einen breiten Einsatzbereich und werden zum Mischen, Trennen oder zur Flusserzeugung kleinster Flüssigkeitsmengen verwendet.

Um die geometrische Gestalt der Mikrofluidik zu optimieren und so einen optimalen Scherfluss zu generieren, wurden fluiddynamische Simulationen von Strömungsfeldern durchgeführt, wobei die begrenzenden geometrischen Formen variiert wurden. Zum Einsatz kam die kommerzielle Software der Firma Comsol, Multiphysics 3.4. Das optimierte Design wurde am Max Planck Institut für Dynamik und Selbstorganisation in Göttingen in die Realität umgesetzt. Wie Particle Image Velocimetry (kurz: PIV für Geschwindigkeitsmessung bei Teilchenabbildung) Messungen zeigten, stimmten die Vorhersagen des errechneten Strömungsfeldes sehr gut mit den tatsächlich im System herrschenden Feldern überein und so war es möglich, einen auf mikroskopischer Skala linearen Schergradienten zu generieren.

Die im Scherfluss auftretenden Korrelationen werden in Kapitel 8 sowohl theoretisch als auch experimentell vorgestellt. Die im Experiment verwendeten Kugeln wurden in demineralisiertem Wasser gelöst. Die Kugeln, die sich zufällig in der Mischkammer der Flusszelle befanden, wurden mit den optischen Pinzetten eingefangen. Durch den hydrostatischen Antrieb der Flusszelle konnte die Geschwindigkeit im Strömungskanal langsam erhöht werden. Dazu wurden die Flüssigkeitsreservoire beider Strömungskanäle simultan angehoben, der hydrostatische Druck also erhöht. Die optischen Fallen wurden dabei immer im Zentrum der Kammer gehalten. Bei ausreichend großer Geschwindigkeit wurden dann die Kugelpositionen in den Fallen mit Hilfe einer Kamera aufgenommen. Dieses Verfahren erlaubte erstmals den experimentellen Nachweis der Scherkorrelationen, wie sie in Kapitel 8 aufgeführt werden [14].

Obwohl die Brownsche Bewegung von mikroskopischen Objekten seit langem bekannt ist und theoretisch beschrieben werden kann, ist die gegenseitige Wechselwirkung dieser Teilchen noch weitgehend unerforscht. Insbesondere die Wechselwirkung in einem Fluss oder einer Scherströmung ist experimentell noch nicht nachgewiesen. Besonders in der Polymerforschung können Schereffekte allerdings eine große Rolle spielen. So tritt beispielsweise ein scherverdünnender Effekt auf, die Viskosität der Lösung nimmt dabei mit zunehmender Scherrate ab. Die Kombination aus Schereffekten und nicht vernachlässigbarer hydrodynamischer Beeinflussung ist dabei allerdings schwer vorherzusagen. Diese Arbeit soll helfen, ein einfaches Modell, bestehend aus zwei hydrodynamisch wechselwirkenden Kugeln, experimentell zu erfassen und die theoretischen Vorhersagen zu bestätigen oder zu widerlegen. Neben der elementaren Frage über das Fluktuationsverhalten Brownscher Objekte im Scherfluss ist sie auch als Basis für zukünftige Untersuchungen von Polymerlösungen mit Scherfeld zu verstehen, womit dann komplexere Modelle analysiert und die zur Verfügung stehenden Theorien überprüft werden können.

Auf Grund der Relevanz der hier vorgestellten Korrelationsergebnisse im Scherfluss für andere Wissenschaftsgebiete wurden Ergebnisse dieser Arbeit bei der Zeitschrift der American Physical Society zur Veröffentlichung eingereicht.

#### 2 Brownsche Molekularbewegung

Die nach Robert Brown (1773-1858) benannte Molekularbewegung öffnete die Tür zu Experimenten, die aus mikroskopischen Beobachtungen auf molekulare Eigenschaften schließen lassen [15]. Der Entdecker selbst beobachtete und beschrieb im Jahr 1827, dass Blütenpollen in Wasser unter dem Mikroskop eine Zitterbewegung ausführen. Was zunächst als "Lebenskraft" der Pollen interpretiert wurde, wurde später bei Staubkörnern ebenfalls beobachtet.

Um die Beschreibung des Verhaltens eines suspendierten Teilchens zu vereinfachen, abstrahiert man es derart, dass es Kugelgestalt mit dem Radius R besitzt, aber Rotationen vorerst ignoriert werden. Außerdem geht man davon aus, dass die stochastischen Bewegungen in die drei Raumrichtungen voneinander unabhängig sind, solange nicht eine Vorzugsrichtung, wie zum Beispiel ein Scherfluss oder ein Konzentrationsgradient, im System herrschen. Im Folgenden wird daher bis auf Weiteres nur eine Raumdimension ohne Abhängigkeit von den beiden verbleibenden Richtungen betrachtet. Im Übrigen werden später nur Analysen im zweidimensionalen Raum der xy-Ebene des Experiments durchgeführt. Aus technischen Gründen ist die Ortsauflösung in der Ebene des Probentischs besser als in der dritten Dimension entlang der optischen Achse. Aus diesem Grund wird auf eine Analyse in der dritten Dimension, der z-Richtung, verzichtet.

Um dem Prozess der Brownschen Molekularbewegung anschaulich darzustellen und zu verstehen, ist es notwendig, das Verhalten auf verschiedenen Zeitskalen zu betrachten [16]. Jedes Lösungsmittelmolekül besitzt thermische Energie, die aufgrund des Äquipartitionsprinzips gleich der kinetischen Energie dieses Teilchens ist. Auf kurzen für Flüssigkeitsbewegungen typischen Zeitskalen die im Bereich von  $10^{-14} - 10^{-12} s$  liegen, vollziehen die Lösungsmittelmoleküle rein ballistische Bewegungen. Das bedeutet, dass auf diesen Zeitskalen die Moleküle ihren Impuls nicht ändern da sie keinen Stoß ausführen und sich quasi im "freien Flug" befinden. Auf etwas längeren Zeitskalen stoßen die Lösungsmittelmoleküle mit andern Molekülen der Flüssigkeit und der Kugel selbst zusammen und übertragen so Impulse. Auf langen Zeitskalen ab  $\tau = m/\zeta \approx 10^{-7} s$  verliert die Kugel auf Grund der Reibung im System, die mit dem Reibungskoeffizient  $\zeta$ ausgedrückt werden kann, jede Erinnerung an den Anfangsimpuls vor diesem Zeitintervall. Diese Zeitskala stellt somit den Übergang von der ballistischen zu der diffusiven Dynamik dar und ist auf Grund der zeitlichen Messauflösung im Experiment von  $10^{-4}$  s relevant für die Teilchenbeobachtung.

Die Brownsche Dynamik der Kugel ist unabhängig von den einzelnen Impulsen, die auf der Zeitskala von  $10^{-14} - 10^{-12} s$  wirken; entscheidend ist nur noch der zeitliche Mittelwert über die Impulse, der im thermodynamischen Gleichgewicht verschwindet.

Die thermische Energie der Kugel und der umgebenden Flüssigkeit führen zu einer Wahrscheinlichkeitsverteilung der Geschwindigkeitskomponenten aller Stoßpartner, die einer Maxwell-Verteilung gemäß (6.4) entspricht. Der Stoßprozess zwischen beobachtbarem Teilchen und Lösungsmittelmolekül führt wie bereits erwähnt, zu einer Impulsänderung in einem gewissen Zeitintervall, also einer Kraftübertragung. Das zeitliche Auftreten der Kraft ist rein zufällig, wonach die Kraft als stochastische Kraft bezeichnet werden kann. Für endliche Zeiten ergibt sich eine Nettokraft, die zur Kugelbewegung führt und auf mikroskopischer Skala beobachtet werden kann [17]. Der Grund dafür liegt darin, dass sich nicht zu jedem Zeitpunkt alle Kräfte gegenseitig kompensieren. Auf kurzer, messbarer Zeitskala sind die Anzahl und die Intensität der Stöße nicht gleichverteilt und die auf die Kugel wirkende Kraft kompensiert sich nicht.

Albert Einstein (1879-1955) leitete 1905 in seiner Arbeit unter anderem die zeitliche Entwicklung der mittleren Ortsverschiebung einer Kugel, die der Brownschen Molekularbewegung folgt, ab [1]. Außerdem leitete er die Diffusionskonstante aus universellen Größen her. Geht man von einer eindimensionalen Diffusion einer Konzentration c(x, t) zum Zeitpunkt t am Ort x aus, dann entsteht nach dem Fick'schen Gesetz durch den Gradienten in der Konzentration ein Fluss j(x, t) mit

$$j(x,t) = -D\frac{dc(x,t)}{dx}.$$
(2.1)

Darin beschreibt D die Diffusionskonstante. Der entstandene Fluss durch den Konzentrationsgradienten hat seinen Ursprung in der zufälligen Bewegung der Objekte. Wie in Abbildung 2.1 zu erkennen ist, wollen am Ort der höheren Teilchenkonzentration statistisch mehr Teilchen in Regionen niedriger Konzentration als umgekehrt die Teilchen in den Regionen niedriger Konzentration in Regionen hoher Konzentration wollen. Die Folge ist ein Nettostrom, der von der hohen zur niedrigen Konzentration gerichtet ist.



Abbildung 2.1: Die Teilchen bewegen sich eindimensional zufällig in die mit den Pfeilen gekennzeichneten Richtungen. Die ungleichförmige Konzentrationsverteilung führt dazu, dass sich mehr Teilchen von der hohen Konzentration wegbewegen als von der geringen Konzentration zufließen. Es ergibt sich ein Fluss von der hohen zur niedrigen Konzentration.

Verwendet man zusätzlich zu Gleichung (2.1) noch eine Kontinuitätsgleichung für die Konzentration

$$\frac{dc(x,t)}{dt} = -\frac{dj(x,t)}{dx},$$
(2.2)

so kann die bekannte Diffusionsgleichung

$$\frac{dC(x,t)}{dt} = D \frac{d^2 C(x,t)}{dx^2}$$
(2.3)

aufgestellt werden. Diese Gleichung gilt für den Fall, dass kein äußeres Potential anwesend ist, sich die Teilchen also im thermodynamischen Gleichgewicht befinden. Dabei verschwindet die mittlere Teilchengeschwindigkeit genauso wie dessen mittlere Ortskoordinate.

In Anwesenheit eines Potentials U(x) verändert sich die mittlere Geschwindigkeit des Teilchens aufgrund der wirkenden Kraft. Diese Veränderung der Geschwindigkeit ist für kleine Kräfte linear abhängig von der Kraft selbst, so dass mit dem Proportionalitätsfaktor  $\zeta$  als Reibungskoeffizient gilt

$$V = \frac{F}{\zeta} = -\frac{1}{\zeta} \frac{dU(x)}{dx}.$$
(2.4)

Verschwindet die mittlere Geschwindigkeit nicht mehr, so ergibt sich ein zusätzlicher Nettofluss  $c(x,t) \cdot v(x)$ , so dass sich Gleichung (2.1) umschreiben lässt in

$$j(x,t) = -D\frac{dC(x,t)}{dx} - \frac{C(x,t)}{\zeta}\frac{dU(x)}{dx}.$$
(2.5)

Geht man davon aus, dass sich das System im Gleichgewicht befindet, so gilt für die Verteilung der Teilchen  $C_0$  die Boltzmannverteilung [18]

$$C_0 \propto \mathrm{e}^{-\frac{U(x)}{k_B T}}.$$
 (2.6)

Außerdem muss im Gleichgewicht der Fluss verschwinden, so dass Gleichung (2.5) umgeschrieben werden kann in

$$0 = -D\frac{dC_0}{dx} - \frac{C_0}{\zeta}\frac{dU(x)}{dx}.$$
(2.7)

Wegen  $\frac{dc_0}{dx} = -c_0 \frac{1}{k_B T} \frac{dU(x)}{dx}$  aus Gleichung (2.6) folgt

$$-D\frac{dC_0}{dx} = D\frac{C_0}{k_B T}\frac{dU(x)}{dx} = \frac{C_0}{\zeta}\frac{dU(x)}{dx}$$
(2.8)

und damit

$$D = \frac{k_{\scriptscriptstyle B} T}{\zeta}.$$
 (2.9)

Dieser Ausdruck wird als Einstein-Relation bezeichnet. Sie ist ein Spezialfall des sogenannten Fluktuations- Dissipations- Theorems, welches allgemein die Antwort des Systems mit dessen Autokorrelation verbindet [19]. Hier beschreibt der Reibungskoeffizient  $\zeta$  das Verhalten des Systems auf eine Kraft F, die mit der thermischen Bewegung und damit mit dem Diffusionskoeffizienten D verbunden ist.

Im folgenden Kapitel werden die fundamentalen Eigenschaften der Brownschen Molekularbewegung genauer erläutert. Hinzu kommt die Beschreibung einer Brownschen Kugel, die sich in einem harmonischen Potential befindet, wie es von einer optischen Pinzette generiert wird. Der Sachverhalt, dass die optische Pinzette ein harmonisches Potential darstellt, wird in Kapitel 4 begründet. Desweiteren wird nachfolgend erläutert, wie das Kugelverhalten im getriebenen System aussieht. Dabei wird die Annahme getroffen, dass die fundamentalen Relationen des thermischen Gleichgewichts für die stochastische Kraft noch gelten. Lediglich eine Geschwindigkeitskomponente treibt das System an und sorgt dafür, dass das System nicht im Gleichgewicht ist. Eine Abweichung der experimentellen Daten von der theoretischen Vorhersage wäre ein starkes Indiz dafür, dass sich fundamentale Eigenschaften der stochastischen Kraft im aktiv getriebenen System verändert haben.

#### 2.1 Stochastische Kraft

Versucht man die Eigenschaften der Brownschen Molekularbewegung näher zu charakte  $k_{\rm B} = 1.3806504(24) \cdot 10^{-23} \, J/K$ risieren, so kann man für die Ursache der Bewegung eines Mikroobjekts, die stochastische Antriebskraft, im thermodynamischen Limes einige Annahmen machen. Es ist beispielsweise sehr intuitiv, dass im zeitlichen Mittel auf ein Objekt genauso viele Stöße von rechts wie von links einwirken. Keine Richtung wird im System bevorzugt. Außerdem, so wird später klar, ist der mittlere Betrag der Kraft ortsunabhängig, vorausgesetzt die Lösung ist homogen und es bestehen keinerlei Gradienten im System. Wenn aber die Anzahl der Stöße auf beiden Seiten im Mittel identisch ist und die Stärke jedes Stoßes im Mittel gleich groß ist, so heben sich die entgegen gerichteten Stoßkräfte auf. Mathematisch formuliert verschwindet der zeitliche Mittelwert der stochastischen Kraft  $\langle F_{st} \rangle$ , die auf ein Objekt wirkt

$$\langle F_{st} \rangle = \langle F_i(t) \rangle = 0.$$
 (2.10)

Der Ausdruck  $\langle F_i(t) \rangle$  bezeichnet den zeitlichen Mittelwert über die stochastische Kraft, die zum Zeitpunkt t auf ein Teilchen i wirkt. Nimmt man weiterhin an, dass der Zeitraum der Wechselwirkung zwischen zwei Stoßpartnern infinitesimal klein ist, so ergibt sich mit Hilfe der Diracschen Delta Funktion  $\delta(t)$ 

$$F_{i}(x_{i}, t)F_{j}(x_{j}t') = f_{ij}\delta(t-t').$$
(2.11)

In der Realität ist der Zeitraum der Wechselwirkung sehr klein, so dass die Annahme der Delta Funktion gerechtfertigt ist [20]. Äquivalent zu Gleichung (2.11) ist aufgrund der Fourier Transformation die Aussage, dass die Kraft durch ein weißes Rauschen mit einer konstanten spektralen Leistungsdichte beschrieben werden kann. Aus dem Fluktuations- Dissipations- Theorem kann die Größe  $f_{ii}$  abgeleitet werden [21]

$$f_{ij} = 2k_{\rm B}T\zeta\delta_{ij},\tag{2.12}$$

wobei  $\zeta$  den Reibungskoeffizient des Objektes beschreibt,  $k_B = 1.3806504(24) \cdot 10^{-23} J/K$  die Boltzmann Konstante festlegt und T die absolute Temperatur in Kelvin bezeichnet. Damit sind die beiden fundamentalen Eigenschaften dieser Kraft charakterisiert und es ist nun möglich, eine Bewegungsgleichung für ein Teilchen und speziell für eine Kugel aufzustellen, das der Brownschen Molekulardynamik unterliegt

$$m\ddot{x} = F_{st} - F_{R}.$$
 (2.13)

Das Teilchen erfährt neben der stochastischen Antriebskraft  $F_{st}$  noch eine entgegenwirkende Reibungskraft  $F_{R}$ . Entscheidend für die Reibungskraft ist die Frage, ob das reibungsverursachende Geschwindigkeitsfeld im System laminar oder turbulent ist. Bei dieser Entscheidung kann die Reynoldszahl zur Hilfe genommen werden. Sie schätzt die Impulskonvektion gegenüber der Impulsdiffusion im System ab. Empirisch gilt, dass sich bei Reynoldszahlen unter 2300 das System laminar beschreiben lässt. Im realen Experiment kann die Reynoldszahl des Systems folgendermaßen abgeschätzt werden

$$\operatorname{Re} = \frac{\rho \cdot v \cdot L}{\eta} \approx \frac{10^3 \cdot 10^{-3} \cdot 10^{-5}}{10^{-3}} << 1 < 2300.$$
 (2.14)

Die eingehen Größen sind die Dichte  $\rho$  des Lösungsmittels, also von Wasser, die charakteristische Strömungsgeschwindigkeit v, die charakteristische Systemlänge L und die dynamische Viskosität  $\eta$  von Wasser. Bei mikroskopischen Systemabmessungen, wie sie später im Experiment benutzt werden, kann also aufgrund der Reynoldszahl-Abschätzung aus (2.14) das Geschwindigkeitsfeld als laminar angesehen werden. Weiterhin wird in Flüssigkeiten, in denen laminare Geschwindigkeitsfelder herrschen, angenommen, dass sich die in Gleichung (2.13) auftauchende Reibungskraft proportional zur Geschwindigkeit der Kugel verhält. Man bedient sich dann der Stokes-Kraft

$$F_{R} = \zeta \dot{X}, \qquad (2.15)$$

wobei der Reibungskoeffizient  $\zeta$  von der dynamischen Viskosität  $\eta$  und dem Wirkungsquerschnitt des Teilchens, makroskopisch dem Radius R, abhängt [22]

$$\zeta = 6\pi\eta R. \tag{2.16}$$

Aus Gleichung (2.13) ergibt sich mit Hilfe von Gleichung (2.15) die Bewegungsgleichung

$$m\ddot{X} + \zeta \dot{X} = F_{st}.$$
 (2.17)

Diese inhomogene Differentialgleichung 2. Ordnung beschreibt die Translationsbewegung eines Teilchens mit dem Radius R und der Masse m in einem Lösungsmittel der Viskosität  $\eta$ . Aus Gleichung (2.17) kann sowohl die Einstein-Relation aus (2.9) als auch der Zusammenhang von Ortsvarianz und Zeit abgeleitet werden [23]

$$\left\langle x^2 \right\rangle = 2Dt. \tag{2.18}$$

Obwohl der zeitliche Mittelwert der Ortsvarianz zeitabhängig ist, bleibt der zeitliche Mittelwert der Ortsposition selbst konstant. Der Grund liegt in der Symmetrie des betrachteten Systems. Genauso wie der zeitliche Mittelwert der stochastischen Kraft aufgrund der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Stöße verschwindet, verschwindet auch die Ortskoordinate im Mittel.

#### 2.2 Harmonisches Potential

In Kapitel 4 wird gezeigt, dass die optische Pinzette ein harmonisches Potential generiert. Dieses Potential führt zu einer linearen Abstandsabhängigkeit der Fallenkraft, die auf die Kugel wirkt. Der Schwerpunkt, und damit das Koordinatensystem der Kugel selbst befinden sich im Zentrum des harmonischen Potentials. Nimmt man diesen Sachverhalt der zusätzlichen Fallenkraft zu der Theorie der Brownschen Teilchenbewegung hinzu, so ändert sich die Bewegungsgleichung (2.17) durch einen zusätzlichen Kraftterm zu

$$m\ddot{x} + \zeta \dot{x} + kx = F_{st}.$$
(2.19)

Hier wurde ausgenutzt, dass das harmonische Potential der optischen Pinzette  $U(x) = 1/2 kx^2$  mit der Fallenkonstanten k dargestellt werden kann. Die Bewegung solch kleiner Brownschen Objekte in Flüssigkeiten, wie im späteren Fall in Wasser, ist aufgrund der Reibungskräfte überdämpft. Diese Annahme gilt bis zu einer Frequenz von 1*MHz* und ist demnach für alle nachfolgenden Messungen gültig [24]. Eine Überdämpfung entspricht der Vernachlässigung von Inertialkräften. Mit dieser Vereinfachung ergibt sich aus Gleichung (2.19) die sogenannte Langevin Gleichung

$$\zeta \dot{x} + kx = F_{St}.$$
(2.20)

Sie ist die fundamentale Bewegungsgleichung für ein mikroskopisches Objekt im harmonischen Potential. Analog zu Gleichung (2.18) kann auch hier eine Aussage über die Verteilungsbreite der Kugelposition getroffen werden. Aufgrund der Tatsache, dass das Objekt in einem Potential gefangen ist, ist die Ausdehnung der Bewegung jedoch beschränkt und somit nicht explizit zeitabhängig. Die Varianz ist mit der thermischen Energie und der Fallenkonstanten direkt verknüpft [20]

$$\left\langle X^2 \right\rangle = \frac{k_B T}{k}.$$
(2.21)

Je höher die thermische Energie in der Probe ist und je schwächer das Potential ist, desto weiter kann sich die Kugel bewegen. Die endliche Breite der Bewegung im Ortsraum führt dazu, dass Bewegungen, die großen räumlichen Sprüngen entsprechen, unwahrscheinlich werden. Die gefangene Kugel bleibt im Potential lokalisiert, abgesehen von kleinen Fluktuationen, die sie ausführt. Im Wellenbild sind es die großen Wellenlängen oder entsprechend kleine Frequenzen, die von der Falle unterdrückt werden. Für diese Frequenzen ist das Verhalten also nicht mehr Brownsch. In Kapitel 6.2 wird klar, dass es eine charakteristische Frequenz gibt, die je nach Fallenkonstante angibt, ab welcher Frequenz die Bewegung der Brownschen Dynamik folgt.

Das Besondere an Gleichung (2.21) ist, dass die Varianz der Ortskoordinate nur von der Fallenkonstante abhängt und nicht von der Lösungsmittelviskosität oder der Kugelgröße. Beobachtet man also die Position einer Kugel in der Falle, so kann bei bekannter Temperatur die Fallenkonstante bestimmt werden. Damit eignet sich diese Gleichung sehr gut, um Kalibrierungen der optischen Falle durchzuführen. In Kapitel 6.1 wird diese Art der Kalibrierung genauer vorgestellt.

#### 2.3 Aktiv getriebene Systeme

Befindet sich nun eine Kugel in der optischen Falle und wird sie zusätzlich in eine Strömung gebracht, so wirkt auf sie eine zusätzliche Kraft, eine Reibungskraft. Sie entsteht aufgrund der Relativgeschwindigkeit zwischen der gefangenen Kugel und der Flüssigkeit und führt zu einem deterministischen Kraftanteil auf die Kugel im harmonischen Potential. Im Fall einer laminaren Strömung kann die Kraft mit der Stokesschen Reibungskraft gemäß Gleichung (2.15) beschrieben werden. Gleichung (2.20) ändert sich durch den zusätzlichen Kraftterm dann zu

$$\zeta \dot{x} + kx + \zeta V = F_{St}, \qquad (2.22)$$

wobei angenommen wurde, dass weiterhin eine Stokes-Kraft auf die Kugel aufgrund der Teilchenfluktuation wirkt und die Geschwindigkeit der externen Strömung den Betrag v in x Richtung besitzt. Im Unterschied zur Kugel ohne Fluss ist dieses System aktiv getrieben und damit nicht mehr im thermodynamischen Gleichgewicht. Fluktuationen im getriebenen System sind aber nicht zwingendermaßen identisch zu den Fluktuationen im Gleichgewicht. Stellt sich im Experiment eine signifikante Fluktuationsänderung gegenüber der Gleichgewichtsannahme aus Gleichung (2.22) heraus, so kann dies auf ein geändertes Fluktuationsverhalten der Kugeln in der Strömung hindeuten.

Interessanter als eine homogene Strömung erscheint jedoch die Anwesenheit eines Gradienten im Strömungsfeld. Dieser sorgt nicht nur dafür, dass sich die Eigenschaften der stochastischen Kraft wie im homogenen Fluss ändern können. Vielmehr vermittelt der Scherfluss eine gegenseitige Abhängigkeit einer Kugelkoordinate von der dazu senkrechten. Die gegenseitige Beeinflussung der Kugelbewegung wird im Folgenden näher theoretisch behandelt.

#### 2.4 Scherfluss

Da die Analyse der hydrodynamischen Kopplung im Zweiteilchensystem mit externem Antrieb ein Kernstück der Arbeit darstellt, liegt es nahe, nicht nur Kopplungen im ruhenden Medium zu analysieren, sondern auch Kopplungen in einem Scherfluss nachzuweisen. Der Scherfluss ist aus dem Grund interessant, da er Abhängigkeiten verschiedener Bewegungsrichtungen der Kugeln generiert. Nimmt man beispielsweise an, der Scherfluss habe nur eine Abhängigkeit von der y-Koordinate und die Flussrichtung liegt nur in x-Richtung

$$V_{\chi}(y) = V_0 + \dot{\gamma} y, \qquad (2.23)$$

so ergibt sich für die Bewegungsgleichung in y-Richtung keine Abweichung von Gleichung (2.20), denn in dieser Richtung wirkt sich die Strömung nicht auf die Kugel aus

$$\zeta \dot{y} + ky = F_{st}.$$
 (2.24)

In der x-Richtung erscheint jedoch eine deterministische Geschwindigkeitskomponente, die gemäß Gleichung (2.23) von y abhängt

$$\zeta \dot{X} + kX + \zeta \left( V_0 + \dot{\gamma} Y \right) = F_{St}.$$
(2.25)

Damit ist die Bewegung in x-Richtung von der y-Position der Kugel abhängig. Eine umgekehrte Beziehung besteht nicht, x-Fluktuationen der Kugel beeinflussen die y-Position nicht. In Abbildung 2.2 ist zu erkennen, dass das Geschwindigkeitsfeld nicht auf die y-, wohl aber auf die x-Koordinate der Kugel wirkt. Dabei beeinflussen die y-Fluktuationen das auf die Kugel wirkende Feld.



Abbildung 2.2: Die Kugel befindet sich im blau dargestellten Scherfeld mit Gradient in y-Richtung. Die Fluktuationen in y-Richtung bleiben von der Strömung unbeeinflusst. In der x-Richtung kommt, je nach y-Koordinate der Kugel, eine Geschwindigkeitskomponente hinzu. In Gleichung (2.25) wurde davon ausgegangen, dass sich die stochastische Kraft durch den äußeren Antrieb nicht verändert hat. Lediglich ein deterministischer Strömungsanteil in einer Bewegungsrichtung ist zur Bewegungsgleichung (2.20) im ruhenden System hinzugekommen. Somit gelten alle in Kapitel 2.1 aufgeführten Eigenschaften für diese Kraft. Sowohl der zeitliche Mittelwert verschwindet, als auch der Betrag der Kraft sowie die infinitesimale Wechselwirkungszeit bleiben unverändert. Verhält sich nun die Kugel im Experiment hingegen anders als Vorausgesagt, so kann ein möglicher Grund darin liegen, dass sich die Fluktuationseigenschaften verändert haben.

Eine Änderung der Kugelfluktuationen hätte weitreichende Folgen. Man kann sich vorstellen, dass sich diese Änderung nicht nur auf die Kugel auswirkt. Kleine Flüssigkeitsvolumen würden ebenfalls von den Änderungen betroffen sein und somit würden sich die Eigenschaften des umgebenden Mediums ändern.

#### 2.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die fundamentalen Eigenschaften der stochastischen Kraft als Antrieb für die Brownsche Molekularbewegung vorgestellt. Die Symmetrie des Systems führt im zeitlichen Mittel zum Verschwinden der stochastischen Kraft und der Ortsposition der Kugel. Die Varianz der Positionsverteilung ist eine lineare Funktion der Zeit. Im Potential der optischen Pinzette sind die stochastischen Kugelbewegungen ebenfalls beobachtbar. Hier ist die Varianz der Ortsverteilung jedoch nicht mehr zeitabhängig, sondern wird durch die Fallenkonstante bestimmt.

Die Eigenschaften der stochastischen Kraft wurden vom ruhenden System ins getriebene System übernommen. Die Theorie geht also davon aus, dass sich die fundamentalen Eigenschaften der Fluktuationen durch den Fluss nicht ändern. Ein deterministischer Strömungsanteil ist in der Theorie die einzige Veränderung in der Bewegungsgleichung im Vergleich zum System ohne Fluss. Im Scherfeld kommt noch eine Abhängigkeit der x-Position von der y-Position der Kugel hinzu. Diese Abhängigkeit hat weitreichende Folgen, denn sie führt zu einer Kopplung der Koordinatenrichtungen, die in dieser Arbeit untersucht wird.

Entsprechen die experimentellen Messungen den Ergebnissen der hier vorgestellten Theorie, so würden die Fluktuationseigenschaften vom äußeren Strömungsfeld nicht beeinflusst. Eine Abweichung von der Theorie ist dagegen ein Hinweis auf fundamentale Veränderungen der Fluktuationen aufgrund der Nichtgleichgewichts-Situation. Diese Abweichung würde nicht nur die beobachtete Kugel selbst betreffen sondern bereits bei den kleinen Volumenteilchen der Flüssigkeit eine Rolle spielen und somit die fundamentalen Eigenschaften der Flüssigkeit beeinflussen.

#### 3 Hydrodynamische Wechselwirkung

Die Hydrodynamik, oder auch Fluiddynamik, beschäftigt sich mit dem Verhalten strömender Flüssigkeiten. Unter der hydrodynamischen Wechselwirkung versteht man daher allgemein die gegenseitige Beeinflussung mehrerer Gegenstände in einer Flüssigkeit aufgrund gegenseitig generierter Strömungen.

Im folgenden Kapitel wird die Theorie der hydrodynamischen Wechselwirkung zweier Kugeln in einer Flüssigkeit vorgestellt. Dabei befinden sich die beiden Kugeln im thermodynamischen Gleichgewicht. Die Kugeln von einigen Mikrometern Durchmesser sind in zwei harmonischen Potentialen gefangen. Der laterale Potentialabstand beträgt dabei einige Kugelradien. Trotz der Entfernung spürt eine Kugel die Anwesenheit der anderen Kugel.

Dies ist anschaulich dadurch zu erklären, dass sich durch die Brownsche Teilchenfluktuation das Geschwindigkeitsfeld lokal um diese Kugel verändert. Diese Veränderung, oder auch Störung, pflanzt sich im Flüssigkeitsmedium fort und wirkt so auf die zweite Kugel, die sich in der Nähe von der ersten Kugel befindet. Die Störung beeinflusst diese zweite Kugel und sie reagiert auf Grund der Reibungskraft mit einer Bewegung. Die beiden Kugeln bewegen sich also nicht absolut unabhängig voneinander. Die inkompressible Flüssigkeit dazwischen vermittelt zwischen ihnen und führt zu einer Abhängigkeit der einen Kugel von der anderen. Man sagt auch, dass die Bewegungen der beiden Kugeln miteinander korreliert sind. Auf diesen Sachverhalt wird im Kapitel 8 genau eingegangen. Im vorliegenden Kapitel wird die Ursache dieser Korrelation, nämlich die hydrodynamische Wechselwirkung, vorgestellt. Dabei wird auf die Linearisierung der Navier-Stokes-Gleichung eingegangen, was zum Ausdruck des Oseen-Tensors führt. Aus ihm wird die Mobilitätsmatrix bestimmt, mit deren Hilfe die hydrodynamische Interaktion verschiedener Kugeln beschrieben werden kann.

#### 3.1 Oseen-Tensor

Die hydrodynamische Wechselwirkung von Kugeln in einer Flüssigkeit kann durch den sogenannten Oseen-Tensor beschrieben werden. Dessen Herleitung erfolgt mit Hilfe der Navier-Stokes-Gleichung für inkompressible Flüssigkeiten

$$\rho \dot{\vec{v}}(\vec{x}) = -\nabla \rho(\vec{x}) + \eta \Delta \vec{v}(\vec{x}) - \rho \left(\vec{v}(\vec{x}) \cdot \nabla\right) \vec{v}(\vec{x}) + \vec{F}(\vec{x}).$$
(3.1)

Die in der Navier-Stokes-Gleichung auftretenden Größen sind die Dichte  $\rho$ , die Geschwindigkeit  $\vec{v}(\vec{x})$ , der Druck  $\rho$ , die Viskosität  $\eta$  sowie eine äußere Volumenkraft  $\vec{F}(\vec{x})$ . Auf der linken Seite steht die zeitliche Veränderung des Geschwindigkeitsfeldes, also die Beschleunigung, die ein Flüssigkeitselement erfährt. Die Ursachen der Beschleunigung stehen auf der rechten Seite von Gleichung (3.1): neben einer Druckänderung beeinflusst auch die viskose Scherkraft die Bewegung. Der dritte Term beschreibt die Beschleunigung aufgrund von örtlicher Variation im Geschwindigkeitsfeld. Zusätzlich kann noch eine äußere Kraft, wie beispielsweise die Gravitationskraft, wirken, die die Bewegung beeinflusst.

Die Inkompressibilität ist gleichbedeutend mit

$$\nabla \vec{\nu} (\vec{x}) = 0, \tag{3.2}$$

also dem Sachverhalt, dass die Summe über alle Geschwindigkeitsgradienten verschwindet. Der isotherme Kompressibilitätskoeffizient  $\chi$  beträgt für Wasser bei 20°C und dem Druckbereich zwischen 1 und 50*bar* etwa 4.6·10<sup>-5</sup> *bar*<sup>-1</sup>, wobei dieser Koeffizient die relative Volumenänderung beschreibt

$$\frac{V}{V_0} = 1 - \chi \cdot \rho. \tag{3.3}$$

Daher kann Wasser als praktisch inkompressibel angesehen werden [25].

Eine Vereinfachung von Gleichung (3.1) erfolgt durch die Vernachlässigung von  $(\vec{v} \cdot \nabla)\vec{v} = \frac{1}{2}\nabla \|\vec{v}\|^2 - \vec{v} \times (\nabla \times \vec{v}) = \frac{1}{2}\nabla \|\vec{v}\|^2 - \vec{v} \times \textit{rot}\vec{v}$ , was bei kleinen

Geschwindigkeiten gerechtfertigt ist [26]

$$\rho \dot{\vec{v}}(\vec{x}) = -\nabla \rho(\vec{x}) + \eta \Delta \vec{v}(\vec{x}) + \vec{F}(\vec{x}).$$
(3.4)

Diese Annahme ist erforderlich, um die komplexe Differentialgleichung zu vereinfachen und zu lösen. Bei der Herleitung des Oseen-Tensors wird weiter angenommen, dass das Superpositionsprinzip gilt. Außerdem können die Inertialkräfte wiederum vernachlässigt werden. Für die Herleitung des Oseen-Tensors überträgt man die Gleichungen (3.1) und (3.2) vom Orts- in den reziproken Raum [12]. Dort sind die Geschwindigkeitskomponenten nicht mehr von der Ortsopsition  $\vec{x}$  abhängig, sondern vom Wellenvektor  $\vec{k}$ . Die Überführung geschieht mittels der Fourier-Transformation der Größen, die die folgende Gestalt annehmen

$$\vec{v}(\vec{x}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int \vec{v}(\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{x}} d\vec{k}$$

$$\vec{F}(\vec{x}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int \vec{F}(\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{x}} d\vec{k}$$

$$\vec{p}(\vec{x}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int \vec{p}(\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{x}} d\vec{k}.$$
(3.5)

Daraus ergeben sich die folgenden Ableitungstransformationen

$$\nabla \vec{p}(\vec{x}) \xrightarrow{FT} i \vec{k} \vec{p}(\vec{k}),$$

$$\Delta \vec{v}(\vec{x}) \xrightarrow{FT} -k^2 \vec{v}(\vec{k}).$$
(3.6)

Mit der Vereinfachung verschwindender Inertialkräfte kann Gleichung (3.4) umgeschrieben werden in

$$\nabla p(\vec{x}) = \eta \Delta \vec{\nu}(\vec{x}) + \vec{F}(\vec{x}), \qquad (3.7)$$

was mit Hilfe von Gleichung (3.6) im reziproken Raum zu der Gleichung

$$\vec{k}p(\vec{k}) = -\eta k^2 \vec{v}(\vec{k}) + \vec{F}(\vec{k})$$
(3.8)

führt. Errechnet man zudem noch die Divergenz von Gleichung (3.7) so erhält man im Ortsraum

$$\Delta p(\vec{x}) = \eta \Delta \underbrace{\nabla \vec{v}(\vec{x})}_{=0} + \nabla \vec{F}(\vec{x}).$$
(3.9)

Die Transformation in den reziproken Raum von Gleichung (3.9) führt zu

$$-k^{2}\rho(\vec{k}) = i\vec{k}\vec{F}(\vec{k})$$

$$\Rightarrow \rho(\vec{k}) = \frac{-i\vec{k}}{k^{2}}\vec{F}(\vec{k}).$$
(3.10)

Die Lösung aus Gleichung (3.10) kann nun in Gleichung (3.8) eingesetzt werden, was zu dem Geschwindigkeitsausdruck

$$\vec{v}(\vec{k}) = \frac{1}{\eta k^2} \vec{F}(\vec{k}) \left[ \mathbf{I} - \hat{\vec{k}} \hat{\vec{k}}^T \right]$$
(3.11)

führt. Hierbei beschreiben I die Einheitsmatrix und  $\hat{\vec{k}}$  den Einheitsvektor. Eine Rücktransformation in den Ortsraum ergibt folgenden Ausdruck

$$\vec{\nu}(\vec{x}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int \vec{\nu}(\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{x}} d\vec{k}$$

$$= \frac{1}{(2\pi)^3} \int \frac{1}{\eta k^2} \vec{F}(\vec{k}) \left[ I - \hat{\vec{k}} \hat{\vec{k}}^T \right] e^{i\vec{k}\vec{x}} d\vec{k}$$

$$= \int \left[ \frac{1}{(2\pi)^3} \int \frac{1}{\eta k^2} \vec{F}(\vec{k}) \left[ I - \hat{\vec{k}} \hat{\vec{k}}^T \right] e^{i\vec{k}\vec{x} - \vec{x}'} d\vec{k} \right] \vec{F}(\vec{x}') d\vec{x}'$$

$$=: \int \mathbf{K} (\vec{x} - \vec{x}') \vec{F}(\vec{x}') d\vec{x}'.$$
(3.12)

Die Gestalt der Oseen-Matrix  $K(\vec{x})$  kann näher bestimmt werden, wenn man folgenden Ansatz für dessen Gestalt wählt

$$\mathbf{K}_{ij} = \alpha \delta_{ij} + \beta \,\hat{\vec{x}}_i \hat{\vec{x}}_j^T. \tag{3.13}$$

Mit Hilfe der Spur der Matrix und dem Produkt  $\hat{\vec{x}}^{T}\mathbf{K}(\vec{x})\hat{\vec{x}}$  erfolgt die Bestimmung der beiden Parameter  $\alpha$  und  $\beta$  zu [12]

$$\alpha = \beta = \frac{1}{8\pi\eta x}.\tag{3.14}$$

Als Ausdruck für den Oseen-Tensor erhält man [12, 27]

$$\mathbf{K}\left(\vec{x}\right) = \frac{1}{8\pi\eta x} \left(\mathbf{I} + \frac{\vec{x}\vec{x}^{T}}{x^{2}}\right),\tag{3.15}$$

wobei  $X = |\vec{x}|$  darstellt. Der Oseen-Tensor selbst beschreibt die Änderung des Geschwindigkeitsfeldes an der Position  $\vec{x}$  durch eine Kraft  $\vec{F}(\vec{0})$  am Ort  $\vec{0}$ . Damit ergibt sich für das Geschwindigkeitsfeld  $\vec{V}(\vec{x}_i)$  am Ort  $\vec{x}_i$  aufgrund einer Störung

$$\vec{\nu}(\vec{x}_i) = \mathbf{K}\left(\vec{x}_i - \vec{x}_j\right) F\left(\vec{x}_j\right)$$
(3.16)

wenn am Ort  $\vec{x}_j$  die Kraft  $\vec{F}(\vec{x}_j)$  wirkt. Das Feld selbst besitzt eine Abstandsabhängigkeit die sich gemäß 1/x verhält.

Im späteren Experiment wird die Wechselwirkung zweier Kugeln analysiert. Der Abstand der Kugeln, und damit der Abstand zwischen dem Beobachtungsort  $\vec{x}$  und dem Ort der Kraftverursachung durch die zweite Kugel ist größer als der Kugelradius. Darum ist die hier aufgeführte Beschreibung der Kugeln als Punktteilchen in erster Näherung gerechtfertigt.

#### 3.2 Allgemeine Mobilitätsmatrix

Im Folgenden wird in einem Vielteilchensystem, das aus N Kugeln besteht, die hydrodynamische Kopplung der Teilchen analysiert. Das System ist im thermodynamischen Gleichgewicht, die stochastischen Kräfte bleiben also durch den Fluss unverändert. Außerdem ist die Reynoldszahl klein, Turbulenzen entstehen also nicht. Dies ist erlaubt, wenn man die Reynoldszahl für das System gemäß Gleichung (2.14) abschätzt.

Auf jede Kugel, die sich am Ort  $\vec{x}_i$  befindet, wirkt eine externe Kraft  $\vec{F}_j(\vec{x}_j)$  einer anderen Kugel wie in Abbildung 3.1 zu erkennen ist. Diese Kraft hat die Fluktuation der Brownschen Bewegung als Ursache. Die Anwesenheit einer fluktuierenden Kugel beeinflusst somit das komplette Geschwindigkeitsfeld des gesamten Systems. Da die Kugeln des Systems der Stokes-Reibung folgen, die für niedrige Geschwindigkeiten in der Flüssigkeit gilt, kann das komplette Geschwindigkeitsfeld  $\vec{V}_g(\vec{X}_i)$ , das auf eine Kugel bei  $\vec{X}_i$  wirkt, als Linearkombination aus dem ungestörtem Geschwindigkeitsfeld  $\vec{V}_0(\vec{X}_i)$  und dem Störfeld  $\vec{V}(\vec{X}_i)$  dargestellt werden

$$\vec{V}_g(\vec{X}_i) = \vec{V}_0(\vec{X}_i) + \vec{V}(\vec{X}_i).$$
(3.17)



Abbildung 3.1: Die Fluktuation der Kugel bei  $\vec{x}_{j}$ führt zu Kräften  $\vec{F}_{j}$  auf die Kugeln bei  $\vec{x}_{i}$ ,  $\vec{x}_{i+1}$  und  $\vec{x}_{i+2}$ . Somit beeinflusst eine einzige Kugel das gesamte System.

Im System selbst befinden sich N Kugeln die allesamt fluktuieren und damit jede für sich ein Geschwindigkeitsfeld generieren. Die Gesamtkraft, die auf die Kugel i wirkt, ist demnach die Summe der Einzelkräfte

$$\vec{f}(\vec{x}_{i}) = \sum_{j=1}^{N} \vec{F}_{j} \delta(\vec{x}_{i} - \vec{x}_{j}).$$
 (3.18)

Das gesamte Störfeld selbst kann mit Hilfe des Oseen-Tensors aus Gleichung (3.15) ermittelt und als Summe über alle Störfelder jeder Kugel dargestellt werden

$$\vec{\nu}\left(\vec{x}_{i}\right) = \sum_{j=1}^{N} \mathbf{K}\left(\vec{x}_{i} - \vec{x}_{j}\right) \vec{F}_{j}.$$
(3.19)

Die darin auftauchende Summe entsteht aufgrund der Tatsache, dass das gesamte Störfeld als Linearkombination aller Störfelder angesehen wird. Damit spürt eine Kugel in der Flüssigkeit die Bewegung aller anderen Kugeln des Systems. Dieser Sachverhalt wird als hydrodynamische Wechselwirkung zwischen den Kugeln bezeichnet.

Die Geschwindigkeit einer Kugel i errechnet sich nun aus dem gesamten Geschwindigkeitsfeld (3.17) und der Stokes-Reibung die auf die Kugel wirkt zu

$$\vec{v}_{i} = \vec{v}_{g}(\vec{x}_{i}) + \frac{\vec{F}_{i}}{6\pi\eta R}$$

$$= \vec{v}_{0}(\vec{x}_{i}) + \vec{v}(\vec{x}_{i}) + \frac{\vec{F}_{i}}{6\pi\eta R}$$

$$= \vec{v}_{0}(\vec{x}_{i}) + \sum_{j\neq i}^{N} \mathbf{K}(\vec{x}_{j} - \vec{x}_{j})\vec{F}_{j} + \frac{\vec{F}_{i}}{6\pi\eta R}$$

$$= \vec{v}_{0}(\vec{x}_{i}) + \sum_{j=1}^{N} \mathbf{H}_{ij}\vec{F}_{j}.$$
(3.20)

Die Matrix H wird als Mobilitätsmatrix bezeichnet, die die Stokes-Reibung für die Kugel i ausdrückt

$$H_{ii} = \frac{1}{\zeta}I \tag{3.21}$$

und die hydrodynamische Wechselwirkung zwischen der Kugel i und allen anderen im System befindlichen Kugeln beschreibt

$$\mathbf{H}_{ij} = \mathbf{K} \left( \vec{X}_i - \vec{X}_j \right). \tag{3.22}$$

Wendet man nun diese Mobilitätsmatrix auf die Kraft  $\vec{F}_j$  am Ort  $\vec{x}_j$  an, so ergibt sich daraus die Geschwindigkeit  $\vec{V}_j$  der Kugel am Ort  $\vec{X}_j$ , die sich aufgrund dieser Kraft und der Stokes-Reibung der Kugel einstellt zu

$$\vec{v}_i(\vec{x}_i) = H_{ij}\vec{F}_j. \tag{3.23}$$

In einem Vielteilchensystem ergibt sich das gesamte Geschwindigkeitsfeld als Summe aller Geschwindigkeitsfelder im System.

Im späteren Experiment wird nur von der Wechselwirkung zweier Kugeln gesprochen. Obwohl sich beim Experiment mehrere Kugeln gleichzeitig in der Probe befinden, ist die Betrachtung von nur zwei Teilchen durchaus erlaubt. Der Abstand dieser beiden Kugeln ist wesentlich kleiner als die Abstände zu anderen Kugeln im System. Da die hydrodynamische Wechselwirkung nach Gleichung (3.15) mit 1/x abfällt, sind die Kugeln in beispielsweise  $15\mu m$  gegenüber der beobachteten Kugel im Abstand von  $5\mu m$  vernachlässigbar. Der Einfluss der benachbarten Kugel ist dreimal so stark wie der Einfluss der weiter entfernten Kugel.

#### 3.3 Mobilitätsmatrix zweier Kugeln im ruhenden Medium

Die Ortskoordinaten zweier beobachteter Kugeln in jeweils einem Potential werden im Folgenden mit den Indizes 1 und 2 dargestellt. Im Übrigen besitzt jede Kugel ihr eigenes Koordinatensystem. Dabei befindet sich jede Kugel im Ursprung ihres eigenen Koordinatensystems, sobald sich die Kugel im Minimum des jeweiligen optischen Potentials befindet. Alle kartesischen Ortskoordinaten der beiden Kugeln können zu einem sechszeiligen Vektor zusammengefasst werden. Die ersten drei Koordinaten beschreiben die Lage der ersten Kugel, während die letzten drei Koordinaten die Position der zweiten Kugel angeben. Analog zu Gleichung (3.23) entsteht letztlich eine  $6 \times 6$ -Mobilitätsmatrix, in der die Wechselwirkungsvorschrift aller Ortskoordinaten beider Kugeln enthalten ist. Diese Matrix kann in vier einzelne Kopplungsmatrizen zerlegt werden

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} \mathbf{T}_{11} & \mathbf{T}_{12} \\ \mathbf{T}_{21} & \mathbf{T}_{22} \end{pmatrix}.$$
 (3.24)

Die Kopplungsmatrix  $T_{ij}$  gibt an, welche Kugel i mit welcher Kugel j wechselwirkt. Sie ist eine  $3 \times 3$ -Matrix, die die Kopplung in den verschiedenen Ortsrichtungen angibt. So geben  $T_{11}$  und  $T_{22}$  die Wechselwirkung des Teilchens mit sich selbst an. Da orthogonale Bewegungsrichtungen einer Kugel im gradientfreien Lösungsmittel unabhängig voneinander sind und daher keine orthogonalen Wechselwirkungen entstehen, enthalten die Matrizen nur Einträge der Form (3.21)

$$T_{11} = T_{22} = \frac{1}{\zeta} I.$$
(3.25)

Hier sind alle orthogonalen Ortskoordinaten voneinander unabhängig, die Bewegung in eine Richtung beeinflusst die Bewegung senkrecht dazu nicht. In Gleichung (3.25) ist zu erkennen, dass aufgrund der Einheitsmatrix I eine Koordinate ausschließlich auf sich selbst wirkt. Die Kugel wechselwirkt also durch ein eigens generiertes Strömungsfeld mit sich selbst. In Kapitel 8.3.1 wird dargelegt, dass dies einer nichtverschwindenden Autokorrelation, also die Korrelation einer Ortskoordinate mit sich selbst, entspricht.

Die hydrodynamischen Wechselwirkungen zwischen den beiden Kugeln kommen in den Kopplungsmatrizen  $\rm T_{12}$  und  $\rm T_{21}$  zum Ausdruck

$$T_{12}(\vec{x}_{1} - \vec{x}_{2}) = T_{21}(\vec{x}_{2} - \vec{x}_{1}) = \frac{1}{8\pi\eta |\vec{x}_{1} - \vec{x}_{2}|} \left(I + \frac{(\vec{x}_{1} - \vec{x}_{2})(\vec{x}_{1} - \vec{x}_{2})^{T}}{|\vec{x}_{1} - \vec{x}_{2}|^{2}}\right).$$
(3.26)
Sie entsprechen dem Oseen-Tensor aus Gleichung (3.15). Dabei wird davon ausgegangen, dass eine Kugel fluktuiert, sich also bewegt. Diese Bewegung übt eine Kraft auf die umgebende Flüssigkeit aus. Diese Kraft überträgt sich in Form eines Geschwindigkeitsfeldes zur zweiten anwesenden Kugel. Aus diesem Grund ist es gerechtfertigt, die Wechselwirkung zwischen den Kugeln mit dem Oseen-Tensor zu beschreiben.

Die einzelnen Einträge der beiden Matrizen  $T_{12}$  und  $T_{21}$  sind im ruhenden Medium identisch. Insbesondere enthalten sie nur Einträge auf den Diagonalen, denn die Kugeln wechselwirken nur entlang der gleichen Richtung. Orthogonale Wechselwirkungen existieren im ruhenden Medium nicht. In der Scherströmung können auch orthogonale Bewegungen wechselwirken, was zu Außerdiagonaleinträgen führt.

Mit den Gleichungen (3.25) und (3.26) können nun die gegenseitigen Wechselwirkungen der Kugeln berechnet werden. Wenn die Mechanismen der Wechselwirkung bekannt sind, kann auch die Bewegung der Kugeln beschrieben werden.

# 3.4 Bewegungsgleichung

Um das Verhalten zweier Kugeln zu beschreiben, wird im Folgenden deren Bewegungsgleichung hergeleitet. Dabei sollen zwei Kugeln mit dem Radius R in jeweils einem harmonischen Potential gefangen sein. Der Abstand der Potentialminima entspricht der Länge E entlang der x-Achse. Neben der Brownschen Bewegung der Kugeln wird noch die gegenseitige Teilchenwechselwirkung in die Beschreibung aufgenommen. Mit der Lösung der Bewegungsgleichung können die Eigenschaften des Systems, insbesondere die Korrelationsfunktionen, weiter analysiert werden.

Durch die generalisierte Einstein-Relation

$$D = \frac{k_B T}{\zeta} = k_B T H^{-1}$$
(3.27)

kann die Relation zwischen der Mobilitätsmatrix H und der Diffusionskonstanten D oder der stochastischen Kraft analog zu Gleichung (2.12) hergestellt werden [28]

$$f_{ij} = 2k_{B}T H_{ij}^{-1} \delta_{ij}, \qquad (3.28)$$

wobei  $H_{ij}^{-1}$  das inverse Mobilitätsmatrixelement bezeichnet. Damit kann die stochastische Kraft mit Hilfe der Mobilitätsmatrix ausgedrückt werden. Die Bewegungsgleichung einer Kugel kann somit in die kompakte Gestalt

$$\dot{\vec{x}} = \mathbf{H}\vec{f} = \mathbf{H}\left(-k\cdot\left(\vec{x}-\vec{x}_{0}\right)+\vec{F}_{st}\right)$$
(3.29)

gebracht werden [12]. Dabei wurden die Kraftterme gemäß Gleichung (3.18) zusammenfasst, wobei die dortige Summe alle externen Kräfte beinhaltet, also neben der stochastischen Kraft auch die Kraft durch das harmonische Fallenpotential mit Zentrum bei  $\tilde{X}_0$ . Aufgrund der Tatsache, dass H eine Matrix darstellt, steckt in Gleichung (3.29) sowohl die Beeinflussung der Kugel durch sich selbst als auch die Beeinflussung durch die zweite Kugel im System. Im X abhängig. Allgemeinen ist Н durch das Potential von Die Bewegungsgleichung (3.29) kann jedoch mit der Annahme gelöst werden, dass der Abstand der beiden Kugeln annähernd gleich dem Abstand E der beiden Potentiale ist wie in Abbildung 3.2 aufgezeigt wird

$$\left|\vec{x}_{1} - \vec{x}_{2}\right| \approx E \tag{3.30}$$

und sich der Abstand der Kugeln im Wesentlichen aus den Abständen in x-Richtung zusammensetzt, der größer als der Kugelradius selbst ist

$$\vec{x}_1 - \vec{x}_2 \approx x_1 - x_2 >> R.$$
 (3.31)

Abbildung 3.2: Zwei Kugeln sind in zwei verschieden optisch generierten, harmonischen Potentialen gefangen, die einen Abstand E in x-Richtung aufweisen.

Mit diesem Ansatz vereinfacht sich Gleichung (3.26) auf

Е

$$\Gamma_{12}\left(\vec{x}_{1}-\vec{x}_{2}\right)=\Gamma_{21}\left(\vec{x}_{2}-\vec{x}_{1}\right)=\frac{1}{8\pi\eta E}\begin{pmatrix}2&0&0\\0&1&0\\0&0&1\end{pmatrix}.$$
(3.32)

Damit ist die Mobilitätsmatrix H, die aus den einzelnen Kopplungsmatrizen  $T_{ij}$  besteht, unabhängig von  $\vec{X}$ . Die Lösung der Bewegungsgleichung kann nun durch Lösen der homogenen Gleichung aus (3.29) zu

$$\vec{X}_{\text{hom}}\left(t\right) = e^{-Hkt} \vec{X}_{0} \tag{3.33}$$

gefunden werden. Indem eine Variation der Konstanten  $\vec{x}_0 = \vec{x}_0(t)$  durchgeführt wird, ergibt sich die allgemeine Lösung zu

$$\vec{x}_{all}(t) = \int_{0}^{t} e^{\mathbf{H}k(t'-t)} \mathbf{H}\vec{F}_{St}(t) dt'.$$
(3.34)

Die Gesamtlösung setzt sich als Summe von (3.33) und (3.34) zusammen

$$\vec{x}(t) = e^{-Hkt} \vec{x}_0 + \int_0^t e^{Hk(t'-t)} H \vec{F}_{St}(t) dt'.$$
(3.35)

Damit ist die Lösung der Bewegungsgleichung in Abhängigkeit der Mobilitätsmatrix gefunden. Sie beinhaltet den stochastischen Antrieb der Kugel in einem harmonischen Potential unter Berücksichtigung der hydrodynamischen Wechselwirkung der zweiten Kugel. Aus dieser Gleichung resultieren in Kapitel 8.3.1 die Korrelationsfunktionen.

# 3.5 Zusammenfassung

Dieses Kapitel stellte die Grundlagen der hydrodynamischen Wechselwirkungen vor, also den Mechanismus wie sich Objekte in einer Flüssigkeit gegenseitig beeinflussen. Der Oseen-Tensor, der die Auswirkung einer Kraft  $\vec{F}(\vec{r}_i)$  auf das Geschwindigkeitsfeld am Ort  $\vec{r}_i$  ausdrückt beschreibt dabei die Wechselwirkung. Zur Herleitung des Tensors wurde angenommen, dass sich Wasser wie eine inkompressible Flüssigkeit verhält und der linearen Navier-Stokes-Gleichung folgt. Der Tensor ist die Grundlage der hydrodynamischen Beschreibung des Zweiteilchensystems, wie es im Experiment untersucht wird. Die Einführung der ermöglicht die verallgemeinerte Mobilitätsmatrix Н Aufstellung der Bewegungsgleichung. In dieser Matrix steht die Art und Weise, wie die Ortskoordinaten miteinander wechselwirken. Im Falle eines Zweiteilchensystems ist die Matrix eine 6×6-Matrix. Sie besteht aus Termen, die die Wechselwirkungen der Kugel mit sich selbst beschreiben und Termen, die die Wechselwirkungen zwischen den Kugeln beschreiben. Mit Hilfe der Mobilitätsmatrix wurde die Bewegungsgleichung aufgestellt und deren Lösung aufgezeigt.

# 4 Optische Pinzette

Der Begriff der optischen Pinzette vermittelt bereits die Vorstellung, dass kleine, filigrane Objekte in einer Pinzette festgehalten werden. Dabei werden allerdings keine Metallbügel wie bei konventionellen Pinzetten verwendet, vielmehr dient Licht dazu, Kräfte auf diese Objekte auszuüben. Dennoch können damit mikroskopische Objekte wie beispielsweise einzelne Zellen festgehalten und untersucht werden. Aufgrund der meist komplexen und kostenintensiven Bauweise stellt eine solche optische Pinzette auch kein Alltagswerkzeug dar, sondern ist ein komplexer High-Tech Aufbau, der in der Wissenschaft und in der Medizin zum Einsatz kommt und dort große Erfolge feiert. In diesem Kapitel wird die Funktionsweise der optischen Pinzette als Hilfsmittel zur Manipulation kleinster Objekte beschrieben. Ihr Einsatz im späteren Experiment ermöglichte erst die Untersuchung der Brownschen Kugeln mit hoher räumlicher Auflösung, und deren Beobachtung im Scherfluss.

Licht kann mit Hilfe von Photonen charakterisiert werden. Als Photonen bezeichnet man die Anregungen (Quanten) des quantisierten elektromagnetischen Feldes. Obwohl ihre Ruhemasse verschwindet, besitzen sie einen Impuls, vergleichbar mit einem Teilchen. Das kann in der Astronomie dadurch beobachtet werden, dass Kometenschweife wie in Abbildung 4.1 immer von der Sonne weggerichtet sind.



Abbildung 4.1: Der helle Kopf des Kometen Hale-Bopp, der am 12.03.1997 aufgenommen wurde, zeigte zur Sonne hin. Der Schweif des Kometen der zum größten Teil aus Staub und Gas bestand, zeigte von der Sonne weg und war auf Grund der Reflexion von Sonnenstrahlung sichtbar.

Die Sonne emittiert eine sehr große Zahl von Photonen, die aufgrund ihres Impulses einen Strahlungsdruck auf einer bestrahlten Fläche generieren. Wirkt nun dieser Druck auf die kleinen Partikel im Kometenschweif, erfahren diese winzigen Objekte eine Kraft. Sie ist in Ausbreitungsrichtung der Photonen und damit von der Sonne weg gerichtet. Die Kraft wirkt kontinuierlich auf die Staubpartikel im Kometenschweif und verursacht so deren Bewegung von der Sonne weg. In Abbildung 4.1 ist der Komet Hale-Bopp zu sehen wie er im Jahr 1997 zu beobachten war [29]. Aufgrund des umgebenden Vakuums treten keine Reibungseffekte auf, die die Wirkung der Photonen verhindern.

Die Impulsübertragung von Photonen kann auch im Mikrokosmos eine wichtige Rolle spielen und wird in High-Tech Anwendungen und in der Forschung als Hilfsmittel zur Mikromanipulation benutzt. Die optische Pinzette ist ein solches Werkzeug zur berührungsfreien Beeinflussung von mikroskopischen Objekten. Diese sind zumeist in einem optisch transparenten Medium (demineralisiertes Wasser oder Phosphat-gepufferte Salzlösung, PBS) stark verdünnt gelöst. Zumeist wird die Fixierung oder die Relativbewegung solcher Objekte zum umgebenden Probenvolumen gewünscht. Dieses Manipulationswerkzeug spielt in dieser Arbeit eine sehr wichtige Rolle. Es ermöglicht die Beobachtung von Objekten in einem Fluss und gewährleistet die relative Positionierung zweier Kugeln zueinander.

Die Kräfte, die für die Manipulation auf die Objekte wirken, beruhen auf der Änderung der Photonenimpulsrichtung beim durchleuchten des Objektes. Dieser universelle Sachverhalt führt dazu, dass die optische Pinzette eine große Vielfalt an Einsatzmöglichkeiten aufweist. Neben der Grundlagenforschung in der Physik – als Beispiel sei diese Arbeit aufgeführt – wird dieses Werkzeug auch in der Medizin benutzt, um Zellen zu manipulieren und in-vitro Fertilisationen durchzuführen [30]. Mit diesem Werkzeug ist es möglich dielektrische Kugeln [31], Bakterien [32], lebende Zellen [33], Organellen [34-36] und sogar DNA [37] zu manipulieren. Mit Hilfe optischer Pinzetten kann durch die Brownsche Molekularbewegung auf die Eigenschaft der Flüssigkeit geschlossen werden, in der sich die gefangenen Kugeln befinden. Dieses Arbeitsgebiet ist ein Teilgebiet der Mikrorheologie. Neben der einfachen passiven Beobachtung der fluktuierenden Kugeln [38] kann auch ein aktiver Antrieb der Kugeln helfen die Mikrorheologie der Probe zu analysieren [39].

Mit Hilfe einer stark fokussierenden Optik gelingt es der optischen Pinzette, die Photonen in der Art auf die Mikroobjekte zu lenken, dass diese im Fokuspunkt der Strahlung festgehalten werden. Aufgrund der Intensitätsverteilung der Strahlung entsteht ein optisches Potential in dem sich die Objekte befinden. Sie bleiben allerdings nicht absolut starr und bewegungslos in der optischen Falle. Sie vollführen immer noch eine Brownsche Molekularbewegung [15], die auf der thermischen Energie des umgebenden Mediums beruht und die in Kapitel 2 vorgestellt wurde. Möchte man diese stochastischen Bewegungen der Teilchen genauer untersuchen, so kann die optische Pinzette ein ideales Hilfsmittel dafür sein, denn durch sie bleiben die Objekte lokalisiert ohne die Dynamik vollständig zu unterdrücken.

Als Pionier der optischen Pinzette gilt Arthur Ashkin, der 1970 den Effekt des Strahlungsdrucks an Latex-Kugeln in Wasser mit sogenannten Counter-Propagation-Beams demonstrierte [40]. Dabei wird die Kugel durch zwei horizontale, gegeneinander gerichtete Laser festgehalten. Ein Jahr später gelang ihm durch eine sogenannte Optical Fountain eine etwa  $20 \, \mu m$  große Glasskugel in der Schwebe zu halten [41]. Dazu wird ein Laserstahl in vertikaler Richtung nach oben gelenkt. Der vom Laser ausgebübte Photonendruck aufgrund der Streustrahlung kompensiert die Gravitationskraft der Kugel. 1986 entwickelte Arthur Ashkin die erste Single-Beam-Gradient-Trap, der heute am weitesten verbreitete Aufbau optischer Fallen, die optische Pinzette [31, 42]. Die Arbeiten von Arthur Ashkin waren Wegbereiter für viele weitere experimentelle Forschungsfelder der Physik. So beruht die Kühlung von Atomfallen auf Ashkins Prinzip [43]. Im Jahre 1997 erhielt Steven Chu, der aktuelle Energieminister der Vereinigten Staaten, den Nobelpreis für Physik für die Entwicklung von Methoden zum Kühlen und Einfangen von Atomen mit Hilfe von Laserlicht. Die Weiterentwicklung der optischen Pinzette führte zur Technik der Laserkühlung, die 2001 unter anderem dem Deutschen Wolfgang Ketterle einen Nobelpreis für die Bose-Einstein-Kondensation in verdünnten Gasen Erzeugung der aus Alkaliatomen und für frühe grundsätzliche Studien über die Eigenschaften der Kondensate einbrachte [44].

Es gibt zahlreiche Bezeichnungen für optische Pinzetten, die synonym benutzt werden. Die wichtigsten sind optische Falle, Laserfalle, Laserpinzette oder Gradientenfalle. Sie alle stehen für einen Aufbau, der durch Fokussierung von Strahlung dafür sorgt, dass sich Objekte nicht mehr frei bewegen können.

Im nun folgenden Kapitel wird auf die Funktionsweise und die Eigenschaften der optischen Pinzette eingegangen. Dazu werden theoretische Modelle zur Beschreibung der optischen Pinzette aufgeführt. Verschiedene Beschreibungen, die vom Verhältnis zwischen Objektradius und Strahlungswellenlänge abhängen, werden erläutert. Dabei wird von kugelförmigen Objekten ausgegangen, die festgehalten werden sollen und die eine größere optische Dichte besitzen als das umgebende Medium.

## 4.1 Theoretische Beschreibung

Die Energieflussdichte einer elektromagnetischen Welle im Vakuum wird durch den Pointing Vektor

$$\vec{S} = \frac{1}{\mu_0} \vec{E} \times \vec{B} \tag{4.1}$$

beschrieben. Dabei ist  $\mu_0$  die Permeabilitätskonstante, das elektrische Feld wird mit  $\vec{E}$  und das magnetische Feld mit  $\vec{B}$  bezeichnet. Die Intensität der Strahlung ist direkt über den Pointing Vektor als mittlere Leistung  $\langle P \rangle$  pro Strahlungsfläche A definiert

$$I = \left\langle \left| \vec{S} \right| \right\rangle = \frac{\left\langle P \right\rangle}{A}.$$
(4.2)

Den Photonen selbst kann ein Impuls  $\vec{p}$  zugeordnet werden, der betragsmäßig von ihrer Energie W, beziehungsweise ihrer Frequenz v oder Wellenlänge  $\lambda$  und dem Planckschen Wirkungsquantum *h* abhängt

$$p = \frac{W}{C} = \frac{hv}{C} = \frac{h}{\lambda}.$$
(4.3)

Trifft nun ein Photon auf eine Fläche, an der es reflektiert wird, so wird der zweifache Photonenimpuls übertragen und die Kraft, die auf die Fläche wirkt beträgt

$$\left|\vec{F}\right| = 2 \cdot \left|\frac{d\vec{p}}{dt}\right| = \frac{2}{c} \cdot \frac{dW}{dt} = 2 \cdot \frac{\langle P \rangle}{c}.$$
(4.4)

Die Energie, die in einer gewissen Zeit auf eine Fläche trifft, entspricht dabei der mittleren Leistung P der Strahlung. Über Gleichung (4.2) ist damit die Kraft direkt mit der Intensität der Strahlung verknüpft. Der übertragene Impuls pro Photon liegt typischerweise im Bereich von  $p = h/\lambda \approx 6 \cdot 10^{-34}/6 \cdot 10^{-7}$  Ns =  $10^{-27}$  Ns. Um messbare Kräfte zu erzeugen werden daher sehr viele Photonen und damit leistungsstarke Photonenquellen benötigt. Seit der Erfindung des Lasers 1960 [45] stehen solche Quellen technisch zur Verfügung mit denen es gelingt, Kräfte auf kleine Objekte zu übertragen und diese so in flüssigen Medien oder Gasen zu bewegen und zu manipulieren.

Die Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Photonen und den Objekten in der optischen Falle ist im Wesentlichen abhängig von dem Verhältnis zwischen der Wellenlänge der benutzten Strahlung zu der Größe des Objektes. Im Folgenden werden kugelförmige Objekte betrachtet, die in Wasser eingebettet sind. Dabei werden drei Unterscheidungen aufgrund des Verhältnisses Kugelradius R zur Laserwellenlänge  $\lambda$  gewählt.

## 4.1.1 Rayleigh-Regime

Im sogenannten Rayleigh-Regime wird angenommen, dass eine dielektrische polarisierte Kugel vom Kugelradius R mit Strahlung der sehr viel größeren Wellenlänge  $\lambda$  wechselwirkt,  $R/\lambda <<1$ . Die Kugel erscheint im Vergleich zur großen Wellenlänge als punktförmig mit homogener Polarisisation. Die Streukraft, die aufgrund der Strahlung auf die Kugel wirkt, beträgt [31]

$$F_{s} = \frac{I}{C} \cdot \frac{128 \cdot \pi^{5} \cdot R^{6}}{3\lambda^{4}} \left(\frac{m^{2} - 1}{m^{2} + 2}\right)^{2} n$$
(4.5)

Es spielen neben der einfallenden Intensität / noch die Wellenlänge  $\lambda$  der verwendeten Strahlung eine Rolle. Außerdem besteht eine Abhängigkeit vom Kugelradius und dem effektiven Brechungsindex  $m = n_{Kugel}/n$ , wobei n den Brechungsindex des umgebenden Mediums, beispielsweise Wasser, darstellt.

Durch die starke Fokussierung der Laserstrahlung tritt eine zusätzliche Kraft auf, die essentiell für das Funktionieren einer optischen Falle verantwortlich ist, die Gradientenkraft. Sie kann durch

$$F_{G} = -\frac{n}{2}\alpha \nabla \vec{E}^{2} = -\frac{n^{3}R^{3}}{2} \left(\frac{m^{2}-1}{m^{2}-2}\right) \nabla \vec{E}^{2}$$
(4.6)

beschrieben werden [31]. Die Kraft ist demnach proportional zum Intensitätsgradienten der Strahlung. Dies führt in der Praxis dazu, dass eine Kraft zum Maximum der Intensität, also dem Fokuspunkt der Linse, generiert wird. Um nun die Kugel in der optischen Falle zu halten, muss die Gradientenkraft die Streukraft überkompensieren. Dies gelingt in der Praxis mit Linsen hoher numerischer Apertur.

## 4.1.2 Mie-Regime

Das Mie-Regime beschreibt die Streuung elektromagnetischer Strahlung an einer Kugel, wobei der Radius der Kugel in der gleichen Größenordnung wie die Wellenlänge des Lasers liegt,  $R/\lambda \approx 1$ . Dieser Fall liegt bei experimentellen Untersuchungen sehr oft vor und gerade hier ist die Effektivität der optischen Falle maximal. Die theoretische Beschreibung dieses Falls ist sehr komplex und bringt keine grundlegend neue Einsicht, die essentiell für diese Arbeit ist, so dass an dieser Stelle nur auf weiterführende Literatur verwiesen wird [46, 47].

## 4.1.3 Geometrische Optik

Eine gute Beschreibung für den Fall, dass die Kugel größer ist als die verwendete  $R/\lambda >> 1$ , bietet die geometrische Optik, Wellenlänge, bei der die Welleneigenschaft der Strahlung vernachlässigt wird. Stadtdessen beschreibt man das Licht als eine Zusammensetzung von Lichtstrahlen, die einzeln betrachtet werden können. Aus diesem Grund bietet es ich an, den Strahlengang durch die wesentlichen Bestandteile der optischen Pinzette, der Linse und der zu fangenden Kugel nachzuvollziehen und auf die auftretenden Kräfte zu schließen [48]. Die in die Linse einfallende Strahlung besitzt gemäß der üblichen Lasermode TEM<sub>00</sub> ein gaußförmiges Intensitätsprofil, das in erster Näherung im Maximum harmonisch angenähert werden kann. Dieses Profil wird durch die Linse in den Fokuspunkt abgebildet. Daraus resultiert auch die Beschreibung der optischen Pinzette als harmonisches Potential.

Befindet sich nun eine Kugel im Strahlengang, so kann mit dem Snelliusschen Brechungsgesetz

$$n \cdot \sin(\alpha) = n_{\text{Kugel}} \cdot \sin(\alpha_{\text{Kugel}}), \qquad (4.7)$$

das die Brechung der Strahlen an der Grenzfläche zweier Medien verschiedener optischer Brechungsindizes beschreibt, das Verhalten beim Übergang von dem umgebenden Wasser zur Kugel beschrieben werden. Nach dem Passieren der Grenzfläche hat die Strahlung aufgrund des Unterschieds im Brechungsindex der Materialien die Ausbreitungsrichtung gemäß Gleichung (4.7) geändert. Damit ist eine Impulsveränderung der Photonen verknüpft. Eine Impulsänderung der Strahlung ist allerdings aufgrund der Impulserhaltung unmittelbar mit einer Impulsänderung der Kugel in umgekehrter Richtung verbunden. Dadurch, dass sich die Richtung der Strahlung geändert hat, erfährt auch die Kugel einen geänderten Impuls. Impulsänderungen sind zudem nach dem zweiten Newtonschen Axiom Kräften gleichzusetzten. Es wirkt also durch die Brechung der Strahlung eine Kraft auf die Kugel, die der Richtungsänderung der Strahlung entgegenwirkt. Da auf der gesamten Oberfläche der Kugel Brechungseffekte auftreten, muss eine Integration der Kräfte über die Kugel erfolgen. Dabei stellt sich heraus, dass die Richtung der auf die Kugel wirkenden Gesamtkraft immer zum Fokuspunkt der Strahlung, dem Intensitätsmaximum, gerichtet ist [31].

Zur Realisierung einer optischen Falle wird fokussierte Strahlung benötigt, die einen Intensitätsgradienten besitzt. Verfolgt man den wesentlichen Strahlengang einer solchen Anordnung wie sie in Abbildung 4.2 aufgezeigt ist, so wird die Funktionsweise der Falle klar.

In Abbildung 4.2 repräsentieren zwei schematische Strahlengänge durch die Kugel die wesentlichen Phänomene, die für die Erklärung des Einfangens einer Kugel benötigt werden.



Abbildung 4.2: Schematischer Strahlengang (grün) durch eine Kugel bei der Annahme, dass der Brechungsindex der Kugel größer ist als der des umgebenden Mediums. Das gaußförmige Intensitätsprofil trifft von unten auf die optisch durchlässige Kugel und wird dort gemäß Gleichung (4.7) beim Ein- und Austritt der Kugel gebrochen. Die Breite der eingezeichneten Strahlen steht für die jeweilige Intensität. Die Änderung der Ausbreitungsrichtung der Strahlung geht mit einer Impulsänderung einher. Aus Gründen der Impulserhaltung erfährt die Kugel den kompensierenden Impuls der zu einer Kraft führt, die mit den roten Pfeilen gekennzeichnet ist. Zeichnet man alle auftretenden Kräfte in den schwarz eingezeichneten Schwerpunkt der Kugel ein, so ergibt sich auf die Kugel eine Nettokraft, die zum Intensitätsmaximum gerichtet ist.

Die fokussierte, auf die Kugel auftreffende Strahlung wird am Wasser-Kugel-Übergang aufgrund des höheren Brechungsindexes der Kugel zum Einfallslot hin gebrochen. Die dadurch verbundene Änderung der Ausbreitungsrichtung der Strahlung entspricht einer Impulsänderung. Aufgrund der Impulserhaltung muss sich allerdings auch eine Änderung des Kugelimpulses einstellen, der der Impulsänderung der Strahlung entgegen gerichtet ist. Die Integration über die gesamte, auf die Kugel auftreffende Strahlung führt zu einer vektoriellen Summe von Kräften. Sie verursacht, dass die Kugel ins Intensitätsmaximum, dem Fokuspunkt der Linse, gelenkt wird, falls der Brechungsindex der Kugel größer ist als der des umgebenden Mediums [48]. Diese Art der Kraft wird als Gradientenkraft bezeichnet, da ihre Ursache der Intensitätsgradient der Strahlung ist. Befindet sich die Kugel dann im Fokuspunkt, so verschwindet die resultierende Kraft. Außerdem ist in Abbildung 4.2 zu erkennen, dass höhere Intensitäten auch größere Kräfte generieren. Die Kräfte setzen sich aus der Summe der Einzelphotonenimpulsänderungen zusammen. Je mehr Photonen gebrochen werden, also je größer die Intensität ist, desto größer ist die wirkende Kraft. Darum werden im Experiment auch Laser verwendet, denn dies sind intensitätsstarke Strahlungsquellen. In Gleichung (4.7) ist zu erkennen, dass die Änderung des Strahlengangs mit wachsendem Einfallswinkel zunimmt. Je größer also der Einfallswinkel der Strahlung zum Lot hin ist, desto größer ist die Impulsänderung und desto größer sind die auftretenden Kräfte auf die Kugel. Aus diesem Grund kommen den Strahlen, die unter einem flachen Winkel auf die Kugel fallen, also die Randstahlen des Objektivs, im Aufbau eine große Bedeutung zu. Beispielsweise wurde durch die Benutzung eines Objektivs mit hoher numerischer Apertur und dessen Überblendung der Back Apertur durch den gaußförmigen Laser, eine Erhöhung der Einfallswinkel in die Probe ermöglicht, die zudem mit einer höheren Strahlungsintensität verbunden waren.

Die Strahlen, die mit einem spitzen Winkel zum Lot hin auf die Kugel treffen, tragen wesentlich zur Streukraft bei. Durch ihren Impuls, der nahezu senkrecht in Strahlrichtung auf die Kugel wirkt, wird die Kugel durch Streu- und Absorptionseffekte in Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls bewegt. Somit führt ihre Anwesenheit dazu, dass die Kugel leicht aus dem Fokuspunkt in Ausbreitungsrichtung der Strahlung verschoben wird. Solange die Gradientenkräfte noch über diese Streukräfte dominieren, bleibt die Kugel jedoch in der Falle lokalisiert.

Die bisherige theoretische Behandlung ging von optimalen Bedingungen für die Brechung der Strahlung aus. Ein Teil der auf die Kugel auftreffenden Strahlen wird jedoch auch reflektiert, spielt also für die Gradientenkraft keine Rolle. Mit Hilfe der winkelabhängigen Fresnel-Koeffizienten für Transmission und Reflexion, T und R=1-T, können die auftretenden Kräfte abgeschätzt werden, die auf die Kugel wirken [48]. Der Reflexionskoeffizient für nichtpolarisiertes Licht lautet [49]

$$R = \frac{1}{2} \left( \frac{n_{kugel} \cos(\theta) - n\cos(\varepsilon)}{n_{kugel} \cos(\theta) + n\cos(\varepsilon)} \right)^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{n\cos(\theta) - n_{kugel} \cos(\varepsilon)}{n\cos(\theta) + n_{kugel} \cos(\varepsilon)} \right)^2.$$
(4.8)

Bei jedem Auftreffen der Strahlung auf die Grenzschicht zwischen Kugel und umgebendem Medium wird ein Teil der Strahlung reflektiert, der verbleibende Teil transmittiert. Die Leistungen, die entlang des optischen Wegs wirken, werden also an jeder Grenzschicht mit den Koeffizienten multipliziert. Es ergibt sich daraus eine Entwicklung der Leistung entlang des optischen Weges, die einem Produkt aus Koeffizienten entspricht. In Abbildung 4.3 ist der Verlauf des optischen Weges schematisch aufgezeigt.



Abbildung 4.3: Bei jedem Auftreffen der Strahlung auf eine Grenzschicht wird die reflektierte oder die transmittierte Leistung mit Hilfe der Fresnel-Koeffizienten ausgedrückt, die mit der eintreffenden Leistung multipliziert wird. Daraus ergibt sich die Leistung der jeweiligen Strahlung hinter der Grenzfläche. Die unter dem Winkel  $\theta$  auf die Kugel treffende Strahlung der Leistung P wird teilweise reflektiert, ihr Anteil beträgt dabei PR. Die restliche Leistung, die in die Kugel unter dem Winkel  $\varepsilon$  transmittiert wird, hat den Betrag PT. Die Mehrfachreflexion kann einfach durch die Multiplikation der Koeffizienten ausgedrückt werden.

Die auftretenden Kräfte können in x- und z-Komponenten zerlegt werden [48]. Die Komponente in z-Richtung ergibt die Streukraft  $F_s$ 

$$F_{z} = F_{s} = \frac{nP}{C} \left\{ 1 + R\cos(2\theta) - \frac{T^{2} \left[ \cos(2\theta - 2\varepsilon) + R\cos(2\theta) \right]}{1 + R^{2} + 2R\cos(2r)} \right\}.$$
 (4.9)

Die Gradientenkraft  $F_{G}$  entspricht der x-Komponente der Kraft

$$F_{x} = F_{G} = \frac{nP}{C} \left\{ R\sin(2\theta) - \frac{T^{2} \left[ \sin(2\theta - 2\varepsilon) + R\sin(2\theta) \right]}{1 + R^{2} + 2R\cos(2\varepsilon)} \right\}.$$
 (4.10)

Die Gleichungen für die Kräfte entstanden aus der Summation über die gesamte gestreute Strahlung. Die beiden Ausdrücke in den geschweiften Klammern können als Güte der Falle interpretiert werden, sie beschreiben also wie viel der auftreffenden Leistung in die Gradienten- oder Streukraft umgewandelt wird. Errechnet man diese Gütefaktoren *Q* für verschiedenen Einfallswinkel, so kann ein charakteristischer Verlauf festgestellt werden, aus dem ersichtlich ist, dass die Strahlung unter großen Einfallswinkeln sehr stark zur Gradientenkraft beitragen. Ein solcher Verlauf der Güte ist in Abbildung 4.4 dargestellt.



Abbildung 4.4: Der Güteverlauf der Gradientkraft hat bei 69° ihr Maximum unter der Voraussetzung, dass der Brechungsindex der umgebenden Flüssigkeit 1.33 (Wasser) und der der Kugel 1.6 beträgt. Im Experiment ist ein Winkel von etwa 67° auf Grund des Öl-Immersion-Objektivs möglich.

Die in Abbildung 4.4 eingezeichnete Gütesumme ist dabei folgendermaßen definiert

$$Q_{summe} = \sqrt{Q_G^2 + Q_S^2} \tag{4.11}$$

und ist letztlich proportional zu der gesamten wirkenden Kraft auf die Kugel wirkt. Es ist zu erkennen, dass ein großer Einfallswinkel benötigt wird, um große Gradienteffekte zu erzielen. Die Gradientkraft wächst für kleine Winkel linear und besitzt bei 69° ein Maximum. Im Experiment werden mit guten Objektiven Winkel bis zu 67° realisiert, moderne Immersion-Objektive realisieren also ein Optimum der Fallenkräfte.

# 4.2 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die Grundlagen der optischen Pinzette aufgeführt. Sie ist das wichtigste Hilfsmittel dieser Arbeit, denn sie sorgt neben der Möglichkeit zur Anordnung der Kugeln auch für deren Stabilisierung im Fluss. Zur Erklärung der Funktion wurden die verschiedenen Beschreibungen der Regime vorgestellt. Sie beinhalten die Zerlegung der auftretenden Kräfte in Gradientkräfte, die die Kugeln in der Falle stabilisieren, und Streukräfte, die im Experiment meist unerwünscht sind. Insbesondere wurde die Kraftgeneration in der Beschreibung der geometrischen Optik ausführlich erläutert. Dabei wurde auf die Wichtigkeit der Strahlung unter großem Öffnungswinkel hingewiesen, die für die Generierung der Gradientkraft wichtig ist und die zur Optimierung der Fallengüte führt. Desweiteren ist die Intensitätsverteilung selbst für die Gestalt des optischen Potentials verantwortlich. Die gaußförmige Mode des Lasers kann im Maximum in guter Näherung als harmonisch angesehen werden. Darum ist die Annahme eines harmonischen Potentials zur Fallenbeschreibung, wie sie bereits in Kapitel 2 verwendet wurde, gerechtfertigt.

# 5 Aufbau

Dieses Kapitel widmet sich den einzelnen Baukomponenten, die zum Betrieb einer optischen Pinzette benötigt wurden. Ein wesentlicher Teil der Arbeit bestand im Aufbau und der Optimierung dieses komplexen optischen Systems. Im Folgenden wird auf die wichtigsten optischen Bestandteile wie Filter, Linsen und deren Anordnung eingegangen. Während der Entwicklung der optimalen Messmethode wurde der Aufbau immer wieder erweitert und ergänzt. So wurden erste Messungen mit der Reflexionstechnik unter Verwendung der photosensitiven Detektoren (PSD's) durchgeführt. Im Verlauf der Messungen stellten sich die Transmissionsmessungen als geeigneter heraus. Der Grund lag in der Qualität der Signale. Während die Reflexionsmessungen schwache Signale lieferten, die mit Reflexen der Probenzelle überlagert waren, war das intensitätsstärker. Andererseits Transmissionssignal deutlich waren die Transmissionsmessungen der PSD's stark probenabhängig, so dass die Qualität der Messungen stark von der Probenkammer selbst abhing. Die Messungen in der späteren Flusszelle wurden durch deren komplexe Geometrie, die die transmittierte Strahlung veränderte, erschwert. Die Anordnung der Komponenten, wie sie letzten Endes zur Korrelationsmessung benutzt wurde, kann aus Abbildung 5.1 bis Abbildung 5.5 entnommen werden. So wurden Messungen mit einer am Mikroskop verankerten Hochgeschwindigkeitskamera durchgeführt. wurden die Bilder mit Hilfe von transmittierender Beleuchtung Dazu aufgenommen. Der Aufbau, wie er hier beschrieben wird, ermöglichte sowohl Messungen mit einer Kamera, als auch Messungen mit den PSD's. Der Wechsel zwischen beiden Messmethoden konnte innerhalb von Minuten gewährleistet werden, ohne dass die Probe ausgebaut werden musste. Die Messungen konnten sogar mit beiden Methoden parallel erfolgen. Dadurch wurde zwar die Qualität der PSD Messung leicht verschlechtert, dennoch waren vergleichende Messungen und Kalibrierungen möglich.

Neben den optischen Komponenten werden auch wichtige Baugruppen vorgestellt, die für die Kalibrierung und Justierung eine entscheidende Rolle spielten. Desweiteren wird auf die Funktionsweise der Detektionssysteme eingegangen. Dazu gehört auch die in Kapitel 5.4 näher vorgestellte Partikeldetektion mit Positionssensoren und der Kamera.

## 5.1 Systemvibration

Der komplette Aufbau des Experiments war darauf bedacht, das System vor Schwingungen zu schützen und Vibrationen der Komponenten selbst zu vermeiden. Aus diesem Grund wurde ein Laboratorium im Keller des Gebäudes geschaffen. Diese Wahl verminderte die Vibrationen im System aufgrund von Gebäudeschwingungen im Niederfrequenzbereich erheblich. Zusätzlich wurde der gesamte optische Aufbau auf einen aktiv gedämpften Tisch errichtet. Dabei stand eine vibrationsisolierte Arbeitsfläche von  $1.1 \times 1.1 m^2$  zur Verfügung. Zum Einsatz kam eine speziell angefertigte Active Workstation der Firma Halcyonics GmbH. Diese gewährleistete laut Hersteller eine Dämpfung von 25dB für Schwingungen größer 5Hz und eine Dämpfung von 35dB für Schwingungen größer als 10Hz. Neben den passiven Elementen, die im Wesentlichen aus Federn bestehen, dämpfen aktive Aktuatoren die Federschwingungen selbst wiederum Dazu werden mit Piezoaktuatoren Beschleunigungen des Systems ab. aufgenommen und diese über eine Regelschleife unter Verwendung von Schwingspulen, wie sie in Lautsprechern verwendet werden, ausgeglichen. Dabei übernimmt eine externe Steuereinheit die Regelung und die Lastanpassung des Systems. Solche Schwingungssysteme haben den Vorteil, dass sie erfahrungsgemäß ab circa einem Herz eine gute Abschirmung von Schwingungen zur Umgebung gewährleisten. Auf Vibrationen auf dem Tisch sind diese Geräte allerdings sehr empfindlich. Kameralüfter auf dem Tisch führen beispielsweise zu erheblichen Schwingungen, die vom System selbst nicht ausgeglichen werden können. Daher wurde im weiteren Verlauf drauf geachtet, dass alle Komponenten so niedrig wie möglich montiert wurden, um den Schwerpunkt zu verringern. Außerdem wurde auf eine sehr steife Verbindung zwischen Tisch und den Aufbauten geachtet. Sowohl Kabelverbindungen als auch die Halter für die Spiegel und anderen optischen Komponenten stellten eine solide Verbindung zum Tisch dar. Die verwendeten Kameras wurden lüfterlos Akustische Störungen wurden im gesamten Laboratorium betrieben. weitestgehend vermieden.

# 5.2 Komponenten

Der experimentelle Aufbau war auf einem aktiv gedämpften Tisch montiert, der werksseitig über ein Breadboard mit M6/25 Gewinderaster ausgestattet war. In Abbildung 5.1 ist der systematische Aufbau des Experiments mit den wichtigsten Komponenten dargestellt.



Abbildung 5.1: Schematische Anordnung mit den wichtigsten Komponenten im Laboratorium. Die beiden Laser wurden mit Strahlaufweitern 8- beziehungsweise 10-fach aufgeweitet um die Objektivapertur optimal auszuleuchten. Beide Strahlgänge wurden dann mit einem dichroitischen Spiegel (505DCXR) auf eine Linie gebracht, wobei der 532nm-Laser mit einem piezo-elektrischen Spiegel ausgerichtet werden konnte. Die Laserstrahlung fiel dann senkrecht und zentriert auf den Strahlteiler (565DCXR) im Mikroskop und dann in das Objektiv.

Wie zu erkennen ist, durchliefen die beiden aufgeweiteten Laserstrahlen hinter dem dichroitischen Spiegel (AHF, 505DCXR) einen identischen optischen Weg. Dabei konnte die Position des grünen 532nm-Laserstrahls durch einen piezoelektrisch gesteuerten Spiegel über den Computer reproduzierbar verändert werden. Beide Laserstrahlen wurden so justiert, dass diese senkrecht in das Mikroskop, beziehungsweise senkrecht in das Objektiv eintrafen. Dabei kam ein dichroitischer Strahlteiler (AHF, 565DCXR) zum Einsatz, der in einem Filterblock des Mikroskops fest verbaut und nicht justierbar war. Die frontale Ansicht des Laboratoriums in Abbildung 5.2 entspricht der Anordnung aus Abbildung 5.1. Um den hinteren Aufbau besser zu erkennen ist in Abbildung 5.3 eine Aufnahme von der rechten Seite des Experimentiertisches dargestellt.



Abbildung 5.2: Frontal zu sehen ist die reale Anordnung im Laboratorium. Die aufgeweiteten Laserstrahlen auf der rechten Seite trafen auf dem dichroitischen Spiegel (505DCXR) zusammen, wobei der grüne Laserstrahl piezo-elektrisch verschoben werden konnte. Beide Strahlen trafen über eine Laserstrahlumlenkung von hinten senkrecht ins links erkennbare Mikroskop. Im Zentrum ist der massive Halter zu erkennen an dem die PSD's montiert waren.



Abbildung 5.3: Zu sehen ist die reale Anordnung im Laboratorium. Die aufgeweiteten Laser im Vordergrund trafen auf dem dichroitischen Spiegel zusammen. Beide Strahlen trafen über eine oben zu sehende Laserstrahlumlenkung senkrecht ins Mikroskop. Vereinzelt sind im Strahlgang noch Irisblenden zur Justierung zu erkennen. Die beiden blauen Ventile auf der linken Seite dienten zur Regulierung der Druckluft, die für die Fluidikvorbereitung benötigt wurde.

## 5.2.1 Mikroskop

Das Herzstück des Aufbaus war das invertierte Mikroskop TE2000S der Firma NIKON. Wie bereits in Kapitel 1 dargestellt, diente das Mikroskop sowohl der Beobachtung der mikroskopischen Kugeln, als auch, mittels der Laser, als Werkzeug auf kleiner Skala zur Beeinflussung der beobachteten Objekte. Da bereits ein baugleiches Mikroskop in der Arbeitsgruppe vorhanden war, bot sich die Wahl dieses Instruments aus Kompatibilitätsgründen für optische Filter und Transmissionsmikroskop Objektive an. Das invertierte erlaubte videomikroskopische Messungen an einem Kameraport mit Hilfe einer von oben transmittierenden Beleuchtung. Gleichzeitig einfallenden, bestand die Möglichkeit, Messungen mit PSD's durchzuführen. Dazu wurden an den Transmissionsarm des Mikroskops eigens Komponenten wie ein Kondensor und ein dichroitischer Spiegel montiert. Die Detektoren selbst wurden an einer sehr steifen Montagesäule befestigt. Die Komponenten, die im Mikroskop selbst verbaut wurden, können Abbildung 5.4 entnommen werden. Die Fokussierung der Laserstrahlung zur Fallengeneration und die Beobachtung durch die digitale Bildaufnahme erfolgte durch ein auf unendlich korrigiertes Plan-Apochromat Öl-Immersion-Objektiv der Firma NIKON mit 60facher Vergrößerung, 130 µm Brennweite und einer numerischen Apertur von NA=1.40 (halber Öffnungswinkel etwa 67.5° bei einem Brechungsindex von n=1.515). Um die verwendete Laserstrahlung senkrecht in das Objektiv zu lenken, wurde ein dichroitischer Spiegel (AHF, 565DCXR) in einem Filterblock verwendet. Gleichzeitig transmittierte dieser die Strahlung der Transmissionsbeleuchtung für die Videomikroskopie. Kameraseitig war in dem Filterblock und vor dem Okular des Mikroskops noch jeweils ein Filter zur Blockung der Laserstrahlung mit einer optischen Dichte von 2 eingebaut (AHF, F62-456), um sowohl die Kamera als auch den Beobachter vor der Laserstrahlung zu schützen.



Abbildung 5.4: Im schematischen Strahlengang des Mikroskops ist zu erkennen, dass die beiden überlagerten Laserstahlen auf einen dichroitischen Spiegel (565DCXR) trafen und dort nach oben in das Objektiv gelangten. Dort wurden sie in die Probe fokussiert und generierten so zwei optische Fallen. Die transmittierte Strahlung wurde durch den Kondensor über einen Spiegel zum einem weiteren dichroitischen Strahlteiler (505DCXR) gelenkt. Dieser transmittierte den Laser mit der Wellenlänge von 532nm und reflektierte Strahlung von 473nm. Dadurch konnten die übereinanderliegenden Signale der beiden Kugeln separiert werden. Die beiden Bandpassfilter (473/10 und 532/10) unmittelbar vor den PSD's stellten die Unabhängigkeit beider Kugelsignale sicher, indem sie nur eine Wellenlänge auf einem PSD ermöglichten. Alternativ konnte mit Hilfe einer Mikroskoplampe und einem 70/30 Strahlteiler die Probe von oben beleuchtet werden. Dies ermöglichte die Beobachtung der Probe mit der Kamera oder durch das Okular.

Der Transmissionsarm des Mikroskops, wie er in Abbildung 5.5 zu sehen ist, wurde eigens umgebaut. Dabei wurde die Halterung für eine Transmissionslampe entfernt und eine Befestigung für einen dichroitischen Spiegel angebaut (AHF, 505DCXR). Dieser ermöglichte die räumliche Trennung der beiden überlagerten Lasersignale verschiedener Wellenlängen, in denen die jeweiligen Kugelpositionen enthalten waren. Dadurch wurden die Beugungsbilder der beiden Kugeln separiert und auf die PSD's gelenkt. Um diese Kugelbilder adäquat abzubilden, wurde ein Kondensor am Mikroskoparm montiert (NIKON, CLWD 0.72).



Abbildung 5.5: Hier wird der obere Teil der experimentellen Anordnung ab der Probe von Abbildung 5.4 dargestellt. Die transmittierte Laserstrahlung passierte von unten den Kondensor und traf auf einen Spiegel. Dieser reflektierte das Signal durch den dichroitischen Spiegel (505DCXR) auf die beiden Detektoren. Mit der Mikroskoplampe konnte die Probe von oben beleuchtet werden. Der 70/30 Strahlteiler vor der Mikroskoplame, wie er in Abbildung 5.4 zu erkennen ist, war hingegen demontiert und ist hier nicht zu sehen.

Dieser bildete dann mit der werksseitig montierten Linse im Transmissionsarm das Beugungsbild der Kugel auf die PSD's ab. Gleichzeitig leistete der Kondensor wichtige Dienste für die Transmissionsmessungen mit der Kamera. Durch die starke Fokussierung des Kondensors gelang es mit Hilfe einer abnehmbaren Halogenlampe (Schott, KL-2500) eine Beleuchtung zu gewährleisten, die Videoaufnahmen mit einer Wiederholfrequenz von 15kHz ermöglichte.

### 5.2.2 Piezo-Aperturtisch

In einen Aperturtisch mit piezo-elektrischen Aktuatoren auf dem Mikroskop konnten alle Probenzellen eingebaut werden. Mit ihm war es möglich, kleinste Verschiebungen durchzuführen und die Proben so zu positionieren. Dadurch erlaubte der Tisch eine Kalibrierung mit Hilfe der Stokes-Kraft. Dabei wurde eine bekannte Kraft an die Kugel angelegt, was zur Auslenkung aus der Ruhelage führte. Die bekannte Kraft stellte die Stokes-Kraft dar. Sie ist abhängig von der Relativgeschwindigkeit der Kugel zum umgebenden Medium. Diese Art der Kalibrierung wird in Kapitel 6.4 genauer vorgestellt. Im Experiment befand sich die Kugel in einer stationären Falle und das umgebende Medium wurde mit dem Piezo-Aperturtisch (Physik Instrumente GmbH & Co. KG, P-517.2CD) verschoben.

Systeme mit piezo-elektrischen Aktuatoren, wie dieser Aperturtisch oder der später erwähnte Spiegelhalter, beruhen auf dem sogenannten inversen Piezoeffekt. Dabei ändert sich durch eine anliegende Spannung die elektrische Polarisation in einem nichtleitenden Festkörper, was zu dessen Deformation führt. Die Deformationen sind trotz hoher Spannungen sehr klein. Dieser Effekt liefert so eine optimale Grundlage, um mit üblichen Spannungen im Volt- Bereich Verschiebungen im Nanometer-Bereich zu generieren.

Durch Anlegung einer Spannung mit Hilfe eines Signalgenerators (Rohde & Schwarz, APN04) erfuhr der Tisch eine bekannte, einstellbare Auslenkung in xoder y-Richtung. Die angelegte Spannung U war laut Hersteller mit den Auslenkungen des Tisches wie folgt verknüpft

$$x = 10.001271 \cdot U \cdot \mu m / V$$
  
y = 10.001240 \cdot U \cdot \mu m / V. (5.1)

Im Kalibrierungsexperiment wurde eine Sinusschwingung an den Probentisch angelegt, so dass durch dessen Amplitude und Frequenz die Stokessche Reibung definiert wurde. Üblicherweise wurden Frequenzen von 10 Hz und Amplituden von  $28.5 mV \approx 285 nm$  verwendet. Damit wurden dann Stokes-Kräfte von etwa  $F = 6\pi\eta Rx_0 2\pi f \approx 5 \cdot 10^{-13} N$  generiert. Nach Kapitel 6.6 beträgt eine mittleren Fallenkonstante etwa  $k = 5 \cdot 10^{-6} N/m$ . Bei dieser Kraft und dieser Fallenkonstanten beträgt die Kugelauslenkung etwa 100 nm.

Außerdem wurde die später noch erläuterte mikrofluidische Flusszelle an dem Aperturtisch befestigt. Dadurch wurde eine parallele Orientierung der Flussrichtung zur x-Achse des Tisches gewährleistet. Die Gradientenrichtung in der Zelle entsprach der y-Richtung des Aperturtisches.

### 5.2.3 Piezo-Spiegel

Im Experiment sollten die beiden optischen Fallen einen Abstand von einigen Mikrometern in der Probe haben. Wie in Abbildung 5.1 zu sehen ist, wurden die beiden Laserstrahlen übereinanderliegend in das Mikroskop eingekoppelt. Dies erfolgte dadurch, dass der 473nm-Laser vorjustiert wurde. Die Position der 473nm-Falle war nach dieser Justierung absolut fest und veränderte sich nicht mehr während der Messung. Der 532nm-Laser wurde mit Hilfe eines dichroitischen Spiegels parallel dazu ausgerichtet. Um in der Probe kleinste Fallenverschiebungen der 532nm Falle zu realisieren, wurde ein verstellbarer Spiegel in den Strahlengang dieses Lasers eingebracht. Eine reproduzierbare und sehr präzise Ausrichtung dieser Falle wurde durch einen Spiegel erreicht, der mit Hilfe von piezo-elektrischen Aktuatoren (Newport Spektra-Physics GmbH, U200-G2K und PZA12) verstellt werden konnte. Die Spiegelverschiebung von 30nm Schrittweite bot die optimale Voraussetzung, um eine präzise Positionierung der optischen Falle zu gewährleisten. Die Auflösung x in der fokalen Brennebene des Objektivs ist mit dem Einfallswinkel  $\alpha$  gemäß

$$x = f \tan(\alpha) \tag{5.2}$$

verknüpft. Eine Verkippung der einfallenden Strahlung führt in der Brennweite falso zu einer Verschiebung des Fokuspunktes. Die kleinste Winkeländerung kann mit Hilfe der Dimension des Spiegelhalters abgeschätzt werden. Ein Piezoschritt von 30nm führt bei einer Spiegelabmessung von etwa 5cm zu einem Winkelschritt von

$$\tan(\alpha) = \frac{30nm}{5cm} = 6 \cdot 10^{-7}.$$
 (5.3)

In der Brennebene ist mit der Brennweite  $f=130 \mu m$  somit eine theoretische Positionierung auf Ångström Skala möglich. Da die relative Verschiebung des Laserstrahls in der Objektiv-Apertur selbst sehr klein war, war eine verminderte Fallenqualität bei mäßiger Spiegelverschiebung nicht zu beobachten. Dennoch wurden die Kalibrierungen bei gleichen Spiegeleinstelllungen wie die Messungen selbst durchgeführt. Ein eigens geschriebenes LabVIEW Programm ermöglichte die genaue Positionierung der optischen Falle in den zwei Raumdimensionen der Beobachtungsebene.

### 5.2.4 Laser

Zur Realisierung von zwei optischen Fallen wurden zwei unterschiedliche Laser verwendet. Beide Laser waren diodengepumpte Festkörperlaser, die in der elektromagnetischen TEM<sub>00</sub> Mode ein gaußförmiges Intensitätsprofil erzeugten. Die Wellenlängen der beiden Laser unterschieden sich. Dies bot den Vorteil, die beiden, auf einer optischen Achse liegenden Beugungssignale der gefangenen Kugeln in Transmission für die PSD's unterscheiden zu können. Mit Hilfe eines dichroitischen Spiegels war dann eine Signalseparierung der Kugeln aufgrund der verschiedenen Wellenlängen möglich.

Ein Laser der Wellenlänge  $\lambda = 473 nm$  (Laser Quantum, Ciel) mit einer maximalen Leitung von 350mW wurde als primärer Laser verwendet. Dieser Laser besaß laut Hersteller einen Strahldurchmesser von 1.4 mm bei einer Divergenz von 0.6 mrad. Nach einer Aufwärmphase von 15 Minuten war das Rauschen im quadratischen Mittel (root mean square, RMS) mit 0.31% angegeben.

Der zweite Laser emittierte eine Wellenlänge von  $\lambda = 532 nm$  (Laser Quantum, Ventus) bei einer maximalen Leitung von 500mW. Der Strahldurchmesser betrug 1.0*mm*bei 0.8*mrad* Strahldivergenz. Nach 10 Minuten war vom Hersteller das quadratische Mittel des Rauschens mit 0.32% angegeben.

Die Leistungen beide Laser wurden mit Hilfe von Stromangaben an der Spannungsversorgung eingestellt. Abhängig von der eingestellten Stromstärke ergab sich die die emittierte Leistung. Die typischen Stromstärken bei den Korrelationsmessungen betrugen bei etwa 30% Stromstärke 28mW für den 532nm-Laser und bei etwa 55% Stromstärke 30mW bei dem 473nm-Laser. Bei jeder Messung wurde darauf geachtet, dass die Laser zuvor mindestens 15 Minuten im vorgegebenen Leistungsbereich betrieben wurden. Somit war für die die Stabilität der Laserleistung ausreichend Sorge getragen. Da die Abhängigkeit der Laserleistung von der eingestellten Stromstärke keine lineare Funktion darstellte, wurde eine Eichung gemäß Abbildung 5.6 durchgeführt.



Abbildung 5.6: Die gemessene Laserleistung vor dem Mikroskop ist eine nichtlineare Funktion der eingestellten Stromstärke. Die grünen Punkte zeigen den Leistungsverlauf des 532nm-Lasers, die blauen Punkte beschreiben den Verlauf des 473nm-Lasers.

## 5.2.5 Strahlaufweiter

Um die Apertur des Objektivs optimal auszuleuchten (Überblendung der Objektivapertur von Ø10mm) mussten beide Laserstrahlen aufgeweitet werden [48]. Aufgrund der verschiedenen Strahldurchmesser wurde für jeden Laser ein separater Aufweiter verwendet. Bei jedem Strahlaufweiter war es möglich, die Strahldivergenz der ausfallenden Strahlung einzustellen. So verschob sich der Fokuspunkt der Strahlung hinter dem Objektiv und es bestand die Möglichkeit, jede Falle separat auf der optischen Achse in der Probe zu platzieren. Dies war beispielsweise notwendig, um die chromatische Aberration und verschiedenen Divergenzen der beiden Laser auszugleichen und die Kugeln in der Probe so auf gleicher Höhe zu positionieren.

Für den Strahlengang des 473nm-Lasers wurde ein 8fach-Aufweiter verwendet (LINOS Photonics GmbH & Co. KG, G038-678-000). Mit einem 10fach-Aufweiter wurde die Aufweitung des 532nm-Lasers vorgenommen (LINOS Photonics GmbH & Co. KG, G038-670-000).

## 5.2.6 Filter

Die Filteranordnung im Experiment kann aus Abbildung 5.1 und Abbildung 5.4 entnommen werden. Der Vollständigkeit halber sollen die verwendeten Optiken näher dargestellt werden. Im Wesentlichen wurden zwei dichroitische Spiegel verwendet, um die beiden Laserwellenlängen übereinander zu legen beziehungsweise um sie wieder zu trennen. Dieser Spiegel transmittierte bei 505nm 50% der Strahlung. Die Transmission bei 473nm lag bei 0.26%, während 532nm Strahlung zu 94.09% transmittiert wurde. Der dichroitische Spiegel im Mikroskop hatte seinen 50% Schwellenwert bei 565nm. Die hochfrequenten Wellenlängen der Laser wurden reflektiert und gelangten in das Objektiv. Die Mikroskopbeleuchtung mit niederfrequenten Anteilen wurde bis zur Kamera transmittiert und ermöglichte so die Bildaufnahme. Die beiden Spektren der dichroitischen Langpassfilter können Abbildung 5.7 entnommen werden.



Abbildung 5.7: Abgebildet sind die Transmissionsspektren der dichroitischen Spiegel im Experiment, zur Verfügung gestellt von AHF. Der 505DCXR Strahlteiler (blau) diente zur Separierung der beiden verwendeten Laserwellenlängen bei 473nm und 532nm. Der 565DCXR Strahlteiler (grün) lenkte beide Laser im Mikroskop in das Objektiv, während die langwelligere Probenbeleuchtung bis zur Kamera transmittiert wurde.

Um nur die gewünschten Wellenlängen auf die PSD's auftreffen zu lassen, wurden Laserfilter vor die Detektoren montiert. Diese hatten beide eine spektrale Transmissionsbreite (full width half maximum, FWHM) von 10nm und waren auf die Wellenlängen 473nm und 532nm abgestimmt. Die Transmissionsspektren der Filter kann Abbildung 5.8 entnommen werden.



Abbildung 5.8: Abgebildet sind die Transmissionsspektren der beiden Bandpassfilter mit einer spektralen Breite von 10nm zur Ausblendung ungewollter Bestrahlung der Detektoren.

Um die fokussierte Bestrahlung der Kamera und des Okulars durch die Laser zu verhindern, wurden zwei Filter in das System verbaut, die diese Bauteile vor den Wellenlängen schützten und deren Spektren in Abbildung 5.9 zu sehen sind. Ein Filter wurde direkt unterhalb des Strahlteilers im Mikroskop eingebaut, der zweite Filter befand sich im Okular selbst. Somit war zu jeder Zeit die Sicherheit des Bedieners gewährleistet.



Abbildung 5.9: Abgebildet ist der Transmissionsspektrum der Sperrfilter zum Schutz des Bedieners und der Kamera. Bei den Laserwellenlängen 473nm und 532nm betrug die optische Dichte des Filters 2.

Alle weiteren optischen Bauteile wie Objektiv, Kondensor und Strahlaufweiter waren für die verwendeten Wellenlängen geeignet und bedürfen hier keiner expliziten Vorstellung.

## 5.2.7 Kamera

Um die Kugelposition in ausreichender Zeitauflösung zu ermitteln, wurde eine Hochgeschwindigkeitskamera (X-Stream, XS-5) verwendet. Abhängig von der Anzahl der aufgenommenen Zeilen waren verschiedene Aufnahmeraten möglich. Während bei einer Full Frame Aufnahme (1024 Zeilen) Aufnahmeraten bis zu 1040Hz erzielt wurden, konnten bei Messungen mit nur 64 Zeilen Raten von 16400Hz erreicht werden. Mit entsprechender Beleuchtung konnten die Kugeln dann mit ausreichender Belichtung mit 15kHz aufgenommen werden. Das verlustfreie Dateiformat der aufgenommenen Bilder entsprach dem .bmp Format, das mit 8 bit aufgenommen wurde. Diese Bilder wurden später verlustfrei in .png Dateien konvertiert und mit einem Korrelationsalgorithmus zur Kugelpositionsbestimmung ausgewertet [50]. Bei einer Pixelgröße auf dem Kamerachip von  $12 \mu m$  ergab sich mit dem Vergrößerungsfaktor des Mikroskopobjektivs eine Umrechnung von 200 *nm*/*Pixel.* Im Abschnitt 5.4.1 wird auf die Kamera und die Kugeldetektion näher eingegangen.

Die Ausrichtung der Kamera gegenüber der Schwingungsrichtung des Aperturtisches war sehr wichtig um Scheinkorrelationen auszuschließen. Die Ausrichtung des Aperturtisches war identisch der Probenausrichtung und bestimmte daher das Koordinatensystem in der Probe. Weicht dieses vom Koordinatensystem der Kamera ab, so entstehen ungewünschte Korrelationen der Kugelbewegung. So führen beispielsweise Schwingungen in y-Richtung aufgrund der Verkippung der Kamera gegenüber dem Tisch auch zu Bewegungen in x-Richtung auf dem Kamerachip. Um diesen Effekt vernachlässigen zu können, wurde eine auf dem Probendeckglas klebende Kugel zur Schwingung in y-Richtung angeregt. Danach wurde die Kamera soweit verkippt, bis die Variation in x-Richtung vernachlässigbar klein war. Eine genaue Justierung der Kamera, wie sie in Abbildung 5.10 zu erkennen ist, erlaubte eine Winkelgenauigkeit von 0.09°.



Abbildung 5.10: Eine auf dem Deckglas fixierte Kugel vollführte eine Schwingung in y-Richtung mit einer Amplitude von etwa 280nm. Die Verkippung der Kamera gegenüber dem Koordinatensystem der Probe lag nach der linearen Anpassung (rot) bei 0.09°.

Diese Präzision rechtfertigte die Korrelation aufgrund der Kameraverkippung zukünftig zu vernachlässigen.

# 5.2.8 PSD

Analoge PSD Detektoren (engl. Position Sensitive Detector, Positionssensor, positionssensittiver Detektor) ermitteln den Schwerpunkt der auf die Detektorfläche auftreffenden Intensitätsverteilung. Der Detektor selbst ist eine Sensoroberfläche, die kontinuierlich Positionsinformationen isotrope der eintreffenden Strahlung über die gesamte Fläche erfasst und weiterleitet. Es erfolgt zu jedem Zeitpunkt eine Mittelung der Strahlung auf dem gesamten Detektor und somit eine Schwerpunktsbestimmung des einfallenden Lichts. Diese kontinuierliche Aufnahme von Positionsdaten ermöglicht zeitlich hochaufgelöste Messungen bis weit über 100kHz. Bei höheren Frequenzen wird das Signal im Wesentlichen durch elektronische Störungen negativ beeinflusst.

Der Detektor selbst ist schematisch in Abbildung 5.11 skizziert und besteht aus drei Halbleiterschichten (pin Diode): einer p (positiv) dotierten oberen Schicht, einer darunter liegende schwach dotierten i (intrinsischen) Schicht und einer unteren n (negativen) Schicht. Das Besondere an der intrinsischen Schicht ist, dass diese Schicht nur leicht dotiert ist. Durch die schwache Dotierung ist diese Schicht eng mit einem hohen elektrischen Widerstand verknüpft. Dieser hohe Widerstand ist insbesondere bei Hochfrequenzanwendungen erforderlich, um



gleichstromgesteuerte Widerstände zu ermöglichen. Außerdem wird er benötigt, um den Gesamtstrom  $I_0$  durch die Diode zu begrenzen.

Abbildung 5.11: Einfallendes Licht (grün) erzeugt in der gelben intrinsischen Halbleiterschicht ein Elektronen-Loch-Paar. Durch die anliegende Spannung wird ein Photostrom erzeugt, der über die hellblauen Elektroden abfließt und die Ströme  $l_1$  und  $l_2$  generieren.

Die pin Diode wird in Sperrrichtung betrieben ("+" an n-Schicht, "-" an p-Schicht). Aufgrund des hohen Wiederstandes fällt nahezu die gesamte Sperrspannung an der intrinsischen Schicht ab. In der intrinsischen Schicht selbst werden aufgrund deren Dicke die meisten Photonen absorbiert, so dass dort Elektronen-Loch-Paare entstehen. Die Anzahl der Paare ist proportional zur einfallenden Energie, also hauptsächlich zur Strahlungsintensität. Die Paare werden durch die anliegende Sperrspannung in der intrinsischen Schicht getrennt. Dabei werden die Elektronen zur n-Schicht bewegt, während die Löcher zu der p-Schicht wandern. Dadurch entsteht ein Photostrom der als  $l_0$  messbar ist. Die Ladungen verteilen sich dabei unterschiedlich auf die oberen Elektroden. Da sie an beiden Elektroden abfließen, und die p-Schicht einen homogenen Widerstand besitzt, verteilen sich die Ladungen umgekehrt proportional zum Abstand zwischen Einstrahlpunkt und Elektrode. Für die an den Elektroden herrschenden Ströme gilt

$$l_1 = l_0 \frac{L - x}{2L} \tag{5.4}$$

und

$$l_2 = l_0 \frac{L + x}{2L}$$
(5.5)

wobei sich der Photostrom  $l_0$  aus der Summe der Ströme  $l_1 + l_2$  zusammensetzt.

Somit kann die Ortsposition durch die Stromstärken ausgedrückt werden

$$\frac{x}{L} = \frac{l_2 - l_1}{l_1 + l_2}.$$
(5.6)

Die Länge L entspricht einem spezifischen Widerstandswert in der p-Schicht, so dass die Ortskoordinate durch eine proportionale Spannung darstellt werden kann.

Das gleiche Bestimmungsprinzip erfolgt ebenso in y-Richtung. Kombiniert man beide Richtungen, so erhält man eine zweidimensionale Positionsangabe des Schwerpunktes der auf die Detektorfläche auftreffenden Strahlung. Ein Problem stellt unter Umständen der sogenannte Cross-talk der beiden Signale in orthogonaler Richtung dar. Darunter versteht man die Abhängigkeit des einen Signals von dessen orthogonalem Signal. Liegt beispielsweise eine Schwingung in y-Richtung an einer Kugel im Potential an, so ist die Schwingung auch auf dem Detektor in y-Richtung zu erkennen. Dennoch wird diese Schwingung auch in x-Richtung detektiert. Obwohl das Signal in der x-Richtung wesentlich kleiner ist, besteht ein Crosstalk. Dieser kann aus den Daten heraus gerechnet werden, solange sich die Kugeln im ruhenden Medium befinden, denn in diesem Fall sind die Bewegungsrichtungen unabhängig. Zur Berechnung kann beispielsweise die in Kapitel 6.2 erwähnte Matlab Software [51] verwendet werden.

Die Strahlung, mit der die Kugel detektiert wird, ist die Laserstrahlung der optischen Falle selbst. Sie ist leistungsstark genug, um erfasst zu werden und weitere Strahlungsquellen, die den Aufbau komplexer machen würden, entfallen somit. Um die Kugel in der optischen Falle mit den PSD's zu detektieren, bestehen im Prinzip zwei Möglichkeiten:

Zum Einen kann das rückgestreute Licht beobachtet werden. Dazu wird die Kugel im optischen Potential gefangen. Die nahezu senkrecht auf die Kugel auftreffende Laserstrahlung wird teilweise an der Kugeloberfläche reflektiert. Sie durchläuft sowohl das Objektiv als auch das Mikroskop auf dem optischen Weg zurück in Richtung Strahlungsquelle. Mit Hilfe von Strahlteilern kann sie von dem in das Mikroskop einfallenden Licht separiert werden. Ist die aus dem Mikroskop austretende Strahlung von der einfallenden Laserstrahlung separiert, so kann dieses Kugelsignal detektiert werden. Der Aufbau der Detektoren kann dann direkt auf dem optischen Tisch erfolgen, was den Schwerpunkt niedrig hält und so Vibrationen verhindert. Wie in Abbildung 5.1 und Abbildung 5.3 zu erkennen ist, besteht genug Spielraum, um die Komponenten noch im Strahlgang zu platzieren. Die Auskopplung der Strahlung erfolgt zwischen dem Spiegel hinter dem Mikroskop und dem dichroitischen Strahlteiler 505DCXR. Diese Messmethode erlaubt einen nahezu beliebig gestalbaren Probenaufbau, denn das Kugelsignal kann den gleichen optischen Weg wie der einfallende Strahl nehmen und ist somit unabhängig von den Eigenschaften der Probe selbst. Insbesondere die optische Beeinflussung des Kugelsignals durch Beugungseffekte am Probenrand ist vernachlässigbar und sogar teilweise optisch undurchlässige Probenvolumen können untersucht werden. Ist eine optische Falle in der Probe generiert, so kann direkt ein Reflexionssignal der Kugel gemessen werden. Dennoch stellte sich heraus, dass die Qualität des Signals nicht ausreichend hoch war. Reflexionen am unteren Deckglas der Probe waren nicht zu vernachlässigen, wenn der Kugel-Deckglasabstand im Bereich unter  $15 \mu m$  lag. Außerdem war die Intensität des Kugelsignals relativ schwach, da die Kugel selbst nur wenige Mikrometer groß war und nur ein kleiner Teil des einfallenden Lichts von der Kugel reflektiert wurde.

Die zweite Möglichkeit der Detektion bietet die Transmissionsmessung. Dabei wird das Signal der Kugel dadurch generiert, dass der fokussierte Laser von der Kugel gebrochen wird und die Vorwärtsstreuung durch die Kugel aufgenommen wird. Die genauere Betrachtung der Signalentstehung erfolgt in Kapitel 5.4.2. Zur experimentellen Realisierung wurde ein Transmissionsarm an das Mikroskop befestigt. Durch ihn ermöglichte ein Kondensor die Abbildung der Kugel auf dem Detektor. Die Detektoren und die Sperrfilter selbst wurden an einer starren Montagesäule befestigt. Die ungestreute Primärstrahlung beeinflusste die Signalqualität nur marginal, da die Intensität der Streustrahlung sehr intensiv ist und die Primärstrahlung zeitlich nicht variierte. Der Nachteil dieser Anordnung lag in der Abhängigkeit von der Probenzelle. Bei bestimmten Probenzellen, die groß genug waren, das heißt deren Berandung die Transmission nicht beeinflusst, war diese Messmethode gut geeignet. Wie sich jedoch herausstellte waren Messungen in mikrometergroßen Flusszellen nicht möglich. Die Wände der Zelle führten zu einer Verzerrung und der Brechung der optischen Signale, die die Detektion erschwerten. Außerdem war das Signal auf dem Detektor extrem anfällig für größere Kugelbewegungen im Bereich von einem Mikrometer. Da sich aus technischen Gründen die gefangene Kugel im späteren Fluss nie exakt im Ursprung des Potentials befand, war die Methode der Detektion für Messungen im Scherfluss daher ungeeignet. Dennoch konnten in der ruhenden Flüssigkeit sehr gute Ergebnisse erzielt werden. Die zeitliche Auflösung bei solchen Messungen ist mit konventionellen Kameramessungen nicht zu erreichen.

# 5.3 LabVIEW

Das grafische Programmiersystem LabVIEW Version 8.5 (Laboratory Virtual Instrumentation Engineering Workbench) der Firma National Instruments ist eine sehr umfassende grafische Programmiersprache zum Lösen von individuellen Problemen, vor allem in Bezug auf Datenerfassung und Datenverarbeitung. Die extrem hohe Flexibilität war ein weiterer Grund, diese Software im Experiment und der Messauswertung sehr weitreichend zu verwenden. Die Programmierung selbst erfolgt mit Hilfe von Untermodulen, den sogenannten sub-virtual instruments (subVI), die bereits vom Hersteller implementierte Operationen, wie zum Beispiel Fouriertransformationen oder Datenauslesungen, durchführen. Diese subVI's werden miteinander kombiniert und verknüpft. Damit werden sowohl Datenerfassung als auch Datenbearbeitung ermöglicht. Der wesentliche Vorteil von LabVIEW gegenüber anderen Programmiersprachen ist die hohe Effizienz im Generieren kleinerer Programme. In kürzester Zeit kann eine Programmierung erfolgen, die genau auf die individuelle Anforderung des Benutzers eingeht.

Im Experiment wurde der Piezo-Spiegel zur Verschiebung der 532nm-Falle von einem in LabVIEW geschriebenen Programm gesteuert. Zudem erfolgte die Datenaufnahme der PSD Signale über implementierte National Instruments Messkarten mit dieser Software.

Die Auswertung der aufgenommenen Daten erfolgte ebenfalls mit Hilfe von LabVIEW. Für die Auswertung der Kamerabilder wurde eigens ein Programm von Dr. Achim Jung entwickelt, das mit Hilfe einer zweidimensionalen Kreuzkorrelation eine Auflösung ermöglicht, die kleiner ist als die Pixelgröße der Kamera selbst [50]. Damit wurde der Partikelschwerpunkt bestimmt. Desweiteren wurden zahlreiche weitere Programme entwickelt, die beispielsweise die Fallenkalibrierung erleichterten.

Sowohl die Messungen der Kamera als auch die der PSD's lieferten letztlich indirekte Ortspositionen in Form von Pixel- beziehungsweise Spannungswerten. Aufgrund der Korrelationsnormierung war die Umrechnung in reale Ortskoordinaten zumeist nicht notwendig. Die weiteren Auswertungsprogramme für die Korrelationsanalysen wurden für beide Signale identisch strukturiert.

## 5.3.1 Korrelationsprogramm

Das Programm zur Auswertung von Ein- oder Zweiteilchenkorrelationen wurde in LabVIEW implementiert. Der Programmablauf wird im Folgenden kurz skizziert:

- 1. Der Startpunkt der ermittelten Positionsdaten sowie die Korrelationslänge N werden festgelegt.
- 2. Der Mittelwert aus den in 1. ausgewählten Daten wird für jede Raumrichtung ermittelt und von diesen Daten subtrahiert um einen Offset in der Korrelation zu verhindern.
- 3. Die Korrelationen der verschiedenen Teilchen und Richtungen werden anhand folgender Vorschrift ermittelt

$$C(k+N-1) = \frac{1}{a \cdot b \cdot w(k)} \sum_{n=0}^{N-1} x(n) y(n+k),$$
 (5.7)

wobei x(n) und y(n) die zu korrelierenden Signale angeben. Die Normierung der Korrelation erfolgt mit

$$\begin{aligned}
\partial &= \sqrt{\sum_{n=0}^{N-1} x^{2}(n)} \\
b &= \sqrt{\sum_{n=0}^{N-1} y^{2}(n)} \\
w(k) &= \begin{cases} \frac{N+k}{N} & , -N < k < 0 \\ 1 & , k = 0 \\ \frac{N-k}{N} & , 0 < k < N. \end{cases}
\end{aligned}$$
(5.8)

- 4. Die Darstellung der Korrelation erfolgt parallel für alle relevanten Korrelationen.
- 5. Der Verlauf der Korrelationsfunktionen wird als Bild und als Textdatei abgespeichert um eine spätere genauere Analyse der Daten zu ermöglichen.

Alle hier vorgestellten Korrelationen wurden nach diesem Skript erstellt. Ein Schema der Implementierung ist in Anhang 10.1 zu finden. Die weitere Auswertung erfolgte dann mit Hilfe von Origin Version 8 der OriginLab Corporation.
## 5.4 Signale

Bei allen experimentellen Messungen wurde die Position der Kugeln bestimmt. Dabei wurden zwei unterschiedliche Methoden verwendet. Zum Einen konnte mit Hilfe einer Kamera die Kugel direkt auf digitalen Bildern beobachtet werden. Diese aufgenommenen Bilder enthielten so die Position der Kugeln, wobei die zeitliche Messauflösung durch die zeitliche Bildfolge der Aufnahme bestimmt wurde. Für jedes einzelne Bild wurde später die Kugelposition durch einen Korrelationsalgorithmus in der xy-Ebene ermittelt. In diesem Abschnitt wird auf die Positionsdetektion näher eingegangen. Durch geeignete Wahl der Aufnahmegröße des Chips und ausreichender Beleuchtung der Probe betrug die Aufnahmerate in den Experimenten bis zu 15kHz.

Die zweite Möglichkeit, die Kugel zu detektieren, bestand in der Nutzung der Technik positionssensittiver Detektoren. Diese Methode erlaubt es, eine zeitliche Messauflösung oberhalb von 100kHz zu erzielen. Dabei werden keine Bilder aufgenommen, sondern der Schwerpunkt der auf den Detektor treffenden Streustrahlung der Kugel ermittelt und als Spannungssignal ausgegeben.

Beide Messprinzipien wurden an einem Aufbau realisiert, um eine möglichst große Messflexibilität zu gewährleisten. Dies ermöglichte sogar simultane Messungen, um direkte Vergleiche und Kalibrierungen beider Methoden zu erzielen. Dabei konnten nur die Messungen im ruhenden Fluid verglichen werden. Die Messungen im Scherfluss waren nur mit der Kamera möglich. Eine Ursache dafür liegt in der Probenzelle zur Generierung des Scherflusses. In Kapitel 7 wird näher auf die Gestalt der Zelle eingegangen. Die Konstruktion der Zelle an sich führte zu Brechungen der transmittierenden Laserstrahlung, was die Qualität der Kugelabbildung in negativer Weise beeinflusste. Eine weitere Ursache für die Problematik der Kugelabbildung im Scherfluss war die Tatsache, dass sich die Kugel nicht genau im Potentialminimum der optischen Pinzette befand. Da der transmittierende Strahlengang extrem sensitiv auf Kugelverschiebungen relativ zum Potentialminimum reagierte, waren aussagekräftige Messungen nur sehr schwer möglich. Es herrschte immer ein endliches Geschwindigkeitsfeld um die Kugel herum, welches die Kugel ein wenig aus dem Potentialminimum lenkte. Mit Hilfe einer Kamera konnten jedoch auch zeitlich und räumlich hochauflösende Messungen in der Strömung realisiert werden.

#### 5.4.1 Kamera

Im Experiment standen zwei verschiedene Kameras mit unterschiedlicher Aufnahmetechnik zur Verfügung. Die schnellere der beiden Kameras (Integrated Design Tools, Inc. ; X-Stream 5) besaß einen CMOS Sensor (komplementärer Metall-Oxid-Halbleiter, engl. Complementary Metal Oxide Semiconductor). Durch den inneren photoelektrischen Effekt nimmt die Leitfähigkeit bei Bestrahlung einer Photodiode zu, so dass ein Kondensator durch den Photostrom der Diode aufgeladen wird. Jeder Kondensator wird einzeln ausgelesen und so der im Kondensator gesammelten Ladung eine Spannung zugeordnet. Die Verstärkung und Zuordnung eines Spannungssignals erfolgt also an jeder einzelnen Diode. In der verwendeten Kamera befanden sich 1280 photodiodische Bildelemente (engl. Picture element, kurz Pixel) in horizontaler und 1024 Pixel in vertikaler Richtung. Durch die Auswahl einer kleineren Pixelanzahl wurde eine höhere Aufnahmerate erreicht. So betrug die maximale Aufnahmerate bei Vollauflösung 1040Hz während bei 64 Auslesezeilen die maximale Aufnahmefrequenz bei 16400Hz lag.

Die zweite Kamera besaß einen CCD Sensor (ladungsgekoppeltes Bauteil, engl. Charge Coupled Device) der Firma Olympus (Olympus Encore MAC PCI 1000S). Der Unterschied zum oben genannten CMOS Sensor besteht im Ausleseverfahren. Während bei der CMOS Technik die Auslesung aller Pixel parallel erfolgt, ist der Ausleseprozess der Kondensatoren bei CCD Sensoren ein serieller. Alle durch die Belichtung entstandenen Ladungen werden zu einem einzigen Ausleseverstärker verschoben. Damit wird die Aufnahmerate wesentlich stärker von der Anzahl der aufgenommen Zeilen bestimmt. So war bei der Aufnahme von 156 Pixelreihen nur eine zeitliche Auflösung von 1000Hz möglich.

Der Vorteil der CMOS Technik gegenüber der CCD Technologie liegt darin, dass jedes Bildelement einzeln angesprochen und somit nur der für die Messungen interessante Volumenbereich aufgenommen werden kann. Dies verringert zum einen die Datenmenge der Messung und erhöht zum anderen die Geschwindigkeit der Bildaufnahme.

Beiden Kameras gemeinsam waren die Ausgabe von unkomprimierten 8bit Bildern die zur weiteren Auswertung und zur Positionsbestimmung der Kugeln verwendet wurden. Um die Kugelposition zu detektieren, wurde ein Korrelationsalgorithmus benutzt, der den Kugelschwerpunkt im Subpixelbereich detektierte [50]. Dabei wurde aus einer eigens gewählten Bildregion der aufeinanderfolgenden Bilder eine zweidimensionale Kreuzkorrelation errechnet. Dazu wurden die Intensitätswerte (8bit=256 Zustände) gegeneinander verschoben und miteinander multipliziert. Diese Korrelation hat genau an der Stelle ein Maximum, die der Verschiebung der Kugel entspricht. Benutzt man nun die Werte der so entstandenen Korrelationsmatrix als Stützstellen, um den Punkt größter Übereinstimmung zu finden, eine subpixelgenaue SO ist Positionsbestimmung möglich. Im Algorithmus wurden in beide Raumrichtungen die fünf nächsten Nachbarn vom Korrelationsmaximum als Stützstellen gewählt um eine Gaußanpassung zu realisieren. Das Maximum der Anpassung gab die Position der Kugel an. Mit diesem Algorithmus und mit dem weitgehend von Schwingungen isolierten Aufbau gelang im Experiment eine räumliche Auflösung der Kugelposition unterhalb von 8nm was in Abbildung 5.12 zu erkennen ist.



Abbildung 5.12: Eine  $4\mu m$  große, auf dem Deckglas klebende Kugel wurde mit einer Frequenz von 20 Hz und einer Amplitude von 8.6nm sinusartig in x-Richtung bewegt (rot). Mit der Olympus Kamera wurde mit einer Rate von 1kHz Bilder aufgenommen und mit dem Korrelationsalgorithmus ausgewertet. Die Kugelposition (schwarz) entsprach sehr gut dem extern angelegten Signal (rot).

Die Positionen in Pixel konnten mit dem Vergrößerungsfaktor des Objektives und der Pixelgröße der Kamera in Mikrometer umgerechnet werden.

#### 5.4.2 PSD

Die Intensitätsverteilung, die auf den PSD auftrifft, entspricht der Intensitätsverteilung in der hinteren fokalen Ebene (engl. back focal plane, kurz BFP) des Kondensors. Durch eine Linse im Mikroskoparm wurde diese fokale Ebene des Kondensors auf die Detektoren abgebildet. Im Folgenden wird die Intensitätsverteilung näher erläutert. Die Gesamtintensität kann als Überlagerung zwischen einfallendem, also dem fallenbildenden Laserstrahl, und dem Streulicht der eingefangenen Kugel aufgefasst werden. Dabei verändert sich zeitlich nur das gestreute Feld aufgrund der Brownschen Kugelbewegung. Die theoretische Behandlung wird im Folgenden im Rayleigh Regime dargestellt [52].

Geht man davon aus, dass das Licht mit gaußförmiger Intensitätsverteilung gemäß Abbildung 5.13 im Ursprung  $(\vec{x}=0)$  fokussiert ist und einen Öffnungswinkel  $\theta$  zwischen den Strahlen und der optischen Achse einschließt, so gilt für die Feldverteilung der punktförmigen Quelle in großer Entfernung vom Fokus  $(x \gg W)$ 

$$E(\vec{x}) \approx \frac{-ikW}{x\sqrt{\pi\varepsilon C}} e^{ikx - \frac{1}{4}k^2 w^2 \theta^2}.$$
(5.9)

In der fokalen Ebene des Objektivs hängt das Feld nur von der lateralen Position x ab

$$E(\vec{x}_{F}) = E(|\vec{x}|) = \frac{2}{W\sqrt{\pi\varepsilon C}} e^{-\frac{x^{2}}{W^{2}}}.$$
(5.10)

Hierbei treten die Wellenzahl  $k = 2\pi n/\lambda$ ,  $\varepsilon$  als Permeabilität, n als Brechungsindex und c als Lichtgeschwindigkeit im Lösungsmittel auf. Mit w wird die 1/e Breite des Feldes im Fokus bezeichnet. Im Rayleigh Regime wird ein Dipolmoment  $p = 4\pi\varepsilon\alpha E$  in der Kugel induziert, wobei die Polarisierbarkeit der Kugel mit

$$\alpha = R^3 \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \tag{5.11}$$

angenommen wird. Es ergibt sich daraus eine Feldverteilung der Kugelstreuung, die in der Rayleigh Approximation für große Fokusabstände die Gestalt

$$E'(\vec{x}) \approx \frac{k^2 \alpha}{|\vec{x}|} E(x) e^{ik|\vec{x}-\vec{x}_{F}|} \approx \frac{k^2 \alpha}{|\vec{x}|} E(x) e^{ik[|\vec{x}|-x\sin\theta\cos\phi]}$$
(5.12)

annimmt. Das Feld am Ort der Detektion ergibt sich aus der Überlagerung des ungestreuten Feldes des Fokuspunktes (Gleichung (5.9)) und dem Streufeld der Kugel (Gleichung (5.12)). Außerdem ergibt sich für die zeitlich gemittelte Intensitätsänderung

$$\delta I = \frac{\varepsilon C}{2} \left( \left| E + E' \right|^2 - \left| E \right|^2 \right) \approx \varepsilon C \operatorname{Re} \left( E E'^* \right).$$
(5.13)



Abbildung 5.13: Auf der linken Seite trifft der Laserstrahl von unten in das grau angedeutete Objektiv und wird zu einem Punkt fokussiert. In diesem Punkt befindet sich die gefangene Kugel. Bei genauerer Betrachtung auf der rechten Seite ist zu erkennen, dass die Kugel um x aus der grün gezeichneten, optischen Achse ausgelenkt ist.

Gleichung (5.13) beschreibt einen Interferenzterm erster Ordnung. Verwendet man noch die Gleichungen (5.9), und (5.12), so erhält man die Intensitätsverteilung

$$\frac{\delta I(|\vec{x}|)}{l_0} \approx \frac{2k^4 \alpha}{\pi |\vec{x}|^2} x e^{-\frac{x^2}{w^2}} \theta \cos \varphi e^{-\frac{k^2 w^2 \theta^2}{4}}.$$
(5.14)

Eine Kugel, die sich um x aus der optischen Achse verschoben hat, generiert eine Intensitätsverteilung wie sie durch Gleichung (5.14) beschrieben wird. Der Detektor selbst integriert über die Intensität, die auf die Detektorfläche fällt. Diese Integration über Gleichung (5.14) liefert

$$\frac{l_1 - l_2}{l_1 + l_2} = \frac{16}{\sqrt{\pi}} \frac{k\alpha}{w^2} \frac{x}{w} e^{-\left(\frac{x}{w}\right)^2}.$$
(5.15)

Die Darstellung der auftretenden Ströme durch  $l_1$  und  $l_2$  kommt von der Funktionsweise des PSD und wurde in 5.2.8 erläutert. Mit Gleichung (5.15) kann das PSD Signal in Abhängigkeit von der Kugel- und Fokus-Größe bestimmt werden. Für die Näherung großer Partikel, also der geometrischen Optik, ist nur noch die Kugelgröße von Bedeutung und Gleichung (5.15) reduziert sich zu einer x/r Abhängigkeit. Damit ist das Signal des PSD in erster Ordnung linear zur Auslenkung der Kugel aus dem Fokuspunkt und eignet sich darum bestens zu Bestimmung der Kugelposition.

Die Gesamtintensität aus Primärstrahlung und Kugelsignal im realen Experiment ist in Abbildung 5.14 dargestellt. Die Verschiebung der zu sehenden Intensitätsringe verursacht ein Signal, das in erster Näherung nach Gleichung (5.15) linear von x abhängt.



Abbildung 5.14: Abgebildet ist das Intensitätssignal einer  $1.5\mu m$  Kugel, die sich in Wasser befand. Die Intensitätsverteilung wurde etwa 10cm hinter der üblichen Detektorposition aufgenommen. Die Kugel verharrte in der optischen Falle, die von dem Laser der Wellenlänge 532nm generiert wurde. Das Intensitätssignal hatte einen Durchmesser von etwa 5 cm.

Die PSD's selbst waren an einer Montagesäule hinter einem dichroitischen Strahlteiler und Bandpassfiltern montiert. Außerdem waren die Detektoren in beiden Raumrichtungen justierbar um das Beugungssignal zentral zu detektieren. Die Spannungssignale der beiden PSD's wurden mit Messkarten von National Instruments (National Instruments, USB-9215A BNC) aufgenommen. Diese 16bit Karten konnten die Spannungen für jeden Kanal mit einer Rate von bis zu 100kHz aufnehmen. Die Implementierung der Messkarten erfolgte mit Hilfe von subVI's des Herstellers selbst.

# 5.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die wichtigsten Komponenten des experimentellen Aufbaus vorgestellt. Neben der Anordnung der Bauteile wurden auch ihre wichtigsten Eigenschaften angesprochen. Messentscheidende Komponenten zum Positionieren der Probe, aber auch der Laser selbst, wurden aufgeführt. Desweiteren wurden die wichtigsten Transmissionsspektren der Spiegel und Filter aufgezeigt. Die Signale, aus denen die Kugelpositionen gewonnen wurden, konnten entweder mit einer Kamera oder mit photosensitiven Detektoren aufgenommen werden. Beide Techniken wurden vorgestellt und näher erläutert. Neben dem Aufbau der photosensitiven Detektoren wurde auch ihre Funktionsweise erklärt. Darüber hinaus wurde die Signalentstehung am Ort der Detektoren aufgezeigt um zu veranschaulichen, dass diese Messungen geeignet sind, um Kugelfluktuationen zu detektieren. Während im ruhenden Medium die Methode der Detektoren eine wesentlich bessere Zeitauflösung bietet, war diese Methode für die Flusszellen, die später vorgestellt werden, ungeeignet da es zu Streuungen am Rand des Kanals kam. Bei diesen Probenzellen wurden Kameramessungen realisiert, die eine zeitlichen Auflösung von 15kHz ermöglichten. Die räumliche Auflösung beider Messungen war vergleichbar und betrug etwa 8nm

Die Steuerung der Anlage erfolgte weitestgehend mit eigens geschriebenen Programmen in LabVIEW. Außerdem erfolgte die Signalaufnahme und Weiterverarbeitung mit dieser Software. Maßgeblich war hierbei neben der Ermittlung der verschiedenen Korrelationsfunktionen auch die Möglichkeit, Programme für die Kalibrierungen zu entwerfen.

## 6 Kalibrierungsmethoden

Im Folgenden wird darauf eingegangen, dass eine optische Pinzette nicht nur zur Fixierung von Objekten verwendet werden kann. Ist die optische Falle kalibriert, so kann mit Hilfe der Auslenkung einer Kugel aus dem Mittelpunkt der Falle die Kraft bestimmt werden, die auf die Kugel wirkt. Alle nachfolgenden Kalibrierungen und auch die später aufgeführten experimentellen Messungen wurden in demineralisiertem Wasser bei  $20-20.5^{\circ}C$  durchgeführt. Die Literatur gibt in diesem Temperaturbereich die Viskosität von Wasser unter Normaldruck im Bereich von 1.0016*mPas*-0.98946*mPas*=0.99553±0.00607*mPas* an, so dass nachfolgend von einer konstanten Viskosität von 1*mPas* ausgegangen wird [53]. In diesem Kapitel werden verschiedene Möglichkeiten der Kalibrierungen vorgestellt.

Aufgrund des gaußförmigen Intensitätsprofils des Lasers kann die optische Falle in erster Näherung als ein harmonisches Potential verstanden werden. Der Begriff Potential kann deshalb verwendet werden, weil bei Auslenkung der Kugel aus der Ruhelage eine Kraft erzeugt wird, also eine Potentiallandschaft vorliegt. Die harmonische Annahme des Potentials entspringt der gaußförmigen Intensitätsverteilung die im Maximum in erster Näherung eine quadratische Ortsabhängigkeit besitzt. Das Potential

$$U(x) = \frac{1}{2}k(x - x_0)^2$$
(6.1)

beschreibt somit die Wirkung der optischen Pinzette mit dem Ursprung in  $X_0$  auf eine Kugel an der Position x. Die Fallenkraft ist aufgrund der ersten Ortsableitung der Feldverteilung eine lineare Funktion der Auslenkung x aus der Ruhelage, welche nachfolgend  $X_0 = 0$  gesetzt wird

$$F = -kx. \tag{6.2}$$

Um Aussagen über die Stärke der Fallenkräfte machen zu können, wird die Falle nun kalibriert. Allen Kalibrierungsmethoden gemeinsam ist die Bestimmung der Fallenkonstante k aus Gleichung (6.2). Man kann dann aus der relativen Auslenkung x einer Kugel gemäß Gleichung (6.2) die Kraft bestimmen, die durch das optische Potential auf die Kugel wirkt. Man unterscheidet bei der Kalibrierung allgemein zwischen passiven und aktiven Methoden [54]. Während die passiven Methoden die reine Brownsche Bewegung in der Falle analysieren, wird bei der aktiven Methode die Kugel extern angeregt und deren Verhalten in der Falle beobachtet. Beide Verfahren werden nachfolgend präsentiert.

#### 6.1 Thermische Energie

Jedes Objekt besitzt bei Temperaturen oberhalb von 0 Kelvin thermische Energie. Diese führt dazu, dass sich das Objekt bewegt, also kinetische Energie besitzt. Der Geschwindigkeitsbetrag des Objektes hat nach Boltzmann eine gewisse Wahrscheinlichkeitsverteilung, die von der thermischen Energie des Objekts selbst abhängt. Demnach beträgt die Wahrscheinlichkeit in einer Dimension, ein Objekt mit der Geschwindigkeit  $\dot{x}$  zu finden [18]

$$P(\dot{x}) = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T}} e^{-\frac{m\dot{x}^2}{2k_B T}}.$$
(6.3)

Gleichung (6.3) ist die Wahrscheinlichkeitsfunktion in einer Dimension und sie hat die Gestalt einer symmetrischen Gauß'schen Glockenkurve. Im dreidimensionalen Fall ist der Verlauf asymmetrisch und folgt der von Maxwell vorgestellten Verteilung

$$P(v) = 4\pi v^2 \left(\frac{m}{2\pi k_B T}\right)^{3/2} e^{-\frac{mv^2}{2k_B T}}$$
(6.4)

mit  $v = \sqrt{\dot{x}^2 + \dot{y}^2 + \dot{z}^2}$ . Da die Bewegungsrichtungen des betrachteten Systems entkoppelt sind, genügt es, die Verteilungen in jeder Dimension einzeln und unabhängig von den anderen zu behandeln. Der Verlauf in Gleichung (6.3) wird vom Verhältnis von kinetischer zu thermischer Energie beeinflusst. Befindet sich das Objekt nun in einem Potential U(x), so bestimmt dieses Potential die Verteilung. Demnach ist die Wahrscheinlichkeit, ein Teilchen am Ort x der optischen Pinzette zu finden gemäß Gleichung (6.1)

$$P(x) \propto e^{-\frac{U(x)}{k_B T}} = e^{-\frac{kx^2}{2k_B T}}.$$
 (6.5)

Es ist leicht zu erkennen, dass die Wahrscheinlichkeit in Gleichung (6.5) gaußverteilt ist und von der Fallenkonstanten k abhängt. Wird nun im Experiment die Position der Kugel in der Falle über längere Zeit ermittelt, kann für jede Bewegungsrichtung separat eine Verteilungsfunktion, ein Histogramm, gemäß Abbildung 6.1 erstellt werden.



Abbildung 6.1 Aus einer Kameramessung 1kHz Aufnahmerate mit wurde das Histogramm der x-Position einer 2µm Kugel in blau dargestellt, der Fit der Gaußkurve ist in rot eingezeichnet und die Standardabweichung der Gaußkurve ist schwarz skizziert. Aus der Varianz errechnet Fallenkonstante sich eine von  $k = 8,20 \pm 0,05 \cdot 10^{-6} N/m$ .

Dieses Histogramm wird mit einer Gaußkurve angepasst. Dabei beschreibt die Varianz der Gaußkurve gemäß Gleichung (6.5) das Verhältnis  $k_BT/k$ . Es ist somit sehr einfach möglich, die Fallenkonstante zu bestimmen ohne die weiteren Systemgrößen wie Viskosität oder Kugelgröße zu kennen.

Mit den PSD's können ebenfalls Fluktuationsaufnahmen realisiert werden, wie in Abbildung 6.2 zu erkenne ist.



Abbildung 6.2: Die Detektion einer  $2\mu m$  Kugel mit dem PSD mit einer Rate von 10kHz ergibt eine annähernd perfekte Gaußverteilung der Kugel.

Theoretisch kann auch hier die Breite der Verteilung bestimmt werden und aus der Fallenkalibrierung der Kamera die Eichung des Detektors erfolgen. Es zeigte sich allerdings, dass trotz der exzellenten Statistik dieser Messmethode die Art der Auswertung unpraktisch war. Die Datenaufnahme der Kamera und der PSD's mussten für diese Messungen simultan erfolgen was auf Grund eines eingebauten Strahlteilers die Qualtität der PSD Messungen verschlechterte.

#### 6.2 Leistungsspektrum

Statt der Auswertung im Ortsraum, wie in Kapitel 6.1 vorgestellt, kann die Bestimmung der Fallenkonstanten k, insbesondere bei zeitlich hochauflösenden Messungen, auch im Frequenzraum erfolgen. Auch hier ist die thermische Energie, und somit die Brownsche Molekularbewegung, der Antrieb der Teilchenbewegung, die beobachtet wird. Unter der Voraussetzung, dass das Teilchen in der Falle überdämpft ist, also Inertialterme keine Rolle spielen, kann die Langevin-Gleichung (2.20) als Bewegungsgleichung zur Beschreibung der Kugel benutzt werden. Sie verknüpft die Auslenkung x aus der Ruhelage mit der stochastischen Kraft  $F_{st}$ . Die wichtigsten Eigenschaften dieser Kraft wurden bereits in Kapitel 2.1 aufgeführt. Kombiniert man die infinitesimal kurze Wirkungszeit der stochastischen Kraft aus Gleichung (2.11) mit deren Größe aus Gleichung (2.12), so ergibt sich der Ausdruck

$$F_{i}(x_{i'}t)F_{j}(x_{j}t') = 2k_{B}T\zeta\delta(x_{j}-x_{i})\delta(t-t').$$
(6.6)

Mittels einer Fourier Transformation der Langevin Gleichung (2.20) erhält man ein Leistungsspektrum (engl. power spectrum), das die spektrale Leistungsdichte des Teilchens beschreibt [55]

$$S(f) = \left| x(f) \right|^2 = \frac{k_B T}{\pi^2 \zeta \left( f_0^2 + f^2 \right)} = \frac{D}{\pi^2 \left( f_0^2 + f^2 \right)}.$$
(6.7)

Das Leistungsspektrum eines Teilchens gibt die Energie des Teilchens in Abhängigkeit der Frequenz an. In der Lorentz Kurve in Gleichung (6.7) steckt die charakteristische Fallenfrequenz  $f_0$ , die die Fallenkonstante charakterisiert

$$f_0 = \frac{k}{2\pi\zeta}.\tag{6.8}$$

Sie bestimmt letztlich, ab welcher Frequenz die Kugel als Brownsch angesehen werden kann obwohl sie sich im Potential befindet. Für den Grenzfall verschwindender Fallenkonstante hat das Leistungsspektrum eine  $f^2$ Abhängigkeit. In Abbildung 6.3 ist eine Messung eines Leistungsspektrums einer  $2\mu m$  großen Kugel in der Falle dargestellt. Durch die doppelt logarithmische Skalierung drückt sich die Abhängigkeit des Leistungsspektrums bei hohen Frequenzen durch eine Gerade mit der Steigung -2 aus. Die optische Pinzette verhindert außerdem Bewegungen der Kugel, die zu großen Ortsauslenkungen führen. Dazu äquivalent wird die Energie der niederfrequenten Bewegungen stark gedämpft und kann in doppel- logarithmischer Auftragung als konstant angesehen werden. Der Übergang zwischen diesen beiden Regimen beschreibt die charakteristische Frequenz. Sie kann in erster Näherung aus dem Schnittpunkt der beiden Kurven ermittelt werden und ist ein erster Anhaltspunkt für die tatsächliche, später genauer ermittelte Eckfrequenz der optischen Falle.



Abbildung 6.3: Dargestellt ist das Leistungsspektrum einer  $2\mu m$  Kugel in Wasser mit doppellogarithmischer Skalierung, aufgenommen mit einem PSD bei einer Aufnahmerate von 10kHz über 10 Sekunden.

Das anpassen der Lorentz Kurve an die Messdaten erfordert einigen Aufwand. Beispielsweise muss eine Gewichtung der Datenpunkte erfolgen, damit die hohen Frequenzen nicht aufgrund ihrer großen Anzahl überschätzt werden und die kleinen Frequenzen weniger beachtet werden. Aus diesem Grund wurde ein bestehendes, frei zugängliches Auswerteprogramm für die Software MatLab (The R2007a), tweezercalib2.1, benutzt [51]. Mit diesem MathWorks, Matlab Auswertefile ist es möglich, eine Kalibrierung durchzuführen, also die Fallenkonstante zu bestimmen. Das Programm erlaubt es außerdem, den sogenannten Cross-talk zweier Richtungen zu eliminieren. Darunter versteht man die Tatsache, dass bei Messungen mit positionssensittiven Detektoren die orthogonalen Messrichtungen in x- und y-Richtung nicht absolut unabhängig voneinander bestimmbar sind [56]. Dieser Sachverhalt wurde bereits in Kapitel 5.2.8 erläutert. Der Cross-talk kann bei Messungen in ruhenden Medien heraus gerechnet werden, denn in diesem Fall sind x- und y-Position der Kugel theoretisch unabhängig wie in Kapitel 2 gezeigt wurde [57]. Eine rechnerische Korrektur ermöglicht dann die Unabhängigkeit der Signale. Desweiteren besteht die Möglichkeit, hydrodynamische Wechselwirkungen zwischen der Kugel und Probenbegrenzungen in die Auswertung mit aufzunehmen. Darauf wurde aufgrund des großen Kugel-Boden Abstandes jedoch verzichtet. Die Filter für Anti-Aliasing wurden verwendet, um bessere Ergebnisse im Hochfrequenzbereich zu erzielen. Letztlich wurde das Leistungsspektrum wie in Abbildung 6.4 angepasst um die charakteristische Frequenz zu ermitteln, aus der die Fallenkonstante gemäß Gleichung (6.8) ermittelt wurde. Somit war die Fallenkonstante bestimmt.



Abbildung 6.4: Zu sehen ist das Leistungsspektrum aus den Daten von Abbildung 6.3. Die Daten wurden mit Hilfe von MatLab in Blöcke von 300 Datenpunkten zusammengefasst und im Bereich zwischen 20 und 3000Hz angepasst. Die rote Anpassung erfasst die charakteristische Frequenz zu  $f_c = 126.7 \pm 3.2Hz \Rightarrow k = 3.00 \pm 0.07 \cdot 10^{-6} N/m$ .

Die Analyse der Leistungsspektren wurde hier nur mit Daten der PSD's durchgeführt. Um eine verlässliche Aussage über die charakteristische Frequenz zu erhalten, benötigt man eine hohe zeitliche Auflösung, die mit Kameras kaum gegeben ist. Bei dem vorgestellten Aufbau reicht die Geschwindigkeit der Kamera zwar aus, um hohe zeitliche Auflösung zu realisieren, dafür ist die Dauer der Messzeit jedoch so stark begrenzt, dass die Spektren im unteren Frequenzbereich unzuverlässig werden.

Für die Bestimmung der Fallenkonstante wird nur das zeitliche Verhalten des Kugelsignals benötigt. Die Amplitude des PSD-Signals wird nicht in Betracht gezogen. Für große Frequenzen kann jedoch die Diffusionskonstante  $D_{PSD}$  aus

den Daten mit Hilfe von Gleichung (6.7) ermittelt werden. Dabei werden die hohen Frequenzen analysiert. Die Einheit der Diffusionskonstanten beträgt im experimentellen Leistungsspektrum  $\left\lceil V^2/s \right\rceil$ , da das Signal des Detektors keine Länge sondern ein Spannungssignal ausgibt. Andererseits kann die Diffusionskonstante für das System auch theoretisch aus der Einstein-Relation  $D = k_{\rm B} T / \zeta$ . gemäß Gleichung (2.9)errechnet werden mit Diese Diffusionskonstante ist dabei im SI Einheitensystem  $\lceil m^2/s \rceil$  angegeben. Da die theoretische Diffusionskonstante mit der Diffusionskonstante des Detektors übereinstimmen muss, kann eine Umrechnung vom Spannungswert in den Ortsraum erfolgen. Somit ist der Detektor auch absolut kalibriert und aus den Spannungen des Detektors können die Ortspositionen der Kugel ermittelt werden. Für die später vorgestellten Messungen war eine absolute Kalibrierung jedoch nicht notwendig.

### 6.3 Autokorrelation

Eine weitere Möglichkeit, die Fallenkonstante zu bestimmen, besteht in der Analyse der Autokorrelationsfunktion der Kugel in der Falle. In wird auf die Korrelationstheorie genauer eingegangen. Da die Autokorrelationsfunktion zur Kalibrierung benutzt werden kann, soll sie bereits hier diskutiert werden. Eine Autokorrelation ist mathematisch eine Multiplikation von eindimensionalen Kugelpositionen. Sie sagt aus, wie lange die Ortsposition mit sich selbst korreliert, also sich selbst ähnlich ist und gibt damit eine Art zeitliches Gedächtnis der Kugel an. Es stellt sich in Kapitel 8 heraus, dass die Autokorrelationsfunktion einer Kugel in der optischen Pinzette der Gleichung

$$\left\langle \vec{x}(0)\,\vec{x}(t)\right\rangle = \frac{k_{B}T}{k}\mathrm{e}^{-\tau t}$$
(6.9)

genügt. Die freie Kugel selbst unterliegt stochastischen Stößen, so dass die Bewegung nach rechts genauso wahrscheinlich ist wie die Bewegung nach links. Bei freien Kugeln verschwindet also die Autokorrelation auf langer Zeitskala. Ist die Kugel allerdings im harmonischen Potential ausgelenkt, so ist die Wahrscheinlichkeit sich nach rechts zu bewegen nicht mehr identisch mit der Wahrscheinlichkeit sich nach links zu bewegen. Die momentane Position beeinflusst also die zukünftige Bewegung. Die Kugel ist zeitlich korreliert. Die Korrelation nimmt mit der Zeit exponentiell ab. Die inverse Relaxationszeit

$$\tau = \frac{k}{\zeta} \tag{6.10}$$

aus Gleichung (6.9) setzt sich dabei aus dem Reibungskoeffizienten der Kugel und der Fallenkonstanten zusammen. Bestimmt man nun die Ortspositionen der Kugel als Funktion der Zeit, so kann die Autokorrelation in jede Richtung ermittelt werden, wie in Kapitel 5.3.1 und 8.3.1 aufgeführt wird. Die Anpassung der exponentiell abfallenden Autokorrelation ergibt eine Relaxationszeit  $\tau$ . Aus ihr kann bei bekannter Viskosität der Lösung und bekanntem Kugelradius die Fallenkonstante ermittelt werden.

Zu erwähnen bleibt, dass für diese Kalibrierung wiederum eine gute zeitliche Auflösung gewährleistet sein muss. Bei Kalibrierungen mit den PSD's werden darüber hinaus keine absoluten Ortspositionen in Metern benötigt. Es genügt, die Spannungswerte der Detektoren zu analysieren, um daraus die Fallenkonstante zu ermitteln.

Die in Abbildung 6.5 gezeigt Autokorrelationsfunktion in y-Richtung zeigt den charakteristischen exponentiellen Abfall der Korrelation mit der Zeit.



Abbildung 6.5: Die Autokorrelation in y-Richtung einer Kugel in der optischen Falle wurde mit einer Kamera über eine Sekunde mit 15kHz ermittelt. Zu sehen ist jeder 5. Messpunkt. Die exponentielle Anpassung ergab eine Fallenkonstante von  $k = 3.63 \pm 0.05 \cdot 10^{-6} N/m$  unter der Annahme der Viskosität  $\eta = 1mPas$  und dem Kugelradius  $R = 1.5\mu m$  Zudem wurde die Korrelationsfunktion normiert.

Die Oszillation der gemessenen Korrelation ab etwa 0.02s könnte mit der Versorgungsspannung der Monitorbeleuchtung im Labor, die 50Hz beträgt, zusammenhängen. In späteren Messungen wurde daraufhin die Monitorbeleuchtung stark abgedimmt.

Gemäß dem Wiener-Khinchin Theorem [58] ist die Autokorrelationsfunktion über eine Fouriertransformation mit dem Leistungsspektrum verbunden. Dementsprechend sollten die Ergebnisse der Spektrumsanalyse mit den Korrelationsanalysen übereinstimmen. Die Erfahrung zeigte allerdings, dass die Anpassung der Korrelationsfunktion besser gelingt, als die des Leistungsspektrums. Ein großer Vorteil beider Methoden ist der Sachverhalt, dass eine absolute Kalibrierung der PSD's nicht notwendig ist um die Fallenkonstante zu bestimmen. Allein das Zeitverhalten des Signals wie es beispielhaft für die PSD Messungen in Abbildung 6.6 aufgeführt ist, wird für die Kalibrierung benötigt.



Abbildung 6.6: Die Autokorrelation in y-Richtung einer Kugel in der optischen Falle wurde mit einem PSD über 10 Sekunde mit 10kHz ermittelt. Die exponentielle Anpassung ergab eine Fallenkonstante von  $k = 8.85 \pm 0.07 \cdot 10^{-6} N/m$  unter der Annahme der Viskosität  $\eta = 1mPas$  und dem Kugelradius  $R = 2\mu m$  Zudem wurde die Korrelationsfunktion normiert.

### 6.4 Reibungskraft

Im Folgenden wird eine aktive Methode zur Bestimmung der Fallenkonstante vorgestellt. Aufgrund der geringen Voraussetzungen bezüglich der zeitlichen Auflösung ist diese Variante der Kalibrierung besonders für Kamerasysteme geeignet. Zur Bestimmung von k wird eine bekannte Kraft an die Kugel angelegt und das Verhalten der Kugel im Fallenpotential beobachtet. Diese externe Kraft bewegt die Kugel aus ihrer Ruhelage, dem Potentialminimum, heraus. Die Auslenkung erfolgt so weit, bis die Fallenkraft die externe Kraft kompensiert hat. Die Auslenkung x der Kugel bestimmt gemäß Gleichung (6.2) die Fallenkonstante k. In der Praxis wird häufig die Stokessche Reibungskraft zur Kugelauslenkung Reibungskoeffizient ζ gewählt. Sie ist abhängig vom und der Relativgeschwindigkeit v zwischen der Kugel und dem umgebenden Lösungsmittel

$$F_{Stokes} = \zeta V. \tag{6.11}$$

Im Gleichgewicht der Kräftekompensation können die Fallenkraft und die Stokes-Kraft gleichgesetzt werden



$$\zeta v = F_{Stokes} = F = kx. \tag{6.12}$$

Abbildung 6.7: Die Kugel befindet sich im harmonischen Potential der optischen Pinzette (grün) und ist vom Lösungsmittel der Viskosität  $\eta$  umgeben. Das Lösungsmittel wird mit Hilfe des piezoelektrischen Tisches in einer Richtung sinusförmig verschoben. Die Kugel wird durch die hydrodynamische Reibung aus der Mitte des Potentials gelenkt und führt die Schwingung des Lösungsmittels aus.

Im Experiment wird das umgebende Medium mit Hilfe von piezo-elektrischen Aktuatoren relativ zu der in der Falle befindlichen Kugel bewegt und die Kugelposition gleichzeitig aufgezeichnet. Eine schematische Skizze ist in Abbildung 6.7 zu erkennen. Es bietet sich aus praktischen Gründen eine sinusförmige Modulation in eine Richtung an wie es die Messung in Abbildung 6.8 zeigt. Dabei kann aus Anregungsamplitude und –frequenz die maximale Reibungskraft ermittelt werden

$$2\pi\zeta Af\sin(\omega t) = kx\sin(\omega t + \varphi), \qquad (6.13)$$

wobei A die Anregungsamplitude der Schwingung darstellt und f deren Frequenz ausdrückt.



Abbildung 6.8: Eine  $2\mu m$  groß Kugel wurde in einer Wasserlösung mit Hilfe der optischen Pinzette gefangen und mit der Kamera beobachtet. Eine sinusförmige Schwingung mit einer Amplitude von 200 nm und einer Frequenz von 10Hz wurde an das Probenvolumen angelegt. Die Kugel spürt die Reibungskraft aufgrund der Relativgeschwindigkeit zwischen Flüssigkeit und Kugel. Sie führt zur sinusförmigen Bewegung der Kugel in der Falle, die schwarz eingezeichnet ist. Die Anpassung der Kurve (rot) ergibt neben der exakten Frequenz der Anregung eine Kugelamplitude von  $30.5 \pm 1.6 nm$ . Mit diesen Werten beträgt die Fallenkonstante  $1.26 \pm 0.01 \cdot 10^{-6} N/m$ . Die nicht perfekte Sinusform des Signals liegt darin begründet, dass über dem Signal noch die Brown'sche Bewegung der Kugel überlagert ist.

Zu beachten ist, dass die Reibungskraft aufgrund der Ortsableitung eine lineare Funktion der Anregungsfrequenz ist. Wie bereits in Kapitel 5.2.2 erwähnt, lagen typische Stokes-Kräfte im Bereich von  $F = 6\pi\eta r x_0 2\pi f \approx 5.10^{-13} N$ .

Für diese Bestimmung der Fallenkonstanten muss jede Richtung einzeln kalibriert, also angeregt werden. Alternativ kann für die Kalibrierung auch eine dreieckförmige Schwingung gewählt werden. Bei kleinen Schwingungsamplituden konnten mit dieser Methode auch die PSD's kalibriert werden. Dazu wurden deren Signale aufgenommen und mit dem Signal auf der Kamera verglichen. Beispielhaft zeigt Abbildung 6.9 eine vergleichende Messung zwischen einem PSD Signal und dem Kamerasignal. Die Schwingungsamplitude auf dem Kamerachip war bekannt und wurde dann mit dem Spannungssignal auf dem Detektor verglichen.



Abbildung 6.9: Das umgebende Wasser um eine  $2\mu m$  Kugel wurde mit einer Frequenz von 10Hzund einer Amplitude von 200nm in x-Richtung bewegt. Die schwarzen Punkte zeigen das PSD Signal das mit 10kHz aufgenommen wurde, während die rote Kurve das Kamerasignal, das mit 125Hz aufgenommen wurde, interpoliert.

Aus Abbildung 6.9 ergab sich ein Signalverhältnis von

$$80nm \approx 0.3V$$
, (6.14)

was einem Umrechnungsfaktor von 266. $\overline{6}$  nm/V entsprach.

Alternativ kann die Häufigkeitsverteilung der Positionen, wie in Abbildung 6.10 gezeigt, zur Ermittlung des Umrechnungsfaktors dienen. Die Schwingungsamplitude kann aus den Abständen der Maxima abgelesen und ins Verhältnis gesetzt werden.



Abbildung 6.10: Der Vergleich der Positionsverteilung auf dem PSD (rechts) im Vergleich zum dem Kamerachip (links) erlaubt die Kalibrierung des Detektors.

Hierbei konnte ein Umrechnungsfaktor von 190 nm/V ermittelt werden. Die Auswertungsmethode mit Hilfe der Histogramme ist dabei auf Grund der Statistik etwas genauer, so dass von einem Umrechnungsfaktor von etwa 190 nm/V ausgegangen werden kann.

Somit ist es auch bei diesen Kalibrierungsmethoden möglich über die Kugelauslenkung Rückschlüsse auf die Fallenkonstante zu ziehen.

#### 6.5 Korrekturen

Befindet sich die Kugel nahe an einer Wand oder dem Boden der Probenkammer, wie in Abbildung 6.11 dargestellt, so tritt auch dort eine hydrodynamische Wechselwirkung zwischen Kugel und Begrenzung auf. Bewegungen in Richtung der Begrenzungsfläche werden erschwert. Das Geschwindigkeitsfeld der Kugel, und damit die Flüssigkeit, muss entweder seitlich an der Begrenzungsfläche entlang fließen, oder zurück um die Kugel herum strömen. Dieser Sachverhalt verlangsamt die Kugelbewegung und kann als eine effektive Viskositätserhöhung der Flüssigkeit interpretiert werden. Sie ist vom Verhältnis zwischen Kugelradius R und Wandabstand h abhängig. Ist der Abstand zwischen Kugel und Begrenzung bekannt, so kann dem Effekt der Bewegungsminderung gemäß dem Faxen Gesetz Rechnung getragen werden [59]

$$\frac{\eta}{\eta_0} = \frac{1}{1 - \frac{9}{16} \left(\frac{R}{h}\right) + \frac{1}{8} \left(\frac{R}{h}\right)^3 - \frac{45}{256} \left(\frac{R}{h}\right)^4 - \frac{1}{16} \left(\frac{R}{h}\right)^5}.$$
(6.15)

In der Praxis spielt diese Korrektur bei Kugel-Rand Abständen von mehr als 5 Kugelradien kaum mehr eine Rolle, da die Erhöhung der Viskosität unter 12% liegt. Auf ausreichenden Abstand zur Begrenzung wurde während den Experimenten stets geachtet, so dass auf eine Korrektur verzichtet werden konnte.



Abbildung 6.11: Eine Kugel mir Radius R befindet sich in der Höhe h oberhalb einer Begrenzungsfläche (blau). Zu der Lösungsmittelviskosität  $\eta_0$  kommt eine hydrodynamische Kopplung zwischen Wand und Kugel hinzu, die das Fluktuationsverhalten der Kugel beeinflusst. Sie kann als effektive Viskositätserhöhung interpretiert werden.

# 6.6 Typische Kalibrierungswerte

Typische Fallenkonstanten, die mit einer optischen Falle generiert werden können, liegen im Bereich von  $1-100 \cdot 10^{-6} N/m(1-100 pN/\mu m)$  wobei Werte von  $1.5 \cdot 10^{-5} N/m$  bei konventionellen, nicht feedbackgesteuerten Fallen üblich sind [60]. An einer zweiten optischen Pinzette der Arbeitsgruppe sind Fallenkonstanten von  $0.5-5 \cdot 10^{-6} N/m$  üblich. Die Ortsauflösung reicht bei sehr guten Fallen auf Grund von Vibrationen bis in den Ångström Bereich [61]. Versucht man die maximale Fallenkraft abzuschätzen, so können typische Kugelauslenkungen von  $0.5\mu m$  dazu verwendet werden, so dass nach Gleichung (6.2) Kräfte zwischen 0.5-50pN in der Falle möglich sind.

Durch die limitierte Ortsauflösung sind schwache Fallen im Experiment zu bevorzugen. Bei ihnen legen die Bewegungen durch die thermischen Fluktuationen größere Distanzen zurück und sind so besser zu beobachten. Die Kraftauflösung ist also bei schwachen Fallen besser als bei starken. Andererseits erschweren schwache Fallen die Fixierung der Kugeln im Fluss.

Die Fallenkonstante wurde bei vorliegendem Aufbau als Funktion der einfallenden Leistung gemessen. Dazu wurde die ins Objektiv einfallende Leistung mit Hilfe eines Leistungsmessgeräts (Coherent LabMax Top mit PM3 Detektor) bestimmt. Die Fallenkonstante wurde aus Fluktuationsmessungen im ruhenden Medium gemäß Kapitel 6.1 mit der Kamera bestimmt.



Abbildung 6.12: Abgebildet ist die Fallenkonstante aus Fluktuationsmessungen einer  $4\mu m$  Kugel in Wasser als Funktion der Laserleistung des asymmetrisch justierten 473nm-Lasers.

Die unterschiedlichen Steigungen in Abbildung 6.12 weisen auf eine asymmetrische Falle hin. Durch eine verbesserte Justage der Falle konnte, wie Abbildung 6.13 zeigt, eine identische Abhängigkeit in beide Richtungen erreicht werden.



Abbildung 6.13: Abgebildet ist die Fallenkonstante aus Fluktuationsmessungen einer  $4\mu m$  Kugel in Wasser als Funktion der Laserleistung des symmetrisch justierten 532nm-Lasers.

In den Experimenten wurde durchgehend mit schwachen Fallen gearbeitet, die im Bereich zwischen  $5 \cdot 10^{-6} N/m$  und  $1 \cdot 10^{-5} N/m$  lagen, so das Kräfte im Pikonewton-Bereich realisiert wurden.

# 6.7 Vergleich der Kalibrierungsmethoden

Im Experiment stellte sich die Frage, welche Kalibrierungsmethode verwendet werden sollte. Die aktive Methode der Kalibrierung mit Hilfe der Piezo-Aktuatoren lieferte zumeist nur einen Anhaltspunkt für die Fallenstärke. Da die Bewegungen der Kugeln im Potential kleiner waren als die Auslenkungen der aktiven Schwingung, war diese Methode für kleine Auslenkungen nur bedingt geeignet. Dafür boten sich die passiven Methoden an. Sie beruhen auf der Messung der Fluktuationen und die Kalibrierung erfolgt auf der Skala der Fluktuationsbewegung selbst. Aus mathematischen Gründen sollten die Auswertungen des Leistungsspektrums und der Autokorrelation die gleichen Ergebnisse liefern. Die Anpassung der Autokorrelation gestaltete sich dabei einfacher als die Analyse der Leistungsspektren. Aus diesem Grund wurden die Kalibrierungen generell mit der Autokorrelationsmethode bestimmt. Dennoch lieferten Auswertungen der übrigen Methoden im Rahmen der Messgenauigkeit vergleichbare Ergebnisse.

### 6.8 Scherratenbestimmung

Es gibt mehrere Möglichkeiten, um die Scherrate im Scherfluss zu bestimmen. Die wohl sicherste Bestimmung kann mit der Particle Tracking Velocimetry Methode (kurz: PTV für Geschwindigkeitsmessung bei Teilchenverfolgung) gewährleistet werden. Dabei bewegt sich ein Teilchen im Scherfluss während der Messung durch den Aufnahmebereich der Kamera. In Abbildung 6.14 ist eine Abfolge von PTV-Bildern dargestellt.



Abbildung 6.14: Dargestellt ist die Bildfolge der PTV Messung mit  $3\mu m$  großen Kugeln. Die beiden unteren Kugeln waren in den optischen Fallen gefangen während die obere Kugel dem Strömungsprofil folgte. Das zeitliche Intervall zwischen zwei Bildern beträgt 0.033*s* wobei die Bilder mit 15*kHz* aufgenommen wurden.

Der Verlauf einer Kugel für die Geschwindigkeitsmessung wurde mit einem eigens geschriebenen PTV-Algorithmus in LabVIEW analysiert und ist in Abbildung 6.15 aufgezeigt. Damit konnte die Teilchenposition als Funktion der Zeit bestimmt werden, woraus die Teilchengeschwindigkeit ermittelt werden konnte. Mit Hilfe des Teilchenabstandes zur Falle ergab sich, unter der Annahme eines verschwindenden Geschwindigkeitsfeldes am Ort der Fallen, die Scherrate.



Abbildung 6.15: Die beiden unteren Kugeln befinden sich in den beiden optischen Potentialen und stellen somit die beiden Kugeln der Zweiteilchenkorrelation dar. Die obere Kugel ist frei beweglich und folgt dem Strömungsfeld. Der zeitliche Positionsverlauf dieser Kugel ist in rot eingezeichnet, sie bewegt sich in leicht gekrümmter Form von links nach rechts. Die Geschwindigkeit der Kugel betrug  $v = 45 \,\mu m/s$ . Nimmt man an, dass sich die beiden gefangenen Kugeln im Stagnationspunkt der Strömung befinden und so den Ort verschwindender Geschwindigkeit festlegen, so kann durch dessen Abstand zur bewegenden Kugel die Scherrate mit  $\gamma \approx 11s^{-1}$ abgeschätzt werden.

Eine weitere Möglichkeit zur Scherratenbestimmung, so wird in Kapitel 8.4.1 mit Gleichung (8.33) klar, ergibt sich aus der Bestimmung der Weissenbergzahl. Ist sie bekannt, so kann aus der leicht zu ermittelnden Relaxationszeit  $\tau$  die Scherrate nach GLeichung (8.33) errechnet werden. Das Problem reduziert sich also auf die Weissenbergzahl-Bestimmung. Diese kann beispielsweise aus dem Verhältnis der elliptischen Hauptachsen oder deren Drehwinkel der Kugelortsverteilung gemäß Gleichung (8.48) oder (8.47) aus Kapitel bestimmt werden. Alternativ kann gemäß Kapitel 8.5 das Verhältnis der  $\langle x(0)y(0)\rangle$  Kreuzkorrelation zur  $\langle y(0)y(0)\rangle$ Autokorrelation zum Zeitpunkt Null ermittelt werden. Dieses Verhältnis entspricht nach Gleichung (8.49) der halben Weissenbergzahl.

# 6.9 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden verschiedene Kalibrierungsmethoden vorgestellt, mit denen es möglich ist, den Fallenparameter k zu bestimmen um auf Kräfte zu schließen, die auf die Kugel wirken. Die Unterscheidung in passive und aktive Kalibrierungsmethoden ermöglicht dabei die Einteilung der Kalibrierungen. Die wichtigsten Methoden in dieser Arbeit waren die Bestimmungen der thermischen Fluktuationsmessungen und die Stokes-Kalibrierung. Erstere hat den wesentlichen Vorteil, dass neben der Temperatur des Systems nur die Verteilung der Kugelpositionen ermittelt werden muss und die Kalibrierung lösungsmittelunabhängig ist. Prinzipiell eignen sich alle Kalibrierungen sowohl für die Kamera- als auch für die PSD-Messungen. Dennoch ist insbesondere bei der Auswertung der Leistungsspektren mit Hilfe der Kamera aufgrund der geringeren Aufnahmezeit Vorsicht geboten.

Ein besonderes Augenmerk muss bei allen Messungen auf den Abstand zwischen der gefangenen Kugel und der Probenwand gerichtet werden. Liegt der Abstand in der Größenordnung des Kugeldurchmessers, so muss eine Korrektur sowohl in der Kalibrierung als auch in den Messungen eingerechnet werden.

Desweiteren wurden typische Größenordnungen der Fallenkonstanten optischer Pinzetten aufgeführt und ein Überblick über die Fallenkonstante als Funktion der Laserleistung gegeben.

Letztlich wurden noch Methoden zur Scherratenbestimmung beziehungsweise zur Bestimmung der Weissenbergzahl im System angesprochen um die Scherströmung zu charakterisieren.

# 7 Mikrofluidik

Eine äußerst wichtige Voraussetzung für die hier vorgestellten Messungen ist die Möglichkeit, in einem Geschwindigkeitsfeld zu arbeiten, das eine hohe Scherrate aufweist. Eine adäguate Technik hierfür ist die Benutzung einer mikrofluidischen Flusszelle. Hierbei kann das Strömungsverhalten von Flüssigkeiten auf mikroskopischer Skala generiert und beobachtet werden. Die zu beobachtende Flüssigkeit strömt dabei durch rechteckige Kanäle, deren Querschnitt eine Größenordnung von  $10-100 \mu m$  besitzet. Die geometrische Anordnung der Kanäle ist dabei sehr variabel. Die Herstellung solch kleiner Strukturen erfolgt zumeist mit Hilfe der Fotolithografie. Die Konstruktion einer mikrofluidischen Flusszelle ist in mehrere Stufen gegliedert [62]. Nach der Herstellung eines Masters wird die Negativstruktur abgegossen. Der ausgehärtete Abguss wird daraufhin mit einer entsprechenden Unterlage, zumeist mit Mikroskopdeckgläsern, fest verbunden. Nach der Anbringung von Zu- und Abflussschläuchen ist die Flusszelle dann einsatzbereit. Die Herstellung und Verwendung solcher mikrofluidischer Zellen ist ein wichtiges Hilfsmittel in der modernen Forschung. Neben der Biotechnologie [63, 64] und der Chemie [65] profitiert auch die Medizintechnik für Zellanalysen [66] von diesem Hilfsmittel.

In diesem Kapitel wird die Konstruktion einer speziellen Flusszelle vorgestellt, die Messungen im Scherfluss mit der optischen Pinzette ermöglichte. Ein Vergleich der simulierten Flussprofile mit experimentellen Messungen wird aufgeführt. Als Alternative zu dieser komplizierten Geometrie wird ein Rechteckkanal vorgestellt, in dem ebenfalls eine Scherströmung generiert wurde.

Um die benötigte Messqualität zu erreichen, wurden einige Anforderungen an die Flusszelle gestellt, die mit demineralisiertem Wasser betrieben und mit optischen Pinzetten kombinierbar sein sollte. Im Wesentlichen konnten die Anforderungen auf vier fundamentale Eigenschaften reduziert werden:

- 1. Möglichst kleine Geschwindigkeiten an der Messposition der Kugel, um eine Flucht aus dem harmonischen Fallenpotential zu verhindern
- 2. Möglichst hohe Scherrate am Ort der Kugel in eine Raumrichtung, um spätere Korrelationseffekte zu maximieren bei gleichzeitig verschwindenden Scherraten in die beiden verbleibenden Richtungen
- Möglichst große Entfernung der Kugel von Regionen wechselnden Brechungsindizes (Übergang Wand – Flüssigkeit), um eine Verzerrung des harmonischen Fallenpotentials und hydrodynamische Wechselwirkungen zwischen Kugel und Begrenzung zu verhindern

4. Antrieb der Flüssigkeit durch hydrostatischen Schweredruck der Flüssigkeit, um die Verwendung von vibrierenden Spritzenpumpen zu vermeiden.

# 7.1 Gegenströmung

Diese vier Eigenschaften konnten in einer Flusszelle mit Gegenströmung vereint werden. Die fundamentale Idee hierbei besteht in dem gegeneinander Vorbeifließen von zwei Flüssigkeitsfronten wie in Abbildung 7.1 skizziert. Senkrecht zu deren Strömungsrichtungen entstehen Geschwindigkeitsgradienten, während in der Mitte der Fronten die Geschwindigkeit selbst verschwindet, sobald die Geschwindigkeitsbeträge beider Fronten identisch sind.



Abbildung 7.1: Der Gegenströmungskanals hat links oben und rechts unten Zuflüsse, die die Flüssigkeitsfronten ausbilden und senkrecht zur Strömung einen Gradienten formen. Das simulierte Geschwindigkeitsprofil im Stagnationspunkt ist rechts abgebildet. Die maximale Geschwindigkeit in den Zuflüssen betrug dabei  $v_{max} = 1.1 mm/s$ .

Um nun die Geometrie der Kanäle zu optimieren, wurde eine kommerzielle Computer Aided Design (CAD) Software der Firma Comsol (Multiphysics 3.4) verwendet. Hiermit gelang es, das Design unter Berücksichtigung der geforderten Eigenschaften kontinuierlich zu verbessern und zu optimieren.

Bei der Anordnung einer Gegenströmung musste ein Mischeffekt der beiden Strömungen vermieden werden. Die Flüssigkeiten sollten aneinander vorbei fließen, ohne dass Wirbel im System auftreten. Durch eine Simulation des Strömungsfeldes in der Flusszelle in Abhängigkeit der Geometrie wurde deren Optimierung erzielt. Zur Simulation der Strömung wurde die Navier-Stokes-Gleichung als fundamentale Gleichung in der Strömungsmechanik benutzt. Sie beschreibt das Strömungsverhalten Newtonscher Flüssigkeiten. Im vorliegenden Fall einer einfachen Flüssigkeit konnte diese als inkompressibel angesehen werden, was die Differentialgleichung wesentlich vereinfacht. Die Gleichung wurde bereits in Gleichung (3.1) vorgestellt und wird hier der Vollständigkeit halber nochmals aufgeführt

$$\rho \dot{\vec{v}} = -\nabla \rho + \eta \Delta \vec{v} - \rho \left( \vec{v} \cdot \nabla \right) \vec{v} + \vec{F}.$$
(7.1)

Das inkompressible Verhalten der Flüssigkeit spiegelt sich in der Divergenzfreiheit des Feldes wieder

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0. \tag{7.2}$$

Die Simulationen wurden mit Hilfe des Multiphysik Moduls "Inkompressibler Navier-Stokes-Fluss" in 3D durchgeführt [67]. Das Strömungsfeld wurde mit Hilfe der Finite-Elemente-Methode numerisch errechnet [68]. Dabei wird der gesamte dreidimensionale Stömungsraum durch das sogenannte Rechennetz in viele kleine Elemente unterteilt. Auf diesem Netz werden die Differentialgleichungen unter der Berücksichtigung der Randbedingungen iterativ gelöst. Die typische Anzahl von Knotenpunkten in der Geometrie lag bei ca. 20000 was mit den noslip Randbedingungen an den Wänden auf über 440000 Freiheitsgrade führte. Um solch ein Gleichungssystem lösen zu können, wurde die stationäre Lösung mit dem direkten Lösungsverfahren gewählt. Dabei kam der lineare Gleichungslöser UMFPACK zur Anwendung. Dieser führte auf einem 64bit Betriebssystem mit einem Athlon 2.6GHz Dual Core Rechner unter Verwendung von 4GB Arbeitsspeicher nach mehreren Stunden zur Lösung.

Die Entwicklung des geometrischen Designs erfolgte durch kontinuierliche Optimierung. Beginnend mit der Abschätzung des Kanaldurchmessers für den hydrostatischen Antrieb wurden anschließend die Mischungskammer als Kernstück der Mikrofluidik und letztlich die Anschlüsse konzipiert. Im Abbildung 7.2 ist der wesentliche Teil der Mischkammer abgebildet. Mit dieser Geometrie gelang es, Strömungslinien in der Kammer zu simulieren, die einerseits keinerlei Verwirbelungen zeigten und andererseits aneinander vorbei strömten. Wichtig bei dieser Geometrie sind die beiden spitzen Einbuchtungen im Zentrum der Mischkammer. Verwendet man gerade Begrenzungen, die eine Ausrichtung entlang der y-Koordinate besitzen, so bilden sich an den Stellen der hier gezeichneten Einbuchtungen Wirbel. Diese Wirbel können ganz einfach unterdrückt werden, wenn das Volumen, das die Wirbel einnehmen, als feste Begrenzungsfläche, also als Rand, gewählt wird. Folgen dann noch die Kanten in etwa den Strömungslinien im Kanal selbst, so entstehen keine neuen Wirbel. Die Spitzen auf beiden Seiten dienen zur Minderung der Geschwindigkeitskomponente in y-Richtung. Bei runderen Begrenzungen fällt es der Flüssigkeit leichter in vertikaler Richtung zu fließen, was unerwünscht ist. Die kleinste Kanaldimension betrug 50 $\mu$ m. In größerer Entfernung zur Mischkammer wuchsen die Kanaldimensionen der Zu- und Abläufe auf 100 µm und verringerten



somit den Strömungswiderstand der Anordnung. Die Höhe der Mikrofluidik betrug überall 150 *µm*.

Abbildung 7.2: a) Die simulierten Strömungslinien sind mit rot in die Geometrie eingezeichnet, von unten rechts und oben links erfolgte der Zufluss; die beiden optischen Fallen sind schematisch mit einem blauen und einem grünen Punkt an der späteren Messposition eingezeichnet. b) Abgebildet ist die Geschwindigkeitskomponente in x-Richtung beim vertikalen Schnitt durch die Mitte der Mikrofluidik (gestrichelte Linie in a)).

Betrachtet man den Schnitt durch das simulierte Geschwindigkeitsfeld in x-Richtung in der Mitte der Mischkammer (Abbildung 7.2 b)), so ist zu erkennen, dass die Geschwindigkeit im Zentrum verschwindet. Sie nimmt von dort aus in sehr guter Näherung betragsmäßig linear zu, so dass die Scherrate dort konstant ist. Die Geschwindigkeitsbeträge der verbleibenden Raumrichtungen waren im Zentrum der Kammer kleiner als 2% der Hauptgeschwindigkeitskomponenten und damit vernachlässigbar.

Das Untersuchungsvolumen, in dem sich die Kugeln bei den Messungen später befanden, lag in der xy-Ebene mehr als  $30\,\mu m$  vom Rand entfernt. Somit konnten sowohl die hydrodynamische Wechselwirkung der Kugel als auch die optische Beeinflussung der Ränder auf die Falle ausgeschlossen werden.

Durch die Höhe der Strömungskanäle und die Verbreiterung in größerer Entfernung zur Mischkammer, konnte die Flusszelle mit einem hydrostatischen Druck betrieben werden. Der Gegendruck des Zu- und Abflusse kann, gegenüber der in Abbildung 7.2 abgebildeten Probenzelle, vernachlässigt werden. Bei einer maximalen Geschwindigkeit von 0.15 m/s im Eingang der Probenzelle ergab sich in der Simulation gemäß Abbildung 7.3 ein maximaler

Gegendruck von 3*mbar*, was einer hydrostatischen Wassersäule von nur etwa 3*cm* entspricht. Damit war der Gegendruck gering genug um die Anordnung hydrostatisch zu betreiben.



Abbildung 7.3: Druckverteilung bei einer maximalen Durchflussgeschwindigkeit von 0.15 m/s.

Die oben geforderten Eigenschaften an die Mikrofluidik konnten so durch die geschickte Gestaltung der Flusszelle erfüllt werden.

Nachdem die Geometrie in ausreichendem Maß optimiert war, bestand der nächste Schritt darin, einen Master zu generieren, um die Flusszelle herzustellen. Hierbei erwies sich die Technik der Fotolithographie als geeignetes Mittel. Dazu wurde eine Fotomaske verwendet, die von der Firma J.D. Photo-Tools, United Kingdom, mit 64000 dpi erstellt wurde. Diese Maske gewährleistete eine Genauigkeit von ca.  $0.5 \mu m$  und war somit für hiesige Zwecke ausreichend genau. Die Vorlage dieser Fotomaske entsprang einem Drawing Interchange Format (\*.dxf Datei), die mit Multiphysics 3.4 erzeugt wurde. In Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von Dr. Thomas Pfohl gelang es am Max Planck Institut für Dynamik und Selbstorganisation in Göttingen, die gewünschten Master herzustellen. Um die gewünschte Schichtdicke von 150 µm zu erreichen wurde etwa 1ml des Negativ Resist (SU-8 100, Microchem Corporation) auf einen Silizium-Wafer gegossen. Mit Hilfe eines Spin-coaters wurde der Wafer in Rotation versetzt und so der überflüssige Foto Resist vom Wafer geschleudert. Dazu wurde der Wafer von Null auf 500 Umdrehungen pro Minute (rpm) bei einer Beschleunigung von 100rpm in der Sekunde etwa 7 Sekunden lang rotiert. Danach wurde nochmals eine Geschwindigkeitsrampe gefahren. Bei einer Beschleunigung von 300rpm in der Sekunde wurde die Endgeschwindigkeit von 2000rpm für 30 Sekunden gehalten. So wurde eine  $150 \mu m$  dünne Schicht des Foto Resist erzielt [69]. Um diese Schicht später zu belichten, musste das Lösungsmittel des Resist ausdampfen um so eine harte Oberfläche zu erzeugen. Darauf konnte dann später die Fotomaske gelegt werden. Diese Härtung

erfolgte durch das sogenannte Soft Bake. Dabei wird der Resist 20 Minuten lang auf einer Metallplatte von 65° gebacken. Danach erfolgte ein weiterer Backvorgang bei 95° über 50 Minuten. Damit war die Schicht des Resist vorbereitet, um belichtet zu werden. Dazu wurde die Fotomaske mit dem Resist in Kontakt gebracht und mit UV Strahlung (350-400nm) belichtet. Der belichtete Resist härtete an den transparenten Stellen der Maske aus. Der gesamte Belichtungsprozess bestand aus vier Einzelbelichtungen zu je 15 Sekunden mit jeweils einer Minute Wartezeit zwischen den einzelnen Belichtungen. Nach diesem Belichtungsprozess wurde der Wafer mit dem Resist nochmals für eine Minute bei 65° und 12 Minuten bei 95° gebacken. Der belichtete Resist wurde im nächsten Prozessschritt entwickelt. Dazu wurde er für 15 Minuten in die Entwicklerlösung (Micro Resist Technology, mr-Dev 600) getaucht um den nicht belichteten Teil des Resist abzulösen. Nach der Spülung des fertigen Masters mit Isopropanol wurde eine Silanisierung vorgenommen ((Heptafluoropropyl)trimethylsilane, Sigma-Aldrich 431044), die das spätere ablösen des Abgusses vom Master erleichterte.

Das Verfahren lieferte eine Negativform der gewünschten Struktur mit einer Höhe Negativform wurde anschließend von 150*µm*. Diese mit flüssigem Polydimethylsiloxan (PDMS, Sylgard 186 Silicone Elastomer), ein im optischen Bereich transparentes Polymer, ausgegossen. Dieses Polymer wurde mit einem Crosslinker im Verhältnis 10:1 gemischt, um eine schnelle Aushärtung zu erzielen. Bei einer Temperatur von 65°C wurde das PDMS etwa vier Stunden gebacken, welches sich dadurch verfestigte. Nach der Ablösung des PDMS von dem Master wurde diese Polymerschicht mit Hilfe eines Plasmas (Harrick Plasma, Plasma Cleaner PDC-32G-2) mit einem Mikroskop-Deckglas verbunden. Dazu wurde sowohl Deckglas als auch die PDMS Form einem Raumluft Plasma im Druckbereich von einigen Millibar ausgesetzt. Durch dieses Plasma entstehen Silanol Gruppen am PDMS (Si - OH) und Hydroxylgruppen (OH) am Glas. Bringt man nun beide Oberflächen zusammen, so entstehen aus den beiden polaren Gruppen eine kovalente Bindung (O - Si - O), die die beiden Bauteile zusammenhalten [70]. Damit war das PDMS irreversibel mit dem Deckglas verbunden.

Um nun die Kanäle durchströmen zu lassen, mussten noch höhenverstellbare Flüssigkeitsreservoire an die Kanäle angeschlossen werden und so den hydrostatischen Antrieb realisieren. Die Verbindung erfolgte mit Hilfe von dünnen, flexiblen Schläuchen (Polythene Tubing, 0.58mm Innendurchmesser, 0.96mm Außendurchmesser). Die verwendete Flusszelle mit den zu- und Abflüssen ist in Abbildung 7.4 dargestellt. Die Schläuche verbanden die Mikrostruktur mit Kanülen, die wiederum mit Spritzenkolben einer Füllmenge von 3*ml* verbunden waren. Durch computergesteuerte vertikal ausgerichtete DC Stellmotoren konnte die Höhe der beiden Flüssigkeitsreservoire, die Spritzenkolben, sehr präzise eingestellt werden. An den Ausgängen der Mikrofluidik waren ebenfalls Schläuche an höhenverstellbare Reservoire angebracht, die die durchgelaufene Flüssigkeit auffingen.



Abbildung 7.4: Einsatzbereiter Gegenstomkanal mit zwei Zuläufen (oben links, unten rechts) und zwei Abflüssen (unten links, oben rechts) auf einem Deckglas, die Flussrichtungen sind rot eingezeichnet.

Um die Übereinstimmung der Simulationen mit den im realen System vorherrschenden Stromlinien zu zeigen, wurde durch Particle Image Velocimetry (PIV) Messungen das Strömungsfeld charakterisiert. Die PIV Messungen wurden mit oben vorgestelltem Aufbau durchgeführt. Dabei wurde noch eine Streulinse (f=-10 mm) vor den dichroitischen Spiegel im Mikroskop gesetzt, um das Probenvolumen homogener und nicht kolimiert auszuleuchten. Zur Bildaufnahme wurde die Olympus Encore MAC PCI 1000S Kamera verwendet. Als Tracer Partikel  $1\mu m$ wurden fluoreszierende Kugeln mit Durchmesser und einer Volumenkonzentration von  $1.3 \cdot 10^{-4}$  benutzt (Invitrogen, F8819), die bei einer Wellenlänge von 535nm ihr Absorptionsmaximum besaßen und deren Emissionsmaximum bei  $\lambda = 575$ nm lag. Aufgrund der Wellenlänge eignete sich der Ventus Laser mit einer Wellenlänge von 532nm exzellent zur Anregung der Fluoreszenz. Die emittierte Strahlung der Kugeln konnte durch die Filteranordnung mit der Kamera eingefangen werden. Die starke Vergrößerung des Öl-Immersion-Objektivs führte zu einer räumlich sehr beschränkten Aufnahme. So war es nur möglich die Mischkammer in der Mitte, also in dem für die Messungen interessanten Gebiet zu beobachten. Gleichzeitig ist dort die räumliche Auflösung der Messung sehr gut. Es gelang, einen Ausschnitt von  $48 \times 42 \mu m^2$  mit einer zeitlichen Auflösung von 250Hz aufzunehmen. Mit Hilfe eines PIV Tools für Matlab (The MathWorks, Matlab R2007a) wurde ein Bild iterativ in immer kleinere Gitter zerlegt (64x64,32x32 Pixel), auf denen die Korrelationen zum Folgebild errechnet wurden [71]. Dabei wurde eine Überlappung der Gitter von 50% ihrer Größe erlaubt. Auf weitere Filter zum Glätten der Daten wurde verzichtet, um die Ergebnisse möglichst wenig zu verfälschen. Der komplette Code der Auswertung kann Kapitel 10.2 entnommen werden.



Abbildung 7.5: a) Zu sehen ist die farbliche Kodierung der PIV Aufnahme der x-Geschwindigkeitskomponente des Stagnationspunktes im Probenvolumen bei 4.2mm Höhendifferenz zwischen Zuleitungsein- und –ausgang. In rot sind Strömungslinien eingezeichnet, der Farbverlauf gibt den Betrag und die Richtung der Geschwindigkeitskomponente an; b) Extrahiertes x-Geschwindigkeitsprofil entlang der y-Richtung bei  $x = 8 \mu m$ .

Der Vergleich der Strömungslinien von Abbildung 7.2 und Abbildung 7.5 zeigt, wie gut Simulation und Realität übereinstimmen.

Analysiert man zusätzlich die y-Komponente der Geschwindigkeit aus Abbildung 7.6, so wird klar, dass praktisch kein Gradient in x-Richtung vorhanden ist. Während also die Scherrate in y-Richtung eine lineare Abhängigkeit der Geschwindigkeit in x-Richtung aufweist, verschwindet die Scherrate entlang der x-Richtung der y-Geschwindigkeitskomponente.

Somit war das geforderte Strömungsprofil experimentell nachgewiesen.



Abbildung 7.6: a) Zu sehen ist die farbliche Kodierung der PIV Aufnahme der **y**-Geschwindigkeitskomponente des **Stagnationspunktes** im Probenvolumen bei 4.2mm Höhendifferenz zwischen Zuleitungsein- und -ausgang. In rot sind Strömungslinien eingezeichnet, der Farbverlauf gibt den Betrag und die Richtung der Geschwindigkeitskomponent e an, die im Stagnationspunkt selbst vernachlässigbar klein **Extrahiertes** ist. b) **V**-Geschwindigkeitsprofil entlang der x-Richtung bei  $y = 2.5 \mu m$ .

Der Betrieb der Flusszelle selbst erwies sich im Experiment als sehr schwierig. Kleine Unterschiede in den Flussgeschwindigkeiten der Zuflüsse führten zu einem ungewollten Fluss in vertikaler Richtung, was die Ausbildung des Geschwindigkeitsgradienten verhinderte. Aufgrund der geringen, aber doch merklichen Unterschiede der Zuleitungslängen zur Fluidik hin konnten die beiden Zuflüsse nicht gemeinsam an ein Reservoir angeschlossen werden. Zudem führten leichte Knicke in den Zuleitungen sowie kleine Ablagerungen und sonstige Störungen zu einem erhöhten Strömungswiderstand und so zu einem geringeren Durchfluss durch einen der beiden Zuläufe, was nur mit Hilfe einer separaten Höheneinstellung für jede Zuleitung ausgeglichen werden konnte. Es verlangte sehr viel Fingerspitzengefühl, die relative Höhe der Zuflüsse so einzustellen, dass die beiden Strömungen in der Mischkammer ausgeglichen waren. Erschwert wurde dieser Sachverhalt dadurch, dass bei den Korrelationsmessungen die Kugeln in den Fallen verbleiben mussten.

Bei den Korrelationsmessungen selbst musste ein gewisser Abstand der Kugeln zum Boden eingehalten werden. Bei einem Kugel-Boden-Abstand der im Bereich des Kugeldurchmessers liegt, muss die hydrodynamische Wechselwirkung berücksichtigt werden wie in Kapitel 6.5 erläutert wurde [59, 72]. Um diese Wechselwirkung vernachlässigen zu können, wurden alle Messungen in einer Höhe  $\geq 15 \mu m$  durchgeführt. In dieser Höhe ist dieser Effekt der effektiven Viskositätserhöhung nach Gleichung (6.15) kleiner als 6%.

# 7.2 Gerader Kanal

Die bisher vorgestellte Geometrie der Gegenströmung erforderte einigen Aufwand bei der Herstellung, angefangen vom Design bis hin zur Herstellung der Gussform im Reinraum. Außerdem war der Betrieb wenig benutzerfreundlich.

Um eine einfache Geometrie zur Messung zur verwenden, wurden die Korrelationsbestimmungen im Scherfluss zusätzlich in einer geraden Fluidik mit einem quadratischem Querschnitt von  $300 \times 300 \,\mu m^2$  durchgeführt. Dieser relativ große Querschnitt verursacht einen geringen Strömungswiderstand des Kanals, was ebenfalls Messungen mit hydrostatischem Antrieb erlaubte.

Durch den rechteckigen Kanal entstehen Geschwindigkeitsprofile, die in erster Näherung den Profilen im runden Rohr, dem parabolischen Profil, ähneln. In [26] ist die Entwicklung des Geschwindigkeitsfeldes für einen Rechteckkanal aufgeführt

$$v(z,y) = \frac{3Q}{8ab^{3}F(a/b)} \left[ b^{2} - z^{2} + 4b^{2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^{n}}{\alpha_{n}^{3}} \frac{\cosh(\alpha_{n}y/b)}{\cosh(\alpha_{n}a/b)} \cos\left(\alpha_{n}\frac{z}{b}\right) \right]. \quad (7.3)$$

Hierbei beschreibt b die halbe Kanalhöhe (z-Koordinate), a die halbe Kanalbreite (y-Koordinate),  $\alpha_n = (2n-1)\pi/2$ , Q den Volumenfluss durch den Kanal und

$$F(a/b) = 1 - \frac{6}{a/b} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\tanh(\alpha_n a/b)}{\alpha_n^5}$$
. Die Flussrichtung ist entlang der x-Koordinate

ausgerichtet. Die Funktion F beschreibt die Änderung des Durchflusses aufgrund der Geometrie. Dabei findet ein Übergang vom Hagen-Poiseuille Profil zu einem Fluss zwischen zwei parallelen Wänden statt. Der verwendete Kanal besaß ein Seitenverhältnis von a/b=1, daraus ergibt sich für  $F(1) \approx 0.42$ . Das Geschwindigkeitsfeld in Gleichung (7.3) hat eine Abhängigkeit von der y-Komponente, woraus die gewünschte Scherung in y-Richtung resultiert. In Abbildung 7.7 ist das Profil aus Gleichung (7.3) zu erkennen und man stellt fest, dass die Messungen in dieser Fluidik in Wandnähe (ca.  $10\mu m$  Wandabstand)
durchgeführt werden müssen, um geringe Geschwindigkeiten und hohe Scherraten zu erzielen. Bei Kugel-Wand-Abständen im Bereich des Kugeldurchmessers können allerdings hydrodynamische Wechselwirkungen mit der Wand nicht vernachlässigt werden. Die in Kapitel 6.5 vorgestellte Korrektur ergibt nach Gleichung (6.15) eine effektive Viskositätserhöhung um 10%. Aus diesem Grund musste bei der Messung im einfachen Kanal der Wandabstand in Betracht gezogen werden. Außerdem ist zu erkennen, dass die Scherrate in z-Richtung an der Messposition (>10 $\mu m$  vom Boden entfernt) mit der y-Scherrate vergleichbar ist.



Abbildung 7.7: Links ist das simulierte Geschwindigkeitsprofil aus Gleichung (7.3) zu sehen, rechts ein Ausschnitt des Profils mit realistisch eingezeichnetem Objektiv-Öffnungswinkel in grün an der Messposition.

Bei der Herstellung der Flusszelle diente ein Metallstempel als Master. Dieser wurde mit Hilfe einer Computerized Numerical Control Fräse (CNC Fräse) hergestellt. Der Negativabdruck beschrieb einen geraden Kanal mit rechteckigem Querschnitt. Ein Fräser entfernte beim Fertigungsvorgang das Metall großflächig mit Ausnahme der Stellen an denen später der Negativkanal stehen bleiben sollte. Die Tiefe der Fräsung war nahezu beliebig einstellbar.

Nach der Herstellung des Masters konnte ein linearer Strömungskanal, wie er in Abbildung 7.8 zu sehen ist, analog zu der Anordnung der Gegenströmung in PDMS angefertigt werden.



Abbildung 7.8: Abgebildet ist ein einsatzbereiter gerader Strömungskanal mit einem Zulauf und einem Abfluss, die Flussrichtung der Flüssigkeit ist in rot eingezeichnet.

Durch die runde Form des Fräskopfs verblieb allerdings aus technischen Gründen eine runde Kante mit einem Radius von etwa  $160 \mu m$ . Diese runde Kante befand sich später am angehefteten Deckglas und somit im Bereich der Messposition und wird darum nachfolgend näher untersucht.

Um den Einfluss dieser Wölbung in der Geometrie zu verstehen, wurde mit Hilfe von Multiphysics 3.4 eine Simulation dieser Geometrie durchgeführt, die in Abbildung 7.9 zu erkennen ist. Die Geschwindigkeit in dem Strömungskanal wurde realistisch gewählt, indem der Durchfluss in einer realen Messung ermittelt wurde  $(1.5 \cdot 10^{-9} m^3/s$  im Experiment zu  $1.45 \cdot 10^{-9} m^3/s$  in der Simulation). Es wurde wiederum ein inkompressibler Navier-Stokes-Fluss in 3D unter der Verwendung von no slip Randbedingungen simuliert.



Abbildung 7.9: Dargestellt ist das simulierte Geschwindigkeitsfeld des Kanalquerschnitts mit realistisch in grün eingezeichnetem Objektiv-Öffnungswinkel in realistischer Messposition, die Geschwindigkeit an der Messposition beträgt etwa 50  $\mu$ m/s.

Da die Geschwindigkeiten in einer Bodenhöhe von  $10 \mu m$  aus messtechnischen Gründen sehr interessant sind, wurden in dieser Höhe die Geschwindigkeiten näher analysiert und sind in Abbildung 7.10 abgebildet.



Betrachtet man die Scherraten bei dieser Höhe und vergleicht sie mit den Scherraten in einer Höhe von  $290 \mu m$  ( $10 \mu m$ Abstand zum oberen, rechteckigen Rand der Fluidik), so ist ein wesentlicher Unterschied im Verlauf zu erkennen. Dabei beschreibt das Profil bei 290 $\mu m$  den Idealfall der senkrechten Wand. Während die Scherrate im Fall der Rechteckbegrenzung gemäß Abbildung 7.11 am Rand stark ansteigt, konvergiert bei der keilförmigen Geometrie die Scherrate gegen Null.



Abbildung 7.11: Dargestellt sind Scherraten in der Keilform (grün) und am rechtwinkligen Kanal (rot), die gestrichelte Linie markiert die Position der senkrechten Wand, an der die Scherrate im rechtwinkligen Kanal stark ansteigt. Die Messposition im Experiment ist durch den Pfeil markiert.

in

Aus diesem Grund ist die Scherrate in der keilförmigen Geometrie zwar schwächer, deren Änderung über die Geometrie hinweg ist allerdings wesentlich geringer, was eine verlässlichere Aussage über die Scherrate am Messpunkt ermöglicht. Dort konnte die Scherrate mit etwa 8s<sup>-1</sup> bei der hier dargestellten Simulation abgeschätzt werden.

In Abbildung 7.9 ist zu erkennen, dass durch die Krümmung der Kanalwand aus geometrischen Gründen der optische Weg des Lasers durch die Übergänge Glas-PDMS und PDMS-Wasser im Gegensatz zu Abbildung 7.7 vermieden wird. Damit bleibt die Fallenqualität unbeeinflusst.

Die Geschwindigkeitskomponenten in z-Richtung waren bei der Simulation um den Faktor 10 bis 20 Kleiner als in y-Richtung und damit auflösungsbedingt fehlerbehaftet. Eine zuverlässige Auswertung der Scherrate erwies sich darum als schwierig. Dennoch sollte die Scherrung in z-Richtung nicht vernachlässigt werden und man kann durch Abschätzungen annehmen, dass sie eine Größenordnung unter der Scherrate in y-Richtung liegt.

# 7.3 Vergleich beider Mikrofluidiken

Der Prozess der Herstellung des Rechteckkanals gestaltete sich wesentlich einfacher als die Gegenströmungsanordnung. Durch die größere Struktur konnte eine Gussform mit einfachen mechanischen Mitteln generiert werden, während bei der gegenströmenden Fluidik die Technik der Fotolithographie verwendet werden musste. Dazu wird ein Reinraum benötigt, der möglichst mit einem Mask Aligner ausgestattet sein sollte. Außerdem ist der Betrieb der einfachen Anordnung wesentlich benutzerfreundlicher als die Gegenströmungsgeometrie. Während beim geraden Kanal nur das Höhenverhältnis von Ein- und Auslass für den Fluss entscheidend ist, muss in der Gegenströmung das Verhältnis aller vier Anschlüsse kontrolliert werden.

Ausschlaggebend für die Verwendung der komplizierten Gegenstromfluidik war die gute Qualität der Scherströmung. Die PIV Messungen zeigten in y-Richtung einen nahezu perfekten linearen Schergradienten an der Messposition auf. Andere Schergradienten waren vernachlässigbar klein. In der simulierten Strömung des geraden Kanals war dies nicht der Fall. Hier war der Gradient am Ort der Messung in z-Richtung nicht vernachlässigbar. Die Simulationen des realen Querschnitts ließen auf ein Verhältnis der Scherraten von 10:1 schließen. Als Vorteilhaft hat sich die runde Form der Kanalwand herausgestellt, die es erlaubte die Scherraten aufgrund der geringen Ortsvariation lokal abzuschätzen. Die gefangenen Kugeln befinden sich jedoch aufgrund der nicht verschwindenden mittleren Geschwindigkeit immer in einem Nettofluss, was unter Umständen problematisch ist, da es das Festhalten in der Falle erschwert. Die Fluidik eignet sich also prinzipiell zur Scherratengeneration, wenn die Ansprüche an den Fluss nicht zu hoch sind und die Reibungskräfte durch das Geschwindigkeitsfeld an der Kugelposition kleiner als die Fallenkraft sind.

## 7.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Generierung einer Scherströmung mit Hilfe einer mikrofluidischen Flusszelle vorgestellt. Unter Berücksichtigung von Randbedingungen wurde ein Design entwickelt, das den geforderten Ansprüchen genügte. Es generierte ein lineares Scherprofil in einer Raumrichtung bei verschwindender Nettogeschwindigkeit in der Mitte der Zelle. Mit Hilfe der Fotolithographie-Technik gelang es, die Idee der Flusszelle auch praktisch zu realisieren. PIV Messungen in der Flusszelle zeigten eine sehr gute Übereinstimmung des realen Geschwindigkeitsprofils mit den simulierten Daten auf.

Da die geometrische Gestalt der Flusszelle relativ komplex gestaltet war und die Herstellung nur mit größerem Aufwand möglich ist, entstand die Idee den Schergradienten in einem Rechteckkanal zu generieren. Simulationen zeigten, dass der Schergradient in y-Richtung zwar am größten ist, die dazu senkrechte z-Raumrichtung weist allerdings ebenfalls eine nicht vernachlässigbare Scherung auf. Aufgrund der Überlagerung beider Scherrichtungen wird in dieser Geometrie prinzipiell ein Scherfluss mit minderer Qualität generiert. Dennoch können auch mit einem Rechteckkanal Scherraten im Bereich von  $10 - 20 s^{-1}$ erzielt werden, wobei dort allerdings die mittlere Geschwindigkeit nicht verschwindet.

# 8 Korrelationen

Der Kern der Arbeit liegt in dem Nachweis der hydrodynamischen Kopplung orthogonaler Bewegungsrichtungen von Brownschen Kugeln im Scherfluss. Diese Kopplungen können mit Hilfe einer sogenannten Korrelationsmessung nachgewiesen werden. Dieser Abschnitt der Arbeit befasst sich mit solchen Korrelationsfunktionen. Dabei wird sowohl auf die Theorie der Korrelationen als auch auf experimentelle Messungen eingegangen. Neben den Korrelationen einer Kugel wird auch auf die Kopplung zweier Kugeln im System erläutert. Die Diskussion beinhaltet darüber hinaus die Korrelationen mit und ohne anliegendem Scherfluss.

Die wichtigsten Korrelationen im Experiment sind die Korrelationen in der xy-Ebene, der Scherebene. Korrelationen, die eine z-Komponente besitzen, werden zwar theoretisch hier aufgeführt, haben praktisch allerdings keine Bedeutung, da die Ortsauflösung in z-Richtung, also entlang der optischen Achse, wesentlich geringer ist als in der xy-Ebene.

Soweit nicht anders angegeben, wurden die Experimente unter folgenden Voraussetzungen durchgeführt: die Polystyren-Kugeln mit Radius  $1.5 \mu m$  (Duke Scientific Corporation, R0300) waren in demineralisiertem Wasser eingebettet. Dessen Viskosität  $\eta$  wurde aufgrund der Raumtemperatur während den 20°-20.5°*C* mit Messunaen von 1mPa angenommen. Die beiden Fallenkonstanten k waren im Experiment nahezu identisch und werden auch in der Theorie als identisch in alle Richtungen behandelt. Der Fallenabstand bei den hier vorgestellten Messungen mit zwei Kugeln betrug, soweit nicht anders angegeben,  $4.5 \mu m$ . Bei den Einteilchenmessungen wurde nur der Laser bei 532nm verwendet.

### 8.1 Korrelationsfunktionen

Im Allgemeinen beschreiben Korrelationen die Beziehung zweier Signale, beispielsweise von Messgrößen. Dabei wird nicht auf den ursächlichen Zusammenhang eingegangen, lediglich der Sachverhalt dass Ereignisse zeitlich nacheinander in Erscheinung treten, wird dabei festgestellt. Ein anschauliches Beispiel ist die Korrelation des pflanzlichen Wachstums mit dem Niederschlag. Der Niederschlag selbst ist eine Bedingung für das Wachstum der Pflanzen, welches eine bestimmte Zeit später einsetzt. Andererseits ist der Niederschlag nicht direkt mit dem Wachstum korreliert. Aus dem Pflanzenwachstum folgt nicht direkt der Niederschlag. Damit ist schon eine wesentliche Eigenschaft der Korrelationsfunktion erfasst. Korrelationen sind im Allgemeinen zeitreversibel.

Zumeist ist man an zeitlichen Beziehungen der beiden Signale interessiert. Mathematisch erhält man eine zeitliche Korrelationsfunktion C(t') über die Integration

$$C(t') = K \int_{-\infty}^{\infty} x(t) y(t+t') dt, \qquad (8.1)$$

wobei K eine Normierung, und die beiden Funktionen x(t) und y(t) das Zeitverhalten der beiden Signale darstellen [73].

In experimentellen Messungen wird diese Form aufgelöst, das Integral wird diskretisiert, so dass es durch eine endliche Summe ersetzt wird. Die beiden Funktionen x(t) und y(t) sind in den Messungen Ortspositionen der Kugeln als Funktion der Zeit und haben die Dimension einer Länge im Fall der Kamera- oder einer Spannung bei den PSD-Messungen. Die analytische Korrelationsfunktion wurde bereits in Kapitel 5.3.1 vorgestellt und wird hier nochmals aufgeführt

$$C(k+N-1) = \frac{1}{a \cdot b \cdot w(k)} \sum_{n=0}^{N-1} x(n) y(n+k).$$
(8.2)

Die dabei auftauchenden Funktionen sind die eindimensionalen Ortskoordinaten der Kugeln. Der Index n entspricht letztlich einer Zeit, denn kennt man die Zeit zwischen zwei Messpunkten  $\Delta t$ , so ist durch n der relative Zeitpunkt festgelegt  $t = n \cdot \Delta t$ . Des einfacheren Verständnisses wegen, wird im Folgenden die Notation der Zeit t statt n verwendet. Außerdem werden die experimentell bestimmten Korrelationsfunktionen gemäß Gleichung (8.2) mit C(xy) bezeichnet was eine Unterscheidung von den theoretischen Funktionen ermöglicht. Zu beachten ist weiterhin, dass der Mittelwert jeder Ortskoordinate in den späteren Messungen verschwindet. Es existieren also zwei Koordinatensysteme, für jede Kugel ein eigenes. Dies ist dadurch gerechtfertigt, dass nur die relativen Verschiebungen der Kugeln betrachtet werden und der zeitliche Mittelwert der Koordinate eine Konstante ist, die Null gesetzt werden kann.

Die Korrelationsfunktion selbst errechnet sich gemäß Gleichung (8.2) aus dem Produkt der Ortskoordinaten. Im mehrdimensionalen Fall können die Korrelationsfunktionen komponentenweise errechnet werden und ergeben so eine Matrix. Ganz allgemein berechnet man das dyadische Produkt aus den einzelnen Kugelkoordinaten  $\vec{x}_j(t)$  und  $\vec{x}_j(t')^T$ , die die Lösungen der Bewegungsgleichung der Kugeln beschreiben

$$\vec{x}_{i}(t) \cdot \vec{x}_{j}(t')^{T} = \begin{pmatrix} x_{i}x_{j} & x_{i}y_{j} & x_{i}Z_{j} \\ y_{i}x_{j} & y_{i}y_{j} & y_{i}Z_{j} \\ z_{i}x_{j} & z_{i}y_{j} & z_{i}Z_{j} \end{pmatrix} = C_{ij}(t,t').$$
(8.3)

Man erhält dann die sogenannte Korrelationsmatrix, in der alle möglichen Korrelationen des Systems stehen.

## 8.2 Messdurchführung

Die Vorbereitungen zur Messung selbst erforderten große Sorgfalt und Präzision. So muss für einen zeitlich stabilen Fluss in der Fluidik ein Lufteinschluss in der Mischkammer und den Zuleitungen ausgeschlossen werden. Die Lufteinschlüsse wurden darum vor der Durchführung von Experimenten heraus gespült. Dafür wurden höhere Drücke benötigt als sie durch hydrostatischen Druck erreicht werden konnte. So wurde mit Hilfe einer Druckluftflasche ein externer Druck im Bereich von 50–100*mbar* an die mit Flüssigkeit gefüllten Reservoire angelegt. Die Ventilsteuerung für die Zuflüsse ermöglichte die Durchspülung der Flusszelle und der Zuleitungen mit Wasser und den suspendierten Kugeln. Erst wenn sichergestellt war, dass keine Lufteinschlüsse oder Verstopfungen im System waren, konnten die nachfolgenden Schritte durchgeführt werden.

Desweiteren musste auf eine richtige Ausrichtung der Flusszelle gegenüber dem Probentisch geachtet werden. Der Probentisch definiert letztlich das Koordinatensystem der Kugeln. Ist dieses gegenüber der Scherrichtung des Flusses verdreht, so ergeben sich unter Umständen ungewollte Korrelationen in der Auswertung. Dieser Sachverhalt wurde bereits in Kapitel 5.2.7 näher erläutert.

Die Höhe der Flüssigkeitsreservoire wurde mit der Unterstützung der computergesteuerten Stellmotoren so einjustiert, dass die Strömung selbst nahezu zum Erliegen kam. Nach der Aufwärmphase der Laser bei konstanter Leistung für etwa 15 Minuten wurden eine oder zwei die Kugeln in den optischen Fallen gefangen und im definierten Abstand zueinander angeordnet. Dabei wurden die Kugelpositionen nochmals beobachtet und analysiert, um eine gute Justage und symmetrische Fallenkonstanten zu gewährleisten. Eine Darstellung der betriebsbereiten Flusszelle mit einer optisch generierten Falle durch den 532nm Laser ist in Abbildung 8.1 zu erkennen.



Abbildung 8.1: Die mikrofluidische Gegenstromflusszelle wird durch zwei Zu- und zwei Abflüsse mit einer Kugellösung durchspült. Gleichzeitig generiert die optische Pinzette des 532nm-Lasers ein harmonisches Potential in der Mischkammer. Die obige Flusszelle hatte eine Abmessung von etwa  $3 \times 2.5 cm^2$ .

Mit Hilfe der beiden Stellmotoren wurden die Flüssigkeitsreservoire mit den suspendierten Kugeln angehoben. Durch den hydrostatischen Druck der Flüssigkeit entstand ein Fluss in den Zuleitungen der Fluidik. Gleichzeitig wurden die beiden Auslässe der Fluidik abgesenkt. Während der Geschwindigkeitserhöhung wurden die beiden gefangenen Kugeln im Zentrum der Mischkammer mit den optischen Fallen festgehalten. Bei gleichen Strömungsgeschwindigkeiten in beiden Zuflüssen, was mit Hilfe der suspendierten Kugeln in den Kanälen beobachtbar war, gelang dann das Festhalten der Kugeln in der Mitte der Flusszelle und somit im linearen Scherfeld. Bei den Messvorbereitungen war auf Grund der schwierigen Flusseinstellung der Erfolg des Experiments im Wesentlichen vom Geschick des Experimentators abhängig.

Die Aufzeichnung der Kugelpositionen durch die Hochgeschwindigkeitskamera erfolgte X-Stream 5 durch eine vom Kamerahersteller mitgelieferte Kamerasoftware, die es gestattete, einen Bereich auf dem Chip auszuwählen, auf dem sich die beiden Kugeln befanden. Die aufgenommen Bilder in dieser Region hatten eine Abmessung von  $128 \times 64$  Pixel bei einer Speichergröße von 10kbyte. Die Bilder wurden auf dem internen Speicher der Kamera von 4Gbyte zwischengespeichert. Nach Abschluss einer Messung wurden die Bilder dann lokal auf einer Festplatte gespeichert und mit den LabVIEW Programmen aus Kapitel 5.3 ausgewertet.

### 8.3 Korrelationen im ruhenden Medium

Im Folgenden wird die Positionskorrelation in der ruhenden Flüssigkeit theoretisch betrachtet. Die Herleitung kann in [12] und [13] nachvollzogen werden. Das Produkt der Ortskoordinaten, das der Korrelationsfunktion entspricht, wird im Folgenden mit  $\langle x(t)y(t')\rangle$  ausgedrückt. Multipliziert man zwei Vektoren als dyadisches Produkt gemäß  $\langle \vec{x}(t)\vec{y}(t')^T\rangle$ , so entsteht eine Korrelationsmatrix, die alle möglichen Produkte, also Korrelationen, enthält. Verwendet man die Lösung der Bewegungsgleichung einer Kugeln in der Falle im ruhenden Medium aus Gleichung (3.35), so kann diese Korrelationsmatrix errechnet werden

$$\left\langle \vec{x}_{j}(t)\vec{x}_{j}(t')^{T} \right\rangle = e^{-Hkt} \left\langle \vec{x}_{j0}\vec{x}_{j0}^{T} \right\rangle e^{-H^{T}kt'} + \int_{0}^{t} dt''' e^{-Hkt} \left\langle \vec{x}_{j0}\vec{F}_{St}(t''')^{T} \right\rangle H^{T} e^{H^{T}k(t''-t')} + \int_{0}^{t} dt''' e^{Hk(t''-t)} H \left\langle \vec{F}_{St}(t'')\vec{x}_{j0}^{T} \right\rangle e^{-H^{T}kt'} + \int_{0}^{t} dt''' \int_{0}^{t} dt''' e^{Hk(t''-t)} \left\langle H\vec{F}_{St}(t'') (H\vec{F}_{St}(t'''))^{T} \right\rangle e^{H^{T}k(t''-t')}.$$

$$(8.4)$$

Gleichung (8.4) ist der allgemeinste Ausdruck der Korrelationsmatrix im ruhenden System. Die auftretenden Vektoren  $\vec{x}_{i0}$  beschreiben die Position im Potentialminimum. Das Produkt dieser Koordinaten ergibt einen Offset der Korrelationsfunktion und wird durch geeignete Koordinatenwahl identisch Null gesetzt.

Die nachfolgend aufgeführten Ein- und Zweiteilchen-Systeme unterscheiden sich in der Gestalt der Mobilitätsmatrix H.

#### 8.3.1 Ein Teilchen

Eine Koordinate einer freien, sich Brownsch bewegenden Kugel ist zum Zeitpunkt Null mit sich selbst korreliert (Autokorrelation). Der zeitliche Verlauf der Autokorrelation wird durch einen exponentiellen Abfall beschrieben [74]

$$\langle \vec{x}_i \vec{x}_j \rangle \propto \mathrm{e}^{-\frac{\zeta}{m}t}.$$
 (8.5)

Die Zeitskala, auf der diese Autokorrelation für eine  $3\mu m$  Kugel in Wasser abfällt liegt, wie bereits in der Einführung von Kapitel erwähnt, im Bereich von  $\zeta/m \approx 10^{-7} s$ . Die Messauflösung im Experiment betrug etwa  $6 \cdot 10^{-5} s$ , so dass ein Nachweis dieser Korrelation auf solch kurzen Zeitskalen nicht erwartet werden kann. Betrachtet man orthogonale Koordinaten (Kreuzkorrelationen), so verschwindet deren messbare Korrelationsfunktion genau wie im Autokorrelationsfall. Auch hier sind die charakteristischen Zeiten so klein das eine Beobachtung einer nichtverschwindenden Korrelation im Experiment unmöglich ist. Aus diesem Grund spricht man auch davon, das bei der Brownschen Molekularbewegung, also auf längerer Zeitskala als  $10^{-7} s$ , die Bewegungen der Kugel unkorreliert sind.

Befindet sich die Kugel im harmonischen Potential der optischen Pinzette, so ändert sich dieser Sachverhalt. Die orthogonalen Bewegungsrichtungen bleiben zwar aus oben genanntem Grund unabhängig voneinander, die Bewegungsgleichungen in (2.17) sind entkoppelt, die Autokorrelation kann jedoch beobachtet werden. Die Kugel hat aufgrund des Potentials eine Vorgeschichte, die von ihrer Position abhängt. In der Bewegungsgleichung (2.20) für die Kugel im harmonischen Potential ist zu sehen, dass die Geschwindigkeit der Kugel von der Position selbst abhängt

$$\zeta \dot{X} + kX = F_{St}.$$
(8.6)

Das Potential sorgt für ein gewisses Gedächtnis der Kugel und verändert somit das Zeitverhalten der Korrelationsfunktion erheblich. Aus Gleichung (2.20) oder (8.6) lässt sich die Zeit der Erinnerung leicht abschätzen, wenn man die Fallenkraft mit der Reibungskraft vergleicht, also das Zeitverhalten der Relaxation mit der Dissipation betrachtet

$$\zeta \frac{x}{t} = kx \Leftrightarrow \frac{1}{t} = \tau = \frac{k}{\zeta}.$$
(8.7)

Realistische Werte für  $\tau$  erhält man wenn man für  $k = 2 \cdot 10^{-6} N/m$  und für  $\zeta = 6\pi\eta R \approx 2 \cdot 10^{-8} Ns/m$  wählt. Die typische Zeitskala für die Relaxation einer Brownschen Kugel im Potential wie sie auch im Experiment zu finden ist beträgt demnach  $\tau^{-1} = 0.01s$ .

Um die Korrelationsmatrix nun speziell für eine Kugel zu berechnen, verwendet man den allgemeinen Ausdruck aus Gleichung (8.4). Bei genauerer Betrachtung der Korrelationsmatrix im ruhenden System ist zu erkennen, dass die zweite und die dritte Summe von Gleichung (8.4) aufgrund der Tatsache, dass  $\vec{X}$  und  $\vec{F}_{st}$ unkorreliert sind, deren Produkt also verschwindet, gleich Null zu setzen sind. Weitere Rechnungen, die in [12] aufgeführt werden und aufgrund ihrer Komplexität hier nicht erwähnt werden, führen zu einem exponentiellen Abfall der Korrelation mit der Zeit

$$\left\langle \vec{x}(0)\vec{x}(t)^{T}\right\rangle = \frac{k_{B}T}{k}e^{-Hkt}.$$
 (8.8)

Dabei wurde die Korrelation für den Fall  $\langle \vec{x}(t)\vec{x}(t')^T \rangle = \langle \vec{x}(0)\vec{x}(t)^T \rangle$  errechnet. Da die Korrelationen zeittranslationsinvariant sind, ist für die Korrelationsfunktion  $\langle \vec{x}(t)\vec{x}(t')^T \rangle$  nur das Zeitintervall  $\Delta t = t - t'$  entscheidend. Somit ergeben sich die identischen Korrelationsfunktionen wenn man statt  $\langle \vec{x}(t)\vec{x}(t')^T \rangle$  die Korrelation  $\langle \vec{x}(0)\vec{x}(t)^T \rangle$  bestimmt. Diese Notation wird nachfolgend immer verwendet.

Aus Gleichung (8.8) lassen sich zwei verschiedene Arten von Korrelationen bestimmen. Zum einen die Autokorrelationen. Sie beschreiben die Korrelation einer Ortskoordinate mit sich selbst. Setzt man für die Mobilitätsmatrix H den Fall einer Kugel in Gleichung (8.8) ein, so reduziert sich die Matrix gemäß (3.25) auf  $I/\zeta$ , so dass mit Gleichung (8.7) für die Autokorrelation eines Teilchens gilt [22]

$$\langle x(0) x(t) \rangle = \langle y(0) y(t) \rangle = \langle z(0) z(t) \rangle = \frac{k_B T}{k} e^{-\tau t}.$$
 (8.9)

Das Zeitverhalten von Gleichung (8.9) hängt sehr stark von der Fallenkonstanten ab. Eine große Fallenstärke führt zu einem schnellen Abklingen der Korrelation. Diese Autokorrelation wurde in Kapitel 6.3 bereits vorgestellt, um die Falle zu kalibrieren [4].

Der zweite Fall, der aus Gleichung (8.8) abgeleitet werden kann, ist die Kreuzkorrelation. Sie beschreibt die Korrelation verschiedener Ortskoordinaten. Korrelationen in verschiedene Raumrichtungen verschwinden jedoch im ruhenden Medium. Die Bewegung in eine Raumrichtung ist unabhängig von den orthogonalen Bewegungen, auch im Potential. Es gibt in der Bewegungsgleichung keinen Term, der die y-Koordinate mit der x-Koordinate verknüpft. Die Mobilitätsmatrix, wie sie in Gleichung (3.25) vorgestellt wurde, hat in den Außerdiagonalelementen daher keine Einträge.

## 8.3.2 Zwei Teilchen

Nachfolgend sollen zwei Kugeln gemäß Abbildung 3.2 angeordnet sein, ihr Verbindungsvektor also auf der x-Achse liegen. Jede der beiden Kugeln genügt der Bewegungsgleichung (3.29), das Zeitverhalten einer Koordinate selbst wird daher durch Gleichung (3.35) beschrieben. Ganz allgemein gilt also wiederum Gleichung (8.8) für die Korrelationsmatrix im Zweiteilchenfall. Im Vergleich zu Kapitel 8.3.1 hat sich jetzt jedoch aufgrund der Anwesenheit eines zweiten Teilchens die Mobilitätsmatrix H verändert, indem der Oseen-Tensor aus Gleichung (3.26) für die Teilchenwechselwirkung hinzugekommen ist.

Wie im vorherigen Fall wird auch hier zwischen den Auto- und Kreuzkorrelationen unterschieden. Durch die hydrodynamische Kopplung der beiden Kugeln ergeben sich jedoch leicht veränderte Einteilchen-Autokorrelationen gegenüber dem Einteilchenfall [3, 12]. Die Korrelationen sind gegenüber Gleichung (8.9) komplizierter. Der Grund liegt in der mathematischen Struktur der Mobilitätsmatrix, die nun noch die hydrodynamische Teilchenkopplung enthält. Die Autokorrelationen beschreiben die Korrelationen der Kugel mit sich selbst. Gleichzeitig beeinflusst die benachbarte Kugel teilweise die Bewegung der ersten. Entlang der x-Achse sind die Kugeln direkt hydrodynamisch gekoppelt. Die Ausbreitungsrichtung der Fluktuation in x-Richtung fällt nämlich mit der Ausbreitungsrichtung des dadurch ausgelösten Störfeldes zusammen. Es ergibt sich die Korrelation [13]

$$\left\langle X_{i}(0) X_{i}(t) \right\rangle = \frac{k_{B}T}{2k} \left[ e^{-\left(\frac{4E}{3R}+2\right)kt/8\pi\eta E} + e^{-\left(\frac{4E}{3R}-2\right)kt/8\pi\eta E} \right].$$
(8.10)

Für das zeitliche Verhalten der Funktion ist wiederum die Fallenkonstante verantwortlich. Desweiteren spielt der Kugelabstand E eine wichtige Rolle im Zeitverhalten der Korrelation. Im Experiment wurde dieser jedoch nicht verändert.

In den dazu senkrechten Richtungen koppeln die Kugeln hydrodynamisch schwächer. Hier erfolgt die Kopplung wiederum entlang der x-Richtung, aber nun senkrecht zur Fluktuationsrichtung. Es ergeben sich die verbleibenden Autokorrelationen zu [13]

$$\left\langle y_{i}(0)y_{i}(t)\right\rangle = \left\langle z_{i}(0)z_{i}(t)\right\rangle = \frac{k_{B}T}{2k}\left[e^{-\left(\frac{4E}{3R}+1\right)kt/8\pi\eta E} + e^{-\left(\frac{4E}{3R}-1\right)kt/8\pi\eta E}\right].$$
(8.11)

Des Weiteren gibt es noch die Kreuzkorrelationen der Koordinaten der einzelnen Teilchen. Aufgrund der Entkopplung der Bewegungsrichtungen sind diese Funktionen jedoch wie im Einteilchenfall identisch Null. Daran ändert auch die Anwesenheit einer zweiten Kugel nichts.

Es verbleiben die Korrelationen zwischen den beiden einzelnen Kugeln. Auch sie werden in [12] vorgestellt und lauten entlang der Verbindungsrichtung

$$\left\langle x_{j}(0) x_{j}(t) \right\rangle = \frac{k_{B}T}{2k} \left[ e^{-\left(\frac{4E}{3R}+2\right)kt/8\pi\eta E} - e^{-\left(\frac{4E}{3R}-2\right)kt/8\pi\eta E} \right]$$
(8.12)

sowie senkrecht dazu

$$\left\langle y_{i}(0)y_{j}(t)\right\rangle = \left\langle z_{i}(0)z_{j}(t)\right\rangle = \frac{k_{B}T}{2k} \left[ e^{-\left(\frac{4E}{3R}+1\right)kt/8\pi\eta E} - e^{-\left(\frac{4E}{3R}-1\right)kt/8\pi\eta E} \right].$$
(8.13)

Anschaulicher werden diese Gleichungen wenn man reskalierte Einheiten einführt. Dabei werden folgende Transformationen durchgeführt

$$t \to \tilde{t} = \tau t \tag{8.14}$$
$$x \to \tilde{x} = \alpha x$$

mit

$$\tau = \frac{k}{\zeta}$$

$$\alpha = \sqrt{\frac{k}{2k_BT}}$$

$$\mu = \frac{3R}{4E}.$$
(8.15)

Im System herrschen typische Zeitskalen im Bereich von  $\tau^{-1}$  und Längenskalen von  $\alpha^{-1}$ . Im Folgenden wird in der theoretischen Herleitung immer die skalierte Zeit  $\tilde{t}$  verwendet, so dass nachfolgend auf die Nomenklatur verzichtet werden kann.

Zusätzlich definiert man noch der Übersichtlichkeit halber die Eigenwerte der Mobilitätsmatrix als

$$\lambda_{1} = 1 + 2\mu, \quad \lambda_{2} = 1 + \mu$$

$$\lambda_{3} = 1 - 2\mu, \quad \lambda_{4} = 1 - \mu.$$
(8.16)

Für spätere Zwecke werden noch die Abkürzungen

$$p_{1+2} = \lambda_1 + \lambda_2$$

$$p_{4+3} = \lambda_4 + \lambda_3$$
(8.17)

eingeführt. Damit vereinfachen sich die Autokorrelationen zu

$$\left\langle X_{i}(0) X_{i}(t) \right\rangle = \frac{1}{4} \left[ e^{-\lambda_{1}t} + e^{-\lambda_{3}t} \right], \qquad (8.18)$$

$$\langle y_i(0)y_i(t)\rangle = \langle z_i(0)z_i(t)\rangle = \frac{1}{4}\left[e^{-\lambda_2 t} + e^{-\lambda_4 t}\right],$$
(8.19)

sowie die Kreuzkorrelationen

$$\left\langle x_{i}(0) x_{j}(t) \right\rangle = \frac{1}{4} \left[ e^{-\lambda_{1}t} - e^{-\lambda_{3}t} \right]$$
(8.20)

und

$$\langle y_i(0)y_j(t)\rangle = \langle Z_i(0)Z_j(t)\rangle = \frac{1}{4}\left[e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_4 t}\right].$$
 (8.21)

Die  $\lambda_i$  bezeichnen inverse Relaxationszeiten und beschreiben die Eigenwerte der Mobilitätsmatrix. Sie hängen stark vom Faktor  $\mu$  ab, der das Verhältnis von Kugelradius zum Kugelabstand abschätzt. Außerdem gelten die  $\lambda_{1,3}$  für Kopplungen entlang der x-Richtungen und die  $\lambda_{2,4}$  für Kopplungen entlang der y-Richtung. Die  $\lambda_{1,2}$  stehen für die positive Korrelationen und die  $\lambda_{3,4}$  für die negativen Antikorrelationen. Zum Verständnis sind die einzelnen Eigenwerte in Abbildung 8.2 aufgeführt. Im System sind immer beide Anteile vorhanden, so dass die gesamte Korrelationsfunktion durch deren Summe ausgedrückt wird.



Die Autokorrelationen aus den Gleichungen (8.18) und (8.19) relaxieren langsamer als die Autokorrelationen bei einer Kugel im System. Der Grund liegt in der Teilchenkopplung, die dazu führt, dass die Geschwindigkeitsstörung von einer Kugel zur nächsten übertragen wird. Im Grenzfall für  $E \rightarrow \infty$ , also für unendlich großen Abstand und damit für die Entkopplung, wird  $\mu$  vernachlässigbar und die

der

Autokorrelationen nehmen die Gestalt der Korrelationen einer Kugel, also von Gleichung (8.9) an.

Die interessanteste dieser Korrelationen ist Gleichung (8.20). Sie beschreibt die Korrelation der beiden Kugeln entlang ihrer direkten Verbindungsachse und ist die stärkste Kreuzkorrelation der beiden Kugeln. Der Grund liegt darin, dass die Richtung der hydrodynamischen Kopplung mit dem Verbindungsvektor  $\vec{t}_1 - \vec{t}_2$ , also der x-Achse, zusammenfällt (Abbildung 3.2). In den beiden anderen Richtungen von Gleichung (8.21) findet die Fluktuationsübertragung durch das Geschwindigkeitsfeld senkrecht zur Verbindungsachse statt. Somit muss das hydrodynamische Feld, das zum Beispiel von Kugel 1 in y-Richtung erzeugt wird, über den Verbindungsvektor der Kugeln in x-Richtung auf die y-Richtung von Kugel 2 wechselwirken. Die x- und die y-Richtung von Kugel 2 sind zwar nicht miteinander korreliert, allerdings kann direkt das hydrodynamische Fluktuationsfeld von Kugel 1 durchaus Komponenten in y-Richtung besitzen und so zu Korrelationen in dieser Richtung führen.

Da aus experimenteller Sicht die Korrelation  $\langle x_i(0)x_i(t)\rangle$  am interessantesten ist, wird nun näher darauf eingegangen. Mathematisch ist der zeitliche Verlauf aus Gleichung (8.12) oder (8.20) abzulesen. Die Korrelation besteht aus der Summe zweier Exponentialfunktionen verschiedener Relaxationszeiten. Der Exponent der ersten Exponentialfunktion,  $\lambda_1$ , ist betragsmäßig nach Gleichung (8.16) größer, die Relaxation findet also schneller statt. Die zweite Exponentialfunktion hat ein negatives Vorzeichen, liefert also einen negativen Beitrag für die Korrelation. Außerdem ist der Betrag des Exponenten kleiner, die Funktion relaxiert also langsamer. Der schematische Funktionsverlauf der Korrelation ist in Abbildung 8.3 zu sehen. Die Summe der beiden Funktionen verschwindet also aufgrund der verschiedenen Relaxationszeiten auf kurzer Zeitskala nicht, sondern es existiert eine Netto Korrelation. Sie ist negativ, was einer Antikorrelation der beiden Kugeln entspricht. Außerdem weist sie ein Minimum auf, dessen Lage und Tiefe von dem Abstand der Kugeln abhängig ist. Je geringer der Kugelabstand ist, desto tiefer ist das Minimum der Korrelation. Auch die Lage des Minimums verändert sich, sie variiert jedoch nur schwach und ist vernachlässigbar. Bei großen Kugelabständen verschwindet das Minimum erwartungsgemäß, denn im Grenzfall  $E \rightarrow \infty$  geht das Zweiteilchensystem in das Einteilchensystem über.



Abbildung 8.3: Die grüne Funktion entspricht schematisch der ersten Exponentialfunktion aus Gleichung (8.20) und ist charakteristisch für gleichgerichtete Relativbewegungen mit kurzer Relaxationszeit. Die blaue Funktion entspricht der zweiten, negativen Exponentialfunktion aus Gleichung (8.20) und ist charakteristisch für entgegen gerichtete Relativbewegungen mit längerer Relaxationszeit. Die rote Kurve ist die Summe beider Funktionen und stellt, abgesehen vom Vorfaktor, die Korrelationsfunktion in Gleichung (8.20) dar.

Die Kreuzkorrelation entlang der direkten Verbindung der Kugeln kann anschaulich gedeutet werden und wird zum näheren Verständnis hier aufgeführt. Es bestehen in x-Richtung im Prinzip nur zwei Möglichkeiten der Relativbewegung. Entweder die beiden Kugeln bewegen sich in gleiche Richtung oder in entgegengesetzte Richtung.





Abbildung 8.4: Beide Fälle der gleichgerichteten, parallelen Relativbewegung ergeben positive Korrelationen mit einer schnellen Relaxationszeit

In Abbildung 8.4 ist im Fall a) gezeigt, wie sich beide Kugeln in positive x-Richtung bewegen. Dabei hat jede Kugel ihr eigenes Koordinatensystem, so dass sie sich im Mittel jeweils an der Position Null befindet. Das Produkt positiver Ortskoordinaten, und damit auch die Korrelationsfunktion, ist ebenfalls positiv. Im Fall b) bewegen sich beide Kugeln in negative x-Richtung. Auch in diesem Fall ergibt das Produkt zweier negativer Ortskoordinaten eine positive Korrelation. In beiden Fällen der gleichgerichteten Relativbewegung ist die Korrelationsfunktion also positiv. Die Relaxationszeit ist in beiden Fällen aufgrund der Symmetrie des Problems identisch. In Abbildung 8.3 ist der Fall der positiven Korrelationsfunktion mit der grünen Funktion dargestellt.

Im Fall der antiparallelen Relativbewegungen sind alle Korrelationen negativ. Auch hier verschwindet das Mittel der Ortspositionen jeder Kugel im eigenen Koordinatensystem.





Abbildung 8.5: Beide Fälle der entgegen gerichteten, antiparallelen Relativbewegungen ergeben negative Korrelationen mit langsamer Relaxationszeit

In Abbildung 8.5 ist zu erkennen, dass im Fall a) das Produkt aus positiver (linke Kugel) mit negativer Ortskoordinate (rechte Kugel) eine negative Korrelation ergibt. Das gleiche gibt für den Fall b). Auch hier ergibt das Produkt aus negativer (linke Kugel) und positiver (rechte Kugel) Koordinate ein negatives Ergebnis. Damit beschreibt die negative Korrelationsfunktion einen Verlauf, wie er in Abbildung 8.3 als blaue Kurve aufgezeigt wird.

Es bleibt noch zu erwähnen, dass die Korrelationen verschiedene Relaxationszeiten haben. Im gleichgerichteten Fall von Abbildung 8.4 ist eine Kugel im hydrodynamischen "Windschatten" der anderen. Die zweite Kugel folgt also dem hydrodynamischen Feld der ersten. Sie erfährt darum weniger Reibung und folgt der Bewegung schneller. Im entgegen gerichteten Fall aus Abbildung 8.5 muss eine Kugel das hydrodynamische Feld der anderen Kugel überwinden und wird somit abgebremst. Dieser Vorgang braucht also länger und ist mit einer längeren Relaxationszeit verbunden.

Da der Fall der gleichgerichteten Bewegung genauso wahrscheinlich ist wie der Fall der entgegengesetzten Bewegung, entsteht die Korrelationsfunktion aus der Summe beider Funktionen. Auf Grund der Tatsache, dass das System der langen Zeitskala folgt, sind die Kugeln antikorreliert. Der zeitliche Verlauf der gesamten Korrelation ist in Abbildung 8.3 mit rot gekennzeichnet.

Die Zeitskalen, auf denen das Minimum der Korrelation auftritt, kann einfach mit dem Kehrwert der inversen Relaxationszeit  $\tau$  abgeschätzt werden

$$\tau^{-1} = \frac{\zeta}{k} \approx \frac{6\pi \cdot 10^{-3} \cdot 10^{-6}}{2 \cdot 10^{-6}} s \approx \frac{2 \cdot 10^{-8}}{2 \cdot 10^{-6}} s = 10^{-2} s$$
(8.22)

und liegt experimentell im Millisekundenbereich.

In ersten Experimenten wurden die zwei Kugeln mit Radius  $2\mu m$  (Fluka, 78452) im Abstand von  $E = 4.9 \mu m$ in den optischen Fallen gehalten. Der Verbindungsvektor der Kugeln lag x-Achse parallel zur des Beobachtungskoordinatensystems. Die Daten wurden mit der CCD Kamera aufgenommen. Die Wiederholungsrate lag bei 1kHz. Die aufgenommenen Bilder wurden miteinander korreliert, um die Ortspositionen der Kugeln zu ermitteln. Die so erzielten Koordinaten wurden dann gemäß der Beschreibung in Kapitel 5.3.1 verarbeitet und so die Korrelationsfunktion ermittelt. Dabei wurde zwischen der Korrelationsfunction  $\langle x_i(0) x_j(t) \rangle = \langle x_j(t) x_i(0) \rangle$  und  $\langle x_i(t) x_j(0) \rangle = \langle x_j(0) x_i(t) \rangle$ unterschieden. Die so erhaltenen Korrelationsfunktionen  $\langle X_1 X_2 \rangle$  und  $\langle X_2 X_1 \rangle$  aus Abbildung 8.6 wurden zusammen aufgetragen um die zeitliche Symmetrie der Korrelationsfunktionen anschaulich darzustellen. Die Auftragung der Funktion  $\langle x, x_1 \rangle$  gegen negative Zeiten hat also keine physikalische Ursache, vielmehr soll sie die Zeitreversibilität der Fluktuationen darstellen. Desweiteren werden im weiteren Verlauf der Arbeit auf Mittelungen der Korrelationen über mehrere Messungen verzichtet. Dies hat den Hintergrund, dass speziell im späteren Scherfluss die Scherrate einer Messung, und damit auch die Korrelationsfunktion, nie exakt mit einer zweiten Messung übereinstimmten. Dies hatte zur Folge, dass sich die Korrelationsfunktionen gegenseitig wegmitteln oder sich ihre Amplituden veränderten. Um dies zu umgehen wurde generell auf Mittelungen verzichtet.



Abbildung 8.6: Für 13 Messungen wurden die Korrelationsfunktionen  $C(x_1x_2)$  für t > 0 und  $C(x_2x_1)$  für t < 0 zweier  $4\mu m$  Kugeln im Abstand von  $4.9\mu m$  mit der CCD Kamera bei 1kHz gemessen und darüber gemittelt, die mittlere Fallenkonstante betrug  $k = 4.18 \cdot 10^{-6} N/m$ .

Wie Abbildung 8.6 zeigt, konnte die Zweiteilchen-Kreuzkorrelationen mit dem vorgestellten Messaufbau nachgewiesen werden. Dabei war sowohl die örtliche als auch die zeitliche Auflösung ausreichend hoch. Die experimentellen Korrelationen deckten sich zudem sehr gut mit den theoretischen Vorhersagen. Die ersten Korrelationsmessungen in einer ruhenden Flüssigkeit wurden bereits 1999 von Steven Quake et al. nachgewiesen [3].

Im nächsten Schritt erfolgte die Bestimmung der Kreuzkorrelationen mit Hilfe der PSD's. Damit konnten die Korrelationen ebenfalls nachgewiesen werden, wobei bei diesen Messungen die zeitliche Auflösung wesentlich höher war, sie betrug in Abbildung 8.7 beispielsweise 50*kHz*. Hierbei wurde nur jeder 10. Messpunkt angegeben. Die Verschiebung des Korrelationsminimums gegenüber Abbildung 8.6 kommt von verschiedenen Fallenkonstanten der verschiedenen Messungen, worauf später noch genauer eingegangen wird.



Abbildung 8.7: Korrelationsfunktion  $C(x_1x_2)$  zweier  $4\mu m$  Kugeln im Abstand von  $4.9\mu m$ , gemessen mit dem PSD bei 50kHz und einer Fallenkonstanten von  $k = 5.38 \cdot 10^{-6} N/m$ .

Spätere Messungen wurden mit der schnelleren Kamera durchgeführt. Die Positionen wurden mit einer Rate von 15000 Bildern pro Sekunde aufgenommen, und dann gemäß Kapitel 5.4 analysiert und korreliert. Der Vergleich von Abbildung 8.8 mit Abbildung 8.6 und Abbildung 8.7 zeigt die Übereinstimmung der Kurvenverläufe der Kamera- und der PSD-Messungen.



Abbildung 8.8: Zu sehen ist die Korrelationsfunktion  $C(x_1x_2)$  zweier  $3\mu m$  Kugeln im Abstand von  $4.5\mu m$ , gemessen mit der schnelleren der beiden Kameras bei einer Rate von 15kHz, die Fallenkonstante betrug  $k = 3.82 \cdot 10^{-6} N/m$ .

Vergleicht man die nachfolgenden Kreuzkorrelationen aus Abbildung 8.9 bis Abbildung 8.12, die mit Hilfe der Kamera erzeugt wurden, so fällt auf, dass sich mit zunehmender Fallenkonstanten die Position des Minimums zu kürzeren Zeiten verschiebt. Auch hier wurde nur jeder 10. Datenpunkt abgebildet. Außerdem erfolgte noch eine Anpassung der Kurve mit Gleichung (8.12). Verwendet wurden jeweils  $3\mu m$  Kugeln mit  $4.4\mu m$  Abstand. Die bestimmten Fallenkonstanten entstammen der Anpassung der Daten. Diese wurden aus Konsistenzgründen mit den Werten der Autokorrelationsfunktionen verglichen und entsprachen im Rahmen von etwa 15% mit diesen überein.





Die aufgeführten Messungen konnten die Zweiteilchenkorrelation entlang der Verbindungsachse nachweisen. Die Kugeln wiesen eine Antikorrelation auf und der Kurvenverlauf der Korrelationsfunktion konnte durch die theoretische Kurve aus Gleichung (8.20) beschrieben werden.

Aus Gleichung kann die zeitliche Lage des Korrelationsminimums zu

$$\tau_0^{-1} = \frac{2\pi\eta E}{k} \ln\left(\frac{2E+3R}{2E-3R}\right)$$
(8.23)

bestimmt werden. Setzt man die Werte für den Kugelradius und den Kugelabstand in Gleichung (8.23) ein, so erhält man eine lineare Beziehung zwischen der Fallenkonstanten k und dem inversen zeitlichen Minimum der Korrelation

$$\tau_0 = k \cdot 3.2 \cdot 10^7 \, \frac{Ns}{m}.\tag{8.24}$$

Analysiert man weiter die inverse zeitliche Lage  $\tau_0$  des Korrelationsminimums als Funktion der Fallenstärke k, so ist theoretisch gemäß Gleichung (8.24) ein linearer Zusammenhang zu erwarten.



Abbildung 8.13: Der inverse Zeitpunkt des Korrelationsminimums  $\tau_0$  zeigt eine lineare Abhängigkeit von der Fallenkonstanten k. Die Steigung in der linearen Anpassung beträgt  $4.09 \cdot 10^7 \text{ Ns/m} \pm 0.78 \cdot 10^7 \text{ Ns/m}$ .

Die lineare Anpassung aus Abbildung 8.13 ergibt eine Steigung von  $4.09 \cdot 10^7 \text{ Ns/m} \pm 0.78 \cdot 10^7 \text{ Ns/m}$ . Die theoretische Vorhersage der Steigung aus Gleichung (8.24) liegt dabei nahe an den Fehlergrenzen der experimentellen Messung. Somit ist das Verhalten der Kreuzkorrelation nicht nur qualitativ sondern auch quantitativ nachgewiesen worden.

## 8.4 Korrelationen im Scherfluss

Im Folgenden verläuft die Scherströmung im System wie in Abbildung 2.2 dargestellt. Der Geschwindigkeitsgradient liegt in y-Richtung der xy-Ebene. Die x-Geschwindigkeitskomponente nimmt linear mit der y-Komponente zu und verschwindet bei y = 0. Die Bewegungsgleichungen einer Kugel im Scherfluss wurden in Kapitel 2.4 bereits hergeleitet. In Gleichung (2.25) ist die Abhängigkeit der Bewegung in x-Richtung von der y-Position aufgezeigt. Es besteht also eine direkte Beziehung zwischen der x- und der y-Position eines Teilchens aufgrund des Schergradienten. Hinzu kommt die hydrodynamische Wechselwirkung, falls sich zwei Kugeln im System befinden. Sie führt dazu, dass die Kugeln, wie in Abschnitt 8.3 ohne Fluss aufgeführt, zusätzlich miteinander korreliert sind. Nimmt man beide Effekte zusammen, so sind auch orthogonale Richtungen der beiden Kugeln korreliert. In diesem Abschnitt werden sowohl theoretisch als auch experimentell Korrelationen im Scherfluss aufgeführt. Beginnend mit einer Kugel im Scherfluss, gelingt ein Übergang ins Zweiteilchensystem mit gegenseitiger Teilchenkopplung inklusive Scherkorrelation [13].

Die Brownsche Molekularbewegung einer Kugel im harmonischen Potential führt in y-Richtung eine stochastische Bewegung aus, wie sie in Gleichung (2.24) aufgeführt ist. Die Bewegung in x-Richtung ist vom Geschwindigkeitsfeld geprägt und gemäß (2.25) mit dem externen Feld verknüpft, so dass eine Abhängigkeit der x-Position von der y-Koordinate die Folge ist. Fluktuiert die Kugel in positive y-Richtung, so wirkt dort aufgrund der Scherrate im System eine größere Geschwindigkeit auf die Kugel. Die Reibungskraft erhöht sich und die Kugel wird weiter in positive x-Richtung verschoben. Aus Abbildung 8.14 wird klar, dass mit einer Bewegung in positive y-Richtung eine positive Bewegung in x-Richtung der Kugel einher geht. Negative y-Bewegungen führen zu negativen x-Bewegungen. Aus diesem Grund ist die Korrelationsfunktion der x- und y-Koordinate positiv.

Die Korrelationsfunktion ist zudem nicht mehr symmetrisch in der Zeit, wie dies im ruhenden Medium der Fall war. Der Grund liegt im Geschwindigkeitsfeld selbst. Die Kugel befindet sich zum Zeitpunkt t=0 am Punkt  $(X_0, Y_0)$ . Erfährt sie eine kleine Fluktuation in y-Richtung, so führt das Geschwindigkeitsfeld dazu, dass die Kugel in x-Richtung ausgelenkt wird. Diese Auslenkung in x-Richtung erfolgt schneller als die Relaxierung in y-Richtung mit der charakteristischen Zeit  $\tau^{-1}$ aus Gleichung (8.7). Mit der Zeit nimmt also die x-Koordinate zu, womit sich das Produkt aus x- und y-Koordinate, die Korrelationsfunktion, vergrößert. Erst nach der Zeit  $\tau^{-1}$  erreicht die Kugel die maximal durch die Falle ermöglichte Verschiebung. Diese Zeit bestimmt die Lage des Korrelationsmaximums. Das Relaxieren der Kugel in y-Richtung führt dann zum Verschwinden der Korrelationsfunktion für größere Zeiten.



Abbildung 8.14: Fluktuiert die Kugel im Fall 1 (rot) nach oben, also in y-Richtung, so wirkt aufgrund des Strömungsprofils eine höhere Geschwindigkeit auf die Kugel und diese bewegt sich in x-Richtung. Das Produkt der Ortskoordinaten ist positiv. Im Fall 2 fluktuiert die Kugel nach -y (grün). Aufgrund der Flussgeschwindigkeit in -x-Richtung wird die Kugel nach -x ausgelenkt. Das Produkt der Ortskoordinaten ist wiederum positiv. Das Resultat ist eine elliptische Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Kugel im Raum.

Die Abhängigkeit der gegenseitigen Beeinflussung der Koordinaten, und damit die Korrelationsfunktion, ist im Allgemeinen nicht kommutativ. Die x-Koordinate hängt zwar von y ab, y ist allerdings unabhängig von der x-Position. Eine Fluktuation in x-Richtung führt somit zu keiner direkten Kopplung in y-Richtung durch das Geschwindigkeitsfeld. Die Kopplung erfolgt also nur in eine Richtung.

Die Strömung, und damit das Nichtgleichgewichtssystem, führt insgesamt zu einem zeitlichen Symmetriebruch. Das Maximum der Korrelation liegt nicht mehr bei t=0, wie beispielsweise bei der Autokorrelation, sondern ist in Abhängigkeit von der Scherrate verschoben. Somit ist die Zeitreversibilität des Systems durch den externen Antrieb und somit durch die zusätzliche Reibungskraft gebrochen.

Betrachtet man das System im Scherfluss, so kann auch hier die Korrelationsmatrix berechnet werden. Hierzu wird zusätzliche eine weitere Matrix S eingeführt. Die enthält die externe Strömung, die eine x-Komponente besitzt. Sie ist linear abhängig von der y-Koordinate und ist wie folgt definiert

$$\vec{v}(\vec{x}) = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} y \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = S\vec{x}.$$
(8.25)

Damit ergibt sich eine neue Bewegungsgleichung aus (3.29) durch den zusätzlichen Fluss

$$\dot{\vec{x}} = S\vec{x} + H\left(-k\cdot\left(\vec{x}-\vec{x}_{0}\right)+\vec{F}_{St}\right) = -M\vec{x}+\vec{a}+H\vec{F}_{St}.$$
(8.26)

Dabei tauchen die Matrix  $\mathbf{M} = k\mathbf{H} - S$  sowie der Vektor  $\vec{a} = k\mathbf{H}\vec{x}_0$  auf. Die Matrix M ist aufgrund der Schermatrix S asymmetrisch.

Analog zur Lösung der Bewegungsgleichung der Kugel ohne Fluss kann auch die Bewegung im Fluss formal gelöst werden [12]

$$\vec{x}(t) = e^{-Mt} \vec{x}_a + \int_0^t dt' e^{-M(t'-t)} \left( \vec{F}_{St}(t') + H \vec{x}_0 \right),$$
(8.27)

wobei  $\vec{x}_a = \vec{x}(t=0)$  ist und  $H\vec{x}_0$  im Fall ohne Scherströmung wegfällt. Analog zu (8.4) kann auch hier die Korrelationsmatrix aufgestellt werden

$$\left\langle \vec{x}_{i}(t)\vec{x}_{j}(t')^{T} \right\rangle$$

$$= e^{-Mt} \left\langle \vec{x}_{ia}\vec{x}_{ja}^{T} \right\rangle e^{-M^{T}t'} + \int_{0}^{t'} dt''' e^{-Mt} \left\langle \vec{x}_{ia}\vec{x}_{j0}^{T} \right\rangle H^{T} e^{M^{T}(t'-t'')}$$

$$+ \int_{0}^{t} dt'' e^{-M(t-t'')} H \left\langle \vec{x}_{i0}\vec{x}_{ja}^{T} \right\rangle e^{-M^{T}t'}$$

$$+ \int_{0}^{t} dt'' \int_{0}^{t'} dt''' e^{-M(t-t'')} H \left\langle \vec{x}_{io}\vec{x}_{jo} \right\rangle H^{T} e^{-M^{T}(t'-t'')}$$

$$+ \int_{0}^{t} dt'' \int_{0}^{t'} dt''' e^{-M(t-t'')} \left\langle \vec{F}_{St}(t'') \left( \vec{F}_{St}(t''') \right)^{T} \right\rangle e^{M^{T}(t'-t'')} .$$

$$(8.28)$$

Hierbei wurden alle Mischterme der Art  $\langle \vec{x}_{ia} \vec{F}_{St}^{T}(t) \rangle$  und  $\langle \vec{x}_{i0} \vec{F}_{St}^{T}(t) \rangle$  weggelassen, denn diese Terme verschwinden, da die stochastische Kraft nicht mit den Vektoren  $\vec{x}_{ia}$  und  $\vec{x}_{i0}$  korreliert ist. Außerdem können die ersten drei Terme in Gleichung (8.28) vernachlässigt werden. Diese Terme verschwinden im Grenzwert  $t, t' \rightarrow \infty$ . Der vierte Term enthält den Ausdruck  $H \langle \vec{x}_{io} \vec{x}_{jo} \rangle H^{T}$ . Er vermittelt keine Zeitabhängigkeit, sondern nur einen konstanten Ausdruck, der sich als Offset bemerkbar macht. Auch er wird darum vernachlässigt. Es bleibt der letzte Term in (8.28) zu diskutieren.

Nach Gleichung (2.11) und (3.28) kann der Ausdruck 
$$\left\langle \vec{F}_{st}(t'')(\vec{F}_{st}(t''))^T \right\rangle$$
 in H

transformiert werden, wenn man die reskalierten Einheiten verwendet. Demnach genügt es also, die Korrelationsfunktion auf die Mobilitätsmatrix zurückzuführen. Die Korrelationsmatrix hat demnach folgende Gestalt

$$\left\langle \vec{x}_{j}\left(t\right)\vec{x}_{j}\left(t'\right)^{T}\right\rangle = \int_{0}^{t} \mathcal{O}t'' \int_{0}^{t'} \mathcal{O}t''' e^{-M(t-t'')} H e^{M^{T}(t'-t'')}.$$
(8.29)

Das Problem der Gestalt der Korrelationsfunktion ist somit auf die Mobilitätsmatrix zurückgeführt. Im Folgenden wird die Mobilitätsmatrix für das Ein- und das Zweiteilchenproblem verwendet, um die verschiedenen Korrelationen zu berechnen.

#### 8.4.1 Ein Teilchen

Im Einteilchenfall reduziert sich die Mobilitätsmatrix wie im Fall 8.3.1 auf die Diagonalelemente. Außerdem agiert die Schermatrix S, und somit auch M in den geschwindigkeitsunabhängigen Koordinaten y und z nicht. Demzufolge sind die Korrelationsfunktionen senkrecht zur Strömungsrichtung unabhängig voneinander und nach Gleichung (8.9)

$$\langle y(0)y(t)\rangle = \langle z(0)z(t)\rangle = \frac{k_{B}T}{k}e^{-\tau t}.$$
 (8.30)

Das externe Scherfeld beeinflusst jedoch die Autokorrelation in x-Richtung. Diese Korrelation bekommt eine quadratische Abhängigkeit von der Scherrate [13]

$$\left\langle x(0) x(t) \right\rangle = \frac{k_{B}T}{k} \left( 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{\dot{\gamma}}{\tau} \right)^{2} \left( 1 + \tau t \right) \right) e^{-\tau t}.$$
 (8.31)

Die Abweichung von (8.31) gegenüber der Autokorrelation ohne Fluss, wie sie in (8.30) aufgeführt wurde, konnte experimentell nicht nachgewiesen werden.

Bei den Kreuzkorrelationen wird der Tatsache Rechnung getragen, dass der Scherfluss die Koordinaten asymmetrisch koppelt. Der Außerdiagonaleintrag in der Schermatrix *S* führt beispielsweise dazu dass

$$\langle x(0)y(t)\rangle \propto \dot{\gamma} e^{-\tau t}$$
 (8.32)

Führt man zudem noch die reskalierte Scherrate

$$\mathcal{W} = \dot{\gamma}\tau \tag{8.33}$$

ein, was der sogenannten Weissenbergzahl entspricht, so ergeben sich die Korrelationsfunktionen in Strömungsrichtung gemäß [13, 14]

$$\langle x(0) y(t) \rangle = \frac{k_B T}{2k} W e^{-\tau t}$$
 (8.34)

und

$$\left\langle y(0) x(t) \right\rangle = \frac{k_B T}{2k} W e^{-\tau t} (1 + 2\tau t). \tag{8.35}$$

Damit ist die Kreuzkorrelationsfunktion eine lineare Funktion der Scherrate. Dieser Sachverhalt steckt bereits in der Matrix M aufgrund der linearen Abhängigkeit der Scherrate. Außerdem sind die Asymmetrie der Korrelationen sowie ein Maximum im zeitlichen Verlauf von Gleichung (8.35) festzustellen. Der theoretische Kurvenverlauf von den Gleichungen (8.34) und (8.35) ist in Abbildung 8.15 dargestellt.



8.15: Der charakteristische Verlauf der Korrelationsfunktion für negative Zeiten (rot) entspricht Gleichung (8.34). Für die positiven Zeiten (blau) ist die Korrelationsfunktion aus Gleichung (8.35) gezeichnet. Faktoren vor den Exponentialfunktionen wurden

Die Korrelationsfunktion ist aufgrund des externen Flusses asymmetrisch in der Zeit. Desweiteren hat die Funktion ein positives Vorzeichen. Dies ist an Hand von Abbildung 8.14 leicht zu erklären. Positive y-Fluktuationen führen im Fluss automatisch zu positiven x-Bewegungen. Das Produkt der Ortspositionen, und damit die Korrelationsfunktion, bleiben positiv.

Der experimentelle Nachweis dieser Einteilchen-Kreuzkorrelation erfolgte mit  $3\mu m$  großen Kugeln im Scherfluss. Jede Kugel wurde in einem optischen Potential festgehalten. Der durch die in Kapitel 7.1 vorgestellte Mikrofluidik generierte Scherfluss erlaubte das Fangen einer Kugel in der Mitte des Strömungskanals. Die Datenaufnahme der Kugeln erfolgte mit der schnelleren X-Stream 5 Kamera aus Kapitel 5.4.1. Die Kugelposition auf den aufgenommenen Bildern wurde mit Hilfe der Kreuzkorrelationsauswertung bestimmt. Anschließend erfolgte die Korrelationsauswertung der Ortspositionen gemäß dem in Kapitel

5.3.1 vorgestellten Programmschema. Die Scherrate wurde mit der PTV Methode gemäß Kapitel 6.8 bestimmt.

Die gemessene Korrelationsfunktion bestätigte die theoretische Vorhersage, was exemplarisch in Abbildung 8.16 zu sehen ist. Bei dieser Auftragung wurde für t > 0 die Korrelation  $\langle y(0) x(t) \rangle$  eingezeichnet, während für t < 0 die Korrelation  $\langle x(0) y(t) \rangle$  gewählt wurde.



Abbildung 8.16: Dargestellt ist die Korrelationsfunktion einer  $3\mu m$  Kugel im Scherfluss bei einer Scherrate von  $\dot{\gamma} = 30 \, s^{-1}$ , die aus der Korrelationsanpassung ermittelt wurde. Die Fallenstärke von  $k = 6.43 \cdot 10^{-6} \, N/m$  wurde durch die Autokorrelationsfunktion ermittelt. Aufgetragen ist die Korrelation C(x(0)y(t)) für negative und C(y(0)x(t)) für positive Zeiten. Die grünen Anpassungen wurden gemäß den Gleichungen (8.34) und (8.35) eingezeichnet. Die schwarze Kurve beschreibt die Korrelationsfunktion einer Kugel ohne anliegenden Scherfluss und beschreibt so das Rauschniveau der Messungen.

In Abbildung 8.16 ist der zeitliche Verlauf der Einteilchenkorrelation in orthogonaler Richtung abgebildet. Die Anpassungen durch die theoretischen Vorhersagen passen im Wesentlichen auf die experimentellen Daten. Auffällig im Kurvenverlauf der Experimente war jeweils ein Minimum in der Korrelationsfunktion, das außerhalb des Rauschniveaus lag. Das Minimum war für negative Zeiten, also für C(x(0)y(t)), stärker ausgeprägt als für C(y(0)x(t)). In einigen Messungen verschwand das rechte Minimum, während das linke Minimum in allen Messungen erkennbar blieb. Ein Beispiel dafür ist in Abbildung 8.17 zu sehen.



Abbildung 8.17: Das Minimum der Korrelation ist nur zu negativen Zeiten, also bei der C(x(0)y(t))Korrelation zu erkennen, die Fallenkonstante betrug  $k = 6.63 \cdot 10^{-6} N/m$ .

Die Ursache des Minimums ist unbekannt. Möglicherweise spielen Rotationseffekte bei der Korrelation eine Rolle und führen zu diesem Minimum. Zukünftige theoretische Überlegungen sollten diesen Sachverhalt näher beleuchten. Darüber hinaus waren die theoretische Untersuchung nur für große Kugelabstände durchgeführt worden, für kleine Abstände ergeben sich möglicherweise noch Korrekturen.

Die hier vorgestellten Messungen sind die ersten experimentellen Bestätigungen, dass orthogonale Korrelationen von Kugeln im Scherfluss existieren. Die theoretischen Modelle passten dabei sehr gut zu den experimentell gewonnenen Daten. Eine unabhängige Methode des Korrelationsnachweises kann mit der Ellipsenauswertung aus Kapitel 8.5 erfolgen, die die hier ermittelten Ergebnisse stützten. Desweiteren ist der Effekt die Voraussetzung für den Nachweis der Korrelation zweier Kugeln in orthogonaler Richtung.

### 8.4.2 Zwei Teilchen

Bei zwei Teilchen im System ergeben sich weitere nicht verschwindende Korrelationsfunktionen. Neben den Korrelationen eines Teilchens gibt es noch Korrelationen zwischen den Teilchen selbst. In Kapitel 8.3.2 wurde aufgeführt, dass im ruhenden Medium nur Korrelationen entlang einer Koordinatenachse **Scherfluss** hingegen existieren. Im sind auch bestimmte senkrechte Bewegungsrichtungen einer Kugel miteinander korreliert, wie in Kapitel 8.4.1 festgestellt wurde. Verbindet man nun die beiden Umstände zu einem Zweiteilchensystem im Scherfluss, so entstehen Korrelationen zweier Teilchen in orthogonalen Richtungen.

Analog zum Einteilchenproblem kann auch für das Zweiteilchenproblem die Korrelationsmatrix aufgestellt werden. Da in Gleichung (8.29) keinerlei Einschränkungen bezüglich Teilchenanzahl gemacht wurden, beschreibt diese Gleichung auch die Korrelationsmatrix im Zweiteilchensystem. Es ist jedoch zu beachten, dass die Mobilitätsmatrix H eine sechsdimensionale Matrix gemäß Gleichung (3.24) darstellt, in der der Oseen-Tensor steckt.

Die gleiche Argumentation wie im Einteilchenfall führt dazu, dass die Autokorrelationen orthogonal zur Flussrichtung im System durch den Scherfluss unverändert bleiben und aus Kapitel 8.3.2 übernommen werden können

$$\left\langle y_{i}(0)y_{i}(t)\right\rangle = \left\langle z_{i}(0)z_{i}(t)\right\rangle = \frac{1}{4}\left[e^{-\lambda_{2}t} + e^{-\lambda_{4}t}\right].$$
(8.36)

Die Autokorrelation der x-Richtung ändert sich hingegen. Dies kann mit Hilfe von Gleichung (8.29) näher erläutert werden. Für  $\langle x_i(0) x_i(t) \rangle$  ergibt sich neben dem Ausdruck der Zweiteilchenkopplung ein Zusatzterm, der durch die Scherung entstanden ist und, analog zum Einteilchenfall in Gleichung (8.31), proportional zur zweiten Potenz der Weissenbergzahl ist [12]

$$\left\langle X_{i}(0)X_{i}(t)\right\rangle = \frac{1}{4} \left[e^{-\lambda_{1}t} + e^{-\lambda_{3}t}\right] + \frac{W^{2}}{4\mu} \left[-\frac{\lambda_{2}e^{-\lambda_{1}t}}{\lambda_{1}\rho_{1+2}} + \frac{e^{-\lambda_{2}t}}{\rho_{1+2}} + \frac{\lambda_{4}e^{-\lambda_{3}t}}{\lambda_{3}\rho_{4+3}} - \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{\rho_{4+3}}\right].$$
 (8.37)

Die Autokorrelationen, die nicht entlang der Flussrichtung liegen, relaxieren wie im Zweiteilchensystem ohne Scherung. Auch die Autokorrelation der Verbindungsachse hat einen Anteil, der der Autokorrelation ohne Fluss entspricht. Hinzu kommt jedoch noch ein Anteil, der quadratisch von der Weissenbergzahl abhängt.

Die Kreuzkorrelationsfunktion eines Teilchens hängt, wie in Kapitel 8.4.1 aufgeführt, linear von der Weissenbergzahl ab. Daran ändert auch die Anwesenheit der zweiten Kugel nichts. Aufgrund der zwei Möglichkeiten der Relativbewegungen der Kugel ergeben sich zwei charakteristische Relaxationszeiten.

Die orthogonale Kreuzkorrelation einer Kugel bei Anwesenheit einer zweiten lautet nach [12]

$$\langle x_1(0)y_1(t)\rangle = \langle x_2(0)y_2(t)\rangle = \frac{W}{4}\left[\frac{e^{-\lambda_2 t}}{\rho_{1+2}} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{\rho_{4+3}}\right].$$
 (8.38)

Anschaulich sollte die Korrelation  $\langle x_1(0)y_1(t)\rangle$  verschwinden, denn aus einer Kugelbewegung in x-Richtung folgt nicht direkt eine Bewegung in y-Richtung. Dieser Sachverhalt wurde bei dem Einteilchenfall bereits festgestellt. Aus diesem Grund entsteht der Beitrag in Gleichung (8.38) nicht direkt aufgrund der Scherung. Einer Bewegung von x folgt keine y-Bewegung. Dennoch besteht eine indirekte Korrelation der beiden Richtungen. Wie im Fall ohne Strömung kann die Korrelationsfunktion aus einem korrelierendem und einem antikorrelierendem Teil zusammengesetzt werden. Der erste Summand in Gleichung (8.38) entspricht dem korrelierenden Anteil, der zweite Summand steht für die Antikorrelation. Der genaue Kopplungsmechanismus kann mit Hilfe von Abbildung 8.18 nachvollzogen werden:  $X_1$  koppelt hydrodynamisch auf die Koordinate  $X_2$ , was in (8.38) durch den Eigenwert  $\lambda_1$  in  $P_{1+2}$  ausgedrückt wird. Diese Koordinate ist allerdings durch die Scherung von  $y_2$  abhängig  $(x_2 = x_2(y_2))$ .  $y_2$  ist zwar unabhängig von  $x_2$ , umgekehrt hängt aber  $x_2$  von  $y_2$  ab und ist dadurch korreliert. Diese Korrelation wirkt in y-Richtung und wird daher mit dem Eigenwert  $\lambda_2$  in  $\mathcal{P}_{\!_{1\!+\!2}}$  dargestellt. Die y-Koordinaten der beiden Kugeln korrelieren wiederum entlang der x-Koordinate, wie in der ruhenden Flüssigkeit in Gleichung (8.19) erläutert. Dies wird durch den Faktor  $e^{\lambda_2 t}$  ausgedrückt.

Damit ist  $x_1$  mit  $y_1$  unter Verwendung der zweiten Kugel gekoppelt  $(x_1 \rightarrow x_2 = x_2(y_2) \rightarrow y_1)$ .



Abbildung 8.18: Die x-Bewegung von Kugel 1 ist mit der x-Richtung von Kugel 2 in x-Richtung korreliert (a)), bei Kugel 2 sind durch die Abhängigkeit der x-Koordinate von ihrer y-Position die beiden Koordinaten ebenfalls korreliert (b)) was dazu führt, dass die y-Koordinaten beider Kugeln über die x-Richtung korrelieren (c)).

Der gleiche Mechanismus gilt auch für den Fall der Antikorrelation. Er liefert so den zweiten Summanden in (8.38) und ist in Abbildung 8.19 schematisch aufgezeigt.



Abbildung 8.19: Die x-Bewegung von Kugel 1 ist mit der x-Richtung von Kugel 2 in x-Richtung antikorreliert (a)), bei Kugel 2 sind durch die Abhängigkeit der x-Koordinate von ihrer y-Position die beiden Koordinaten ebenfalls antikorreliert (b)) was dazu führt, dass die y-Koordinaten beider Kugeln über die x-Richtung antikorrelieren (c)).

Die Korrelation  $\langle y_1(0) x_1(t) \rangle$  setzt sich folgendermaßen zusammen

$$\left\langle y_{1}(0) x_{1}(t) \right\rangle = \left\langle y_{2}(0) x_{2}(t) \right\rangle = \frac{W}{4\mu} \left[ -\frac{2\lambda_{2} e^{-\lambda_{1}t}}{\rho_{1+2}} + e^{-\lambda_{2}t} + \frac{2\lambda_{4} e^{-\lambda_{3}t}}{\rho_{4+3}} - e^{-\lambda_{4}t} \right]. \quad (8.39)$$

In (8.39) kommt neben dem indirekten Weg der Kopplung  $(y_1 \rightarrow y_2 \rightarrow x_2 \rightarrow x_1)$  noch der direkte Teil hinzu.

Indirekt führt eine y-Fluktuation der ersten Kugel zu einer y-Korrelation der zweiten. Dabei breitet sich die y-Kopplung entlang der x-Achse aus, was durch den Ausdruck  $e^{\lambda_2 t}$  für die Korrelation beziehungsweise  $e^{\lambda_4 t}$  für die Antikorrelation in (8.39) beschrieben wird. Die y-Richtung der zweiten Kugel ist mit der x-Richtung gekoppelt. Der Vergleich von (8.35) zeigt die Herkunft des Ausdrucks  $2\lambda_2$ , beziehungsweise  $2\lambda_4$  auf. Er kommt direkt aus der Korrelationsfunktion eines Teilchens. Die hydrodynamische Wechselwirkung in x-Richtung entlang der Verbindungsache mit den Eigenwerten  $e^{\lambda_1 t}$  beziehungsweise  $e^{\lambda_3 t}$  führt zur gesamten Korrelationsfunktion. Eine y-Fluktuation führt direkt zur x-Bewegung. Dies wird in  $e^{\lambda_{13} t}$  ausgedrückt.

Es fällt bei Gleichung (8.38) und (8.39) auf, dass die Multiplikationen der Ortskoordinaten, also die Korrelationen aufgrund des Flusses, nicht vertauschbar sind. Der Grund liegt im Scherfluss, der in Gleichung (8.39) zu einer zusätzlichen direkten Kopplung führt.

Die Korrelationen senkrecht zur Flussrichtung zweier Teilchen sind identisch zu den Korrelationen ohne Fluss
$$\left\langle y_{i}(0)y_{j}(t)\right\rangle = \left\langle Z_{i}(0)Z_{j}(t)\right\rangle = \frac{1}{4} \left[e^{-\lambda_{2}t} - e^{-\lambda_{4}t}\right].$$
(8.40)

In Richtung der Strömung addiert sich, analog zur Autokorrelation, ein Term der quadratisch von der Weissenbergzahl abhängt.

$$\left\langle x_{i}(0)x_{j}(t)\right\rangle = \frac{1}{4} \left[e^{-\lambda_{1}t} - e^{-\lambda_{3}t}\right] + \frac{W^{2}}{4\mu} \left[-\frac{\lambda_{2}e^{-\lambda_{1}t}}{\lambda_{1}\rho_{1+2}} + \frac{e^{-\lambda_{2}t}}{\rho_{1+2}} - \frac{\lambda_{4}e^{-\lambda_{3}t}}{\lambda_{3}\rho_{4+3}} + \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{\rho_{4+3}}\right]. \quad (8.41)$$

Der Vergleich der Korrelationen mit und ohne Fluss in Abbildung 8.20 zeigt jedoch, dass eine Unterscheidung der Korrelationsfunktionen im Rahmen der Messgenauigkeit nicht möglich war.



Abbildung 8.20: Zwei  $3\mu m$  Kugeln wurden im Abstand von  $4.5\mu m$  mit 15kHz und der Fallenkonstanten  $k = 6.33 \cdot 10^{-6} N/m$  durch die Kamera aufgenommen. Dargestellt ist nur jeder 10. Messpunkt. Eine Unterscheidung der Korrelationen mit und ohne Scherfluss entlang der Verbindungsachse war nicht möglich.

Die verbleibenden Korrelationen bestimmen die Reaktion einer Kugel auf die senkrecht dazu agierende Fluktuation der anderen Kugel. Sie stehen in den Messungen im Mittelpunkt des Interesses

$$\left\langle y_{1}(0) x_{2}(t) \right\rangle = \left\langle y_{2}(0) x_{1}(t) \right\rangle = \frac{W}{4\mu} \left[ -\frac{2\lambda_{2} e^{-\lambda_{1}t}}{\rho_{1+2}} + e^{-\lambda_{2}t} - \frac{2\lambda_{4} e^{-\lambda_{3}t}}{\rho_{4+3}} + e^{-\lambda_{4}t} \right] \quad (8.42)$$

$$\langle x_1(0)y_2(t)\rangle = \langle x_2(0)y_1(t)\rangle = \frac{W}{4} \left[\frac{e^{-\lambda_2 t}}{\rho_{1+2}} - \frac{e^{-\lambda_4 t}}{\rho_{4+3}}\right].$$
 (8.43)

Diese Korrelationen sind deswegen so interessant, weil sie zwei komplexe Sachverhalte miteinander verbinden. Zum einen die hydrodynamische Kopplung zweier Kugeln, zum anderen die Kopplung in einem Scherfluss. Diese Korrelationsfunktionen sind bis auf die Verknüpfung von Korrelation und Antikorrelation durch die Vorzeichen von gleicher Gestalt wie die Korrelationen eines Teilchens im Zweiteilchensystem aus Gleichung (8.38) und (8.39). Dies ist verständlich wenn man bedenkt, dass alle möglichen Wechselwirkungen bereits in der Korrelation eines Teilchens stecken. Beachtet werden muss nur noch die Tatsache, dass die Kugeln antikorreliert sind. Die Amplitudenvorzeichen für die Antikorrelation müssen daher invertiert werden. Dies ist bei den Termen  $\propto e^{\lambda_3}$  und  $\propto e^{\lambda_4}$  der Fall.

Der zeitliche Verlauf der Korrelationsfunktionen aus Gleichung (8.42) und (8.43) ist in Abbildung 8.21 zu sehen.



Abbildung 8.21: Die Korrelationsfunktion aus Gleichung (8.42) ist für positive Zeiten (blau) aufgetragen, während für die negativen Zeiten (rot) Gleichung (8.43) verwendet wurde. Außerdem wurde eine Normierung der beiden Funktionen durchgeführt

In Abbildung 8.21 ist die Asymmetrie der Korrelationsfunktion klar zu erkennen. Mathematisch folgt dieser Sachverhalt aus der Tatsache, dass die Matrix M durch die Scherströmung *S* nicht mehr symmetrisch ist.

Auch hier kann der Verlauf der Funktion veranschaulicht werden. Eine Fluktuation in positive y-Richtung hat nach der Diskussion in Kapitel 8.4.1 eine positive Bewegung in x-Richtung zur Folge. Verantwortlich dafür ist der Scherfluss. Die beiden Kugeln sind aber in x-Richtung antikorreliert. Dies gilt sowohl im Fall ohne Fluss (Kapitel 8.3.2) als auch im Fall mit anliegender Strömung. Folglich fluktuiert die zweite Kugel in negative x-Richtung. Somit folgt aus einer positiven y Fluktuation der ersten Kugel eine negative x-Fluktuation der zweiten Kugel. Die Korrelationsfunktion ist also negativ. Die Asymmetrie in Abbildung 8.21 ist wiederum durch den externen Fluss zu erklären, der eine zeitliche Irreversibilität verursacht und die Nichtgleichgewichtsthermodynamik widerspiegelt.

Im Experiment wurden zwei  $3\mu m$  Kugeln in einer Entfernung von etwa  $4.5\mu m$ entlang der x-Koordinate angeordnet. Der durch die Mikrofluidik generierte Scherfluss war so orientiert, dass die Gradientenrichtung der y-Richtung entsprach. Die Scherrate die im System erzielt wurden betrugen bis zu  $\dot{\gamma} = 50 s^{-1}$ . Die Kugelpositionen wurden mit der Kamera aufgenommen und die erzielten Bilder wurden korreliert, um ihre Positionen zu ermitteln. Das Programm zur Korrelierung der Ortsposition aus Kapitel 5.3.1 ermittelte die Korrelationsfunktionen.

Das Experiment lieferte die in Abbildung 8.22 exemplarische aufgeführte Korrelationsfunktion die mit den theoretischen Modellen sehr gut überein stimmte.



Abbildung 8.22: Aufgezeigt ist die Korrelationsfunktion zweier Kugeln in orthogonaler Richtung bei einer Scherrate von  $\dot{\gamma} = 50 \, s^{-1}$  und einer Fallenstärke von  $k = 8.91 \cdot 10^{-6} \, N/m$ . Die negativen Zeiten entsprechen der Korrelation  $C(x_1(0)y_2(t))$  in rot, während für positive Zeiten die Korrelation  $C(y_1(0)x_2(t))$  in blau aufgetragen ist. Die grünen Kurven zeigen die Anpassung der theoretischen Kurven an die Messwerte. Die Kugeln vom  $3\mu m$  Durchmesser waren im Abstand von  $4.5\mu m$ angeordnet. Zum Vergleich sind die Korrelationen ohne Scherfluss in schwarz dargestellt.

In Abbildung 8.22 ist ähnlich wie in Abbildung 8.16 eine Abweichung in Form von zwei Extrema der experimentellen Daten von den Modellen zu erkennen. Auch

hier könnten Rotationseffekte der Kugeln für diesen Sachverhalt verantwortlich sein.

In Abbildung 8.23 bis Abbildung 8.36 ist eine Auswahl von Korrelationsmessungen aufgeführt, die im Scherfluss aufgenommen wurden und alle die Zweiteilchenkorrelationen in orthogonalen Richtungen zeigen. Dabei wurde nur jeder 5. Datenpunkt in schwarz gezeichnet. Die theoretischen Kurven aus Gleichung (8.43) und (8.42) wurden in rot angepasst. Auf der negativen Zeitskala wurden die  $\langle x_1(0)y_2(t)\rangle$ - und auf der positiven Skala die  $\langle y_1(0)x_2(t)\rangle$ -Korrelationen aufgetragen. Der Kugelabstand betrug dabei jeweils 4.6 $\mu m$ .











Die aufgezeigten Daten sowie weitere Messungen der Korrelation im Scherfluss wurden analysiert, angepasst und der Betrag des Korrelationsminimums gegen

die aus der Anpassung ermittelte Weissenbergzahl der Messung aufgetragen. In Gleichung (8.42) ist zu erkennen, dass das Korrelationsminimum eine lineare Funktion der Weissenbergzahl darstellen sollte. Die experimentellen Daten bestätigten diese Vorhersage sehr gut wie in Abbildung 8.37 zu sehen ist.



Abbildung 8.37: Die Tiefe des angepassten Korrelationsminimums ist eine lineare Funktion der Weissenbergzahl im System.

Die aufgezeigten Kurven von Abbildung 8.23 bis Abbildung 8.36 zeigen alle den schematischen Verlauf aus Abbildung 8.21. Das Korrelationsminimum liegt bei allen Kurven zwischen t=5ms und t=13ms. Die Messungen zeigen Schwankungen um die theoretischen Werte. Die Ursache liegt wahrscheinlich an der begrenzten Anzahl von Ortspositionen. Würde eine Korrelation über noch mehr Punkte erfolgen, so würden sich die experimentellen Daten wohl immer besser zu den theoretischen Werten anpassen.

Mit den oben aufgeführten Messungen ist es erstmals experimentell gelungen, die hydrodynamische Kopplung zweier Brownscher Kugeln im Scherfluss in orthogonalen Richtungen nachzuweisen. Die experimentellen Daten unterstützten die theoretischen Vorhersagen sehr gut. Außerdem konnte der fundamentale Zusammenhang der Korrelationsstärke mit der Weissenbergzahl bestätigt werden. Diese Arbeit stellte somit neuartige fundamentale Messungen vor, die beweisen, dass hydrodynamische Kopplungen auch in Scherströmungen eine wichtige Rolle spielen können.

#### 8.5 Ortspositionen

Eine Korrelation kann auch mir der direkten Beobachtung der Kugelpositionen beobachtet werden. Dazu werden die Ortspositionen der Kugel in den verschiedenen Richtungen aufgetragen und die Verteilung analysiert. Um die Korrelationsmessungen noch fester zu untermauern und eine neue, zusätzliche und unabhängige Methode zu verwenden, die beispielsweise die Weissenbergzahl abschätzt, wird im Folgenden die Ortsverteilung einer Kugel genau analysiert.

Eine freie Kugel ohne Potential führt eine Brownsche Bewegung aus. Dabei wird ihr Mittelwert der Ortskoordinaten nicht von Null abweichen, ihre Varianz jedoch, so wie in Gleichung (2.18) dargestellt, linear von der Zeit abhängen.

Im harmonischen Potential der optischen Pinzette ist die Varianz nicht mehr zeitabhängig; sie hängt nur von der Fallenkonstante ab. Dies wurde bereits in Gleichung (2.21) hergeleitet. Geht man nun davon aus, dass die Fallenkonstanten in beide beobachtbare Ortsrichtungen in der xy-Ebene gleich groß sind, so ergibt sich eine rotationssymmetrische Ortsverteilung der Kugel in der Falle entlang der optischen Achse. Eine experimentelle Messung hierzu ist in Abbildung 8.38 zu sehen.



Abbildung 8.38: Dargestellt ist die Ortsverteilung einer 3µm Kugel im ruhenden Medium im harmonischen Potential der optischen Falle. Die Histogramme (rot) wurden entlang der x- und der y-Achse Das Verhältnis erstellt. der Histogramm-Varianzen beträgt 0.98, die Fallenkonstanten sind beiden Richtungen also in nahezu gleichgroß. In grün sind Orientierungen die der Raumachsen aufgezeichnet, an denen die Histogramme generiert wurden. Die Länge ist dabei proportional zur Varianz der Histogramme.

Die in grün eingezeichneten Längen in Abbildung 8.38 sind proportional zu den Varianzen der Positionen entlang der Achsen. Sie sind in beiden Richtungen vergleichbar groß. Außerdem wurden entlang der Achsen noch die Ortsverteilungen aufgetragen. Die Histogramme beschreiben gaußförmige Verteilungen, wie sie auch nach Gleichung (6.5) zu erwarten sind. Interessanter als die Messung der Ortsverteilung im ruhenden Medium ist jedoch die Messung im Scherfluss. Die Verteilung der Ortskoordinaten ist nicht mehr rotationssymmetrisch entlang der z-Achse, wie im Fall ohne Scherfluss. Wie schematisch in Abbildung 8.14 zu erkennen ist, wird die kugelsymmetrische Verteilung der Position durch den externen Antrieb in Flussrichtung verzerrt. Somit ergibt sich eine Ortsverteilung, die eine elliptische Gestalt hat. Der Grund dafür wurde bereits in Kapitel 8.4.1 erläutert und kann mit Hilfe von Abbildung 8.14 leicht nachvollzogen werden. Experimentelle Messungen wie in Abbildung 8.39 bestätigen die elliptische Form der Ortspositionen.



Abbildung 8.39: Dargestellt sind die Ortsposition einer  $3\mu m$  Kugel im Scherfluss. Die Scherrate im System betrug  $\dot{\gamma} = 30 \, s^{-1}$ . Die in rot aufgezeichneten Histogramme wurden entlang der Ellipsen Hauptachsen erstellt. Das Verhältnis der Histogramm-Varianzen betrug 0.75 und der großen Drehwinkel der Hauptachsen lag bei 38°. In grün sind die Orientierungen Ellipsenhauptachsen der aufgezeichnet, wobei deren Länge proportional zur Varianz der Histogramme eingezeichnet wurden. Aus den hier abgebildeten Ortskoordinaten konnte die in Abbildung 8.16 ermittelte Korrelationsfunktion gewonnen werden.

Die gemessenen Kreuzkorrelationen aus Kapitel 8.4 stimmen nicht nur qualitativ mit den theoretischen Vorhersagen überein. Es besteht ein Zusammenhang zwischen der dort auftauchenden Weissenbergzahl und dem Drehwinkel der Hauptachse aus Abbildung 8.39. Dieser Zusammenhang wird in [13] erläutert und wird hier kurz aufgezeigt.

Die eindimensionale Ortsverteilung der Kugel folgt im Potential ohne anliegenden Scherfluss gemäß Gleichung (6.5) einer Gaußverteilung

$$P(x) \propto e^{-\frac{U(x)}{k_B T}} = e^{-\frac{kx^2}{2k_B T}}.$$
(8.44)

Allgemeiner kann diese Verteilung in zwei Dimensionen mit Hilfe der Kovarianz-Matrix dargestellt werden [13]

$$C = \left\langle \vec{x}\vec{x}^{T} \right\rangle = \begin{pmatrix} \left\langle xx \right\rangle & \left\langle xy \right\rangle \\ \left\langle yx \right\rangle & \left\langle yy \right\rangle \end{pmatrix}, \tag{8.45}$$

so das die Verteilung mit

$$P(\vec{x}) \propto e^{-\frac{k\vec{x}^T C^{-1}\vec{x}}{2k_B T}}$$
(8.46)

ausgedrückt werden kann. Die Verteilung ist also von der auftretenden Matrix abhängig und kann durch die Matrixeigenschaften beschrieben werden. Ohne Scherfluss verschwinden die Außerdiagonalelemente der Kovarianz-Matrix, so dass die Eigenvektoren entlang den Koordinatenachsen liegen. Im Scherfluss besitzt Kovarianz-Matrix ist die auch nichtverschwindende Nebendiagonalelemente. Diese führen zu veränderten Eigenwerten und Eigenvektoren. Die Abhängigkeit der Matrix von der Weisssenbergzahl im System kann mit Hilfe der Gleichungen (8.30), (8.31) und (8.34) abgeleitet werden, wobei das Zeitverhalten der Korrelationen hier vernachlässigt wird. Die Zeit t wird also identisch Null gesetzt. Die Orientierung der Eigenvektoren besitzt eine Abhängigkeit von der Weissenbergzahl. Der Drehwinkel  $\varphi$  zwischen der x-Achse und der großen Hauptachse ist direkt mit ihr verknüpft [13]

$$\tan \varphi = \frac{1}{2} \left[ \sqrt{4 + W^2} - W \right].$$
 (8.47)

Außerdem hängt auch das Verhältnis der Hauptachsen Ra von der Weissenbergzahl ab

$$Ra = \left(\frac{\sqrt{4 + W^2} - W}{\sqrt{4 + W^2} + W}\right)^{1/2}.$$
(8.48)

Um die Weissenbergzahl im System zu bestimmen, gibt es mehrere Möglichkeiten. So genügt es zum Beispiel, die Kreuzkorrelation zum Zeitpunkt Null mit der vom Scherfluss unbeeinflussten y-Autokorrelation zu vergleichen. Gemäß Gleichung (8.30) und (8.34) ist das Verhältnis von

$$\frac{\langle x(0)y(0)\rangle}{\langle y(0)y(0)\rangle} = \frac{W}{2}.$$
(8.49)

Das Verhältnis der Korrelationen zum Zeitpunkt Null ist beispielsweise in Abbildung 8.16 etwa 0.26, was einer Weissenbergzahl von W=0.52 entspricht. Bei dieser Weissenbergzahl wird der Drehwinkel gemäß Gleichung (8.47) mit 33°

vorhergesagt und das Achsverhältnis beträgt gemäß Gleichung (8.48) 0.77. Diese Werte stimmen im Rahmen der Messgenauigkeit mit den in Abbildung 8.39 ermittelten Werten von 38° und dem Verhältnis von 0.75 sehr gut überein. Somit liefert die Bestimmung der Weissenbergzahl über die Einteilchen-Ellipsenbewegung die gleichen Ergebnisse wie die zuvor aufgeführte Korrelation.

Eine weitere Konsistenz der Ergebnisse liefert die PTV-Methode. Bestimmt man das Maximum aus der Korrelationsfunktion in Abbildung 8.16, so ist diese bei etwa t=0.009s zu finden. Diese entspricht nach Gleichung (8.35) einer Relaxationszeit von  $\tau^{-1} = 0.018s$ . Mit der Weissenbergzahl von W=0.52 aus der Korrelationsabschätzung bei t=0 erhält man mit Hilfe von Gleichung (8.33) eine Scherrate von  $\dot{\gamma} = 29s^{-1}$ . Auch hier besteht eine Übereinstimmung zwischen der Auswertung und der gemessenen Scherrate mit Hilfe der PTV-Methode im Rahmen der Messgenauigkeit, die eine Scherrate von  $\dot{\gamma} = 22s^{-1}$  ermittelte.

#### 8.6 Diskussion der Ergebnisse

Das Einfangen von Kugeln in der ruhenden Flüssigkeit hat sich als unproblematisch herausgestellt. Die Erfahrung zeigte, dass Kugeln mit  $3\mu m$ Durchmesser im Experiment am besten zu handhaben waren. Größere Kugeln führten später in der Strömung auf Grund der großen Reibungskraft zur schnellen Flucht aus der Falle und kleinere Kugeln sind schwieriger im optischen Potential zu halten. Die Rotationssymmetrie entlang der optischen Achse der beiden optischen Fallen konnte nach geübter Justierung der Laser relativ gut gewährleistet werden. Somit waren die Voraussetzungen für die Korrelationsmessungen im ruhenden Medium geschaffen.

Die Schwierigkeit lag im festhalten der Kugeln im Scherfluss. Die folgende Abschätzung soll das Problem veranschaulichen. Bei einer typischen Fallenkonstanten von  $k = 3 \cdot 10^{-6} N/m$  kann eine  $3\mu m$  große Kugel erfahrungsgemäß etwa 500*nm* ausgelenkt werden, bevor sie die Falle verlässt. Setzt man diese Fallenkraft gleich der Reibungskraft, so flüchtet die Kugel ab einer Relativgeschwindigkeit von etwa 50 $\mu m/s$  aus der Falle

$$\frac{kx}{6\pi\eta R} = v \approx 50 \,\mu m/s. \tag{8.50}$$

Bei einer Scherrate von  $\dot{\gamma} = 30 s^{-1}$  bedeutet dass, das die Kugel maximal um 1.6 $\mu m$  aus dem Stagnationspunkt der Geschwindigkeit ausgelenkt werden darf, bevor sie durch die Strömung aus der Falle getrieben wird

$$\frac{\Delta V}{\dot{\gamma}} = \Delta x \approx 1.6\,\mu\text{m}.\tag{8.51}$$

Das hat zur Folge, dass während der Flusseinstellung in der Mikrofluidik die Kugel immer am Ort des Stagnationspunktes gehalten werden muss. Die Positionsgenauigkeit muss dabei im Bereich von  $\pm 2\mu m$  liegen.

Obwohl für die Positionierung zweier Teilchen im Fluss die gleiche Präzision notwendig ist, verhielt sich das System aus zwei Kugeln noch wesentlich anfälliger und war schwieriger zu handhaben. Aufgrund der Kugelanordnung musste nun das Geschwindigkeitsfeld über eine größere Fläche kontrolliert werden. Während im Einteilchenfall die Strömung nur lokal auf der Skala von etwa  $5 \times 5 \mu m^2$  der Geschwindigkeitsbedingung genügen musste, ist im Zweiteilchenfall das Feld im Bereich von etwa  $5 \times 10 \mu m^2$  zu kontrollieren, um ein Messung zu ermöglichen.

Aus diesem Grund waren die Zweiteilchenmessungen wesentlich aufwändiger im Scherfluss zu realisieren.

Die Messergebnisse der Einteilchen- als auch der Zweiteilchen-Korrelationen decken sich im Experiment sehr gut mit den theoretischen Vorhersagen. So stimmten sowohl die Kurvenverläufe als auch die Zeitskalen zwischen Experiment und Theorie exzellent überein. So wurde der Anspruch die orthogonale Zweiteilchenkopplung im Scherfluss nachzuweisen vollkommen erfüllt. Durch den Proportionalitätsnachweis der Korrelationstiefe zu der Weissenbergzahl wurde sogar die wichtigste theoretische Vorhersage der Korrelationsabhängigkeit von der Scherrate bestätigt. In Abbildung 8.16 und Abbildung 8.22 sind neben den gemessenen Korrelationen noch die theoretischen Modelle an die Messkurven angepasst. Dabei fällt auf, dass in beiden Abbildungen neben dem Hauptextremum noch zwei weitere Extrema existieren, die nicht durch die Theorie erklärt werden. In beiden Experimenten kann der Fehler mit ±0.05 mit Hilfe der Messungen ohne Scherfluss abgeschätzt werden. Die Extrema liegen vor allem im Einteilchenfall außerhalb des Fehlerbereiches.

Eine mögliche Erklärung der Extrema könnten Rotationseffekte darstellen. In den theoretischen Modellen wurden Rotationen der Kugeln vernachlässigt. Befindet sich jedoch eine Kugel im Scherfluss, so wirkt an der oberen Kugelbegrenzung eine andere Reibungskraft als an der unteren Begrenzung. Diese unterschiedlich starken Kräfte führen zu einem Drehmoment der Kugel. In den Experimenten konnten diese Rotationen bei Objekten beobachtet werden die zufällig keine Kugelgestallt annahmen und in die Fallen gezogen wurden. Ein Auftreten von Geschwindigkeitsfeldern rotierenden im Experiment kann also nicht ausgeschlossen werden. In der Theorie wurden diese Felder jedoch vernachlässigt.

Die Analyse der Verteilung der Kugelpositionen im Einteilchenfall lieferte innerhalb der Fehlergrenzen eine sehr gute Übereinstimmung mit der Theorie. Die Ausprägung der elliptischen Ortsverteilung erlaubte das Festlegen der Richtung und der Länge der Hauptachsen. Somit konnten sowohl die Korrelationsamplituden als auch der Schergradient von etwa  $\dot{\gamma} = 30 s^{-1}$  auf eine unabhängige Art und Weise nachgewiesen werden.

#### 8.7 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde die Theorie der Korrelationsfunktionen eingeführt. Dabei wurden sowohl Systeme mit einer Kugel als auch mit zwei Kugeln behandelt. So dient beispielsweise die Autokorrelation einer Kugel im ruhenden Medium auch zur Bestimmung der Fallenkonstanten. Im Zweiteilchensystem wurden die Korrelationen entlang der Verbindungsachse erläutert, experimentell nachgewiesen und die Abhängigkeit des Korrelationsminimums von der Fallenkonstante aufgezeigt.

Die orthogonalen Korrelationsfunktionen eines Teilchens im Scherfluss stellten eine experimentelle Herausforderung dar. Es gelang hier erstmals, die Korrelation nachzuweisen und die theoretischen Modelle somit zu bestätigen.

Der anspruchsvollste Nachweis war die Beobachtung der Zweiteilchenkorrelation im Scherfluss. In orthogonaler Richtung konnte die hydrodynamische Kopplung experimentell bestätigt werden, die zuvor theoretisch vorhergesagt wurde. Dabei ist eine sehr exakte Übereinstimmung der Theorie mit dem Experiment festzustellen. Neben dem Verlauf der Korrelationsfunktionen konnte auch die Abhängigkeit der Korrelationstiefe von der im System wirkenden Weissenbergzahl experimentell gezeigt werden. Sie entsprach dabei den Vorhersagen der linearen Abhängigkeit exakt.

Nicht nur die experimentell erzielten Korrelationsfunktionen waren konsistent mit den Voraussagen, auch davon unabhängige Winkelanalysen der Kugelortsverteilung stimmten mit den Vorhersagen überein. So wurde eine elliptische Ortsverteilung einer Kugel im Scherfluss vorausgesagt, die experimentell nachgewiesen wurde. Die Hauptachsenverhältnisse bestimmten die Weissenbergzahl, die mit der Analyse der Hauptachsendrehung im Rahmen der Messgenauigkeit übereinstimmte.

Aufgrund der guten Übereinstimmung zwischen der Theorie und dem Experiment war die Annahme, dass sich die Fluktuationen aufgrund des Antriebes nicht ändern, gerechtfertigt. In der Theorie wurden die Fluktuationseigenschaften vom Gleichgewichtssystem ins getriebene System übernommen. Dies ist für kleine Störungen möglich, gilt allerdings nicht allgemein für alle Nichtgleichgewichtssysteme.

### 9 Resümee

Die hier vorliegende Arbeit entstand aus der Idee, hydrodynamische Wechselwirkungen zweier, der Brownschen Molekularbewegung und einem Scherfluss unterliegenden Kugeln experimentell nachzuweisen.

Um die Bewegung der Kugeln zu verstehen, wurden in den ersten Kapiteln die theoretischen Grundlagen vorgestellt, die das Verhalten Brownscher Kugeln im ruhenden Medium und in der Strömung charakterisiert. Neben der externen Strömung wurde auch die Beeinflussung durch die optische Pinzette als Messinstrument erläutert. Diese kann durch ein harmonisches Potential beschrieben werden, in dem sich die Kugel bewegen kann und dient gleichzeitig als Messinstrument zur Kugelbeobachtung. Die in Kapitel 8 hergeleiteten Korrelationsfunktionen ließen erste Rückschlüsse auf die zeitlich erforderliche Messauflösung zu, die im Bereich von einigen kHz liegen sollte.

Mit dieser Motivation und auf der Basis der theoretischen Vorhersagen wurde experimenteller Aufbau eigens ein gestaltet, der es erlaubte, Teilchenfluktuationen mit einer Ortsauflösung von 8nm und einer Zeitauflösung von 15kHz mit Hilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera zu erfassen. Die Verwendung von optischen Pinzetten erwies sich dabei in vielerlei Hinsicht als sehr geeignet: Zum einen blieben die Kugeln am Messpunkt lokalisiert und wurden nicht von dem Strömungsfeld wegtransportiert. Zum Anderen erlaubten die beiden Fallen eine nahezu beliebige Positionierung der beiden zu untersuchenden Kugeln. Denn insbesondere der Kugelabstand musste für die Untersuchung der gegenseitigen Wechselwirkung sehr genau eingestellt werden. Zu guter Letzt ermöglichten die Streusignale der Kugeln eine zeitlich hochauflösende Messung in ruhenden Flüssigkeiten, die mit herkömmlicher Videomikroskopie nicht erreicht werden kann. Je nach Probenzelle waren mit Hilfe von positionssensittiven Detektoren Kugeldetektionen und damit auch Korrelationsmessungen bis zu 100kHz möglich, die ebenfalls vorgestellt wurden.

Das Hauptaugenmerk der Arbeit lag in der Untersuchung der Fluktuationen im Scherfluss wie sie in Kapitel 8 aufgeführt werden. Die hohen Anforderungen an das lineare Geschwindigkeitsfeld wurden mit Hilfe einer speziellen Mikrofluidik erfüllt. Eine eigens designte mikrofluidische Flusszelle ermöglichte die Generierung einer Strömung, deren mittlere Geschwindigkeit klein genug war, um mit der optischen Pinzette Kugeln im Strömungsfeld zu halten. Das real auftretende Strömungsverhalten wurde mittels der PIV Methode experimentell charakterisiert. Dabei stellte sich heraus, dass die zuvor simulierten Strömungslinien, die für das Design der Flusszelle ausschlaggebend waren, ausgesprochen gut mit den Messungen übereinstimmten. Somit war ein System aufgebaut, das prinzipiell eine Fluktuationsdetektion im Scherfluss mit ausreichender Qualität ermöglichte.

Die erzielten Scherraten während der Korrelationsmessungen lagen bei etwa  $\dot{\gamma} = 30 \, s^{-1}$ . Diese reichten aus, um eine Korrelation von orthogonalen Bewegungsrichtungen einer  $3 \mu m$  großen Kugel im harmonischen Potential nachzuweisen. Es zeigte sich, dass die x-Koordinate von der y-Position einer Kugel abhängig war. Somit war es erstmals experimentell gelungen, orthogonale Korrelationen von Brownschen Objekten im Scherfluss nachzuweisen. Zudem zeigte die Analyse der Ortspositionen eine elliptische und nicht, wie im ruhenden Medium, eine zirkulare Ortsverteilung. Der Grund für diese Verzerrung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit liegt im Scherfluss, der zusätzliche Kräfte auf die Kugel ausübt. Die Hauptachsen dieser Ellipse waren gegenüber dem Koordinatensystem der Probenzelle verdreht. Aus dieser Drehung konnte auf die Scherrate im System geschlossen werden, die mit PTV-Methoden im Einklang war.

Der Fokus lag jedoch auf dem Nachweis der scherinduzierten Korrelationen im Zweitelchensystem. Die beiden zu untersuchenden Kugeln wurden im Abstand von etwa  $4.5 \mu m$  nebeneinander in zwei optischen Fallen angeordnet. Die Gradientenrichtung der Strömung war dabei senkrecht zur Verbindungsachse der Kugeln ausgerichtet. Auch hier betrugen die Scherraten an der Kugelposition etwa  $\dot{\gamma} = 30 \bar{s}^{-1}$ . Neben den neu entdeckten Einteilchenkorrelationen gelang es auch, Korrelationen zwischen den Kugeln nachzuweisen. Die besondere Herausforderung lag beim Nachweis der Korrelationsfunktion zweier Kugeln in orthogonaler Richtung. Die untersuchten Kugeln zeigten hierbei eine Antikorrelation auf, die mit den theoretischen Modellen im Zeit- und Amplitudenverhalten sehr gut übereinstimmte. Somit wurde die Anforderung an Arbeit. dem die vorliegende Nachweis der scherinduzierten Zweiteilchenkopplung, voll erfüllt. Darüber hinaus konnte durch Korrelationsmessungen bei verschiedenen Weissenbergzahlen experimentell bestätigt werden, dass die Tiefe des Korrelationsminimums eine lineare Funktion der Weissenbergzahl ist. Dies entspricht exakt den theoretischen Vorhersagen.

Die Grundlagen für experimentelle Untersuchungen des Fluktuationsverhaltens im Scherfluss wurden durch die vorliegende Arbeit gelegt. Darauf aufbauend können bevorstehende Messungen neue, interessante Fluktuationsphänomene untersuchen. Zukünftige Messungen werden sich mit dem Korrelationsverhalten bei geänderter Strömungsanordnung befassen. So soll die Anordnung der Kugeln im Scherfeld abgeändert werden. Die Verbindungslinie liegt dann in Gradientenrichtung der Strömung. Die theoretische Behandlung dieser Anordnung sagt Korrelationen im System voraus, die sich von den hier vorgestellten unterscheiden [13].

Weitere zukünftige Untersuchungen sollten sich mit Polymerlösungen als umgebendes Lösungsmittel beschäftigen. Die vorliegende Arbeit bildet die Grundlage für die weitere experimentelle Untersuchung von mikroskopischen Schereffekten, wie sie in Polymerlösungen sehr oft auftreten. Polymerlösungen stellen Flüssigkeiten dar, die nicht nur ein viskoses, also dissipatives Verhalten zeigen, sondern auch elastische Eigenschaften besitzen. Aus diesem Grund werden sich die Korrelationsfunktionen in solchen Medien von den Funktionen in Wasser grundlegend unterscheiden.

Aufgrund der Tatsache, dass die Brownschen Fluktuationen stochastische Prozesse darstellen, können allgemein Wahrscheinlichkeitsaussagen über Entwicklungen von Größen bestimmte getroffen werden. In einem Nichtgleichgewichtssystem, wie es beispielsweise hier behandelt wurde, bestehen Wahrscheinlichkeitsverteilungen für die geleistete Arbeit und die Wärme die im System angesammelt wurde. Diese Verteilungen sind abhängig vom Experiment selbst und geben letztlich Aufschluss über das Verhalten des Systems. So sind beispielsweise getriebene Systeme, im Gegensatz zu Gleichgewichtssystemen, durch Wärmeverluste gekennzeichnet. Während also im Gleichgewicht das Verhältnis der Wahrscheinlichkeiten über Wärmezu- und Wärmeabfluss identisch Eins ist, ist dies im Nichtgleichgewicht nicht mehr der Fall, diese Systeme dissipieren Wärme. Es bietet sich an, die Entropieänderung im getriebenen System zu analysieren. Dazu könnte die zeitliche Entwicklung der Wahrscheinlichkeitsverteilung einer Ortskoordinate beobachtet werden [75, 76].

Zuletzt könnten Untersuchungen auf theoretischer Seite abklären, in wie weit rotationsbedingte Effekte die Korrelationen beeinflussen und so eventuell die beiden experimentell aufgetretenen Minima der Einteilchenkorrelationsfunktion erklären. Außerdem würden theoretische Modelle mit Viskositäts- und Elastizitätsanteilen des umgebenden Lösungsmittels zukünftige Polymerlösungs-Experimente verständlich machen und die Ergebnisinterpretation erleichtern.

# 10 Anhang

# 10.1 Korrelationsalgorithmus der Ortskoordinaten



#### 10.2 PIV Algorithmus in Matlab

% Schleife durchläuft die Bilder im angegebenen Ordner

O='E:\Messung\2008\5_Mai\19_2\9';	% Ordner mit den PIV Bildern
N=511;	% Anzahl der Bilder -1 im obigen Ordner die PIV unterzogen werden
name='Event126_0'	% Präfix der Bilder
endung='.jpg'	% Format der Bilder
T=0.004	% Zeit zwischen zwei Bildern
kos=''	% Eichdatei, muss sich im gleichen Verzeichnis wie die bilder befinden .mat
mask=''	% Maskendatei muss sich im gleichen Verzeichnis befinden wie die Bilder
	.mat

cd(O); mkdir(strcat(O,'\PIV\_32')); for i=0:1:N-1

[x,y,u,v,snr,pkh]=matpiv(strcat(name,num2str(i,'%04.0f'),endung),strcat(name,num2str(i+1,'%04.0f'),endung),[64 64;64 64;32 32;32 32],T,0.5,'multin',kos,mask); [su,sv]=snrfilt(x,y,u,v,snr,1.3); [pu,pv]=peakfilt(x,y,su,sv,pkh,0.5); [gu,gv]=globfilt(x,y,pu,pv,4); [mu,mv]=localfilt(x,y,gu,gv,2,'median',3); [fu,fv]=naninterp(pu,pv,'linear',x,y); save(strcat(O,'\PIV\_32\PIV\_',num2str(i,'%04.0f'),'-',num2str(i+1,'%04.0f'),'.mat')); end;

%Mittelung über alle Matrizen, die oben aufgeführten Filter wurden zwar der Vollständigkeit halber verwendet, spielen aber in der nachfolgenden Auswertung keine Rolle

matrix='PIV\_'

% Präfix der Matrizen

cd(strcat(O,'\PIV\_32')); a=zeros(25,29); b=zeros(25,29); for i=0:1:N-2

cd(strcat(O,'\PIV\_32')); load(strcat(matrix,num2str(i,'%04.0f'),'-',num2str(i+1,'%04.0f'),'.mat'));

a=a+u; b=b+v; end;

 a=a/(N-2);

 b=b/(N-2);

 cla;
 % löscht Grafik im Speicher

 axis ij;
 % dreht Koordiantensystem so, dass (0,0) oben links dargestellt wird

 w=magnitude(x,y,a,b);
 h=streamslice (x,y,a,b,'color','red');

 set(h,'color','red','lineWidth',2)

hold on; quiver(x,y,a,b); hold on; pcolor(x,y,a),shading interp,colorbar; xlabel('x') ylabel('y') saveas(gcf,strcat('Mittelungen über',num2str(N),' Bilder\_u.fig'),'fig'); saveas(gcf,strcat('Mittelungen über',num2str(N),' Bilder\_u.png'),'png'); cla; % löscht Grafik im Speicher axis ij; % dreht Koordiantensystem so, dass (0,0) oben links dargestellt wird w=magnitude(x,y,a,b); h=streamslice (x,y,a,b,'color','red'); set(h,'color','red','lineWidth',2) hold on; quiver(x,y,a,b); hold on; pcolor(x,y,b),shading interp,colorbar; xlabel('x') ylabel('y') saveas(gcf,strcat('Mittelungen über',num2str(N),' Bilder\_v.fig'),'fig'); saveas(gcf,strcat('Mittelungen über',num2str(N),' Bilder\_v.png'); cla; % löscht Grafik % dreht Koordiantensystem so, dass (0,0) oben links dargestellt wird axis ij; w=magnitude(x,y,a,b); h=streamslice (x,y,a,b,'color','red'); set(h,'color','red','lineWidth',2) hold on; quiver(x,y,a,b); hold on; pcolor(x,y,w),shading interp,colorbar; xlabel('x') ylabel('y') saveas(gcf,strcat('Mittelungen über',num2str(N),' Bilder\_w.fig'),'fig'); saveas(gcf,strcat('Mittelungen über',num2str(N),' Bilder\_w.png'),'png');

## 11 Literaturverzeichnis

- 1. Einstein, A., Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen. Annalen der Physik, 1905. **322**(8): p. 549-560.
- 2. Perrin, J., *L'agitation mol'eculaire et le mouvement brownien.* C. R. Acad Sci. Paris, 1908. **146**: p. 967–70.
- 3. Meiners, J.C. and S.R. Quake, *Direct measurement of hydrodynamic cross correlations between two particles in an external potential.* Physical Review Letters, 1999. **82**(10): p. 2211-2214.
- 4. Gibson, G.M., et al., *Measuring the accuracy of particle position and force in optical tweezers using high-speed video microscopy.* Optics Express, 2008. **16**(19): p. 14561-14570.
- 5. Crocker, J.C., et al., *Two-point microrheology of inhomogeneous soft materials.* Physical Review Letters, 2000. **85**(4): p. 888-891.
- 6. Gittes, F., et al., *Microscopic viscoelasticity: Shear moduli of soft materials determined from thermal fluctuations.* Physical Review Letters, 1997. **79**(17): p. 3286-3289.
- 7. Mason, T.G. and D.A. Weitz, *Optical Measurements of Frequency-Dependent Linear Viscoelastic Moduli of Complex Fluids.* Physical Review Letters, 1995. **74**(7): p. 1250-1253.
- 8. Starrs, L. and P. Bartlett, *One- and two-point micro-rheology of viscoelastic media.* Journal of Physics-Condensed Matter, 2003. **15**(1): p. S251-S256.
- 9. Speidel, M., L. Friedrich, and A. Rohrbach, *Interferometric 3D tracking of several particles in a scanning laser focus.* Optics Express, 2009. **17**(2): p. 1003-1015.
- 10. Bustamante, C., J. Liphardt, and F. Ritort, *The nonequilibrium thermodynamics of small systems.* Physics Today, 2005. **58**(7): p. 43-48.
- 11. Trepagnier, E.H., et al., *Experimental test of Hatano and Sasa's nonequilibrium steady-state equality.* Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2004. **101**(42): p. 15038-15041.
- 12. Bammert, J., *Korrelation und Migration von Brownschen Teilchen in Strömungen*, in *Fakultät für Mathematik und Physik*. 2006, Universität Bayreuth: Bayreuth. p. 92.
- 13. Holzer, L., *Dynamics of a trapped Brownian particle in shear-flows.* European Journal of Physics, 2009. **submitted**.
- 14. Ziehl, A., *Direct measurement of shear-induced cross-correlations of Brownian motion.* Physical Review Letters, 2009. **submitted**.
- 15. Brown, R. and J.J. Bennett, *The miscellaneous botanical works of Robert Brown.* 1866, London: Published for the Ray Society by R. Hardwicke. 1 microfiche (3 fr.).
- 16. Felderhof, B.U., *Brownian-Motion and Creeping Flow on the Smoluchowski Time Scale.* Physica A, 1987. **147**(1-2): p. 203-218.
- 17. Jones, R.A.L., *Soft Condensed Matter.* 2002: Oxford University Press.
- 18. Tipler, P.A., *Physik*, ed. k. Nachdruck. 2000, Heidelberg Berlin: Spektrum Akademischer Verlag.
- 19. Kubo, R., *Fluctuation-Dissipation Theorem.* Reports on Progress in Physics, 1966. **29**: p. 255-&.

- 20. Uhlenbeck, G.E. and L.S. Ornstein, *On the Theory of the Brownian Motion.* Physical Review, 1930. **36**(5): p. 823.
- 21. Greene, R.F. and H.B. Callen, *On a Theorem of Irreversible Thermodynamics .2.* Physical Review, 1952. **88**(6): p. 1387-1391.
- 22. M. Doi, S.F.E., *The Theory of Polymer Dynamics*. 1988, Oxford University Press.
- 23. William Coffey, Y.P.K., J. T. Waldron, *The Langevin Equation: With Applications to Stochastic Problems in Physics, Chemistry, and Electrical Engineering.* 2 ed. 2004: World Scientific. 678.
- Gittes, F. and C.F. Schmidt, *Thermal noise limitations on micromechanical experiments*. European Biophysics Journal with Biophysics Letters, 1998.
   27(1): p. 75-81.
- 25. *www.wissenschaft-technik-ethik.de, Kompressibilität von Wasser.* 30.07.2009 [cited; Available from: www.wissenschaft-technikethik.de/wasser\_eigenschaften.html.
- 26. Pozrikidis, C., Introduction to Theoretical and Computational Fluid Dynamics, in Introduction to Theoretical and Computational Fluid Dynamics. 1997, Oxford University Press. p. 688.
- 27. Kawakatsu, T., *Statistical physics of polymers: an introduction*. 2004: Springer. 216.
- 28. Cichocki, B. and B.U. Felderhof, *Self-Diffusion in Suspensions of Interacting Brownian Particles.* Physical Review A, 1990. **42**(10): p. 6024-6031.
- 29. NASAImages. *Comet Hale-Bopp*. 30.07.2009 [cited; Available from: www.nasaimages.org/luna/servlet/detail/NVA2~14~14~24799~124515:Co met-Hale-Bopp.
- Wright, G., et al., *Micromanipulation in assisted reproduction: a review of current technology.* Current Opinion in Obstetrics & Gynecology, 1998.
   10(3): p. 221-226.
- 31. Ashkin, A., et al., *Observation of a Single-Beam Gradient Force Optical Trap for Dielectric Particles.* Optics Letters, 1986. **11**(5): p. 288-290.
- 32. Ashkin, A. and J.M. Dziedzic, *Optical Trapping and Manipulation of Viruses and Bacteria.* Science, 1987. **235**(4795): p. 1517-1520.
- Ashkin, A., J.M. Dziedzic, and T. Yamane, Optical Trapping and Manipulation of Single Cells Using Infrared-Laser Beams. Nature, 1987.
   330(6150): p. 769-771.
- 34. Block, S.M., D.F. Blair, and H.C. Berg, *Compliance of Bacterial Flagella Measured with Optical Tweezers.* Nature, 1989. **338**(6215): p. 514-518.
- 35. Berns, M.W., et al., *Use of a Laser-Induced Optical Force Trap to Study Chromosome Movement on the Mitotic Spindle.* Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 1989. **86**(12): p. 4539-4543.
- Ashkin, A. and J.M. Dziedzic, *Internal Cell Manipulation Using Infrared-Laser Traps.* Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 1989. 86(20): p. 7914-7918.
- 37. Perkins, T.T., et al., *Relaxation of a Single DNA Molecule Observed by Optical Microscopy.* Science, 1994. **264**(5160): p. 822-826.
- 38. Wilson, L.G., et al., *Passive and Active Microrheology of Hard-sphere Colloids.* Journal of Physical Chemistry B, 2009. **113**(12): p. 3806-3812.
- 39. Brau, R.R., et al., *Passive and active microrheology with optical tweezers.* Journal of Optics a-Pure and Applied Optics, 2007. **9**(8): p. S103-S112.

- 40. Ashkin, A., *Acceleration and Trapping of Particles by Radiation Pressure.* Physical Review Letters, 1970. **24**(4): p. 156-&.
- 41. Ashkin, A. and J.M. Dziedzic, *Optical Levitation by Radiation Pressure.* Applied Physics Letters, 1971. **19**(8): p. 283-&.
- 42. Bechhoefer, J. and S. Wilson, *Faster, cheaper, safer optical tweezers for the undergraduate laboratory.* American Journal of Physics, 2002. **70**(4): p. 393-400.
- 43. Chu, S., *Laser Manipulation of Atoms and Particles.* Science, 1991. **253**(5022): p. 861-866.
- 44. Chikkatur, A.P., et al., *A continuous source of Bose-Einstein condensed atoms.* Science, 2002. **296**(5576): p. 2193-2195.
- 45. Maiman, T.H., *Stimulated Optical Radiation in Ruby.* Nature, 1960. **187**(4736): p. 493-494.
- 46. Stilgoe, A.B., et al., *The effect of Mie resonances on trapping in optical tweezers.* Optics Express, 2008. **16**(19): p. 15039-15051.
- 47. Harada, Y. and T. Asakura, *Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime.* Optics Communications, 1996. **124**(5-6): p. 529-541.
- 48. Ashkin, A., *Forces of a Single-Beam Gradient Laser Trap on a Dielectric Sphere in the Ray Optics Regime.* Biophysical Journal, 1992. **61**(2): p. 569-582.
- 49. Sheppard, C.J.R. and F. Aguilar, *Fresnel coefficients for weak reflection, and the scattering potential for three-dimensional imaging.* Optics Communications, 1999. **162**(4-6): p. 182-186.
- 50. Jung, A., Untersuchung einer Ca2+-induzierten Erythrozytenadhäsion mittels holographischer optischer Pinzetten. 2008: Universität des Saarlandes.
- 51. Tolic-Norrelykke, I.M., K. Berg-Sorensen, and H. Flyvbjerg, *MatLab program for precision calibration of optical tweezers.* Computer Physics Communications, 2004. **159**(3): p. 225-240.
- 52. Allersma, M.W., et al., *Two-dimensional tracking of ncd motility by back focal plane interferometry.* Biophysical Journal, 1998. **74**(2): p. 1074-1085.
- 53. NIST. National Institute of Standards and Technology, Thermophysical Properties of Fluid Systems. 30.07.2009 [cited; Available from: http://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/.
- Tolic-Norrelykke, S.F., et al., Calibration of optical tweezers with positional detection in the back focal plane. Review of Scientific Instruments, 2006.
   77(10): p. -.
- 55. Wang, M.C. and G.E. Uhlenbeck, *On the Theory of the Brownian Motion II.* Reviews of Modern Physics, 1945. **17**(2-3): p. 323.
- 56. Volpe, G., G. Kozyreff, and D. Petrov, *Backscattering position detection for photonic force microscopy.* Journal of Applied Physics, 2007. **102**(8): p. -.
- 57. Berg-Sorensen, K. and H. Flyvbjerg, *Power spectrum analysis for optical tweezers.* Review of Scientific Instruments, 2004. **75**(3): p. 594-612.
- 58. Sybren Ruurds Groot, P.M., *Non-equilibrium thermodynamics*. 1984: Courier Dover Publications. 510.
- 59. Happel, J., *Low Reynolds Number Hydrodynamics with special applications to particulate media.* 1983, The Hague: Martinus Nijhoff.
- 60. Sheetz, M.P., *Laser Tweezers in Cell Biology*. 1998: Academic Press; 1st edition. 228.

- 61. Moffitt, J.R., et al., *Differential detection of dual traps improves the spatial resolution of optical tweezers.* Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2006. **103**(24): p. 9006-9011.
- 62. McDonald, J.C., et al., *Fabrication of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane).* Electrophoresis, 2000. **21**(1): p. 27-40.
- 63. Bernard, A., B. Michel, and E. Delamarche, *Micromosaic immunoassays.* Analytical Chemistry, 2001. **73**(1): p. 8-12.
- 64. Burns, M.A., et al., *An integrated nanoliter DNA analysis device.* Science, 1998. **282**(5388): p. 484-487.
- 65. Mitchell, M.C., et al., *Microchip-based synthesis and total analysis systems* (*mu SYNTAS*): chemical microprocessing for generation and analysis of *compound libraries.* Journal of the Chemical Society-Perkin Transactions 1, 2001(5): p. 514-518.
- 66. Fu, A.Y., et al., *A microfabricated fluorescence-activated cell sorter.* Nature Biotechnology, 1999. **17**(11): p. 1109-1111.
- 67. Comsol Multiphysics Modeling Guide, in Comsol Multiphysics Modeling Guide. 2006. p. 128-132.
- 68. Comsol Multiphysics User's Guide, in Comsol Multiphysics User's Guide. 2006. p. 622-647.
- 69. NANO TM SU-8 Negative Tone Photoresist Formulations 50-100, in NANO TM SU-8 Negative Tone Photoresist Formulations 50-100. 2002.
- 70. Ng, J.M.K., et al., *Components for integrated poly(dimethylsiloxane) microfluidic systems.* Electrophoresis, 2002. **23**(20): p. 3461-3473.
- 71. Sveen, J.K., *An introduction to MatPIV v.1.6.1.* Eprint no. 2, ISSN 0809-4403, Dept. of Mathematics, University of Oslo, 2004: p. 27 pp.
- 72. Leach, J., et al., *Comparison of Faxen's correction for a microsphere translating or rotating near a surface.* Physical Review E, 2009. **79**(2): p. -.
- 73. Zwanzig, R., *Nonequilibrium statistical mechanics*. 2001: Oxford University Press
- 74. Mazo, R.M., *Brownian motion: fluctuations, dynamics, and applications.* 2002: Oxford University Press.
- 75. Wang, G.M., et al., *Experimental demonstration of violations of the second law of thermodynamics for small systems and short time scales.* Physical Review Letters, 2002. **89**(5): p. -.
- 76. Saha, A., *Entropy production theorems and some consequences.* PHYSICAL REVIEW E, 2009. **80**(011117).

### 12 Index

 $\vec{S}$ : Pointing Vektor 44

<P>: mittlere Leistung 44

c: Konzentration 18 CCD: Charge Coupled Device 74 CMOS: Complementary Metal Oxide Semiconductor 74 CNC Fräse 109 Cross-talk 69, 85

D: Diffusionskonstante [m²/s] 23

E: Fallenabstand [m] 38

 $f_0: charakteristische Fallenfrequenz [Hz] 84 \\ F_R: Stokessche Reibungskraft [N] 22 \\ F_{St}: stochastische Kraft [N] 21$ 

h: Plancksches Wirkungsquantum = 6.62606896.10<sup>-34</sup> Js 44 H: Mobilitätsmatrix 35

I: Einheitsmatrix 32; Stromstärke [A] 78

k: Fallenkonstante [N/m] 24 K: Oseen-Tensor 32 k<sub>B</sub>: Boltzmann Konstante =  $1.3806504 \cdot 10^{-23} J/K$  9, 22

Laser: Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation 43

m: effektiver Brechungsindex 45 M: Matrix 137

n: Brechungsindex des umgebenden Mediums 45 NA: numerische Apertur 57

PDMS: Polydimethylsiloxan, Polymer 104 PIV: Particle Image Velocimetry 14, 105 PSD: Position Sensitive Detector 67, 76 PTV: Particle Tracking Velocimetry 97

R: Kugelradius [m] 17, 22, 45, 94 Re: Reynoldszahl 22

S: Schermatrix 136

T: absolute Temperatur [K] 22

U: Spannung [V] 60

v: Relativgeschwindigkeit [m/s] 25 Varianz [m<sup>2</sup>] 24

W: Weissenbergzahl 98, 138, 142

χ: Kompressibilitätskoeffizient [bar-11] 30

 $\eta$ : Viskosität [Pas] 22

λ: Eigenwerte Mobilitätsmatrix 125; Wellenlänge [m] 44, 45, 62

 $\mu :$  Verhältnis Kugelradius zu Fallenabstand 124

v: Frequenz [Hz] 44

 $\rho$ : Dichte [kg/m<sup>3</sup>] 22, 30

- $\tau$ : inverse Relaxationszeit [s<sup>-1</sup>] 87
- ζ: Reibungskoeffizient [Pasm] 19, 22

## 13 Danksagung

Mein Dank richtet sich zuallererst an Prof. Dr. Christian Wagner, Gruppenleiter der Technischen Physik an der Universität des Saarlandes. In seiner Arbeitsgruppe wurde meine Promotion ermöglicht. Neben dem großen finanziellen Rückhalt, der insbesondere den experimentellen Teil betraf, bedanke ich mich vor allem auch für die Unterstützung auf fachlicher und persönlicher Ebene. Bei allen Herausforderungen während der Promotion, besonders in der Aufbau- und Messphase, stand er nicht nur als wissenschaftlicher Begleiter, sondern auch als Motivator und Gesprächspartner zur Seite.

Das komplette theoretische Grundgerüst der Arbeit wurde von Jochen Bammert und Prof. Dr. Walter Zimmermann der Theoretischen Physik I an der Universität Bayreuth aufgestellt. Sie waren Initiator für die experimentelle Untersuchung und damit für diese Arbeit. Sie waren jederzeit Ansprechpartner für die theoretischen Vorhersagen und trugen maßgeblich zum Verständnis und der Interpretation der Ergebnisse bei.

Bei Dr. Thomas Pfohl und Dr. Heather Evans vom Max Planck Institut für Dynamik und Selbstorganisation in Göttingen möchte ich mich für die Hilfe bei der Herstellung der mikrofluidischen Flusszelle bedanken.

Ich möchte mich außerdem bei der ganzen Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Christian Wagner und Dr. Patrik Huber für das angenehme Arbeisklima bedanken. Insbesondere die Diskussionen im kleinen Kreis mit Dr. Heinz Schmitt, Michael Schmidt und Andreas Zell waren nicht nur fachlich eine absolute Bereicherung. Außerdem möchte ich mich bei Dr. Achim Jung für seine fachliche Hilfestellung bezüglich optischer Pinzetten und seinen persönlichen hilfreichen Anregungen bedanken.

Ein weiterer Dank geht an die mechanische Werkstatt der Physik an der Universität des Saarlandes unter der Leitung von Michael Schmidt. Durch praktische Tipps und Ideen sowie deren Umsetzung gelang es, auftretende Probleme zu meistern. Insbesondere die Aufbauphase wurde durch die Werkstatt wesentlich begleitet.

Zuletzt möchte ich meiner ganzen Familie danken. Meine Eltern, Schwiegereltern und besonders meine Frau haben mich bei dieser Arbeit nicht nur moralisch begleitet. Sie haben mich wesentlich beeinflusst und immer die notwendige Unterstützung geleistet.

## Eidesstattliche Versicherung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus anderen Quellen oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form in einem Verfahren zur Erlangung eines akademischen Grades vorgelegt.

Saarbrücken, den

Andreas Ziehl